



HAL
open science

**Les particules dans les réseaux d'eau potable :
caractérisation et impact sur la qualité de l'eau
distribuée**

Vincent Gauthier

► **To cite this version:**

Vincent Gauthier. Les particules dans les réseaux d'eau potable : caractérisation et impact sur la qualité de l'eau distribuée. Autre. Université Henri Poincaré - Nancy 1, 1998. Français. NNT : 1998NAN12004 . tel-01748105

HAL Id: tel-01748105

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748105v1>

Submitted on 29 Mar 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

UNIVERSITE HENRI POINCARÉ - NANCY I
1998

ECOLE DOCTORALE "BIOLOGIE ET SANTE"

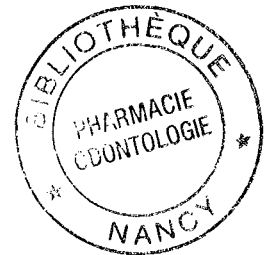
THÈSE

Présentée et soutenue publiquement
le 18 mai 1998

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE
HENRI POINCARÉ - NANCY I
Mention Chimie et Microbiologie de l'Eau

par Vincent GAUTHIER



Les particules dans les réseaux d'eau potable : caractérisation et impact sur la qualité de l'eau distribuée

MEMBRES DU JURY

Rapporteurs : Michèle PREVOST (Professeur - Ecole Polytechnique de Montréal)
Pierre SERVAIS (Directeur de Recherche - Université Libre de Bruxelles)

Juges : Jean-Claude BLOCK (Professeur - Université Henri Poincaré-Nancy I)
Dominique GATEL (Ingénieur Principal - Compagnie Générale des Eaux)
Janine GIBERT (Professeur - Université Claude Bernard - Lyon I)
David HOLT (Technical Evaluations Manager - Thames Water Utilities)



104 031738 2

Remerciements

Je souhaite remercier ici les organismes partenaires du programme de recherche "Biofilm" (et leurs représentants), qui, par leur participation technique et financière, ont permis la réalisation du travail présenté dans ce mémoire de thèse :

- Agence de l'Eau Seine-Normandie,
- Centre International de l'Eau de Nancy,
- Communauté Urbaine du Grand Nancy,
- Compagnie Générale des Eaux/Anjou Recherche,
- Office National de l'Eau Potable du Maroc,
- Pont-à-Mousson S.A.,
- Syndicat des Eaux d'Ile de France,
- U.S. Environmental Protection Agency.

La réalisation des prélèvements et analyses a nécessité la mise en oeuvre des compétences de plusieurs équipes que je remercie vivement pour leur accueil, leur patience et leur aide :

- CPB (B. Gérard, T. Orel et J.M. Portal)
- CUGN (J. César, M. Thèse, D. Merlanchon, P. Chaix, C. Guillaume entre autres)
- ENSG-LEM (J. Yvon et collaborateurs)
- LHRSP (principalement N. Dubief, C. Magnier, L. Mathieu, N. Sciaux, C. Rosin)
- LSGC (M. Sardin et J.F. Rémy)
- Nancéienne des Eaux (G. Blachère)

N. Rolin, E. Loth, Y Bizet, C. Collet, D. DiPasquali, S. Rédercher ont été directement associés à la réalisation des expérimentations présentées dans ce manuscrit qui leur doit donc beaucoup.

Enfin, Jean-Claude Block, en tant que Directeur de Thèse, a été le principal co-auteur implicite de ce travail, en particulier au niveau de sa définition et de sa mise en forme finale. Merci.

Liste des publications et communications

PUBLICATIONS

- Gauthier V., Gérard B., Portal J.M., Block J.C., Gatel D.
Organic matter as loose deposits in drinking water distribution systems,
Accepted in Water Research (May 1998).
- Gauthier V., Portal J.M., Yvon J., Rosin C., Block J.C.
Accumulation de bactéries et de matière organique dans les dépôts des réservoirs d'eau potable,
To be submitted to Water Research (May 1998).
- Gauthier V., Rédercher S., Block J.C.
Chlorine inactivation of bacteria attached to goethite particles in drinking water,
Submitted to Applied Environmental Microbiology (March 1998).
- Morin P., Gauthier V., Saby S., Block J.C., 1998
Bacterial resistance to chlorine through attachment to particles and pipe surfaces in drinking water distribution systems,
In "Biofilms in Aquatic Systems", ed by The Royal Society of Chemistry.

COMMUNICATIONS PUBLIEES

- Gauthier V., Portal J.M., Rosin C., Block J.C., Cavard J., Gatel D., 1997,
How good are water distribution systems for transport of particulate matter ?,
Proc. Water Quality Technol. Conf. of Amer. Water Wks Assoc., Denver, Co, USA, 17 pages.
- Gauthier V., Rosin C., Mathieu L., Portal J.M., Block J.C., Chaix P., Gatel D., 1996,
Characterization of the loose deposits in drinking water distribution systems,
Proc. Water Quality Technol. Conf. of Amer. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA, 14 pages.

COMMUNICATIONS

- Gauthier V., Rosin C., Mathieu L., Portal J.M., Block J.C., Chaix P., Gatel D., 1996,
Characterization of the loose deposits in drinking water distribution systems,
Poster for the European Research Conference on "Natural waters and water technology: water treatment processes", Aghia Pelaghia, Greece.
- Gauthier V., Gérard B., Portal J.M., Block J.C., Gatel D., 1996,
La matière organique particulaire des réseaux de distribution d'eau potable,
Communication at the International Workshop "Influence of natural organic matter characteristics on drinking water treatment and quality", University of Poitiers, France.
- Gauthier V., Block J.C., 1995
Design of drinking water distribution system reactors and devices for biofilm measurement,
International Seminar on Biodegradable Organic Matter, Center for Biofilm Engineering, Montana State University, Bozeman, USA.

Les particules dans les réseaux d'eau potable : caractérisation et impact sur la qualité de l'eau distribuée

Sommaire

| | |
|------------------------------------|---|
| Introduction générale | 5 |
|------------------------------------|---|

Chapitre I : Analyse bibliographique

| | | |
|---------|---|----|
| I.1 | Définition de la matière particulaire des réseaux de distribution..... | 10 |
| I.1.1 | Particules en suspension dans la phase eau..... | 10 |
| I.1.2 | Dépôts..... | 13 |
| I.2 | Particules présentes dans l'eau d'alimentation des réseaux de distribution | 14 |
| I.2.1 | Elimination des particules en suspension par les filtres | 15 |
| I.2.2 | Production de particules par les filtres | 17 |
| I.2.3 | Particules provenant de matériaux des filtres et des réactifs utilisés en aval..... | 18 |
| I.3 | Nature et origine des particules en suspension et dépôts dans les réseaux de distribution..... | 19 |
| I.3.1 | Caractéristiques générales | 19 |
| I.3.2 | Précipitation/floculation..... | 21 |
| I.3.3 | Croissance biologique..... | 22 |
| I.3.4 | Dégradation des matériaux en contact avec l'eau..... | 23 |
| I.4 | Transport et accumulation des particules dans les réseaux..... | 24 |
| I.5 | Impact des particules sur la qualité de l'eau..... | 26 |
| I.5.1 | Détérioration organoleptique de la qualité de l'eau..... | 26 |
| I.5.2 | Contamination microbiologique de l'eau associée à la présence de particules..... | 27 |
| I.5.2.1 | Contamination microbiologique lors d'événements turbides..... | 27 |
| I.5.2.2 | Micro-organismes associés aux particules..... | 29 |
| I.5.3 | Micro-polluants associés aux particules accumulées en réseau..... | 31 |
| I.5.4 | Impact "indirect" des particules sur la qualité de l'eau | 32 |
| I.6 | Conclusion..... | 33 |

Chapitre II : Caractérisation des particules en suspension et déposées dans les réseaux de distribution

| | | |
|------|--|----|
| II.1 | Introduction..... | 36 |
| II.2 | Characterization of loose deposits in drinking water distribution systems..... | 37 |
| II.3 | Organic matter as loose deposits in a drinking water distribution system..... | 50 |
| II.4 | How good are distribution systems for the transport of particulate matter ?..... | 71 |

| | | |
|--------|--|-----------|
| II.5 | Caractérisations complémentaires..... | 86 |
| II.5.1 | Micropolluants associés aux dépôts de réservoir | 86 |
| II.5.2 | Classification des échantillons de dépôts par analyse en composante principale | 89 |
| II.5.3 | Fraction minérale des dépôts de réservoir et canalisation | 91 |
| | <i>II.5.3.1 Caractérisation de la fraction minérale des dépôts par diffraction X et spectrométrie infrarouge</i> | <i>91</i> |
| | <i>II.5.3.2 Caractérisation de la fraction minérale des dépôts par microscopie électronique</i> | <i>92</i> |
| II.5.4 | Fraction minérale des particules en suspension..... | 98 |
| II.6 | Discussion | 104 |

Chapitre III : Accumulation de bactéries et de matière organique dans les dépôts des réservoirs d'eau potable

| | | |
|---------|--|-----|
| III.1 | Introduction..... | 110 |
| III.2 | Matériel et méthodes..... | 112 |
| III.2.1 | Réservoirs étudiés | 112 |
| III.2.2 | Dépôts et prélèvements..... | 114 |
| III.2.3 | Analyses de l'eau..... | 115 |
| III.2.4 | Particules en suspension..... | 116 |
| III.2.5 | Quantité de dépôts accumulés..... | 116 |
| III.2.6 | Carbone et azote dans les dépôts..... | 116 |
| III.2.7 | Bactéries des dépôts..... | 117 |
| III.3 | Résultats | 117 |
| III.3.1 | Caractéristiques des eaux d'alimentation des réservoirs | 117 |
| III.3.2 | Accumulation de dépôts dans les réservoirs..... | 120 |
| III.3.3 | Impact de la filtration de l'eau sur l'accumulation de matière organique et de bactéries dans les dépôts | 125 |
| III.3.4 | Impact de la filtration sur la qualité de l'eau en sortie de réservoir..... | 127 |
| III.4 | Discussion/conclusion..... | 128 |
| | Références bibliographiques | 131 |

Chapitre IV : Inactivation des bactéries associées aux particules en réseau de distribution

| | | |
|------|---|------------|
| IV.1 | Introduction..... | 136 |
| IV.2 | Bacterial Resistance to Chlorine through Attachment to Particles and Pipe Surfaces in Drinking Water Distribution Systems | 137 |
| IV.3 | Chlorine inactivation of bacteria attached to goethite particles in drinking water..... | 158 |
| IV.4 | Discussion | 166 |
| | Conclusions générales..... | 175 |
| | Références bibliographiques..... | 179 |
| | Annexes | 189 |



Introduction générale

Comme dans les systèmes aquatiques naturels, l'eau des réseaux de distribution transporte des particules susceptibles de s'accumuler sous forme de sédiments et d'être remises en suspension, avec des quantités de matière en suspension et des épaisseurs de sédiments toutefois nettement inférieures à celles des milieux naturels. Les particules en suspension dans les eaux de surface sont en effet en grande partie éliminées lors des traitements de potabilisation par coagulation/décantation/filtration, et la détection de particules en suspension dans l'eau traitée est un signal d'alerte du dysfonctionnement de l'usine. Dans le réseau de distribution, la présence de matière particulaire, définie par une taille supérieure à quelques micromètres, est en générale discrète : le gestionnaire du réseau de distribution constate sa présence au niveau des dépôts dans les conduites et réservoirs du réseau de distribution, et tente de limiter son accumulation par des campagnes de nettoyage. La remise en suspension des dépôts est toutefois parfois observée, en particulier lors de variations soudaines de la vitesse de l'écoulement dans les canalisations, et des quantités importantes de particules en suspension sont alors retrouvées dans l'eau distribuée au consommateur.

Les conséquences de la présence de particule en suspension et de l'accumulation de dépôts sur la stabilité biologique de l'eau transportée par les réseaux sont aujourd'hui mal évaluées, alors que l'importance des dépôts (*via* les transferts à l'interface eau-sédiment) apparaissent prépondérant vis-à-vis du cycle de la matière organique dans de nombreux systèmes aquatiques naturels.

De fait, les problèmes associés à la présence de particules en réseau se situent principalement à cinq niveaux :

- plaintes et perte de confiance des consommateurs qui constatent parfois *de visu* la qualité défectueuse de l'eau (coloration et/ou turbidité) ;
- contamination microbienne de l'eau résultant (a) de la présence de "particules biologiques" pathogènes (de par leur taille, les protozoaires sont assimilables à des particules et certains sont pathogènes) ; (b) de la neutralisation du désinfectant par les particules provoquant une moindre exposition des micro-organismes associées ;
- contamination chimique de l'eau par des particules de plomb, ou par des micro-polluants associés aux dépôts remis en suspension ;
- accumulation de matière organique servant de point de départ à l'établissement d'une chaîne trophique riche et diversifiée au sein du réseau ;
- formation de zones anoxiques dans les dépôts induisant des problèmes de goûts et odeurs au niveau de l'eau, et de corrosion des canalisations métalliques.

Les nuisances liées au transport et à l'accumulation de particules dans les canalisations et réservoirs d'eau potable sont toutefois souvent potentielles et leur ampleur réelle en réseau de distribution est difficile à évaluer.

A l'heure où des traitements de plus en plus performants sont mis en oeuvre au niveau des unités de potabilisation, avec en particulier la mise au point des procédés d'ultra- et nano-filtration, ce travail a été initié pour mieux connaître la présence, le transport et l'impact sur la qualité de l'eau de la matière particulaire dans les réseaux d'eau potable. Trois objectifs principaux ont été distingués : (i) caractériser les particules en suspension ou déposées dans un réseau de distribution réel, (ii) identifier l'origine et les mécanismes d'accumulation des particules, en particulier organiques et biologiques, dans les ouvrages des réseaux de distribution, (iii) évaluer le rôle des particules en suspension sur la résistance des populations bactériennes à une désinfection par le chlore.

L'analyse bibliographique constitue le premier Chapitre. Une définition des particules en suspension et des dépôts de réseaux de distribution est tout d'abord proposée, et les données de la littérature sont comparées et discutées pour expliquer la présence de particules en suspension dans l'eau admise dans les réseaux de distribution. De même, les particules retrouvées en réseau de distribution sont présentées en fonction de leur nature et de leur origine potentielle. Le transport des particules dans les réseaux est ensuite évoqué, et cette partie bibliographique est conclue par une section qui présente l'impact (potentiel ou mesuré) des particules en suspension et des dépôts sur la qualité de l'eau distribuée.

Le Chapitre II présente les différentes étapes de la caractérisation des particules en suspension et déposées dans un réseau de distribution réel, le réseau de la Communauté Urbaine du Grand Nancy. Cette approche expérimentale "grandeur nature" a été rendue nécessaire par le manque de données bibliographiques permettant d'obtenir une vision d'ensemble de la matière particulaire (nature et quantité) à l'échelle d'un réseau de distribution.

La caractérisation des dépôts du réseau étudié constitue la première partie de ce chapitre, et permet la comparaison des différents types de dépôts (*i.e.* réservoirs *versus* canalisations, et amont *versus* aval). Cette section a fait l'objet d'un article intitulé "Characterization of loose deposits in drinking water distribution systems" et publié dans les actes de la "Water Quality Technological Conference" de l'American Water Works Association (Boston, USA, Nov. 1996).

La composition organique et biologique de ces mêmes dépôts de réservoirs et de canalisations est détaillée dans la deuxième partie de ce chapitre qui est constituée d'un projet d'article accepté pour publication dans la revue *Water Research*. Les relations entre les densités bactériennes, les fractions de carbone organique et d'azote, et la demande en chlore sont en particulier étudiées.

Le troisième aspect de cette caractérisation concerne les particules en suspension. Les concentrations massiques et les compositions élémentaires sont comparées entre les points de

prélèvements situés en entrée du réseau de distribution (donc en sortie d'usine de traitement) et au niveau de points de consommation, permettant d'évaluer l'impact du transit en réseau sur la charge particulaire de l'eau. La nature des particules en suspension est aussi comparée à celle des dépôts du même réseau de distribution. Cette section a fait l'objet d'un article intitulé "How good are distribution systems for the transport of particulate matter ?" publié dans les actes de la "Water Quality Technological Conference" de l'Am. Water Works Assoc. (Denver, USA, Nov. 1997).

Des caractérisations complémentaires constituent la dernière partie de ce chapitre II : en effet, au delà des analyses chimiques et microbiologiques classiques réalisées systématiquement, il était tentant d'utiliser des techniques plus fines sur un nombre restreint d'échantillons, afin d'identifier la nature des particules prises individuellement et les micro-polluants organiques associés aux dépôts. Les résultats obtenus sont bien sûr dépendants du site d'étude et ne peuvent être extrapolés sans précautions à d'autres réseaux de distribution. Néanmoins, ils permettent d'obtenir une vision d'ensemble du transport et de l'accumulation des particules à l'échelle d'un réseau.

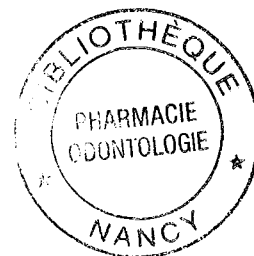
Les mécanismes d'accumulation de la matière organique et des bactéries au niveau des dépôts de réservoir sont étudiés au Chapitre III. L'influence du type de dépôts sur l'accumulation de bactéries et de matière organique est d'abord mesurée, puis l'impact sur les dépôts et la phase eau d'une filtration de l'eau d'alimentation des réservoirs permettant d'éliminer l'intégralité des particules en suspension de l'eau est étudié. Une telle approche expérimentale met en oeuvre des réservoirs pilotes et réels et permet aussi des mesures de vitesse d'accumulation de dépôts. Ce chapitre est présenté sous forme de projet de publication pour la revue Water Research.

Le Chapitre IV concerne l'impact des particules sur la qualité microbiologique de l'eau, et plus particulièrement la résistance à la désinfection des populations bactériennes résultant de leur attachement aux particules. La question est abordée sous deux aspects, bibliographiques et expérimentaux. Le premier a fait l'objet d'une revue bibliographique intitulée "Bacterial resistance to chlorine through attachment to particles and pipe surfaces in drinking water distribution systems" et présentée à la conférence "Biofilms in Aquatic Systems" organisée par la Royal Society of Chemistry à l'Université de Warwick, Grande-Bretagne, du 14 au 16 avril 1997. Le second a permis, à l'échelle de particule-modèles colonisées en laboratoire, de tester l'hypothèse d'une protection liée à la fixation sur la surface, ou bien résultant de l'agrégation des bactéries. Il fait l'objet d'un projet de publication soumis à la revue Applied Environmental Microbiology, et intitulé "Chlorine inactivation of bacteria attached to goethite particles in drinking water".

Enfin, le chapitre "Conclusions générales" récapitule les principaux résultats obtenus et permet une remise en situation globale mettant en évidence les enjeux de la connaissance et de la maîtrise de la matière particulaire en réseau de distribution.

NB : les références bibliographiques utilisées dans les sections de ce document qui font l'objet d'articles soumis ou publiés sont systématiquement présentées à la fin de chaque article correspondant, alors que les références des autres sections sont regroupées en fin de document ainsi que les annexes.

Chapitre I : Analyse bibliographique



Sommaire

| | |
|---|-----------|
| I.1 Définition de la matière particulaire des réseaux de distribution..... | 10 |
| I.1.1 Particules en suspension dans la phase eau..... | 10 |
| I.1.2 Dépôts..... | 13 |
| I.2 Particules présentes dans l'eau d'alimentation des réseaux de distribution..... | 14 |
| I.2.1 Elimination des particules en suspension par les filtres..... | 15 |
| I.2.2 Production de particules par les filtres..... | 17 |
| I.2.3 Particules provenant de matériaux des filtres et des réactifs utilisés en aval | 18 |
| I.3 Nature et origine des particules en suspension et dépôts dans les réseaux de distribution..... | 19 |
| I.3.1 Caractéristiques générales..... | 19 |
| I.3.2 Précipitation/floculation | 21 |
| I.3.3 Croissance biologique..... | 22 |
| I.3.4 Dégradation des matériaux en contact avec l'eau..... | 23 |
| I.4 Transport et accumulation des particules dans les réseaux..... | 24 |
| I.5 Impact des particules sur la qualité de l'eau | 26 |
| I.5.1 Détérioration organoleptique de la qualité de l'eau..... | 26 |
| I.5.2 Contamination microbiologique de l'eau associée à la présence de particules ... | 27 |
| I.5.2.1 Contamination microbiologique lors d'événements turbides | 27 |
| I.5.2.2 Micro-organismes associés aux particules..... | 29 |
| I.5.3 Micro-polluants associés aux particules accumulées en réseau..... | 31 |
| I.5.4 Impact "indirect" des particules sur la qualité de l'eau..... | 32 |
| I.6 Conclusion..... | 33 |

Chapitre I : Analyse bibliographique

Les particules présentes en suspension dans toutes les eaux à des concentrations variables jouent un rôle essentiel dans le transfert de matière organique et minérale d'un milieu à l'autre, que ce soit des eaux douces aux océans, ou de la phase liquide aux sédiments (Eisma, 1993). En matière d'eau potable, les particules en suspension sont indésirables parce qu'elles génèrent des nuisances microbiologiques, chimiques ou organoleptiques, et leur élimination lors des traitements de potabilisation met en oeuvre des procédés physiques (décantation, filtration en profondeur ou sur membrane) souvent couplés avec des procédés chimiques (coagulation par exemple).

En aval des usines, dans le réseau de distribution, les développements récents en matière de modélisation et de capteurs permettent d'évaluer l'évolution de la qualité de l'eau, de par sa réactivité propre, et aussi du fait de son contact avec les éléments constitutifs du réseau (réservoirs, canalisations, pompes...) (Desjardins *et al.*, 1991 et 1997 ; Kerneis *et al.*, 1995 ; Mathieu *et al.*, 1992). Les modèles "qualité" les plus récents (Servais *et al.*, 1995 ; Lu *et al.*, 1995 ; Dukan *et al.*, 1996 ; Bois *et al.*, 1997) intègrent ainsi l'évolution de quelques substances dissoutes (carbone organique, chlore) et des bactéries, mais ne prennent pas en compte la matière particulaire, en partie par manque d'information disponible. Le transport des particules est *a priori* très différent de celui des substances dissoutes (Biswas *et al.*, 1991) en particulier du fait de leur capacité de sédimentation dans certaines zones du réseau. Leur remise en suspension lors d'une modification brutale de la vitesse de l'écoulement peut provoquer une augmentation de la charge particulaire de l'eau incompatible avec la notion d'eau potable.

La présente analyse bibliographique tente de répondre aux questions principales suivantes :

- Comment définir la matière particulaire des réseaux de distribution ?
- Quelles sont la nature et l'origine de ces particules ?
- Comment sont-elles transportées dans le réseau de distribution ?
- Quel est leur impact sur la qualité de l'eau distribuée ?

I.1 Définition de la matière particulaire des réseaux de distribution

I.1.1 Particules en suspension dans la phase eau

La notion de particule en suspension dans l'eau est plutôt mal définie en général : à partir du moment où il est nécessaire de fixer une limite entre ce qui est particulaire et ce qui est dissous, on se heurte à quelques problèmes car la matière a une continuité naturelle telle que la définition d'une limite procède toujours d'un certain arbitraire résultant le plus souvent d'un choix méthodologique.

Schwarzenbach *et al.* (1993) définit les plus petites particules (appelées colloïdes) comme étant assez petites pour être soumises prioritairement au mouvement Brownien (et non à la gravitation), et assez grandes pour pouvoir fournir un "environnement" microscopique dans lequel les molécules du milieu aqueux peuvent s'échapper. Ces colloïdes mesurent de quelques nanomètres à quelques microns (Nagata et Kirchman, 1997). Gustafsson et Gschwend (1997) développent cette définition "chemocentrique" des colloïdes basée sur leurs propriétés d'échange avec les molécules de la phase liquide (Fig. I.1). Par opposition les particules non colloïdales, plus grosses et/ou plus denses, sont capables de sédimenter dans les milieux considérés.

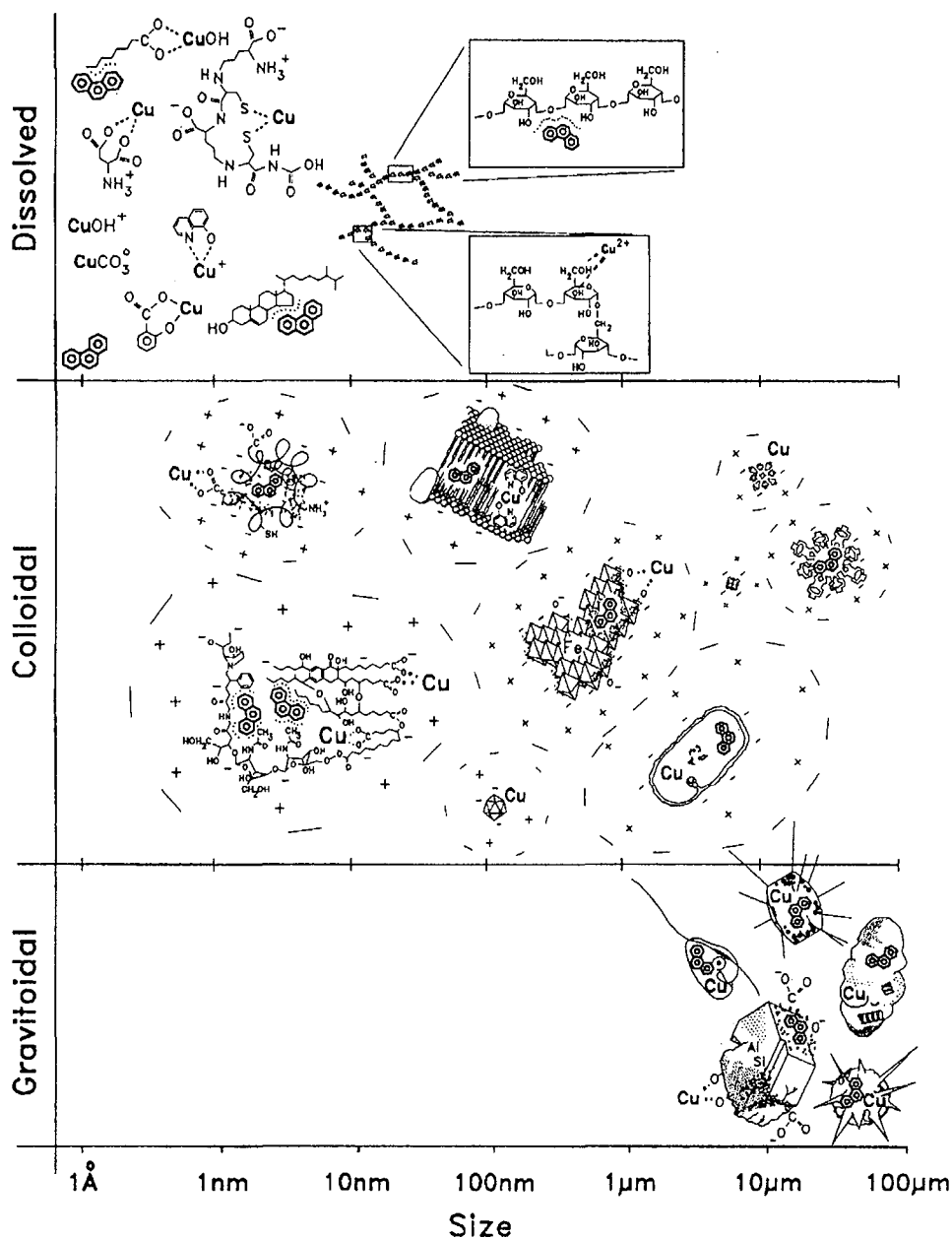


Figure I.1 : Diagramme de spéciation "chemocentrique" de la matière en trois catégories (dissous, colloïdal, sédimentable) et classes de taille associées (d'après Gustafsson et Gschwend, 1997)

Dans la pratique, la plupart des chercheurs réalisent des fractionnements par filtration pour isoler les matières dissoutes, particulaires et parfois colloïdales des milieux naturels (Tranvik, 1994; Middleboe et Sondergaard, 1995; Cripps, 1995). Les biais liés à de telles procédures d'échantillonnage ont été récemment évalués par Chen et Buffle (1996a et b) et cette équipe a développé un protocole original de séparation de la matière particulaire par sédimentation (2 h) et récupération des colloïdes par ultracentrifugation ultérieure (Perret *et al.*, 1994; Buffle et Leppard, 1995), et l'a appliqué à la caractérisation des eaux de rivière (Newman *et al.*, 1994). Pour le même type d'échantillon, Rostad *et al.* (1997) sélectionnent les particules par une centrifugation en continu à 15000 g, puis récupère les colloïdes en aval de la centrifugation par filtration tangentielle sur membrane de 0,005 μm .

Hormis la distinction de la fraction colloïdale par rapport aux fractions dissoutes et sédimentables, la séparation des particules de la phase aqueuse met en évidence de grandes différences de seuils de coupure reflétant les objectifs et méthodologies de différentes communautés scientifiques et techniques : par exemple, Eisma (1993) pose par convention que la matière particulaire est celle retenue sur filtre 0,4 à 0,5 μm , et les Standard Methods (1992) proposent différents seuils suivant le type d'analyse réalisée : 2 μm pour séparer les matières dissoutes et en suspension, 0,45 μm pour séparer les métaux dissous et en suspension, et 0,2 μm pour éliminer la plus grande partie de la turbidité d'une eau.

Dans le domaine des eaux potables, les colloïdes n'ont quasiment pas été étudiés en tant que tels en aval des usines de traitement. L'évaluation quotidienne de la charge particulaire est le plus souvent effectuée par la mesure de la turbidité qui repose sur un principe optique, la capacité d'une suspension à interagir avec un faisceau lumineux, ce qui résulte de la diffusion, diffraction, réfraction, dispersion et absorption par les particules et colloïdes. Cette mesure est difficilement corrélable avec le nombre de particules, ou leur concentration massique, du fait que la forme, la taille et la nature des particules influencent directement leurs propriétés optiques, sauf dans certains cas particuliers où le type de particules est relativement constant (Hofmann et Dominik, 1995).

Quelques études spécifiques sur les particules en suspension dans l'eau potable ont fait appel à la filtration frontale avec des seuils de coupure fonction des objectifs propres à chaque étude. Brazos et O'Connor (1990), Sly *et al.* (1990), Stringfellow *et al.* (1993) ont ainsi utilisé des filtres de porosité 3 et 5 μm pour évaluer la charge particulaire de l'eau traitée ou distribuée, alors que Ridgway et Olson (1982) et LeChevallier *et al.* (1987) ont filtré de l'eau potable sur des membranes 2 et 12 μm à la recherche de particules colonisées. Lorsqu'un compteur de particules est utilisé pour dénombrer les particules en suspension dans l'eau (McCoy et Olson, 1986 ; Alere et Hanæus, 1997), la définition des particules est tout autant arbitraire que dans le cas de la filtration puisque uniquement basée sur le seuil de détection du capteur utilisé. Les quantités de particules mesurées dans l'eau potable vont de quelques centaines à plusieurs dizaines de milliers de particules par mL suivant la technique utilisée (Brazos et O'Connor, 1990 ; McCoy et Olson,

1986 ; Alere et Hanæus, 1997), et aucune donnée n'est disponible sur les concentration massiques correspondantes.

I.1.2 Dépôts

La matière en suspension peut s'accumuler sur les parois des conduites et réservoirs des réseaux de distribution sous forme de dépôts qui peuvent être remis en suspension lors d'une accélération soudaine de l'écoulement connexe. La définition des dépôts inclut non seulement la matière accumulée par sédimentation, mais aussi les floes adsorbés sur toute la surface de la canalisation (et pas seulement déposés dans le fond), les particules de corrosion détachées des canalisations métalliques corrodées, ainsi que la matière accumulée par croissance biologique. Par opposition ne sont pas inclus les précipités de carbonate de calcium formant une croûte solide à la surface des conduites, ni les tubercules de corrosion suffisamment résistants dans les conditions locales de l'écoulement, et qui ne sont pas susceptibles d'être retrouvés dans la phase eau sans moyens mécaniques de nettoyage. Ces définitions correspondent à celles employées en langue Anglaise pour opposer les "loose deposits"(dépôts non fixés) et les "encrustations"(dépôts fixés) (Smith *et al.*, 1997).

La récupération des dépôts peut s'opérer de trois manières principales :

- mise en place d'un piège à sédiment (Mudrock et MacKnight, 1991; Bloesch, 1997; Bartsch *et al.*, 1996) durant un temps défini dans un ouvrage ; cette méthode issue des études "milieu naturel" est en cours d'évaluation dans les réservoirs d'eau potable (D. Gatel, communication personnelle) ;
- récupération directement sur le radier du réservoir après sa vidange (le réservoir sert de fait de gigantesque piège à sédiment), ou dans des sections de canalisations après congélation/extraction (Ainsworth, 1978) ;
- purge de canalisation : les dépôts sont remis en suspension en fonction de la vitesse de l'écoulement et récupérés (i) à l'aide d'un filet à plancton, ou (ii) dans l'eau de purge sous forme de particules en suspension, concentrées ensuite par filtration ou décantation. La récupération des dépôts par purge est de loin la plus pratiquée du fait de sa relative simplicité de mise en oeuvre, en particulier pour évaluer les besoins et efficacités des campagnes de nettoyage (Charpentier et Courcier, 1989; Vibert *et al.*, 1991). Néanmoins tous les dépôts ne sont pas remis en suspension (Sakakibara, 1996), et la collecte de petites particules est difficile.

Contrairement aux particules en suspensions qui reflètent la qualité instantanée de l'eau distribuée, la caractérisation des dépôts intègre l'historique du fonctionnement du réseau de distribution, puisque leur accumulation est en général étalée sur plusieurs mois ou années.

Les paragraphes I.2 et I.3 présentent respectivement (a) la matière particulaire introduite dans les réseaux de distribution avec l'eau d'alimentation, et (b) la matière retrouvée dans l'eau et les

dépôts des réseaux de distribution (Fig. I.2). Cette distinction entre les particules introduites et celles retrouvées dans les canalisations et réservoirs est directement inspirée de celle faite par les praticiens qui d'une part exploitent les unités de traitement ou d'autre part gèrent le fonctionnement des réseaux de distribution

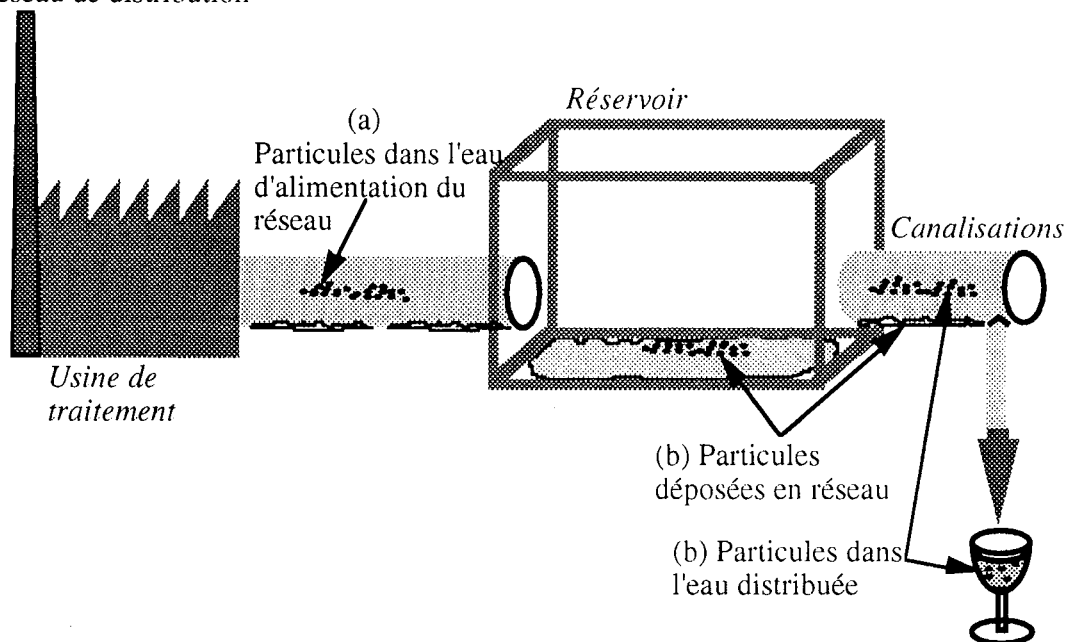


Figure I.2 : Localisation des particules en suspension et déposées ne réseau de distribution.

I.2 Particules présentes dans l'eau d'alimentation des réseaux de distribution

Lorsque la qualité de la ressource est bonne (eau de source, nappe phréatique), l'eau est admise directement dans le réseau de distribution sans filtration aucune. Or, en particulier en milieu karstique (Ryan et Meiman, 1996), les précipitations pluvieuses peuvent engendrer une augmentation brève, mais importante de la charge particulaire de la ressource qui est alors directement transmise au réseau de distribution (Tazi-Pain *et al.*, 1991). Une fraction de cette matière en suspension sédimente alors dans le réseau, formant des dépôts susceptibles d'affecter la qualité de l'eau distribuée alors que la ressource aura retrouvé sa qualité habituelle. Lévi *et al.* (1992) attribuent d'ailleurs à la ressource (non filtrée) les débris de micro-organismes retrouvés dans les dépôts du réseau de la ville de Nice, n'ayant pas identifié d'organismes vivants à l'intérieur du réseau.

Lorsqu'un traitement plus complet incluant une filtration en profondeur est nécessaire pour potabiliser l'eau brute, les particules présentes dans l'eau traitée résultent principalement de trois mécanismes superposés (Figure I.3) :

- a) la pénétration de particules non éliminées par filtration,
- b) le détachement de matière particulaire produite à l'intérieur des filtres
- c) le relargage de particules (fines) de matériau filtrant

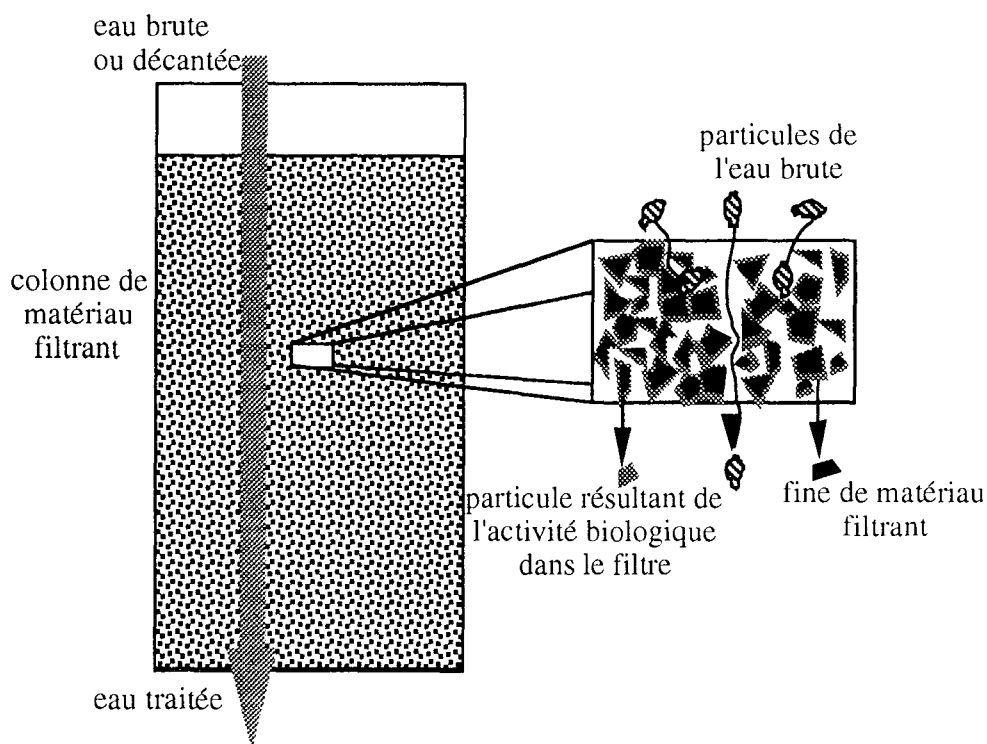


Figure I.3 : Origine des particules dans l'effluent d'un filtre en profondeur.

I.2.1 Elimination des particules en suspension par les filtres

Durant la filtration, le nombre de particules capturées par le filtre augmente régulièrement avec le volume d'eau filtrée (Ginn et Amirtharajah, 1990), mais l'effluent n'est pas pour autant exempt de particules, car toutes ne sont pas capturées par le matériau filtrant : c'est le cas en particulier des petites particules d'environ $1 \mu\text{m}$ pour lesquelles le pouvoir filtrant est minimal : Tobiasson *et al.* (1993) et Clark *et al.* (1992) l'ont constaté pour la filtration directe (sans décantation préalable), tandis que Ginn *et al.* (1992) et Moran *et al.* (1993a) l'ont observé pour une filtration classique après décantation. Vigneswaran *et al.* (1990) et Veerapaneni et Wiesner (1993) ont montré que la rétention des petites particules par le filtre est améliorée quand l'eau à filtrer contient aussi de plus grosses particules.

L'efficacité de la filtration n'est de plus pas constante ce qui peut provoquer de fortes variations de la charge particulaire dans l'effluent du filtre, *i.e.* dans l'eau en entrée de réseau : sur un cycle de filtration de 48 heures, 40% des particules retrouvées dans l'effluent sont relarguées durant la première heure (Colton *et al.*, 1996), et les caractéristiques microbiologiques de l'eau filtrée sont fortement dégradées pendant cette période (Logsdon et Rice, 1985 ; Bucklin *et al.*, 1991). Il est donc nécessaire d'éliminer l'effluent du filtre durant tout ou partie de la phase de "mûrissement" du filtre après lavage qui peut durer de 10 à 120 minutes (Amirtharajah et Wetstein, 1980).

La présence dans l'eau d'alimentation des réseaux de distribution de particules non éliminées par la filtration est illustrée ci-après par trois exemples : (a) les particules de charbon actif en poudre, (b) les microflocs d'aluminium, et (c) certaines particules biologiques.

a) Particules de charbon actif en poudre

Brazos et O'Connor (1990) ont noté l'incapacité d'une usine de traitement "bien gérée" (incluant coagulation/décantation/filtration) à éliminer complètement le charbon en poudre injecté en tête de filière pendant quelques jours, ce qui se traduisait par la présence de petite particules de charbon actif dans l'eau filtrée (Fig. I.4). La présence de particules de charbon actif en poudre de plus de 10 μm dans l'eau traitée par filtration a aussi été notée par Stringfellow *et al.* (1993).

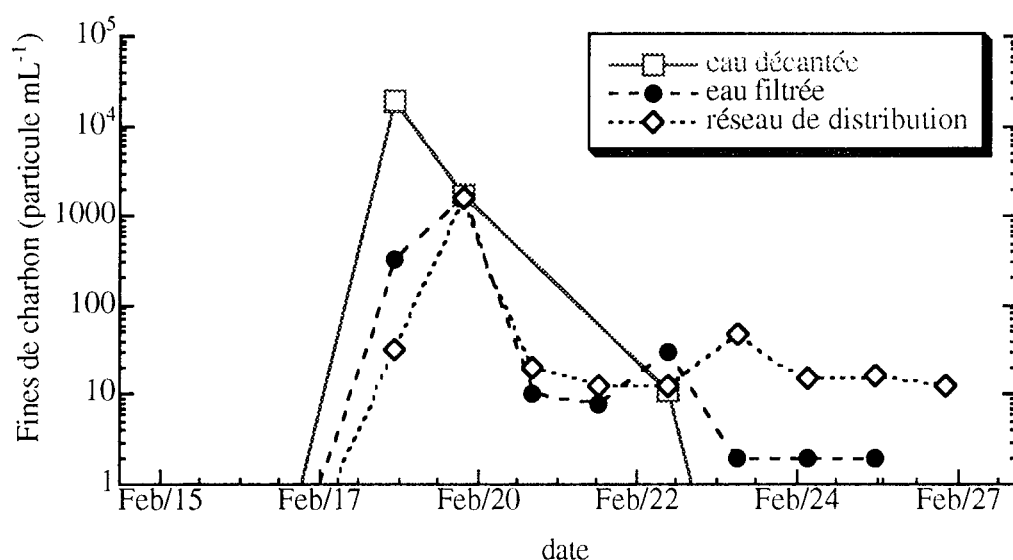


Figure I.4 : Concentration des particules de charbon actif en poudre en amont et en aval d'une unité de filtration sur sable (d'après Brazos et O'Connor, 1990)

b) Microflocs d'aluminium

L'utilisation d'aluminium pour la coagulation en amont des filtres se traduit parfois par la présence de floes d'aluminium dans l'eau en entrée de réseau de distribution : Driscoll et Lettermann (1995) a corrélé ces "fuites" d'aluminium particulaire (de 29 à 141 $\mu\text{g/L}$) avec la turbidité de l'eau traitée pour trois usines différentes (Fig. I.5) et Bourbigot *et al.* (1988) a rapporté une nette augmentation de l'aluminium particulaire dans l'effluent lors de l'augmentation de la vitesse de filtration, par exemple lors du lavage d'un des filtres lorsque plusieurs sont connectés en parallèle.

c) Particules biologiques

Certaines particules biologiques trouvées dans l'eau filtrée sont directement fonction de celles présentes en amont du filtre : ainsi, LeChevallier *et al.* (1992) relie directement les concentrations

de *Giardia* et *Cryptosporidium* dans l'eau traitée aux concentrations mesurées dans l'eau brute, et Rice *et al.* (1996) mesure les spores de bactéries dans l'eau traitée, considérant qu'elles sont un indicateur de la charge particulaire éliminée par filtration. Les algues originaires de l'eau brute sont bien éliminées par les filières classiques, néanmoins quelques unités par mL sont dénombrées dans les eaux traitées (Brazos et O'Connor, 1990 ; Bonnelye *et al.*, 1995 ; Astier, 1996, Sabater, 1997). De plus, il est établi que les protozoaires flagellés sont capables de traverser d'épaisses couches de sable (Harvey *et al.*, 1995).

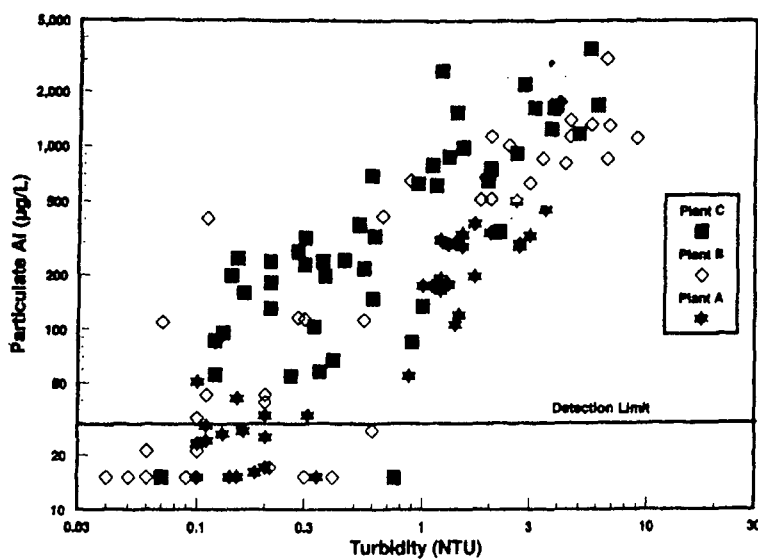


Figure I.5: Corrélation entre la concentration en aluminium particulaire et la turbidité en sortie d'unité de filtration sur sable pour trois usines différentes (d'après Driscoll et Lettermann, 1995)

1.2.2 Production de particules par les filtres

Les micro-organismes sont des particules fréquemment observées dans l'eau traitée. Leur présence traduit une efficacité limitée de la filière à éliminer les populations biologiques présentes dans l'eau brute, et/ou la colonisation des unités de traitement aboutissant à un relargage de biomasse dans l'eau traitée. Léger et Boudouresque (1992) ont ainsi mis en évidence un ensemencement permanent du réseau de distribution par des invertébrés >40 µm, avec toutefois de fortes fluctuations saisonnières. La contamination de l'eau traitée par des micro-invertébrés se développant dans les filtres à charbon actif a été évaluée par Schreiber *et al.* (1997) et des procédures de lavage optimisées pour limiter le nombre d'invertébrés dans l'eau traitée ont été récemment proposés (Beaudet *et al.*, 1996 ; Schreiber *et al.*, 1997).

De plus, lorsque les filtres sont optimisés pour précipiter biologiquement le fer ou le manganèse (Mouchet, 1992 ; Vandenaabeele *et al.*, 1995), des particules métalliques correspondantes sont susceptibles d'être retrouvées en grand nombre dans l'eau distribuée par entraînement des particules précipitées ou post-précipitation (Sly *et al.*, 1990).

I.2.3 Particules provenant de matériaux des filtres et des réactifs utilisés en aval

L'eau admise dans le réseau de distribution contient aussi des particules provenant des réactifs et matériaux mis en oeuvre pour la filtration ou pour la reminéralisation de l'eau traitée :

- Le relargage de fines de matériaux filtrant dans l'effluent des filtres concerne tous les matériaux utilisés pour la filtration (sable, anthracite, charbon actif en grain) (Camper *et al.*, 1987, Stringfellow *et al.*, 1993). Il traduit l'entraînement par l'eau des plus fines particules de matériau filtrant durant le cycle de filtration. Néanmoins, le cas des fines de charbon actif a été particulièrement étudié car (a) ce matériau poreux est plus fragile que les autres, et (b) les bactéries fixées sur de telles fines peuvent y trouver un environnement protecteur qui leur permettra dans certaines conditions de résister au traitement désinfectant appliqué en tête du réseau de distribution (Stewart *et al.*, 1990 ; Bucklin *et al.*, 1991).

Ainsi, Camper *et al.* (1986) ont trouvé une très large gamme de particules (entre 1 et 3500 μm) à la sortie de neuf usines de traitement utilisant du CAG, sans toutefois noter de différence en fonction de la durée d'utilisation du filtre : le nombre de fines de CAG dans l'effluent était le même une heure avant et une heure après le lavage du filtre. Dans 41,4 % des échantillons, des fines étaient colonisées par des bactéries revivifiables, dont certaines étaient des coliformes (identifiés dans 17 % des échantillons). Dans une étude sur une autre usine, LeChevallier *et al.* (1987) n'ont pas trouvé de coliformes fixés sur les particules en sortie d'usine de filtration. Stewart *et al.* (1990) ont dénombré 10 à 62 particules par litre en sortie de colonne filtrante de CAG, dont 85% étaient colonisées et 8% comportaient 100 à 1000 bactéries. Stringfellow *et al.* (1993) n'ont lui trouvé "que" 7 % de particules colonisées en sortie d'un filtre pilote à CAG récemment colonisé. Ils ont quantifié 310 à 430 bactéries cultivables (exprimées en unités formant colonies (UFC))/ μg de particule en sortie de filtre CAG (contre 5 UFC/ μg en sortie de filtre à sable), et notent que ces UFC fixées représentent moins de 0,02 % des UFC présentes dans l'eau en sortie des filtres à CAG. La présence de fines de matériau filtrant dans l'eau traitée est donc indéniable. Néanmoins, aucune étude ne permet de comparer la concentration de ces fines par rapport aux autres particules pénétrant dans le réseau de distribution et aussi susceptibles de transporter des bactéries.

- certaines particules de l'eau traitée proviennent aussi des réactifs utilisés pour corriger l'agressivité de l'eau si ceux-ci ne respectent pas certaines règles strictes (Dumont et Bechoux, 1991) : Mouchet *et al.*, (1992) ont mesuré une nette augmentation de la turbidité après un ajout de chaux de mauvaise qualité lors du traitement, et Alere et Hanæus (1997) ont noté la prédominance de particules (1 à 10 μm) riches en calcium et une légère augmentation de la turbidité résultant d'un traitement de mise à l'équilibre calco-carbonique à l'aide de CO_2 et chaux. Ces dernières particules n'étaient pas éliminées par décantation dans la bache de stockage de l'eau traitée, et pénétraient donc

dans le réseau ou leur dissolution avait lieu après quelques heures (Alere et Hanæus, 1997).

La description de la nature des particules en suspension présentée ici au niveau de l'eau d'alimentation des réseaux de distribution est probablement très incomplète, car seules quelques types de particules ont été recherchés et trouvés, mais aucune étude n'a tenté de caractériser globalement la nature de l'ensemble des particules présentes dans une eau traitée ce qui permettrait de relativiser le poids des différents types de particules.

I.3 Nature et origine des particules en suspension et dépôts dans les réseaux de distribution

I.3.1 Caractéristiques générales

Les particules présentes dans les réseaux de distribution peuvent être exogènes (introduites avec l'eau d'alimentation du système, ou par des pollutions extérieures), ou endogènes (résultant de la précipitation de substances dissoutes, de la croissance biologique ou de la corrosion des matériaux constituant le réseau de distribution lui-même). Les conditions hydrauliques gouvernent le transport de matière particulaire de l'amont et l'aval du réseau, et entre les phases eau et dépôts (Fig. I.6).

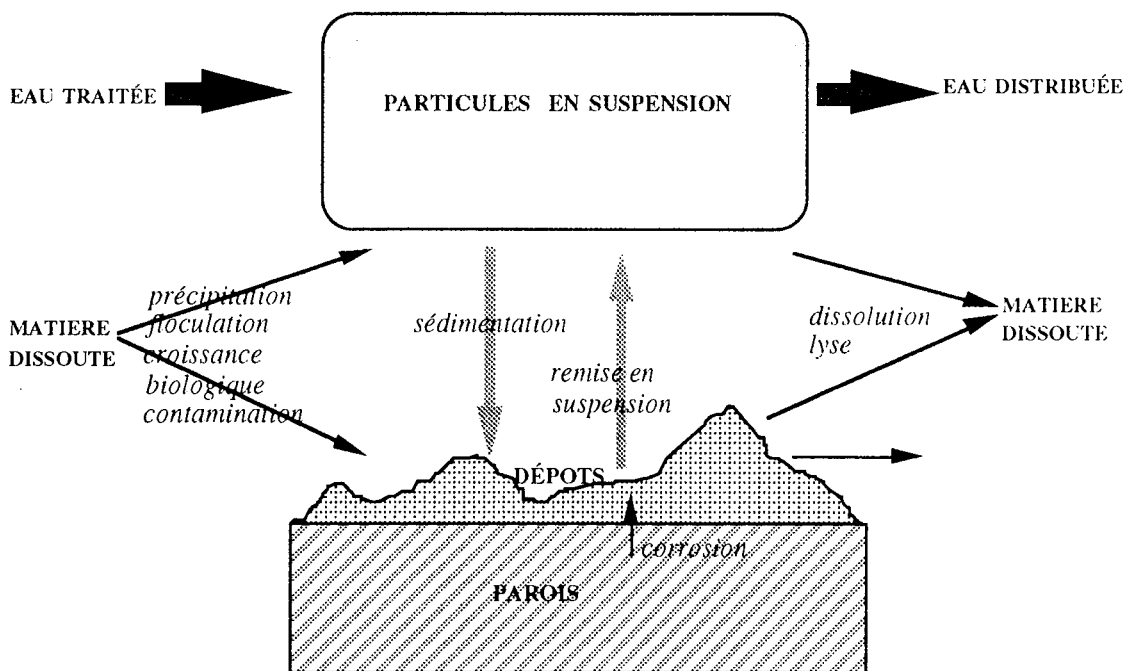


Figure I.6 : Interactions entre les différents compartiments de la matière dissoute et particulaire en réseau de distribution.

Seuls quelques éléments bibliographiques permettent de définir les échanges de matière particulaire en réseau :

- les nature et quantité des particules en suspension ne sont pas sensiblement affectées par le transport en réseau de distribution, d'après les travaux de Brazos et O'Connor (1990) qui ont systématiquement comparé sur deux périodes (hiver et été) les particules en suspension dans l'eau traitée et en un point du réseau situé environ 48 heures en aval ; les fines de charbon et les nématodes présents dans l'eau traitée (Fig. I.4 et I.7) sont bien transportés par le réseau, et les concentrations particulières sont très comparables dans l'eau traitée et dans le réseau de distribution (quelques centaines de particules $>3 \mu\text{m}$ /mL dont la majorité sont des algues ou des bactéries allongées) ;

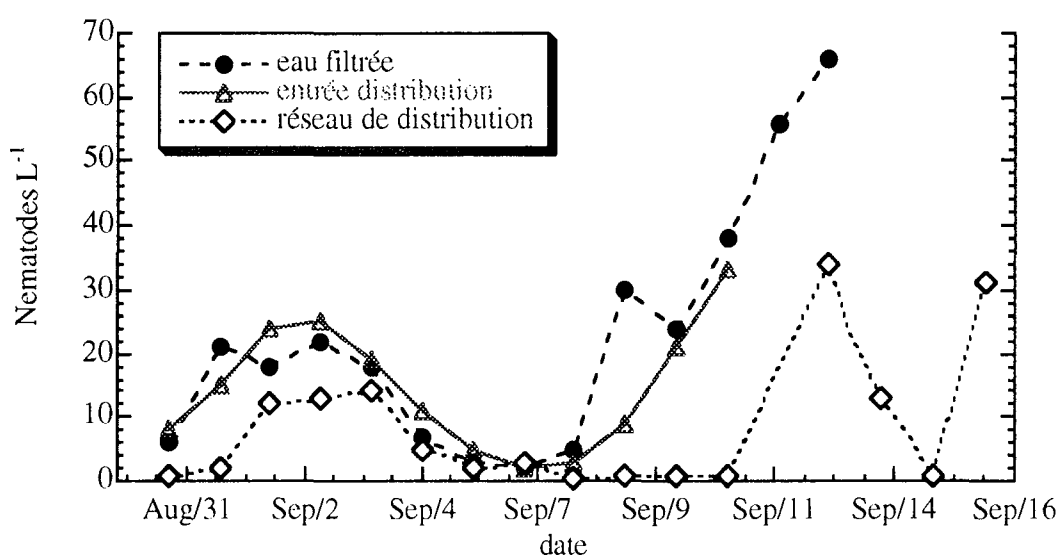


Figure I.6: Concentration des nématodes dans l'eau filtrée, en sortie d'usine de traitement et dans le réseau de distribution (d'après Brazos et O'Connor, 1990)

- les particules en suspension sont beaucoup plus organiques que les dépôts correspondants (21 à 32% contre 7,4% exprimé en fraction volatile de la matière sèche)(Sly *et al.*, 1990)
- les réseaux alimentés en eau de surface traitée contiennent en général plus de dépôts que ceux alimentés en eaux souterraines, d'après l'étude de De Rosa (1993) des dépôts de canalisation (prélevés à partir des poteaux à incendie) en considérant 71 zones d'alimentation en eau potable. Les quantités de dépôts accumulés ne sont pas directement liées à la nature de la canalisation, et les principaux éléments retrouvés dans ces dépôts sont le fer (12-45%), l'aluminium (0,4-45%), le calcium (0,5-17%), le manganèse (0,1-5,8%), et le phosphore (0,13-18%).

L'occurrence de particules en réseau est détaillée ci-après en fonction de leur origine, qui outre le transport direct depuis la ressource déjà décrit, peut être analysée selon trois grands mécanismes d'apparition principaux :

- précipitation/floculation,
- croissance biologique,
- dégradation des matériaux en contact avec l'eau.

Les contaminations externes, rarement identifiées, ne peuvent être non plus exclues pour expliquer la présence de certains composés en réseau. En effet des particules de sable sont fréquemment mentionnées dans les dépôts, qui pourraient être introduites lors de travaux sur le réseau, dont les conditions ne sont pas toujours irréprochables (Abasq, 1997), ou bien lors de mise en dépression temporaire du réseau (rupture de canalisation, incendie, etc...).

1.3.2 Précipitation/floculation

La précipitation/floculation des substances dissoutes peut être d'ordre physico-chimique (changement de pH, présence d'oxydant) ou biologique. Elle concerne principalement le carbonate de calcium, le fer, le manganèse et l'aluminium (Mouchet *et al.*, 1992). Certains de ces précipités (CaCO_3) restent fixés aux parois et ne sont pas ou peu retrouvés dans l'eau distribuée, tandis que les précipités métalliques restent en suspension ou se déposent, et provoquent plus fréquemment des troubles de couleur ou de turbidité de l'eau lors d'une modification hydraulique de l'écoulement (Walski, 1991).

Lorsque sa limite de solubilité est atteinte (Legrand et Leroy, 1995), le **carbonate de calcium** se dépose en formant une couche solide sur les parois des canalisations. Celle-ci peut affecter la qualité de l'eau quand elle se décroche, ou qu'un dépôt jeune de consistance encore boueuse ou pâteuse est remis en suspension sous l'effet d'une perturbation hydraulique (inversion du sens de l'écoulement, forte variation de vitesse)(Mouchet *et al.*, 1992). Les facteurs affectant la dissolution/précipitation de carbonate de calcium ne sont toutefois pas encore complètement compris (Baker et Judd, 1996 ; Barret et Parsons, 1998). La précipitation dans l'eau de carbonate de plomb sous forme de particules de 1 à 2 μm a aussi été observée par Leroy et Le Gentil (1992).

Dans le réseau, le **manganèse** dissous est oxydé par voie chimique (oxygène, chlore, dioxyde de chlore...), ou par voie biologique (Sly *et al.*, 1990). Ce manganèse provient soit de l'eau brute si le traitement d'élimination à l'usine n'est pas efficace, soit éventuellement d'impuretés des réactifs utilisés pour la coagulation (Mouchet *et al.*, 1992). Sly *et al.* (1990) recommandent une concentration maximale de 0,01 mg/l de manganèse dissous dans l'eau traitée pour éviter les problèmes d'eau noires résultant de la précipitation ultérieure du manganèse dissous dans le réseau de distribution.

Le **fer** précipite dans des conditions analogues au manganèse provoquant l'apparition d'eaux rouges (rouille) ou noires après la remise en suspension des dépôts accumulés en des points singuliers des réseaux (Legrand et Leroy, 1995). L'accumulation du fer par précipitation biologique a été observée en réseau par Ridgway *et al.* (1981a) qui ont identifié cet élément

majoritaire de la gangue métallique de la bactérie *Gallionella*. Le fer dissous peut provenir de l'eau brute quand aucune déferrisation n'est appliquée à l'usine. Il peut aussi résulter d'une mauvaise maîtrise de l'étape de coagulation/floculation à l'aide de sels ferriques (Mouchet, 1992 ; Mouchet *et al.*, 1992), ou de la corrosion des canalisations (paragraphe I.3.3).

L'**aluminium** dissous peut quant à lui être présent dans les eaux distribuées à partir d'eaux brutes acides, mais le plus souvent, il est lié à de mauvaises conditions (pH , température) de coagulation/floculation aux sels d'aluminium (Bourbigot *et al.*, 1988 ; Mouchet *et al.*, 1992) empêchant la formation de précipité (floc d'alumine) $Al(OH)_3$ en amont des étapes de filtration. Dans le réseau, la sédimentation de floccs d'hydroxyde d'aluminium $Al(OH)_3$ provoque la formation de dépôts pouvant générer des eaux de couleur blanchâtres lors de remises en suspension ultérieures. Une telle accumulation de floc d'aluminium en réseau est assez souvent décrite (Ainsworth, 1978 ; Driscoll et Lettermann, 1995) et Mouchet et Pourriot (1992) signalent la présence de vers rouges *Tubifex* particulièrement associés à ce type de floccs. Les teneurs en aluminium (ou fer) des dépôts en réseau sont d'ailleurs généralement plus fortes lorsque des coagulants à base d'aluminium (de fer) sont employés lors du traitement (De Rosa, 1993). Enfin, d'autres types de floccs sont parfois identifiés : les floccs de zinc bruns foncés retrouvés dans des eaux de purge ont été attribués au traitement à l'orthophosphate de zinc pour limiter la corrosion des canalisations (LeChevallier *et al.*, 1987)

I.3.3 Croissance biologique

Des particules biologiques sont trouvées dans tous les réseaux de distribution, constituées d'organismes vivants ou de leurs détritits (Levy, 1990 ; Mouchet et Pourriot, 1992 ; Amblard *et al.*, 1996) : la consommation de matière organique dissoute par les bactéries hétérotrophes et leur prédation par les protozoaires forment la base d'une chaîne trophique (Pedersen, 1990) qui se développe en fonction de la quantité de matière biodégradable disponible dans le milieu (Servais *et al.*, 1995 ; van Lieverloo *et al.*, 1997). Des invertébrés dont la taille est comprise entre quelques microns et plusieurs centimètres ont été systématiquement trouvés dans les dépôts de canalisation récupérés par purge (van Lieverloo *et al.*, 1994 ; van Lieverloo *et al.*, 1997). Les densités de tels organismes sont toutefois souvent faibles par rapport à celles observées dans les eaux de surfaces, et méritent plutôt d'être comparées à celles des eaux souterraines (Creuzé des Chatelliers *et al.*, 1991).

Il est toutefois difficile d'établir si les plus gros organismes sont véhiculés par l'eau (Léger et Boudouresque, 1992) ou résultent d'une croissance locale au niveau de l'eau (Amblard *et al.*, 1996) ou des dépôts, la reproduction des micro-invertébrés n'ayant pas été étudiée en réseau. De même, l'hypothèse d'une survie et d'une reproduction algale dans les réseaux de distribution est envisagée à partir du constat de la présence d'algues viables retrouvées à certaines saisons (LeTallec *et al.*, 1993 ; Sabater, 1997) alors que d'autres investigations ont mis en évidence le mauvais état physiologique des cellules algales véhiculées par l'eau (Amblard *et al.*, 1996).

Les bactéries contribuent aussi dans une certaine mesure à une certaine forme de production de particules dans les réseaux : lorsqu'elles se présentent sous forme d'amas bactériens détachés du biofilm ou remis en suspension (Stewart *et al.*, 1993 ; McMath *et al.*, 1997) ou lorsque leur taille les rend détectables en tant que particules (Ridgway et Olson, 1982 ; Brazos et O'Connor, 1987 et 1990 ; Sly *et al.*, 1990), les bactéries contribuent à la matière organique particulaire en suspension dans l'eau, dont elles peuvent représenter jusqu'à 55% (Brazos et O'Connor, 1987).

I.3.4 Dégradation des matériaux en contact avec l'eau

La présence de particules résulte aussi de la dégradation des matériaux en contact avec l'eau, et la corrosion est probablement le phénomène le plus fréquemment cité pour expliquer l'occurrence d'eaux turbides ou colorées au robinet du consommateur : les conduites en matériaux ferreux ont été largement utilisées depuis la mise en place des réseaux de distribution, beaucoup sont anciennes et celles qui sont remplacées sont en général trouvées dans un état de corrosion important. "La corrosion proprement dite est essentiellement due à des transferts d'électrons au cours des interactions eau-métal, et se traduit par le passage d'éléments métalliques dans l'eau" (Mouchet *et al.*, 1992). Ces éléments peuvent alors précipiter et former des particules.

Les paramètres impliqués dans les phénomènes de corrosion incluent les caractéristiques du matériau, la composition de l'eau transportée (pH, alcalinité, oxygène dissous, chlore résiduel, solides dissous, dureté, chlorures, sulfates, etc...)(LeChevallier *et al.* 1993 ; Legrand et Leroy, 1995), et la colonisation microbiologique des surfaces (Geesey *et al.*, 1994). La formation de particules de corrosion détachées de leur surface d'origine et susceptibles d'être remises en suspension n'est pas décrite et il n'existe que très peu de données de détail concernant les particules de corrosion retrouvées dans l'eau lors d'un événement turbide. En effet, la plupart des caractérisations des produits de corrosion accumulés sur les surfaces ont été faites après prélèvement par nettoyage mécanique ou démontage d'une section de canalisation pour en examiner les tubercules de corrosion. Elles décrivent donc seulement les différentes espèces du fer dans les dépôts incrustés (LeChevallier *et al.*, 1993 ; Smith *et al.*, 1997) et non dans les particules détachées du matériau susceptibles d'être remises en suspension dans l'eau.

La corrosion n'est pas limitée aux canalisations ferreuses et concerne toutes les espèces métalliques exposées à l'eau des réseaux, en particulier le plomb, et la présence de plomb particulaire et dissous dans l'eau distribuée a été observée (Leroy et Le Gentil, 1992 ; Cordonnier et Auvray, 1996) lorsque de telles canalisations sont utilisées.

Enfin, la dégradation des matériaux non métalliques ou de leur revêtement est parfois invoquée pour expliquer la présence de certains composés particuliers identifiés en réseau : De Rosa (1993) et Maier *et al.* (1997) relient les fortes concentrations d'hydrocarbures polycycliques aromatiques (HPA) observées dans les dépôts et l'eau avec la dégradation de revêtement bitumineux (coaltar) des conduites. La production de particules à partir de l'érosion des revêtements en ciment dans des conditions hydrauliques et chimiques spécifiques ne doit pas être exclue, même si elle n'a pas fait l'objet de publications spécifiques (Haslay, 1993).

I.4 Transport et accumulation des particules dans les réseaux

Tout comme dans le milieu naturel, le transport des particules en réseau de distribution d'eau potable est *a priori* très différent de celui des substances dissoutes du fait de la capacité de la matière en suspension à s'accumuler par sédimentation et à être remise en suspension en fonction de la configuration du réseau et de son fonctionnement hydraulique. Néanmoins, les concentrations particulaires étant plus faibles que dans d'autres systèmes, peu de données de terrain sont disponibles sur l'évolution de la matière particulaire en réseau : certains auteurs ont constaté une relative stabilité des caractéristiques des particules en suspension lors de leur transport en réseau (Brazos et O'Connor, 1990), et Woodward *et al.* (1995) observe même que la majorité des particules entrant dans un réseau de distribution pilote le traversent sans être apparemment modifiées, même si une faible fraction des particules, accumulée dans les endroits favorables (Fig. I.8), est susceptible d'être remise en suspension lors d'une augmentation de la vitesse.

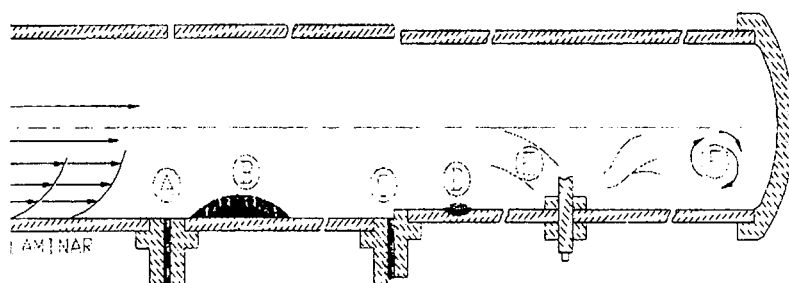


Fig. I.8 : Sites favorables à la déposition de particules en réseau de distribution (A : piégeage par les cavités ; B : adhésion au biofilm ; C : déposition et tourbillons ; D : corrosion et incrustation ; E : obstacles ; F : zones mortes)(d'après Alere et Hanæus, 1997)

Une augmentation de la turbidité (Cappelier *et al.*, 1992) ou des teneurs en particules accompagnée d'un changement de leur nature (Alere et Hanæus, 1997) est parfois observée à l'intérieur du réseau, mais ces données sont difficiles à interpréter du fait des fortes variations horaires de tels paramètres (Alere et Hanæus, 1997 ; Paakonen, 1993) résultant des conditions d'écoulement instationnaires : la vitesse d'écoulement dans les conduites est fonction de la consommation d'eau et est soumise à des fluctuations importantes à l'échelle journalière et saisonnière (Gauriau et Devauchelle, 1996), allant de la stagnation totale à l'écoulement turbulent. Les variations brutales de vitesses de l'écoulement provoquent la remise en suspension des dépôts qui se traduisent au niveau analytique par des pics de turbidité, nombre de particules et bactéries associées (McCoy et Olson, 1986 ; Leroy et LeGentil, 1992 ; McMath *et al.*, 1997). De telles remises en suspension sont d'ailleurs provoquées pour récupérer les dépôts (technique de purge au niveau des poteaux à incendie à des fins investigatrices ou curatives (Ridgway et Olson, 1981 ; LeChevallier *et al.*, 1987 ; Charpentier et Courcier, 1989 ; De Rosa, 1993). Au sein des réseaux, les réservoirs jouent parfois le rôle de véritables décanteurs en fonction de leur optimisation

hydraulique (Gatel *et al.*, 1996) et de la gestion de leur temps de séjour (Mau *et al.*, 1995 ; Clark *et al.*, 1996 ; Gauriau et Devauchelle, 1996), mais de manière surprenante, les données qualitatives et quantitatives concernant l'accumulation de dépôts dans ces points singuliers sont rares.

La caractérisation expérimentale du transport en réseau n'a pas fait non plus l'objet de nombreuses études publiées : seul, De Rosa (1993) a mesuré en laboratoire les vitesses de sédimentation des dépôts remis en suspension par purge et les a trouvées supérieures aux vitesses mesurées sur le terrain, ce qu'il attribue au caractère pleinement statique du test "laboratoire". Il a mesuré une redéposition rapide des plus grosses particules (2-3 heures) par opposition aux matériaux plus fins qui étaient parfois détectés dans l'eau 48 heures après leur remise en suspension.

Au final, très peu de données quantitatives sur le transport et l'accumulation de particules dans les réseaux de distribution sont disponibles du fait :

- (i) d'un manque de description de la matière particulaire (concentration et nature) ;
- (ii) de la difficulté de définir des conditions expérimentales représentatives (vitesse de l'écoulement et ses variations, aspect "historique" de l'accumulation de dépôts).

A l'opposé, des approches théoriques existent pour modéliser la déposition des particules en réseau (Galowin, 1990), en particulier en présence d'obstacle (Biswas *et al.*, 1991). Très logiquement, plus la particule est petite, peu dense (par rapport à l'eau) et plus la vitesse de l'écoulement est élevée, et moins on observe de déposition (Tableau I.1).

Tableau I.1 : Fraction des particules déposées (%) en fonction de la vitesse de l'écoulement dans une conduite droite (Re (nombre de Reynolds) = vitesse d'écoulement \times diamètre de la conduite / viscosité cinématique de l'eau ; longueur de la conduite = 50 diamètres)(d'après Biswas *et al.*, 1991)

| Taille (μm) | $Re=400$ | $Re=900$ | $Re=1600$ |
|--------------------------|----------|----------|-----------|
| >150 | 100% | 100% | 100% |
| 50 | 82% | 72% | 54% |
| 30 | 32% | 24% | 16% |
| 10 | 28% | 20% | 12% |

Aussi seules des analogies pourraient être réalisées par rapport aux bilans obtenus pour le transport des particules dans le milieu naturel (Eisma, 1993 ; Maurer *et al.*, 1995 ; Rose *et al.*, 1993 ; Dekov *et al.*, 1997), ou dans les réseaux d'assainissement (Verbanck *et al.*, 1994 ; Crabtree *et al.*, 1995 ; Chebbo *et al.*, 1995 ; Mark *et al.*, 1995 ; Ristenpart, 1995 ; Sakikabara, 1996), même si les gammes de concentration de particules en suspension et déposées pour ces milieux ne coïncident pas avec celles rencontrées dans les eaux potables.

1.5 Impact des particules sur la qualité de l'eau

Les particules en suspension dans l'eau peuvent dégrader la qualité de l'eau distribuée de par leur quantité et leur nature, et ceci est souvent associé à la remise en suspension de dépôts. La dégradation peut être organoleptique ou microbiologique, dans une moindre mesure associée à des micro-polluants chimiques. De plus, les dépôts peuvent indirectement affecter la qualité de l'eau en créant des zones anoxiques ou en affectant sensiblement la stabilité du désinfectant contrôlant les populations bactériennes en suspension.

1.5.1 Détérioration organoleptique de la qualité de l'eau

La qualité particulière de l'eau distribuée est évaluée en routine par la mesure de la turbidité. D'un point de vue réglementaire, la situation n'apparaît néanmoins pas trop préoccupante puisque les non-conformités en la matière sont en général peu nombreuses : par exemple, sur 90849 prélèvements en Grande-Bretagne en 1991, seulement 0,2% présentaient une valeur excédant les seuils imposés, soit un taux très faible puisque pour l'ensemble des paramètres mesurés, le taux de défaillance moyen est de 1,6% (Drinking Water Inspectorate, 1992).

La turbidité est toutefois un des rares critères d'appréciation directe de la qualité de l'eau par le consommateur, et à ce titre, la raison de nombreuses plaintes envers les producteurs et distributeurs d'eau. Jones et Tuckwell (1993) mentionnent une moyenne annuelle de 4.9 plaintes pour 1000 consommateurs sur le réseau de Wessex Water qui distribuait 412 000 m³/jour en 1991, et 44% de ces plaintes étaient relatives à des problèmes de turbidité et couleur de l'eau (Fig. I.9). D'après ces auteurs, ces problèmes résultaient dans la plupart des cas des particules de corrosion des canalisations, remises en suspension dans l'eau et transportées jusqu'au consommateur.

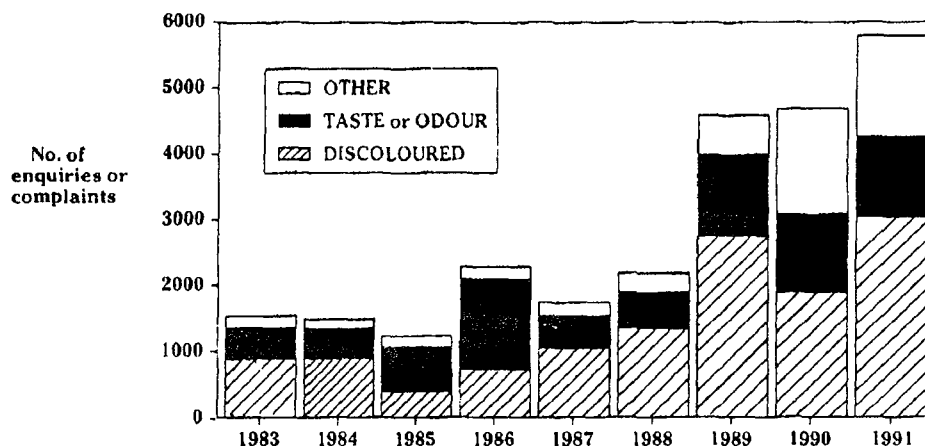


Fig. I.9 : Évolution du nombre annuel de plaintes ou demandes de complément d'information sur la qualité de l'eau enregistré par la compagnie Wessex Water sur un réseau distribuant 412 000 m³/jour (d'après Jones et Tuckwell, 1993)

Parfois même, les consommateurs, par leurs plaintes sur la couleur rouge ou brune de l'eau, ou sur la présence de dépôts boueux ou de macroorganismes, peuvent provoquer la prise de conscience des problèmes de qualité par les services concernés, et l'amélioration des conditions de traitement et de distribution (exemples de St Pierre des Corps et de Enghisheim cités par Leroy (1993)). Sly (1989) utilise même la mesure du nombre de plaintes des consommateurs pour évaluer l'étendue des problèmes d'eaux noires dues à la présence de particules d'oxyde de manganèse. Le même auteur note qu'un excès de particules de Mn dans les réseaux provoque des désagréments non seulement d'ordre esthétique pour le consommateur, mais aussi colorer de façon irréversible le linge lors des lavages.

Kerneis *et al.* (1993) citant van den Hoven (1992) expliquent l'opposition apparente entre (i) la faiblesse du nombre d'analyse hors normes et (ii) les problèmes rencontrés par le consommateur par la densité trop faible des mesures réalisées sur le réseau : la présence de fortes concentrations de particules dans l'eau distribuée est généralement un problème très localisé dans l'espace et le temps difficile à mesurer pour le gestionnaire du réseau, mais facilement détectable par le consommateur.

Un autre problème organoleptique est la présence de macroorganismes visibles à l'oeil nu dans l'eau distribuée. Ces particules biologiques sont en effet mal perçues par le consommateur (Mouchet et Pourriot, 1992) qui y voit le signe d'un mauvais traitement et/ou d'une contamination du réseau. Néanmoins, même si ces "animaux" peuplent la majorité des réseaux (van Lieverloo *et al.* (1997) ont par exemple trouvé des vers oligochètes et des *Asellus* dans la très grande majorité des 36 réseaux investigués au Pays-Bas), leur présence dans l'eau distribuée au robinet du consommateur reste le plus souvent non détectée, ce qui limite l'extension du problème "macroorganismes", au moins du point de vue organoleptique. Néanmoins, l'absence de microorganismes au niveau de l'eau distribuée ne signifie pas une absence totale dans le réseau : en effet ces organismes peuvent avoir une plus grande affinité pour la phase "sédiment", où ils trouvent nourriture et protection vis-à-vis des désinfectants, que pour la phase "eau" au sein des réseaux de distribution.

1.5.2 Contamination microbiologique de l'eau associée à la présence de particules

1.5.2.1 Contamination microbiologique lors d'événements turbides

Les événements turbides traduisent la présence de fortes quantités de particules en suspension dans l'eau. Ils résultent d'une détérioration temporaire de la qualité de l'eau brute, d'un dysfonctionnement de l'usine de traitement ou d'une remise en suspension des dépôts dans le réseau et sont souvent accompagnés d'une contamination microbiologique de l'eau :

- pour les **eaux provenant d'une ressource de bonne qualité et simplement désinfectées** avant mise en distribution, une augmentation de la turbidité dans la

ressource faisant suite par exemple à un épisode pluvieux est souvent accompagnée d'une détérioration microbiologique de la qualité de l'eau (Ryan et Meiman, 1996). Celle-ci est en général répercutée au niveau du réseau de distribution, car l'inactivation des populations bactériennes associées à ces épisodes de turbidité par du chlore ou des rayons ultraviolets est particulièrement limitée (LeChevallier *et al.*, 1981 ; Qualls *et al.*, 1984) ;

- une **déficience temporaire de l'élimination des particules de l'eau brute** (mesurée en terme de turbidité) **par les unités de traitement** peut provoquer une contamination de l'eau véhiculée par le réseau de distribution. Par exemple, la dramatique épidémie de cryptosporidiose de Milwaukee en 1993 (400 000 cas, 4000 hospitalisations, 104 décès associés) résultait d'une incapacité de l'étape de filtration des usines de traitement à éliminer la pollution de l'eau brute, la pathologie résultante étant corrélée à la turbidité de l'eau distribuée avant et pendant l'événement épidémique principale (Morris *et al.*, 1996). Une relation entre l'efficacité d'élimination de la turbidité et l'élimination des protozoaires pathogènes (*Giardia*, *Cryptosporidium*) dans les eaux filtrées avaient d'ailleurs été établie dès 1992 par LeChevallier *et al.* (Fig. I.10), et Bucklin *et al.* (1991) avait aussi associé une turbidité anormalement haute à la présence de coliformes indicateurs de contamination fécale dans l'eau filtrée ;

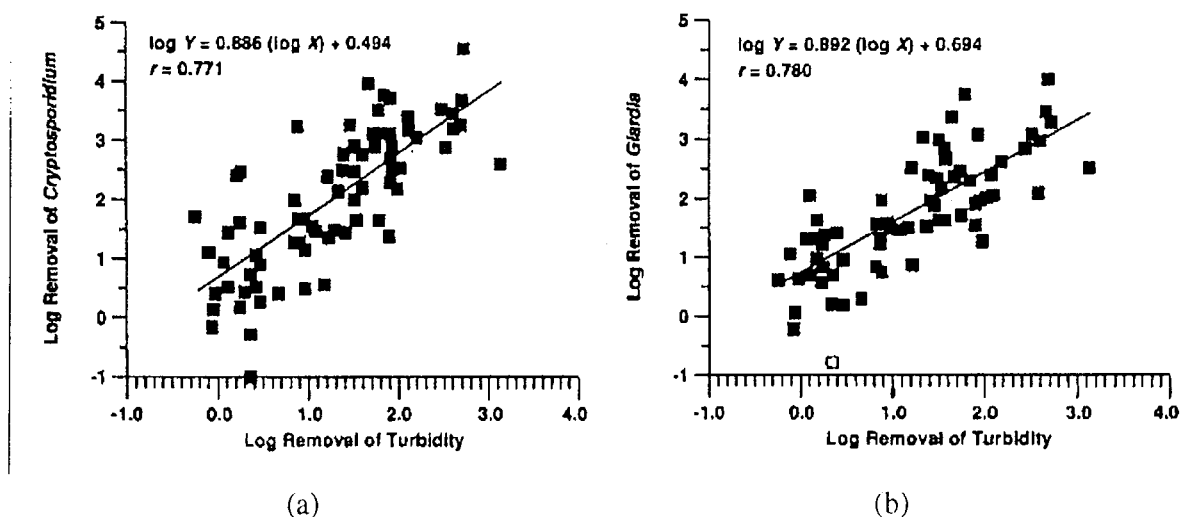


Fig. I.10 : Corrélation entre l'élimination de la turbidité et des protozoaires pathogènes dans un filtre à sable : (a) *Cryptosporidium* ; (b) *Giardia* (d'après LeChevallier *et al.*, 1992)

- dans les réseaux de distribution, la **remise en suspension de dépôts** peut être associée à une forte contamination microbiologique de l'eau : le bref épisode turbide observé par McCoy et Olson (1986) lors d'un suivi des variations de qualité d'eau en réseau était accompagné d'une multiplication par 10 de la concentration en bactéries cultivables (Fig. I.11). Ceci a aussi été confirmé dans de nombreux cas lors de purges de réseaux pour évaluer les concentrations bactériennes associées aux dépôts alors remis en suspension (LeChevallier *et al.*, 1987 ; De Rosa, 1993). L'ampleur des contaminations

bactériennes associées aux remises en suspension n'est toutefois pas constante : De Rosa (1993) mesure une contamination bactérienne de l'eau bien plus faible lors des purges des réseaux alimentés en eau souterraine que pour celles des réseaux alimentés en eau de surface.

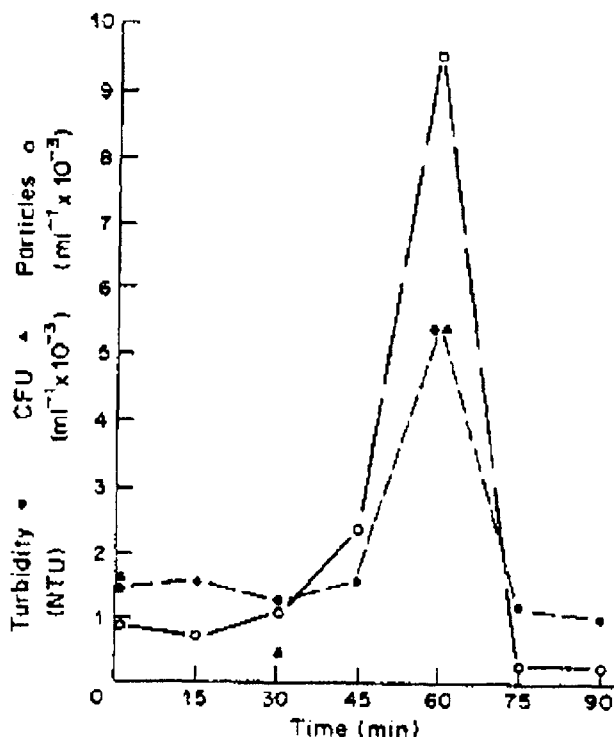


Fig. I.11 : Contamination bactérienne associée à un pic transitoire de turbidité (d'après McCoy et Olson, 1986)

La contamination de l'eau par des indicateurs de contamination fécale pourrait aussi dans certains cas résulter de la remise en suspension des dépôts dans lesquels ils sont fréquemment retrouvés (Baylis, 1945 ; LeChevallier *et al.*, 1987 ; Holt *et al.*, 1995 ; Lu *et al.*, 1997), en particulier dans le cas de dépôts de corrosion (LeChevallier *et al.*, 1987 ; LeChevallier *et al.*, 1990 ; Oliver et Harbour, 1995). Ainsi, les dépôts pourraient servir de zone de survie préférentielle pour ces organismes au sein des réseaux. Ces observations peuvent de plus être mises en parallèle avec celles de Howell *et al.* (1996) qui constatent qu'en rivière, la survie des coliformes et streptocoques fécaux est meilleure dans les sédiments fins que dans les sédiments grossiers et dans l'eau.

1.5.2.2 Micro-organismes associés aux particules

Dans les milieux naturels, les bactéries sont fréquemment retrouvées attachées aux particules en suspension dans l'eau, avec toutefois des répartitions très variables de la biomasse et de l'activité entre les phases fixées et en suspension (Kirchman, 1983 ; Pedros-Alio et Brock, 1983 ;

Irriberi *et al.*, 1990 ; Turley et Mackie, 1994). De cet attachement résulte une certaine protection vis-à-vis de la désinfection dans le contexte des réseaux de distribution d'eau potable (Ridgway et Olson, 1982 ; Herson *et al.*, 1987), où l'inactivation des populations bactériennes fixées sur les parois est classiquement difficile (LeChevallier *et al.*, 1988 ; Mathieu *et al.*, 1992 ; Paquin *et al.*, 1992). Le problème des bactéries fixées sur les particules est en particulier sensible à la sortie des stations de traitement, où les particules de charbon actif relarguées par les filtres sont suspectées de transporter des bactéries éventuellement pathogènes protégées de la désinfection jusque dans le réseau de distribution (LeChevallier *et al.*, 1984 ; Camper *et al.*, 1987 ; Stewart *et al.*, 1990). Toutefois les études sur pilote les plus récentes ont relativisé ce problème : du fait de la faible densité de fines relarguées par les filtres, l'inactivation des bactéries fixées sur les particules est réalisable dans des conditions proches de celles des traitements de post-désinfection pratiqués actuellement (Stringfellow *et al.*, 1993 ; Pernitsky *et al.*, 1997 ; Morin 1997).

D'autre part, une forme particulière de protection potentielle des bactéries par rapport à un désinfectant est celle fournie par les micro-invertébrés : Levy *et al.* (1984) ont montré que des coliformes associés à un amphipode (*Hyaella azteca*) étaient protégés en partie d'une désinfection prolongée, ce qui a été aussi testé par King *et al.* (1988) avec des protozoaires comme hôte protecteur. L'association légionnelle-amibe a d'autre part été mise en évidence par Dubrou *et al.* (1992) mais uniquement dans les réseaux d'eau chaude. Ainsi, des particules "biologiques" peuvent servir de support et de protection pour les bactéries des réseaux de distribution.

Les bactéries agrégées forment aussi des particules retrouvées dans la phase eau susceptibles de présenter une résistance plus grande à la désinfection que les organismes dispersés (Stewart et Olson, 1986 ; Clark *et al.*, 1994). Néanmoins les agrégats n'ont été que très peu mis en évidence dans l'eau potable, principalement lors de discontinuités hydrauliques (McMath *et al.*, 97), alors que selon Stewart *et al.* (1993), la plupart des bactéries détachées d'un biofilm sont retrouvées sous forme d'amas dans la phase eau.

Ainsi, il est établi que les bactéries peuvent être associées à la matière particulaire sous plusieurs formes (amas, particules, micro-invertébrés), mais l'impact des particules en suspension sur le transport et la résistance à la désinfection des bactéries en réseau paraissent incomplètement documentés, principalement du fait du manque de quantification des populations bactériennes agrégées et fixées (par opposition aux bactéries dispersées) dans l'eau des réseaux de distribution.

En ce qui concerne l'impact des particules sur le transport et la survie des virus, les données issues de réseau de distribution d'eau potable sont encore plus rares, ce qui résulte en partie des difficultés de détection de ces organismes dans l'eau (Crohn et Yates, 1997). Quignon *et al.* (1997) ont observé dans un réseau pilote que l'adsorption sur des particules favorise la survie des virus, et Stagg *et al.* (1977) ont montré en laboratoire que la désinfection des virus adsorbés est plus difficile. Dans les eaux douces superficielles, Maranger et Bird (1996) ont récemment mesuré des concentrations en virus dans les sédiments d'un lac oligotrophe 10 à 1000 fois plus forte que dans l'eau, et augmentant en fonction des teneurs en matière organique, et les

interactions phages-cellules apparaissent favorisées par la présence de particules en suspension (Ripp et Miller, 1995). On ne peut donc que suspecter l'importance des dépôts et particules en suspension par rapport à la survie des virus dans l'eau distribuée.

I.5.3 Micro-polluants associés aux particules accumulées en réseau

Dans les milieux naturels, l'accumulation de micro-polluants organiques et minéraux dans les sédiments des systèmes aquatiques a été souvent décrite (Yu *et al.*, 1995, Tkalitch *et al.*, 1996), et il est probable que des phénomènes de concentration semblables se produisent au niveau des dépôts de réseaux d'eau potable qui seraient alors susceptibles de contaminer l'eau lors de leur remise en suspension. Maier *et al.* (1997) ont observé de fortes concentrations d'hydrocarbures polycycliques aromatiques (HPA) dans l'eau lors d'événements turbides, résultant probablement de la remise en suspension de particules de revêtement bitumineux. De Rosa (1993) a aussi retrouvé systématiquement ces composés dans des dépôts récupérés par purge, ainsi que de très nombreux composés inorganiques (Pb, Cd, Ni, Cr, Hg) et organiques (atrazine, simazine, furan, etc..). Les concentrations en HPA sont toutefois de loin les plus préoccupantes (jusqu'à 300 µg L⁻¹ alors que la norme fixée à 0,2 µg L⁻¹) et ceci peut être expliqué (i) par la mise en oeuvre dans le passé et la dégradation actuelle de revêtement bitumineux dans les canalisations des réseaux étudiés et (ii) par la faible solubilité dans l'eau de tels produits qui sont ainsi accumulés dans la phase "sédiment".

Un tel mécanisme de concentration dans les dépôts de réseau est également suspecté vis-à-vis du radon, composé radioactif non réglementé dans les eaux potables en Europe, mais particulièrement étudié aux USA (Valentine et Stearns, 1994 ; Kalin *et al.*, 1996). Valentine et Stearns (1994) ont observé une accumulation par adsorption/co-précipitation sur les dépôts de fer et manganèse dans la plupart des réseaux considérés, et attribuent à ceux-ci l'augmentation de teneur en radon mesurée dans l'eau entre l'entrée et la sortie des réseaux de distribution.

Le plomb est un micro-polluant célèbre du fait de sa toxicité à long terme, de l'usage "historique" de canalisations en plomb pour l'alimentation en eau potable et des enjeux économiques associés au remplacement ou à la rénovation des installations en plomb pour satisfaire aux nouvelles recommandations sanitaires (Morlot, 1996). Comme pour l'aluminium (Gardner, 1995), l'influence du plomb sur la santé dépend de sa biodisponibilité et donc en partie de son caractère dissous/particulaire (Labrot, 1996). Le plomb est retrouvé dans l'eau sous forme particulaire principalement par arrachage et remise en suspension des dépôts après une période de corrosion-stagnation (Leroy et Le Gentil, 1992 ; Cordonnier et Auvray, 1996). L'impact sur la qualité de l'eau des particules de plomb est donc directement fonction de la corrosivité de l'eau et surtout de la présence et du mode de fonctionnement hydraulique de telles canalisations.

I.5.4 Impact "indirect" des particules sur la qualité de l'eau

La présence de particules dans les réseaux de distribution affectent le fonctionnement de ces derniers, ce qui peut se répercuter de manière indirecte sur la qualité de l'eau :

- consommation de désinfectants

La consommation de chlore par des dépôts a été mise en évidence dès 1945 par Baylis qui a constaté que 50 ppm de chlore ne suffisaient pas à inactiver les coliformes associés à un sédiment récupéré par purge et désinfecté en laboratoire : la résistance apparente des micro-organismes des dépôts était attribuée à la demande en chlore eau+sédiment, elle-même estimée à plus de 5 mg L⁻¹. Plus récemment, Kiéné *et al.* (1996) attribue aux dépôts plus de 50% de la consommation de chlore dans le cas type d'une section de canalisation en matériau plastique de diamètre 250 mm (Fig. I.12), après mesure de la demande en chlore de dépôts remis en suspension (taux de décroissance du chlore : $k = 1,12 \cdot 10^{-3} \text{ min}^{-1}$). Ceci démontre la grande réactivité des dépôts vis-à-vis des oxydants, ce qui a trois conséquences principales sur la qualité microbiologique de l'eau : (i) les micro-organismes benthiques sont peu ou pas exposés aux désinfectants présents dans l'eau ; (ii) du fait de leur consommation par les dépôts, les désinfectants sont transportés moins loin et sont donc moins efficaces pour contrôler les populations bactériennes en suspension dans le réseau ; (iii) lors d'une remise en suspension des dépôts, le désinfectant présent dans l'eau est susceptible d'être réduit très rapidement, d'où une absence de protection par rapport à une contamination microbiologique, d'autant plus que les micro-organismes sont dans la plupart des cas associés aux dépôts remis en suspension.

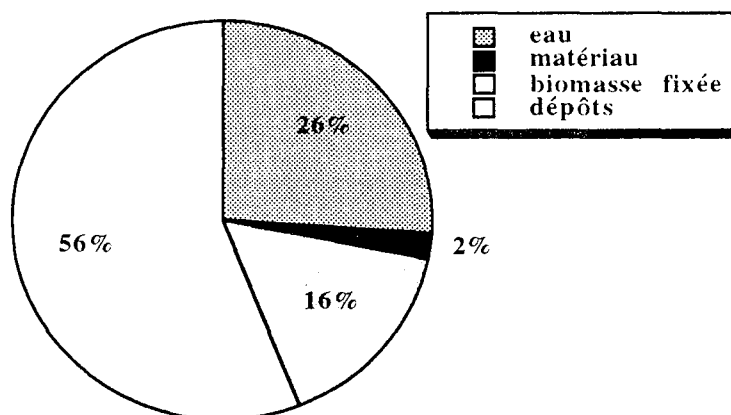


Fig. I.12 : Consommation de chlore par les différents compartiments eau - matériau synthétique - biomasse fixée - dépôts pour une section type de canalisation (d'après Kiéné *et al.*, 1996)

- formation de zones anoxiques

La présence de gradients d'oxygène dans les dépôts est bien documentée dans le milieu naturel (Jorgensen et Revsbech, 1985 ; Jorgensen et Des Marais, 1990 ; Cai et Sayles, 1996 ;

Ziebis *et al.*, 1996). Dans les réseaux de distribution, il est probable que de tels gradients s'établissent de manière similaire et aboutissent à la présence de zones anoxiques dès que l'épaisseur de dépôts limite la diffusion d'oxygène jusqu'au paroi du réservoir ou de la canalisation. De tels gradients n'ont toutefois pas été mis en évidence du fait de la récupération des dépôts par remise en suspension sans prévention des contacts avec l'oxygène réalisée par la plupart des auteurs. La présence de zones anoxiques dans les réseaux pourrait générer des problèmes de corrosion et de goût et d'odeur au niveau de l'eau distribuée.

I.6 Conclusion

Les particules posent un certain nombre de problèmes pour la gestion des réseaux et de la qualité de l'eau distribuée. Toutefois l'information bibliographique disponible à ce sujet semble relativement limitée, ce qui découle de plusieurs faits :

- a) la récupération et le stockage sont beaucoup plus complexes pour les dépôts et particules en suspension que pour les matières dissoutes qui sont collectées *via* un "simple" prélèvement d'eau ;
- b) les gestionnaires de réseau réalisent sans doute bon nombre d'analyses des dépôts qui perturbent la distribution d'eau, mais ces résultats restent peu diffusés du fait de l'aspect très "ciblé" de ces démarches en général ponctuelles ;
- c) plus encore que pour les substances dissoutes, les études sur la matière particulaire sont *site specific*, c'est à dire fortement empreintes de la configuration du réseau de distribution correspondant (nature et variations de la qualité de l'eau introduite dans le système, nature, géométrie et histoire du réseau, paramètres hydrauliques locaux). Aussi les généralisations et extrapolations à partir d'observations ponctuelles sont toujours difficiles.

Néanmoins, sans même viser la compréhension globale de la dynamique des particules dans les réseaux de distribution, on ne peut que s'étonner du manque de réponses apportées aux quelques questions suivantes :

- que "pèse" la matière particulaire dans les réseaux de distribution en fonctionnement normal : quels sont les ordres de grandeur de la concentration de particules en suspension dans l'eau et de la quantité de dépôts dans le fond des conduites et réservoirs ?
- quelles sont les fractions organiques dans les particules en suspension et dans les dépôts des réseaux et comment influencent-elles la stabilité biologique en réseau de distribution ?
- quel est l'impact du transit dans le réseau de distribution sur la qualité particulaire de l'eau distribuée : les zones mortes du réseau jouent-elles le rôle de piège pour les particules introduites à partir des usines de traitement, ou bien au contraire, les phénomènes de précipitation/floculation/corrosion et croissance biologique augmentent-ils la charge particulaire de l'eau ?

Sur ce dernier point, des réponses pourraient être apportées facilement à partir des réseaux alimentés avec de l'eau filtrée sur membranes. En effet, celles-ci éliminent de manière radicale toute matière particulaire de l'eau traitée introduite dans les réseaux ce qui simplifie considérablement l'étude du transport et de l'accumulation de particules en aval dans un tel réseau : les particules qui y sont retrouvées en suspension ou déposées ne peuvent qu'avoir été produites dans le réseau, ou avoir été introduites via des contaminations internes.

Un effort particulier mériterait de plus d'être porté sur l'évaluation de la contamination bactérienne associées aux particules en suspension dans l'eau : les notions d'agrégats et de bactéries fixées à la surface de particules voyageant avec l'eau et de ce fait protégées de la désinfection sont-elles principalement théoriques ou bien quantitativement importantes dans le contexte de l'eau potable ?

Le travail présenté ci-après ne prétend pas résoudre toutes ces questions, mais au moins compléter leur formulation et apporter plusieurs exemples de réponses dans le contexte d'un grand réseau de distribution alimenté en eau de surface traitée.

Chapitre II : Caractérisation des particules en suspension et déposées dans les réseaux de distribution

Sommaire

| | |
|--|-----|
| II.1 Introduction | 36 |
| II.2 Characterization of loose deposits in drinking water distribution systems | 37 |
| II.3 Organic matter as loose deposits in a drinking water distribution system | 50 |
| II.4 How good are distribution systems for the transport of particulate matter ? | 71 |
| II.5 Caractérisations complémentaires | 86 |
| II.5.1 Micropolluants associés aux dépôts de réservoir | 86 |
| II.5.2 Classification des échantillons de dépôts par analyse en composante principale ... | 89 |
| II.5.3 Fraction minérale des dépôts de réservoir et canalisation | 91 |
| <i>II.5.3.1 Caractérisation de la fraction minérale des dépôts par diffraction X et spectrométrie infrarouge</i> | 91 |
| <i>II.5.3.2 Caractérisation de la fraction minérale des dépôts par microscopie électronique</i> | 92 |
| II.5.4 Fraction minérale des particules en suspension | 98 |
| II.6 Discussion | 104 |

Chapitre II : Caractérisation des particules en suspension et déposées dans les réseaux de distribution

II.1 Introduction

La présence de particules au sein des réseaux de distribution est souvent occulte et n'est détectée par le consommateur qu'à la suite de problèmes de turbidité ou lors du remplacement des filtres parfois placés au niveau des points de consommation. De telles observations donnent rarement une image positive de la qualité de l'eau au consommateur (Jones et Tuckwell, 1993), même si dans le cas du remplacement de filtres, les particules observées résultent de la filtration de plusieurs m³ ou dizaines de m³ d'eau potable. Pour le laboratoire d'analyse qui vérifie la conformité de l'eau distribuée, la détection de la présence de particules dans l'eau n'est traduite que par quelques pourcents ou fractions de pourcent d'échantillons défectueux en matière de turbidité, ce problème de turbidité étant rarement confirmé lors d'un prélèvement de contrôle effectué au même endroit quelques heures plus tard. Pour le gestionnaire de réseau de distribution, les particules apparaissent principalement déposées dans les ouvrages, lors de purges de canalisation ou du nettoyage réglementaire des réservoirs.

L'impact potentiel et mesuré des particules sur la qualité de l'eau a été présenté au chapitre I.5, et il importe, pour prévenir ces risques, d'identifier les mécanismes de pénétration, transport et accumulation de matière particulaire dans les réseaux d'eau potable. Néanmoins, les données disponibles dans la littérature sont particulièrement fragmentaires et en général uniquement limitées à la description partielle de cas d'accumulation ou remise en suspension des particules en réseau de distribution. Elles ne permettent pas de répondre, même à titre d'exemple, aux questions simples suivantes :

- les concentrations particulières évoluent-elles et dans quel sens durant le transport de l'eau potable ?
- les particules en suspension ou déposées ont-elles une composition identique, et uniforme dans un réseau de distribution alimenté par un seul type d'eau ?

De plus, si des modèles hydrodynamiques de transport de particules en réseau ont déjà été décrits (Biswas *et al.*, 1993), il reste à caractériser finement les particules sujettes à ce transport (nombre, forme, densité, concentration), ainsi que le fonctionnement du réseau de distribution (variations des vitesses d'écoulement) avant de pouvoir tester convenablement les échanges particuliers entre l'eau et les dépôts.

L'approche analytique réalisée ici, sans prétendre au titre de caractérisation complète, vise à évaluer globalement la nature et la répartition des particules dans un réseau de distribution. Ainsi, **la composition élémentaire des dépôts de réservoirs et canalisations** est décrite et

interprétée ci-après au chapitre II.2, et les **caractéristiques organiques et microbiologiques de ces dépôts** sont détaillées au chapitre II.3. **Les particules en suspensions** sont en particulier étudiées au chapitre II.4, et leurs caractéristiques (concentration, nature) sont comparées d'une part entre l'entrée (sortie usine) et la sortie (point de consommation) du réseau de distribution, et d'autre part avec celles des dépôts du même réseau. Le chapitre II.5 présente des résultats de **caractérisations complémentaires** : l'analyse en composantes principales des résultats présentés au chapitre II.2 est complétée par la représentation des observations dans le plan principal, et des analyses réalisées sur une partie des échantillons de dépôts et de particules en suspension seulement fournissent des informations fort utiles sur les concentrations de micropolluants, et la répartition des espèces chimiques. Une **discussion** des méthodes et principaux résultats est enfin proposée au chapitre II.6.

Les chapitres II.2 à II.4 ci-après concernant la caractérisation des particules en suspension et dans les dépôts du réseau de distribution de Nancy sont l'objet de communications ou de publication internationale, et sont rédigés en anglais.

II.2 Characterization of loose deposits in drinking water distribution systems

La première étape de la caractérisation de la matière particulaire en réseau considère les particules les plus visibles et les plus faciles à récupérer en grande quantité à savoir les dépôts de réservoir qui peuvent être considérés comme de véritables décanteurs ou piège à particule au sein du réseau. L'échantillonnage est d'ailleurs facilité par la procédure annuelle de vidange et nettoyage de tels ouvrages et il est surprenant qu'aussi peu de données existent sur l'extention et la composition des dépôts de réservoir (Lévi *et al.*, 1992 ; Sly *et al.*, 1990), contrairement aux études réalisées sur les dépôts de canalisation récupérés par purge au travers des poteaux à incendie (LeChevallier *et al.*, 1987 ; De Rosa, 1993 ; cette étude), et qui impliquent des biais liés à la remise en suspension (Sakakibara *et al.*, 1996) et à la récupération des particules par filtration ou décantation.

Les résultats de l'analyse élémentaire organique (C, N) et minérale (Fe, Al, Ca, etc...) des dépôts de réservoirs et de canalisation a fait l'objet d'une communication à la "Water Quality Technological Conference" de l'American Water Works Association (Boston, Ma, USA, Nov. 1996) qui constitue le corps de ce paragraphe. Les résultats sont interprétés d'une part en fonction du temps de séjour de l'eau dans le réseau, d'autre part par analyse en composante principale pour détecter les caractéristiques dominantes des échantillons. Une interprétation complémentaire de cette approche statistique est de plus présentée par la suite au paragraphe II.5.2.

Characterization of the loose deposits in drinking water distribution systems

Vincent GAUTHIER¹, Christophe ROSIN², Laurence MATHIEU²,
Jean-Marie PORTAL³, Jean-Claude BLOCK¹,
Philippe CHAIX⁴, Dominique GATEL⁵

¹ NANCIE, GIP STELOR, LSE

*Faculté des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques, Université Henri Poincaré-Nancy I, 5 rue Albert Lebrun,
B.P. 403, 54001 Nancy cedex, France,
tel: 33-(0)383 17 88 49; fax: 33-(0)383 17 88 79, e-mail: gauthier@pharma.u-nancy.fr*

² LHRSP, GIP STELOR, *Faculté de médecine, Université Henri Poincaré-Nancy I
11 bis rue Gabriel Péri, 54500 Vandoeuvre-les-Nancy, France*

³ CPB, CNRS UPR n°6831

17, rue Notre-Dame des Pauvres, 54501 Vandoeuvre-les-Nancy, France

⁴ Communauté Urbaine du Grand Nancy, *22 viaduc Kennedy, 54000 Nancy, France*

⁵ Compagnie Générale des Eaux, *32 place ronde, 92982 Paris-La Défense, France*

Introduction

The quality of distributed water is determined by a combination of factors, amongst which the most important are: (1) the chemical and biological characteristics of treated water (controlling its stability), (2) the physical and operational features of the distribution system, and (3) the interactions between the water (reagent) and the distribution system (reactor).

Water from the plant outlet often contains suspended solids [1-3], but these ones can also be produced within the drinking water distribution system (DWDS) by corrosion of metallic parts, precipitation of dissolved elements (Fe, Mn, Ca, etc...), or the growth of micro- and macro-organisms, the most common threshold for separating dissolved from particulate material being 0.45 µm.

The accumulation of these particles in the DWDS is directly linked to their settling and transportability features (size, shape, density), resulting in their partial deposition in reservoirs and pipes. The resuspension of the loose part of these deposits (as opposed to the fixed part described in [4]) depends on the velocity gradient at the deposit-water interface. Particles resuspended in this way have great effects on water quality, aesthetically, chemically and microbiologically [5].

Nevertheless, the loose deposits in DWDS are seldomly analysed since they cannot be sampled and analysed as readily as water itself: sampling the sediment in drinking water storage tanks requires draining the tanks, while the loose deposits in the pipes are usually collected during the flushing of fire hydrants [5-7]. Both sampling methods are inappropriate for quantifying extensively the loose deposits accumulated in an entire DWDS, and in many cases, published data about these deposits have been limited to a description of the major features [8,9] or to a detailed study at a single point in the distribution system [10].

There is therefore a need to better identify the nature of the organic and mineral matter which accumulates in the DWDS, so as to assess the impact of these deposits on the quality of distributed water during normal water flows in the network (disinfectant reduction, release of motile organisms) and during abnormal flows (accidental resuspension of deposits). Data on the nature of the deposits can also provide useful information for identifying of the origin of the deposits and/or the way the particles were deposited.

This study defines the nature of the deposits within a large distribution system by sampling a number of loose deposits in reservoirs and pipes. This was done by analysing the elementary mineral and organic composition, the bacterial counts, the volatile fraction (at 550°C) and the

appearance of each deposit. The secondary objective was to distinguish between types of deposits (reservoir and pipe), and to evaluate any differences in characteristics of deposits located upstream and downstream in the DWDS.

Material and methods

Distribution system

The distribution system of the Communauté Urbaine du Grand Nancy serves a population of 300,000 inhabitants. It is supplied with water from the Moselle river treated by: prechlorination, aluminium sulfate coagulation-flocculation-settling, rapid sand filtration, ozonation, GAC filtration, chalk remineralization and post-chlorination. Average characteristics of the treated water are presented in Table 1. The distribution system pipes are made of grey cast iron, cement-lined ductile iron, PVC and polyethylene. The system includes 30 covered reservoirs for gravity-fed distribution; they are cleaned annually.

Table 1: Characteristics of the treated water supplying the distribution system of the Communauté Urbaine du Grand Nancy between October 1994 and August 1995.

| Parameter | Unit | Sample number | Average (S.D.) |
|-------------------------------|------------------------------------|---------------|----------------|
| Turbidity | NTU | 50 | 0.11 (0.03) |
| Temperature | °C | 106 | 12.0 (5.8) |
| pH | | 97 | 8.15 (0.35) |
| Free chlorine | mg Cl ₂ L ⁻¹ | 104 | 0.56 (0.19) |
| Total chlorine | mg Cl ₂ L ⁻¹ | 104 | 0.67 (0.20) |
| Resistivity | Ω.cm | 50 | 4028 (828) |
| Hardness | meq.L ⁻¹ | 50 | 1.9 (0.5) |
| Nitrate | mg L ⁻¹ | 50 | 5.2 (1.8) |
| Nitrite | mg L ⁻¹ | 50 | 0.00 (0.00) |
| Ammonium | mg L ⁻¹ | 50 | 0.00 (0.00) |
| KMnO ₄ oxidability | mg O ₂ L ⁻¹ | 50 | 0.95 (0.24) |
| Alcalinity | meq.L ⁻¹ | 50 | 0.9 (0.2) |
| Chloride | mg L ⁻¹ | 50 | 14.2 (3.3) |
| Sulfate | mg L ⁻¹ | 50 | 50 (19) |

The sediments in 13 of these reservoirs were sampled. The hydraulic residence time in each reservoir, computed from the average volumes and flow rates over one week, are shown in Table 2. Eight deposits from hydrant flushing were also sampled: the hydrant characteristics are shown in Table 3.

Deposit sampling

The sediments deposited at the bottom of drinking water reservoirs were sampled after the annual draining before cleaning. Samples were taken by scraping or sucking depending on their thickness and the quantity of overlying water, and transferred to sterile pots (Polylabo, ref. 05186). An aliquot was used for bacterial counting, and most of the sample was freeze-dried prior to chemical analysis. A fresh aliquot was also examined and photographed under a phase contrast microscope (Olympus BX 60, magnification 100-400).

The loose deposits from pipes were sampled from hydrants. The hydrant was equipped with a flowmeter and the section of pipe between the hydrant and the main was purged. A nylon net (mesh size: 100 µm) was then placed over the outlet and the hydrant was flushed for 3 minutes at a flow rate of 60 m³/h. Samples of the filtered water were collected in 10 L glass bottles which were then placed at 4°C, and the sediments allowed to settle for 5 hours after returning to the laboratory. The bacteria in the overlying water (which was siphoned off) and in the settled fraction were counted. The settled fraction (<100 µm) and the coarse fraction (>100 µm) collected by rinsing the nylon net were freeze-dried prior to further chemical analysis.

Table 2: Reservoir sampled

| Sampling date | Reservoir code | Volume (m ³) | Water local residence time (h) |
|---------------|----------------|--------------------------|--------------------------------|
| 10/26/95 | GOLT | 2,107 | 48 |
| 01/9/96 | BLVC1 | 4,855 | 4 |
| 01/24/96 | CHCEXT | 1,067 | 13 |
| 01/31/96 | MVXCG | 2,176 | 6 |
| 02/6/96 | TRIC1 | 2,477 | 16 |
| 02/8/96 | TRIC2 | 2,477 | 16 |
| 02/15/96 | GUDL | 967 | 19 |
| 02/21/96 | HDBL | 2,647 | 11 |
| 03/27/96 | JUST | 1,044 | 12 |
| 03/27/96 | CHDP | 728 | 11 |
| 04/2/96 | SCHPS | 513 | ND |
| 04/9/96 | STCHC4 | 5500 | 1 |
| 05/2/96 | STCHC2 | 5500 | 1 |

Volatile solids

An aliquot of freeze-dried material was placed in a preweighed precombusted crucible, weighed and dried at 105°C for the determination of residual humidity after freeze-drying. The crucible was heated in a muffle furnace at 550°C for 3 hours, placed at 105°C, and weighed again. The loss of mass due to the combustion was attributed to the volatile solids (expressed as % 105°C dried material).

Mineral elements

An aliquot (100 mg) of the 105°C dried material was mixed with 1.5 mL HNO₃ and 1.5 mL H₂O₂, and digested in a microwave oven (Milestone 1200 Mega). The sample was then filtered through a preweighed glass-fiber filter (Whatman GF/C) and insoluble material determined by weighing the 105°C dried residue. The filtrate was analysed for Al, Mn, Cu, Zn, Ba, Pb by inductively-coupled plasma+mass spectrometry (ICP-MS, Fisons PQ2+), for Fe by graphite-furnace atomic absorption spectrometry (GF-AAS, Varian Zeeman SpectrAA 400), and for Ca, Na and K by flame photometry (Eppendorf Elex 6361). All results are given as percentages of the dry weight at 105°C.

Carbon and Nitrogen concentrations

The total carbon and nitrogen concentration of the freeze-dried deposits were measured with an element analyser (Carlo-Erba EA 1108): weighed aliquot was burned at 1080°C in a stream of ultrapure oxygen; the C and N concentrations were then measured by gas chromatography.

Organic carbon was determined after acidifying an aliquot with HCl at 40°C until effervescence ceased (removal of the carbonates). The sample was then dried, heated at 940°C in a stream of oxygen, and the organic carbon was measured by differential conductimetry. The mineral carbon fraction was calculated from the difference between the total and the organic carbon fractions. All results are given as percent C or N in the dry weight at 105°C after correction for the difference between the freeze-dried and 105°C dried weights.

Bacterial counts

The samples were diluted 10-fold in sterile saline water (9 g NaCl L⁻¹), and particles dispersed with a ultrasonic probe (B-Braun, Labsonic U, 15 s, 20 W, 19 mm probe). 1 mL of pure or diluted dispersed sample was incorporated into agar without glucose (AFNOR NF T 90-402). The plates were incubated at 22°C for 14 days, and the colony forming units (CFU) were counted and expressed as CFU g⁻¹ of 105°C dried matter.

Table 3: Hydrant flushing samplings

| Sampling date | Hydrant code | Type of flushed pipe* | Diameter of flushed pipe (mm) |
|---------------|--------------|-----------------------|-------------------------------|
| 04/25/96 | SLXGR | PVC or CL CI | 110 or 150 |
| 04/25/96 | HLCTE | PVC | 200 |
| 05/2/96 | MRTCH | PVC | 110 |
| 05/2/96 | DMTM | CL CI | 150 |
| 05/7/96 | HLLC | CL CI | 100 |
| 05/7/96 | AGLT | PVC | 110 |
| 06/4/96 | STNSL | CI | 150 |
| 06/4/96 | PXRCT | PVC | 110 |

*: CL = Cement-Lined; CI = Cast-Iron

Results

Samples of deposit were taken from reservoirs and pipes. The bottoms of some reservoirs were covered with a continuous layer (1-3 mm) of sediment, while the sediments were confined to low-flow areas of other tanks (corners, behind stakes, etc...). This uneven distribution cannot be directly interpreted, since sediments could have been flushed away during the draining of the reservoirs. There were also great differences in the quantity of solid material collected from the pipes in the 100 µm mesh filter (1-10 g), and in the turbidity of the filtrate (2-115 NTU). The differences between samples (and even over the bottom of a single reservoir) make it impossible to extrapolate from the quantity of particles collected to evaluate the total mass of deposits accumulated in the entire DWDS.

Table 4: Composition of reservoir sediments (as % 105°C dried weight)

| Reservoir code | Volatile solids | Inso-lubles | Fe | Ca | Al | Mn | Total* | mineral C | organic C | total N | Bacteria (CFU 14d g ⁻¹) |
|----------------|-----------------|-------------|------|------|-----|-----|--------|-----------|-----------|---------|-------------------------------------|
| GOLT | 20.1 | 16.1 | 15.5 | 6.0 | 3.6 | 1.1 | 88.1 | 3.5 | 6.4 | 1.1 | ND |
| BLVC1 | 23.8 | 2.6 | 14.7 | 2.2 | 5.2 | 7.4 | 82.0 | 4.1 | 4.8 | 0.68 | 1.9 10 ⁸ |
| CHCEXT | 28.4 | 9.3 | 10.2 | 1.1 | 3.9 | 2.9 | 72.3 | 4.7 | 11.1 | 0.82 | 2.0 10 ⁸ |
| MVXCG | 15.8 | 19.6 | 19.8 | 6.4 | 4.5 | 1.8 | 98.5 | 2.2 | 3.5 | 0.50 | 1.9 10 ⁸ |
| TRIC1 | 21.5 | 2.5 | 14.6 | 3.5 | 5.9 | 1.6 | 75.4 | 2.5 | 4.9 | 0.89 | 5.7 10 ⁸ |
| TRIC2 | 16.2 | 7.0 | 18.7 | 5.7 | 4.8 | 1.8 | 84.1 | 1.6 | 4.3 | 0.55 | 3.1 10 ⁸ |
| GUDL | 23.1 | 4.4 | 16.2 | 5.0 | 5.4 | 2.8 | 85.7 | 2.2 | 6.0 | 0.76 | 3.2 10 ⁸ |
| HDBL | 5.9 | 50.7 | 3.9 | 0.6 | 3.2 | 0.2 | 73.7 | 0.3 | 2.0 | 0.17 | 2.1 10 ⁷ |
| JUST | 10.8 | 28.5 | 3.3 | 12.7 | 7.5 | 1.8 | 101 | 1.4 | 2.3 | 0.36 | 2.8 10 ⁸ |
| CHDP | 17.9 | 8.1 | 27.7 | 2.5 | 2.6 | 1.8 | 86.5 | 2.6 | 4.3 | 0.50 | 1.0 10 ⁸ |
| SCHPS | 12.6 | 30.0 | 7.0 | 10.0 | 6.3 | 1.0 | 98.8 | 1.1 | 2.4 | 0.38 | 1.2 10 ⁸ |
| STCHC4 | 27.3 | 27.4 | 8.1 | 0.5 | 8.8 | 1.2 | 96.0 | 2.4 | 7.5 | 0.91 | 4.4 10 ⁸ |
| STCHC2 | 22.1 | 29.8 | 5.5 | 0.5 | 7.0 | 1.0 | 83.7 | 2.3 | 6.2 | 0.97 | 2.9 10 ⁸ |
| | | | | | | | | | | | |
| Average | 18.9 | 18.1 | 12.7 | 4.4 | 5.3 | 2.0 | 86.6 | 2.4 | 5.0 | 0.70 | 2.5 10 ⁸ |
| S.D. | 6.6 | 14.5 | 7.2 | 3.8 | 1.8 | 1.8 | 9.7 | 1.2 | 2.5 | 0.28 | 1.5 10 ⁸ |

ND=not determined, SD= standard deviation

* computed with oxide and carbonate forms

Table 5: Composition of pipe deposits (as % 105°C dried weight)

| Hydrant code | Volatile solids | Inso-lubles | Fe | Ca | Al | Mn | Total* | mineral C | organic C | total N | Bacteria (CFU 14d g ⁻¹) |
|--------------|-----------------|-------------|------|-----|-----|-----|--------|-----------|-----------|---------|-------------------------------------|
| SLXGR | 13.9 | 12.7 | 22.1 | 5.0 | 2.7 | 0.4 | 82.8 | 3.8 | 3.1 | 0.67 | 1.6 10 ⁸ |
| HLC TE | ND | 0.8 | 38.0 | 4.4 | 1.7 | 0.6 | ND | 4.0 | 3.6 | 0.50 | 4.2 10 ⁷ |
| MRTCH | 17.5 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | 3.2 | 3.0 | 0.45 | 1.8 10 ⁸ |
| DMTM | 16.2 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | 3.1 | 3.0 | 0.27 | 7.9 10 ⁷ |
| HLLC | 11.3 | 1.8 | 46.6 | 2.7 | 1.2 | 0.3 | 98.0 | 2.0 | 1.6 | 0.26 | 4.1 10 ⁶ |
| AGLT | 11.1 | 2.9 | 39.9 | 2.6 | 2.9 | 0.1 | 92.5 | 2.2 | 0.9 | 0.08 | 2.1 10 ⁶ |
| STNSL | 12.4 | <0.5 | 47.7 | 1.6 | 2.0 | 0.5 | 98.8 | 1.6 | 1.3 | 0.25 | 3.0 10 ⁷ |
| PXRCT | 15.6 | <0.5 | 38.1 | 5.1 | 2.0 | 0.4 | 95.4 | 3.9 | 3.7 | 0.34 | 1.9 10 ⁸ |
| | | | | | | | | | | | |
| Average | 12.9 | 3.0 | 38.8 | 3.6 | 2.1 | 0.4 | 91.0 | 2.9 | 2.4 | 0.40 | 7.2 10 ⁷ |
| S.D. | 1.9 | 4.9 | 9.2 | 1.5 | 0.6 | 0.2 | 8.4 | 1.1 | 1.2 | 0.21 | 8.4 10 ⁷ |

ND=not determined, SD= standard deviation

*computed with oxide and carbonate forms

The appearance of the deposits in the reservoirs and pipes varied considerably, despite the fact that the system is supplied with treated water from a single source. Their colour ranged from reddish to yellow-brown, or even dark brown. The texture (125x microscope) was mainly grains, or flocs, or a mixture of the two with a range of sizes.

Analytical results

Over than 15 elements and compounds were measured for each of the 13 reservoir and 8 pipe deposit samples (Tables 4 and 5). The Total column contains the sum of the volatile solids, insolubles, iron, calcium, aluminium and manganese, which are the major identified compounds. Fe, Al, and Mn were computed assuming that they were in the oxidized forms FeOOH, Al(OH)₃, and MnO₂ respectively, and that calcium was present as carbonates. The organic carbon and total nitrogen fractions were assumed to be in the volatile solids, and the mineral carbon in carbonates. Small amounts of Na and K were found in all deposits (<0.6%), and traces of Ba, Cu, Zn were also detected (results not shown). The average composition of reservoir sediments and pipe deposits are shown in Fig. 1.

The mass balance obtained by adding volatile solids, insolubles, FeOOH, Al(OH)₃, MnO₂ and CaCO₃ gave a fairly complete picture of the deposit composition for most samples, since 72-101% of the mass was identified, assuming the oxide and carbonate forms given above.

The reservoir sediments had, on average, equivalent fractions of insolubles, iron oxides and volatile solids (18-19%). The amounts of aluminium hydroxides (15%) and calcium carbonates (10%) were smaller, while 16% of the sediment remained unidentified (possibly due to non-measured elements, but also to the use of inappropriate oxidized forms for computation).

By contrast, the deposits from hydrant flushing were mainly iron oxides (62%), with small amounts of volatile solids (14%) and calcium carbonates (9%). There was very little insoluble material, aluminium or manganese oxides in these samples compared to the reservoir sediments. However, only the coarse fraction (>100 μm) was analysed, and elements (*e.g.* aluminium flocs) present in particles smaller than 100 μm, or in particles broken by the high speed filtration/flushing, could be under-represented.

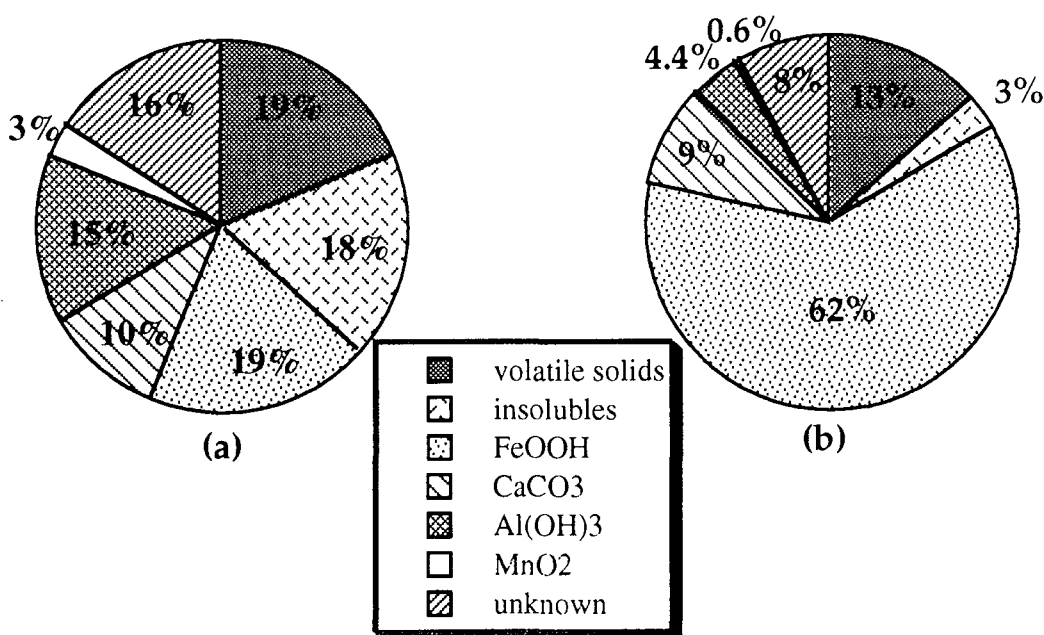


Fig. 1: Average composition of (a) reservoir and (b) pipe deposits

Nevertheless, the compositions within each type of deposits (reservoir and pipe) varied widely (Tables 4 and 5), with coefficients of variation of 15 to >100%. For example, the organic matter parameters (volatile solids, organic carbon, nitrogen), varied up to 10-fold between samples, and were slightly higher in reservoir samples than in pipe deposits. Furthermore, the

amounts of iron, aluminium, insoluble and manganese in the reservoir and pipe deposits were very different, as indicated by the average values. The amounts of insolubles, Al, Mn in the reservoir deposits were lower than in the pipes, but the pipe deposits contained more iron. In contrast, the ranges of calcium and mineral carbon in the reservoir and pipe samples were quite similar.

Some reservoirs samples had unusual features. For example, the HDBL reservoir deposit looked like sand when it was sampled, and contained 51% of insolubles material; this sample also had the lowest manganese and organic contents. There was very little calcium (0.5%) in the deposits of two reservoirs (STCHC2 and STCHC4), which are located close to the outlet of the treatment plant, but the calcium content was as high as 13% in remote reservoirs.

Thus, the proportions of the major compounds (organic matter, insolubles, Fe, Ca, Al, Mn) deposited in the network are not constant, even in a distribution system with a single source of water, and they can vary, not only between reservoirs and mains, but also from reservoir to reservoir, and from one pipe to another.

Changes in the deposit composition within the DWDS

The distance (expressed as the hydraulic residence time) from the treatment plant is often believed to influence water quality changes in a DWDS [11-14]. We have analysed the differences between the reservoir sediments as a function of the age of the water in each reservoir, and found no correlation. Thus, we can draw no conclusion about the accumulation of specific compounds upstream or downstream in the DWDS, except for the calcium fraction (Fig. 2), which slightly increases from upstream to downstream in the system.

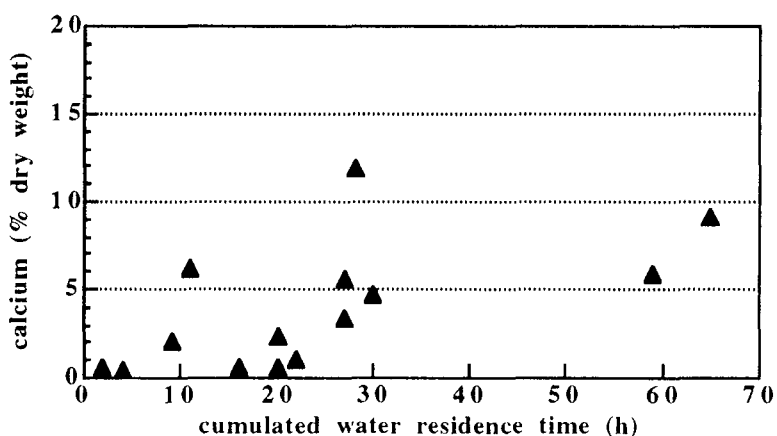


Fig. 2: Calcium content of reservoir deposits as a function of the position of the reservoir

Correlation between parameters

Principal component analysis (PCA) was used to examine the 17 fully-described samples (11 reservoirs and 6 pipe deposits). The two principal factors accounted for 72% of the initial variance, and many of the parameters are conveniently shown in Fig. 3 in the principal plan (close to the $R=1$ circle). Most of the major components of the deposits seems to be independant, since insolubles, Al, volatile solids, mineral C and Fe are distributed all around the circle (Ca and Mn are not properly represented with these factors). Only the aluminium and iron fraction are negatively correlated.

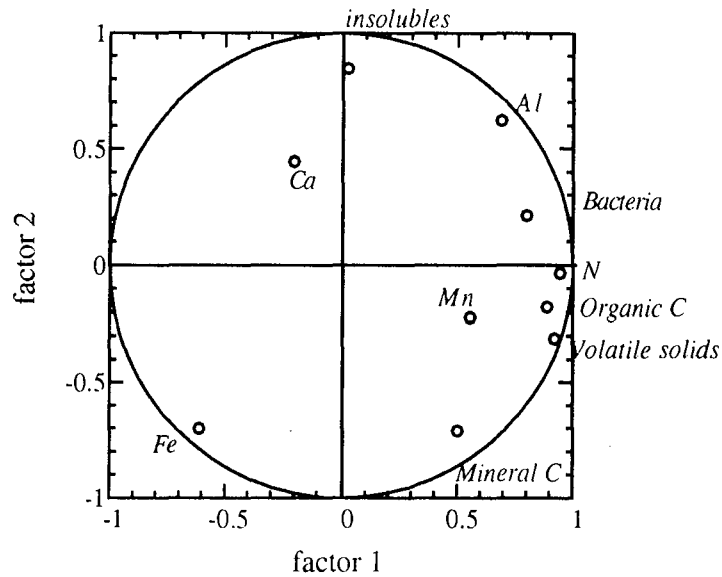


Fig. 3: Principal components plan showing the most pertinent parameters

The organic matter pool, evaluated by measuring the volatile solids, organic carbon and total nitrogen, is well represented, and indicates a strong link between its various parameters. The organic carbon and nitrogen fractions make up roughly 25% and 4% of the volatile solids [15]. The remaining fraction (71%) of volatile solids can be attributed to the oxygen and hydrogen fractions of the organic compounds (carbon is assumed to be about 50% of organic compounds), and to the H₂O molecules released during the heating at 550°C, which were not specifically measured here. Assuming that the carbon accounts for half the organic matter content, the organic matter makes up 2-22% of dry weight of the deposits .

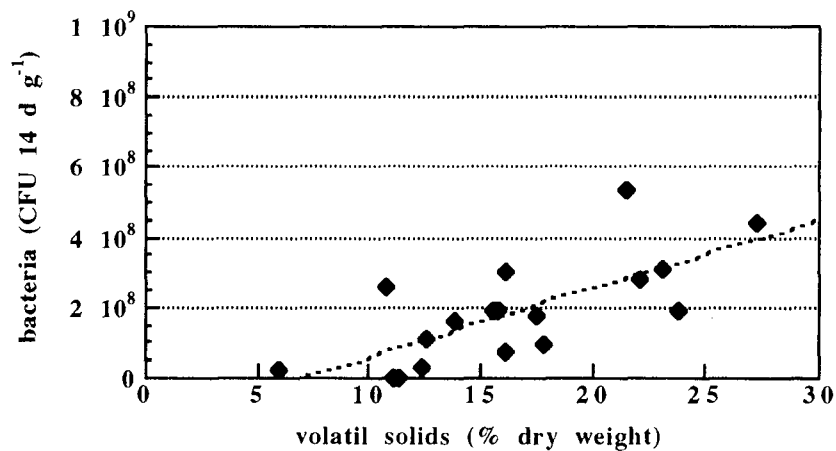


Fig. 4: Bacterial counts in deposits as a function of the volatile solid fraction

The bacterial densities were positively correlated with the organic matter content measured as volatile solids ($p > 99\%$) and Fig. 4 indicates that any increase in the organic matter content (above 7% of volatile solids) resulted in an increase in bacterial density (slope: $1.9 \cdot 10^7$ CFU 14d g^{-1} for a Δ volatile solids=1%).

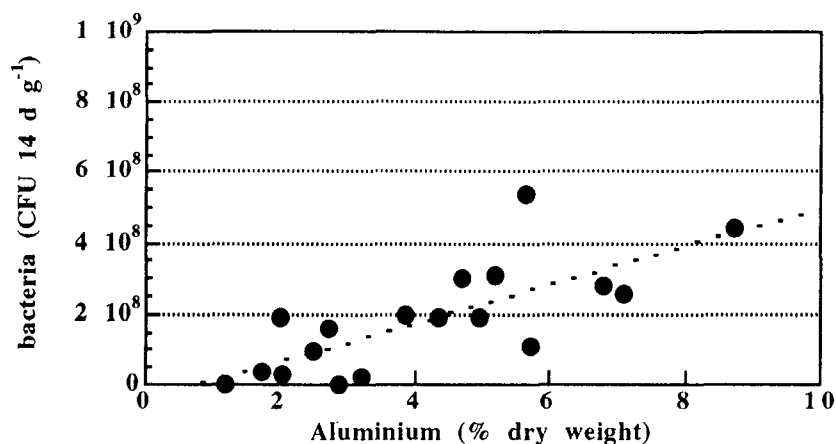


Fig. 5: Bacterial counts in deposits as a function of the aluminium fraction

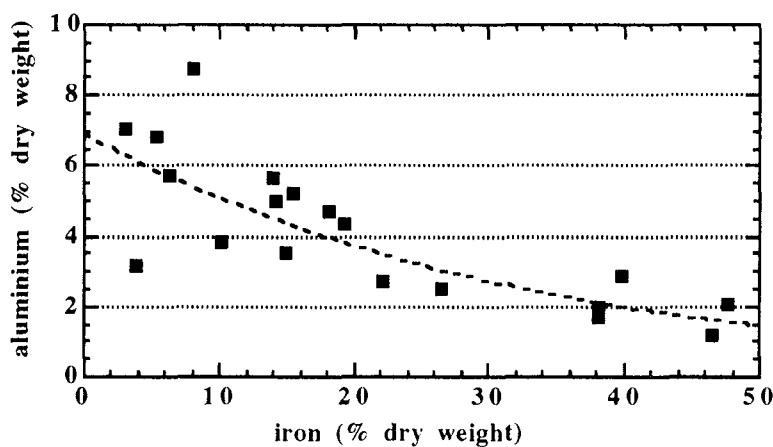


Fig. 6: Aluminium fraction in deposits as a function of the iron fraction

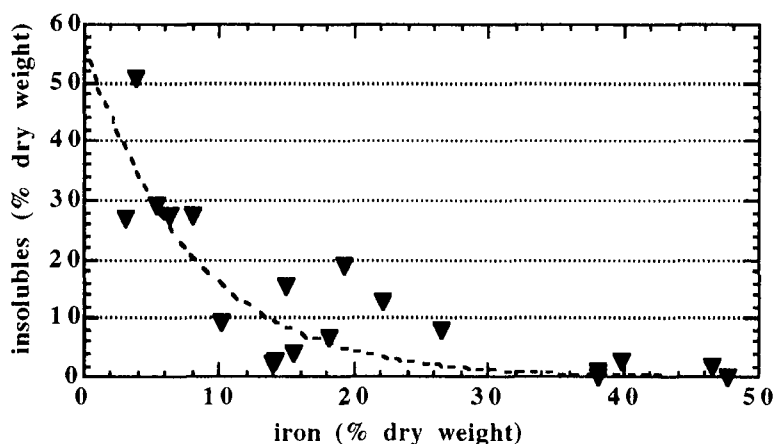


Fig. 7: Insoluble fraction in deposits as a function of the iron fraction

Aluminium, which always accounted for less than 9% of the deposits, was nevertheless the main mineral component, whose concentration was correlated with the bacterial counts ($p > 99.9$) (Fig. 5). Since the largest component of most deposits was iron (up to 76%, as FeOOH), variations in the iron fraction will influence the other fractions directly. This could partially explain the negative correlation between iron and aluminium (Fig. 6), and between iron and insolubles

(Fig. 7). The mineral carbon fraction seems to be independent of the concentrations of the other compounds.

Discussion

Particles can accumulate to form deposits in DWDS in at least 4 ways; particles may be introduced with the treated water, dissolved matter may become particulate within the system (precipitation, flocculation, biological growth), solid surfaces can be transformed into particles that can be resuspended (corrosion, erosion) and lastly, they may be due to external contaminations (intrusion during pipe repairs). The impact of the resulting deposits on the distributed water quality is not well defined, since neither the composition of the deposit, nor their exchanges with the water phase are well documented.

The main suspected impacts are those due to the production of biomass resulting from the accumulation of organic matter and from the high chlorine demand of deposits, which limits their disinfection using a water-borne biocid [15].

The most remarkable feature of our findings is that the compositions of deposits varied greatly from one sampling point to another within this large distribution system supplied from a single source of water. The main elements were iron, volatile solids (principally organic matter), insolubles, calcium and aluminium. These observations complement those of De Rosa [5] who measured large differences in the mineral composition of deposits sampled from flushed hydrants from different DWDS. Since no corrosion inhibitor is added to the treated water in this system, we found no high proportions of zinc flocs in the deposits [7]. The organic matter content in deposits (3-20%) was also much smaller than the mineral fraction.

Whatever the variability of the mineral composition of deposits, most of the deposits (particles > 100 μm) sampled from hydrant flushing had different compositions from those of reservoir sediments; their iron content were much higher and the insoluble, aluminium and manganese fractions were much smaller. This suggests that these three components form particles smaller than the 100 μm aperture of the net used to sample the pipe deposits, or that the particles accumulate differently in pipes and reservoirs. It is remarkable that in all pipe the deposit samples had high iron content, since half of them were flushed from PVC mains.

Mass balances were computed assuming that iron, aluminium and manganese were mainly present as respectively FeOOH , $\text{Al}(\text{OH})_3$, and MnO_2 , and that calcium is carbonated, and this accounted for most of the deposits mass (72-101%), giving a fairly good overview of the major elements in the deposits of the DWDS. This type of deposit composition mass balance had never been done from published data.

There was no correlation between most of the major compounds, except that aluminium and insolubles were negatively correlated with iron. This result indicates that all deposit are not formed by a single mechanism, but that a range of factors controls the deposition of each element.

The iron in deposits can result from the precipitation of dissolved iron, and also from the corrosion of the metal parts of the distribution system (cast iron, unlined ductile iron, etc...). DWDS corrosion (which can be microbially induced) has been frequently described [4] [16,17], but few data are available on the dissolved/particulate form of the corrosion by-products, and thus on the production of particles that may accumulate as loose deposits in networks and be resuspended during a hydraulic disturbance.

The organic matter in deposits has a variety of origins: organic compounds may be co-flocculated with aluminium or iron salts, or settle out from planktonic bio-particles (bacterial aggregates, detrital material). Planktonic motile organisms moving towards deposits could also transfer organic matter. Lastly, particulate organic material can also be produced *in situ* through the use of dissolved nutrients for the growth of organisms (=particles) in the deposits, or by the adsorption of soluble or colloidal compounds to the deposits.

Our findings do not completely answer the question of the origin of organic matter. Principal component analysis shows that the organic matter in deposits is not correlated with the mineral fractions in deposits; the correlation between volatile solids and the number of cultivable bacteria suggests that bacteria use the organic matter as a source of nutrients, but it does not discriminate between the possible origins of the organic matter.

The large number of cultivable bacteria regardless of the mineral composition of the deposits suggests that the mineral nature of the deposits has little influence on the survival and developments of microorganisms; only the aluminium fraction (which is always lower than 9%) and volatile solids were positively correlated with the bacterial counts suggesting that the mineral particulate fraction acts mainly as a support for bacteria, while the number of microorganisms is driven by the organic matter concentration.

Insolubles are believed to get into the distribution system by external contamination during pipe repairs or breaks, by erosion of concrete mains and reservoirs, and by the loss of sand fines, algal skeletons, and other insoluble plant-released compounds. This last assumption could explain the relatively high insoluble material content in the clearwells at the plant outlet (27 and 30%) which is correlated with the many algae seen in microscopic examination of these samples. Astier [18] found a low continuous flux of algae cells at the outlet of the same treatment plant.

The origin of the insoluble material (which cannot be fully attributed to algae) in other reservoirs is not so clear, especially for reservoir HDBL, where the sampled sediment contained 51% of sand particles. The origin of this sandy sediment, so different from all the other ones sampled from the same DWDS, remains unknown. External contamination of the DWDS with insoluble material seems low, since small amounts of insoluble material (average 3%) were found in samples of pipe deposits obtained by hydrant flushing.

The calcium content is the only fraction of the deposits which varies slightly between the upstream/downstream locations in the system (from 0 to approx. 10-12%). This could be due to changes in the mineral equilibrium of the water between the inlet and the outlet of the system: just after remineralization, the water coming from the treatment plant is little aggressive, so that the calcium remains dissolved. Its passage through the distribution system (and especially reservoirs) could lead to a precipitation of calcium carbonate from a displacement of the equilibrium between $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2$ resulting from the loss of some of the dissolved CO_2 [19]. This fits with the slight increase in pH in this distribution system (0.1-0.3 pH units). The lack of correlation between the calcium and mineral carbon content in the deposits indicates that carbonates are not exclusively associated with calcium, or on the contrary, that calcium is not only under the form of carbonates, which was the assumption made for the mass balance computation of the deposits composition.

Aluminium enters the distribution system mainly as a so-called "dissolved" element: aluminium sulfate is used as a coagulant at the treatment plant, and Rosin found that aluminium concentration in water from this treatment plant was $50 \mu\text{g L}^{-1}$, as dissolved ($<0.45 \mu\text{m}$) labile complexes with molecular weights of 10,000-50,000 Daltons [20]. Similar aluminium profiles in several distribution systems are found in literature [21,22] with little difference between $0.45 \mu\text{m}$ filtered samples and unfiltered samples, which indicates little particulate aluminium. Driscoll and Letterman [22] examined the form of aluminium in treated water as a function of pH and temperature, and confirmed that most Al is in a monomeric form. Nevertheless, some of this dissolved aluminium is transferred to the deposits, which can contain up to 8.8% Al. This could be due to slow flocculation along the network or deposition of the very small Al particulate fraction of the treated water ($50 \mu\text{g L}^{-1}$ is equivalent to a total annual mass of aluminium introduced into this DWDS of approx. 1,350 kg).

Conclusions

The DWDS carries each year both water, and tons of minerals (iron, silicates, aluminium, calcium, manganese, etc...), and organic matter. While many of them are dissolved elements (suspended solids are sometimes as little as some $\mu\text{g L}^{-1}$), a small fraction can settle out to form

loose deposits in the distribution system. The relationship between the particulate and dissolved phases is probably very dynamic, since biotransformation can produce particulate organisms from dissolved matter, and pH changes can cause the precipitation or dissolution of calcium carbonates.

This study provided new insights on the composition of the deposits and the relationships between the various fractions. The differences between deposits in the same network indicate that several mechanisms (physical, chemical, and biological) govern the formation of deposits. All the deposits were heavily colonized with microorganisms. The DWDS deposits provide a porous medium that allows the attachment and growth of bacteria (high surface/volume ratio), especially when the aluminium fraction is high. The deposits also provide organic nutrients (the organic matter fraction is 2-22% of deposit dry weight) to the microorganisms, and thus can be considered as a biomass reservoir inside the distribution system.

It is thus important to prevent the accumulation of deposits in DWDS by implementing adequate cleaning. It is more difficult to identify the origins of the particulate matter in the system, and so limit its deposition by preventive treatment at the plant, or changes in the operation of the system. In the next future, mineralogical and crystallochemical analysis of the deposits should provide detailed information on the oxides forms to be used for the mass balance computation, and could also reveal the origin of some of the mineral particles found in the loose deposits of drinking water distribution systems.

Aknowledgements :

This work was carried out as part of a larger research programme entitled "Biofilm " and coordinated by the Centre International de l'Eau de Nancy (NANCIE, France). It was funded by : Agence de l'eau Seine-Normandie (AESN, France), Anjou-Recherche (CGE, France), Communauté Urbaine du Grand Nancy, (France), Office National de l'Eau Potable (ONEP, Morocco), Syndicat des Eaux d'Ile de France (SEDIF, France), Pont-à-Mousson S.A. (France), and NANCIE. The sampling of deposits in the Grand Nancy water distribution system was performed with the help of J. César and M. Thèse. Special thanks to B. Gérard, T. Orel, N. Sciaux and C. Magnier for analytical support, and to J.Yvon for stimulating discussion during the preparation of the manuscript.

References

- [1] **Logsdon G.S., Rice E.W., 1985**, Evaluation of sedimentation and filtration for microorganisms removal, *Proc. Annual Conf. Am. Wat. Wks Ass.*, 1177-1197.
- [2] **Brazos B.J., O'Connor J.T., 1990**, Seasonal effects on the generation of particle-associated bacteria during distribution, *proc. AWWA Wat. Qual. Technol. Conf., San Diego*, 1073-1101.
- [3] **Camper A.K., LeChevallier M.W., Broadway S.C., McFeters G.A., 1986**, Bacteria associated with granular activated carbon particles in drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, 52, 3, 434-438.
- [4] **Smith S.E., Bisset A., Colbourne J.S., Holt D., Lloyd B.J., 1996**, The occurrence and significance of particles and deposits in a drinking water distribution system, paper given at the "national conf. on integrating corrosion control & other water quality goals", Boston, Mass., USA.
- [5] **De Rosa S., 1993**, Loose deposits in water mains, Report DoE 3118-/2, Department of the Environment, London.
- [6] **Herson D.S., McGonagle B., Payer M.A., Baker K.H., 1987**, Attachment as a factor in the protection of *Enterobacter cloacae* from chlorination, *Appl. Environ. Microbiol.*, 53, 5, 1178-1180.
- [7] **LeChevallier M.W., Babcock T.M., Lee R.G., 1987**, Examination and characterization of distribution systems biofilms, *Appl. Environ. Microbiol.*, 53, 12, 2714-2724.
- [8] **Lévi Y., Randon G., Denojean C., Pagliardini A., Vajente G., Champsaur H., 1992**, Etude d'un réseau à très faible teneur en matière organique biodégradable: le réseau de la ville de Nice, *Sciences de l'Eau*, 5, 225-243.
- [9] **Kerneis A., Simon P., Deguin A., Feinberg M., 1993**, Designing a drinking water monitoring system for rural distribution networks, *Water Supply*, 11, 3/4, Berlin, 219-231

- [10] Sly L.J., Hodgkinson M.C., Arunpairojana V., 1990, Deposition of manganese in a drinking water distribution system, *Appl. Environ. Microbiol.*, 56, 3, 628-639.
- [11] Desjardins R., Lavoie J., Lafrance P., Prévost M., 1991. Comparaison de l'évolution de la qualité de l'eau dans deux réseaux de distribution, *Sciences et Techniques de l'Eau*, 24, 4, 321-331.
- [12] Mathieu L., Block J.C., Prévost M., Maul A., DeBischoff R., 1995, Biological stability of drinking water in the city of Metz distribution system, *J. Water SRT - Aqua*, 44, 5, 230-239.
- [13] Mathieu L., Paquin J.L., Block J.C., Randon G., Mailliard J., Reasoner D., 1992, Paramètres gouvernant la prolifération bactérienne dans les réseaux de distribution, *Revue des Sciences de l'Eau*, n°5 spécial, 91-112.
- [14] Kerneis A., Nakache F., Deguin A., Feinberg M., 1995. The effects of water residence time on the biological quality in a distribution network, *Wat. Res.*, 29, 7, 1719-1727.
- [15] Gauthier V., Gérard B., Portal J.M., Block J.C., Gatel D., 1996, Particulate organic matter in drinking water distribution systems, Proceedings of the "Natural Organic Matter Workshop", Poitiers, France.
- [16] Flemming H.C., Geesey G.G., Biofouling and biocorrosion in industrial water systems, *Springer-Verlag, Berlin*, 220 pages.
- [17] LeChevallier M.W., Lowry C.D., Lee R.G., Gibbon D.L., 1993, Examining the relationship between iron corrosion and the disinfection of biofilm bacteria, *J. Am. Water Wks Assoc.*, 85, 11-123.
- [18] Astier F, 1996, Caractérisation et contrôle de la flaveur moisie d'une eau de distribution publique, *Ph.D thesis, University of Nancy I, France*, 320 pages.
- [19] Sigg L., Stumm W., Behra P., 1992. Chimie des milieux aquatiques, *Masson, Paris*, 391pages.
- [20] Rosin C., 1993, Application du couplage torche à plasma-spectrométrie de masse à la recherche d'éléments traces en eau potable et dans les saumures, *Ph.D thesis, University of Nancy I, France*, 200 pages.
- [21] Gardner M.J., Gunn A.M., 1995, Speciation and bioavailability of aluminium in drinking water, *Chemical Speciation and Bioavailability*, 7, 1, 9-16.
- [22] Driscoll C.T., Letterman R.D., 1995. Factors regulating residual aluminium concentrations in treated water, *Environmetrics*, 6, 287-309.

II.3 Organic matter as loose deposits in a drinking water distribution system

L'analyse détaillée de la composition organique et microbiologique des dépôts de réservoir et de canalisation présenté dans ce paragraphe complète l'approche plus globale du chapitre II.2. La matière organique est en particulier caractérisée par les valeurs du rapport $C_{\text{organique}}/N$, par sa signature spectrale en infrarouge, et pour quelques échantillons seulement en détaillant les fractions humiques et fulviques dans les dépôts. Les quantités de matière organique observées sont proportionnelles au nombre de bactéries, elles mêmes à la base de la chaîne trophique particulièrement développée qui a été trouvée dans les dépôts. La consommation de chlore générée par les dépôts remis en suspension a de plus été mesurée, et attribuée en quasi-totalité à la présence de matière organique azotée. Ainsi, les dépôts accumulent matière organique et micro-organismes et fournissent un environnement réducteur défavorable à la pénétration de désinfectants.

Ces résultats sont détaillés ci-après sous forme d'article accepté pour publication dans la revue *Water Research* (mai 1998).

ORGANIC MATTER AS LOOSE DEPOSITS IN A DRINKING WATER DISTRIBUTION SYSTEM

Short title: Organic deposits in a drinking water system

Vincent GAUTHIER¹, Bernadette GÉRARD², Jean-Marie PORTAL²
Jean-Claude BLOCK^{1*}, Dominique GATEL³

¹ LSE, GIP STELOR, NANCIE, UMR Université-CNRS n°7564, Faculté de Pharmacie, 5, rue Albert Lebrun, 54000 Nancy, France

² CPB, CNRS UPR n°6831, 17, rue Notre-Dame des Pauvres, 54501 Vandoeuvre-les-Nancy, France

³ Compagnie Générale des Eaux, 32 place ronde, 92982 Paris-La Défense, France

* Corresponding author: tel: +33-(0)383 17 88 49; fax: +33-(0)383 17 88 79, e-mail: block@pharma.u-nancy.fr

Abstract

The distribution of treated water of good quality can generate in many cases the formation of unwanted loose deposits in the reservoirs and pipework of distribution systems. The approach used in this study seeks to characterize the organic component of deposits in a large distribution system, since organic matter is a key factor in controlling the biostability of water and has not previously been described with relation to these deposits.

Deposits were found to contain a variable, but minority fraction of organic matter: less than 11% as organic carbon, 1.1% as nitrogen, or 28% as volatile solids, but the corresponding concentrations were much higher (g L^{-1}) than those found in circulating water (mg L^{-1}). The same ratio applies to bacterial counts. Proportions of C_{organic} and N were linked through a linear relationship, which results in a consistent C/N ratio close to 7 irrespective of the quantity of organic matter in the sediment. This low C/N value suggests that the *in-situ* biological activity has a strong influence on the C and N fractions. This is confirmed by (i) the high heterotrophic plate counts (HPC) in the deposits (up to $5.8 \cdot 10^8$ CFU 14 d g^{-1} of dry matter); (ii) the observation of a mature trophic chain in most samples resulting in the presence of macro-organisms (*Asellus*, *Gasteropoda*), in some cases; and (iii) positive correlations between the organic matter fractions (as C_{organic} and N) and the HPC. No relationship was found between the organic characteristics of deposits and upstream/downstream locations in the system. The deposits appear to contain a reserve of organic matter capable of supporting the development of bacteria as well as bacterial predators, which is likely to provide favourable conditions for the contamination of water carried by the distribution system. Chlorine demand of loose deposits was high and would be predicted from nitrogen content, but inactivation of bacteria associated with resuspended deposits appears unfeasible with current disinfection practices due to oxidant reduction resulting from deposit resuspension.

Key-words

Drinking water; distribution system; organic matter; deposits; sediments; particulate matter; organic carbon; C/N ratio; chlorine demand; bacteria

Introduction

Distribution pipeworks are no longer considered inert systems supplying drinking water to large areas, but as biological and chemical reactors that interact with the transported water. Thus, water quality changes with time and space (Desjardins *et al.*, 1991; Mathieu *et al.*, 1995; LeChevallier *et al.*, 1996), and the observed microbial instability in these systems has been often attributed to the consumption of dissolved organic matter by suspended and attached bacteria (Mathieu *et al.*, 1992; Servais *et al.*, 1995; Van der Kooij, 1995; Block, 1998). In contrast, little is known about the abundance and the role of particulate organic matter in distribution systems.

In distributed water, the number of suspended particles is usually quite low: for example, Brazos and O'Connor (1990) counted between 293 and 1,116 particles larger than 3 μm per mL which is in a range comparable with corresponding treated water concentrations (186 -1,229 particles per mL). The concentration of suspended particulate matter varies throughout the system, and some authors (Goshko *et al.*, 1983; Brazos and O'Connor, 1990; Cappelier *et al.*, 1992) reported an increase in turbidity with distance from the treatment plant, while others (Woodward *et al.*, 1995) measured a decrease in the number of particles coupled with changes in their size distribution. Many of these suspended particles sediment and form loose deposits in parts of the distribution system where hydraulic conditions are favourable (low flow at night, dead-ends, reservoirs).

While the composition of suspended particles is seldom detailed due to their very low concentration (*e.g.* 30 μg dry matter L^{-1}), the composition of loose deposits has been determined and shown varying proportions of iron and manganese oxides, sand, zinc flocs, algae siliceous skeleton, detrital organic particles, and organic micropollutants (Ridgway and Olson, 1981; LeChevallier *et al.*, 1987; Sly *et al.*, 1990; Lévi *et al.*, 1992; De Rosa, 1993; Gauthier *et al.*, 1996). Quantitative data regarding particulate organic matter in drinking water systems is given only by Sly *et al.*, (1990) who found 23 % of volatile solids in deposits (after combustion at 550°C), and 21 to 32 % in suspended particles.

There are a number of origins for the formation or deposition of particulate matter in distribution systems: incomplete removal of particles from raw water (Logdson and Rice, 1985; Sabater, 1995), release of fine materials from treatment filters (Camper *et al.*, 1986; Bucklin *et al.*, 1991; Stringfellow *et al.*, 1993), precipitation of metal oxides (Sly *et al.*, 1990) or calcium carbonates (Mouchet *et al.*, 1992), post-flocculation (Bourbigot *et al.*, 1988; Brazos and O'Connor, 1990), biological growth (Levy *et al.*, 1984; Servais *et al.*, 1995), or corrosion (LeChevallier *et al.*, 1993; Smith *et al.*, 1997). External contamination in reservoirs or pipes, for example fractures or replacement of pipes, can also lead to the introduction of particles into the system. Nevertheless, such a large number of possible sources of particles, and the pipework

complexity, prevent in most cases direct a identification of the origin of particles found in distributed water.

Suspended particles generate at least two types of problem for distributed water quality: firstly, they can carry bacteria fixed on their surface, which protect them from disinfection (Ridgway and Olson, 1982; Camper *et al.*, 1986; Herson *et al.*, 1987), secondly, they contribute to the formation of loose deposits in reservoirs and pipework, which are resuspended into the water phase when a change occurs in the hydraulic properties of the system (direction, velocity, water hammer, etc). Organic matter is suspected to greatly influence the activity of bacteria located inside these loose deposits, even if it is not known to what extent these bacteria grow on dissolved carbon diffusing from the water phase, or from accumulated material. After resuspension of deposits, microbiological and chemical characteristics of water are not controlled (De Rosa, 1993), and the resulting degradation of water quality is perceptible to the consumers (turbidity, colour), and can generate complaints (Jones and Tuckwell, 1993).

To provide data on the distribution and nature of particulate organic matter in pipework deposits, and with the ultimate goal of an improved understanding of parameters governing biological stability in water distribution systems, the organic fraction of loose deposits from reservoirs (n=13) and pipes (n=8) belonging to a large distribution system were characterized, by measuring:

- a) their content of organic carbon, total nitrogen, volatile solids and humic substances,
- b) the resulting C/N ratio (which reflects the degree of "freshness" and the extent of transformation of organic matter), and its changes over the residence time along the system,
- c) the presence of micro-/macro-organisms within different types of deposits, and the corresponding density of heterotrophic bacteria with relation to the carbon and nitrogen content,
- d) the role of deposited organic matter in generation of chlorine demand was also evaluated.

One of the objectives was to contribute to the limited published information on: (i) the organic composition of loose deposits that are susceptible to resuspension and able to affect directly the quality of distributed water, (ii) the distribution of organic deposits accumulated in a large system, (iii) the micro-and macro-organisms associated with these deposits. In this way, accumulation/generation zones within the network can be identified and mechanisms to explain for the origin of organic matter can be derived. Investigation on loose deposits can also help to reveal the starting point for the establishment of trophic webs in distribution systems.

Materials and Methods

Distribution system

Loose deposit samples were obtained from the distribution system of the Communauté Urbaine du Grand Nancy, which serves a population of 300,000 inhabitants. It was supplied with raw water taken from the Moselle River and treated as follows: prechlorination, coagulation-flocculation-settling, rapid sand filtration, ozonation, GAC filtration, chalk remineralization and post-chlorination. Average characteristics of this treated water are presented in Table 1. This distribution network is made of grey cast iron, cement-lined ductile iron, PVC and polyethylene pipes and includes 30 covered reservoirs for gravity-pressurized distribution.

Table 1: Average characteristics of treated water supplying the distribution system (October 1994 - August 1995).

| PARAMETER | UNIT | n | AVERAGE VALUE (S.D. *) |
|-------------------------------|------------------------------------|-----|------------------------|
| Turbidity | NTU | 50 | 0.11 (0.03) |
| Temperature | °C | 106 | 12.0 (5.8) |
| pH | | 97 | 8.15 (0.35) |
| Free chlorine | mg Cl ₂ L ⁻¹ | 104 | 0.56 (0.19) |
| Total chlorine | mg Cl ₂ L ⁻¹ | 104 | 0.67 (0.20) |
| Resistivity | Ω.cm | 50 | 4,028 (828) |
| Hardness | meq.L ⁻¹ | 50 | 1.9 (0.5) |
| Nitrate | mg L ⁻¹ | 50 | 5.2 (1.8) |
| Nitrite | mg L ⁻¹ | 50 | ND* |
| Ammonium | mg L ⁻¹ | 50 | ND* |
| KMnO ₄ oxidability | mg O ₂ L ⁻¹ | 50 | 0.95 (0.24) |
| Alkalinity | meq.L ⁻¹ | 50 | 0.9 (0.2) |
| Chloride | mg L ⁻¹ | 50 | 14.2 (3.3) |
| Sulfate | mg L ⁻¹ | 50 | 50 (19) |
| HPC** | CFU 3d mL ⁻¹ | 498 | 18 (35) |

* ND = not detected; S.D. = standard deviation

** heterotrophic plate counts measured at the consumer's tap

The sediments from thirteen of these reservoirs (volume: 513 to 5,500 m³) were sampled during the study period. Most of reservoirs were lined with cement mortar. Pipe deposits samples (n=8) were obtained by flushing hydrants connected to PVC, cast iron or cement lined pipes, with diameters ranging from 110 to 200 mm. Hydraulic residence times for each reservoir sampled, computed from the average volumes and flow rates over one week, were between 1 to 48 hours. The hydraulic residence times for mains linking different reservoirs were computed from their dimensions and average flow rates, and were always less than 6 hours. The distances between

sampled reservoirs and the treatment plant (in hours) were calculated by adding together the average residence time in successive reservoirs with the residence times in the connecting mains.

Deposit sampling

Sediments at the bottom of drinking water reservoirs were sampled during the yearly draining before cleaning. Depending on their thickness and the quantity of overlying water, they were sampled by gently scraping or sucking the reservoir's floor and transferring into sterile pots (Polylabo, ref. 05186). One aliquot (2 mL) was used for bacterial counting, while most of the sample was freeze-dried prior to chemical analysis (recovered quantity: 0.6-70 g according to the reservoir). The concentration of dry material in fresh sediments was around 50-100 g L⁻¹, provided there was no dilution with overlying water during sampling. A fresh aliquot was also examined and photographed under a phase-contrast microscope (Olympus BX 60, magnification 100 to 400x).

Loose deposits in pipes were sampled from hydrants flushed according to the following procedure: the hydrant was equipped with a flowmeter and the pipe section between the hydrant and the main was first purged. Then, a nylon net (mesh size: 100 µm, to separate the larger particles) was fixed on the outlet and the hydrant was flushed for 3 minutes at a 60 m³/h flow rate. Filtered water was sampled in a 10 L glass bottle which was then returned to the laboratory and placed at 4°C to settle for five hours. Bacterial numbers were measured in the overlying water (which was then discarded by siphonage) and in the settled fraction. The settled fraction (<100 µm) and the deposits >100 µm collected by rinsing the net were freeze-dried prior to further chemical analysis. Filtered water was also sampled in a 500 mL brown-glass bottle (previously treated at 550 °C) for analysis of chlorine residuals and chlorine demand of flushed water. Depending on the sampling point, only 0.5 to 10 g of dry particles were obtained from the 100 µm net after the 3 m³ flushing, while the settled part of the filtrate provided only 0.1 to 1.1 g of freeze-dried material. Thus, the quantity of material available for chemical or biological analyses varied considerably depending on the location of the sampling point. Consequently, organic carbon was not evaluated on the settled fraction <100 µm for half the hydrant samples due to the low quantity of freeze-dried material obtained.

Volatile solids

An aliquot of freeze-dried material was placed in a preweighed precombusted pot, weighed and dried at 105°C to determine the residual humidity after freeze-drying. The pot was then combusted at 550°C for 3 hours and placed at 105°C, and weighed again. The mass difference after the combustion was attributed to volatile solids (VS) expressed as % of the 105°C-dried material.

Carbon and Nitrogen concentrations

Total nitrogen concentration of the freeze-dried deposits was measured with an elementary analyser Carlo-Erba EA 1108: a weighed aliquot was combusted at 1080°C with ultrapure oxygen,

and the N concentration was determined by gas chromatography. For the measurement of organic carbon, an aliquot was weighed and acidified with hydrochloric acid at 40°C until no effervescence was observed (removal of the carbonates). The organic carbon in the dried sample was then measured by differential conductimetry after combustion at 940°C in an oxygen flux. Results were expressed as percent of C or N in the freeze-dried material.

The organic carbon/nitrogen ratio was used to qualify organic matter. When high, this ratio indicates a detrital nature of organic compounds, while low values are related to fresh material associated to still active biological processes (Duchaufour, 1995). For example, C/N ratio of planktonic bacteria from a natural environment is within the range of 3.8-8.6 (Nagata, 1986), while for humic substances of lake sediments and surface waters, it ranges are respectively 10-16 and 16-100 (Steelink, 1985).

Organic compounds characterization

For infrared spectrophotometry, 1 mg of freeze-dried deposit was dried under a phosphoric atmosphere (P₂O₅), and pelleted at 10 tons pressure with 200 mg of KBr. Transmission spectra obtained from a Beckman IR 4250 infrared spectrophotometer were used to qualify the organic matter of the sample.

For a simple evaluation of humic/fulvic fractions, an aliquot of the freeze-dried sample was weighed and decarbonated with hydrochloric acid. Humic substances were extracted in an alkaline mixture of sodium pyrophosphate (1%) and sodium hydroxide (0.1 N). The humic/fulvic acids separation was achieved by acidifying this extract at pH 2. Flocculated humic acids were then re-dissolved in sodium hydroxide 0.1 N. Due to the limited quantity of dry materials sampled from reservoirs and pipes, this analytical procedure was mostly qualitative.

Bacterial counts

Deposit samples were diluted 10 fold in sterile salted water (9 g NaCl L⁻¹), and dispersed with an ultrasonic probe (B-Braun, Labsonic U, 15 s, 20 W, 19 mm probe). Dispersed samples (and their dilutions) were incorporated into glucose-free agar (AFNOR NF T 90-402). Heterotrophic plate counts (HPC) were obtained after 3 and 14 days of incubation at 22°C, and expressed as colony forming units (CFU) g⁻¹ of dried matter, or as CFU mL⁻¹.

Chlorine demand

Free chlorine was measured using the DPD colorimetric method (Standard Methods, 1992), and the intensity of colour was read with a Hitachi U-2000 spectrophotometer. Results were expressed as mg Cl₂ L⁻¹.

The chlorine demand of reservoir sediments was determined using 20 mg of freeze-dried deposit diluted in 500 mL of Évian water, in a 500 mL chlorine demand-free brown-glass flask. The suspension was spiked with 2 mg Cl₂ L⁻¹ of sodium hypochlorite (from a titrated bleach

solution), and placed on a mixing table (120 rpm, 20°C) to limit sedimentation of particles during the 72 hours of chlorine-decay kinetic monitoring. The chlorine demand of freshly sampled water from hydrant flushing was measured without dilution. The suspended matter concentration thus differed for the two types of sample, but this allows to evaluate the real chlorine demand during abnormal flow: the water, which had been filtered through the 100 µm net at the hydrant, was spiked with 2 mg Cl₂ L⁻¹, and placed on a mixing table (120 rpm, 20°C) to limit the sedimentation of particles during the 24 hours chlorine-decay kinetic monitoring.

For these two types of chlorine demand, reference flasks containing only Évian water spiked with chlorine were used to evaluate the amount of chlorine decay due to the dilution water demand, to volatilization and to the dissociation of free chlorine molecules.

The chlorine-decay kinetics were fitted with a first order equation:

$$C = C_0 e^{-kt}$$

with C : chlorine concentration at time t (mg Cl₂ L⁻¹); C_0 : initial chlorine concentration (mg Cl₂ L⁻¹); k : chlorine decay kinetic constant (hour⁻¹); t : time from the chlorine injection (hour).

Results

Loose deposit sampling was performed in reservoirs and pipes of a large distribution system. Water from this system fully satisfies the European Community requirements for drinking water quality (Table 1). Nevertheless, accumulated sediments were found in all reservoirs, covering a very variable fraction of the floor (from a few percent and 100%), with a thickness never exceeding 2-3 mm. This cover represents from a few grams to several kilograms accumulated during one year of operation of each reservoir, following the previous cleaning. There was no evidence for any relationship between the amount of accumulated deposits and reservoir size, reservoir hydraulic residence time or distance from the treatment plant. Particle concentrations in hydrant flushing water ranged from 0.2 to 3.5 mg L⁻¹ (>100 µm fraction) and from 10 to 110 mg L⁻¹ (<100 µm fraction).

Organic fraction characterization

The organic carbon and total nitrogen content of the different samples (reservoir sediments and pipe deposits) are presented in Fig. 1. For all samples but one, the organic carbon and total nitrogen concentrations were linked with a significant linear relationship, which indicates a relatively constant proportion of C_{organic} and N_{total} irrespective of the concentration of organic matter in the deposits. For reservoir deposits, the organic carbon and nitrogen contents ranged respectively from 2.0 to 11 % and from 0.17 to 1.1 % of the mass of the freeze-dried sample (n=13). Proportions of organic carbon or nitrogen in deposits were not higher in reservoirs closer to the treatment plant outlet nor in remote reservoirs, thus excluding any correlation with the residence time in the distribution system.

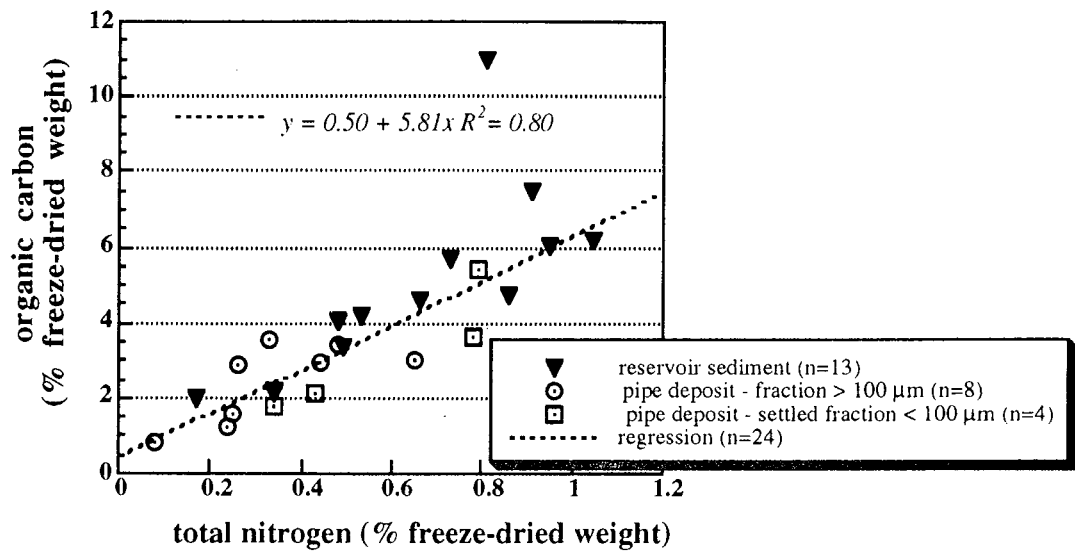


Figure 1: Relationship between organic carbon and total nitrogen content for different types of deposits.

For samples from hydrant flushing, the carbon content was determined from both coarse (>100 μm) and fine fractions (<100 μm). The C_{organic} and N concentrations obtained for these different fractions were comparable to those from the reservoirs irrespective of the size of the fraction studied (<100 μm or >100 μm) (Fig. 1). For these pipe deposits, computation of the C/N ratio resulted in quite low values for the fine settleable fraction <100 μm (between 4.7 and 6.8; n=4), while the range was wider for the coarse (>100 μm) fraction retained by the net (between 4.6 and 11.2; n=8).

This ratio $C_{\text{organic}}/N_{\text{total}}$, is indicative of the stage to which organic matter has evolved microbiologically. It was found relatively constant for most reservoir samples and within the range 5.5-8.5 (average: 7.0 ± 1.0 ; n=11). These low values reflect the high biological imprint on organic matter. Only two reservoir sediments had C/N ratios above 10, which indicates a higher level of detrital organic matter. When the C/N ratio is plotted as a function of the distance from the treatment plant expressed in hours (Fig. 2), no trend were observed reflecting no change of the C/N ratio from upstream to downstream locations in the system: organic matter in deposits does not seem "fresher" close to the plant than in remote locations which indicates that renewal of the organic matter pool from flowing water was probably high enough to prevent significant humification of sediments in most parts of the distribution system.

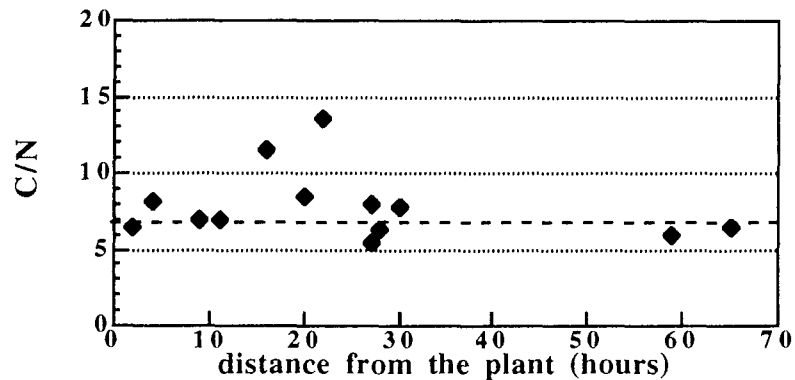


Figure 2 : C/N ratio of reservoir sediments as a function of the hydraulic residence time of water in the system

The volatile solids (VS) measurement is often used as an overall evaluation of the quantity of organic matter (Sly *et al.*, 1990) as proposed in the Standard Methods (1992), while it is also stated that organic carbon represents approximately half of the organic matter (Duchaufour, 1995). Here, VS were in the range 5.9-28 % (n=13) for reservoir sediments and in the range 11-20 % (n=7) for the coarse fraction (>100 μm) of the pipe deposits (data not shown). Volatile solids were linearly correlated with the organic carbon fraction ($\text{VS} (\%) = 3.2 \text{ C} (\%) + 4.5$; $R^2 = 0.81$; n=20; $p > 99.9$). The linear relationship between organic carbon and volatile solids observed has a slope value of 3.2, while the expected value would be around 2 if volatile solids were mostly organic matter. The assumption that volatile solids mostly represent organic matter can then be questioned. The apparent overestimation of the organic matter fraction using the 550°C combustion technique may partly result from the volatilization of other compounds (especially immobilized water in hydrated mineral precipitates) between 105 and 550°C.

Different types of organic matter were observed in the infrared absorption spectra from eight of the reservoir sediments. Spectra were not fully resolved due to overlapping with absorption bands resulting from the high mineral content of the deposits. Nevertheless, differences in aliphaticity of the tested samples could be seen clearly: the spectrum of one reservoir sediment (Fig. 3 - lower spectrum) showed two aliphatic bands at 2,920 and 2,880 nm, which are typical from radicals CH_3 and CH_3CH_2 ; these absorption bands were hardly detected in samples from three other reservoirs (e.g.: middle spectrum), and undetected for four other reservoir samples (e.g.: upper spectrum).

The evaluation of humic substances concentrations in reservoir sediments also revealed significant differences, even if not systematically performed due to limited quantity of sampled material. Only two out of the four analysed samples contained humic substances: humic acids represented 13% of both samples, while fulvic acids represented 9 and 6% respectively. Since the organic carbon fraction lost during the decarbonation step (respectively 19 and 8%) is usually

associated with the fulvic fraction, the resulting fulvic/humic ratio was about 2 for the first sample and 1 for the second, indicating that the organic matter was mainly fulvic in the first sediment, and mainly humic in the second. The later sediment also had the highest C/N ratio and high aliphaticity. This shows that a whole range of organic sediments can be found inside a distribution system supplied with one type of water. However it was not possible to explain these variations as a function of the distance from the treatment plant.

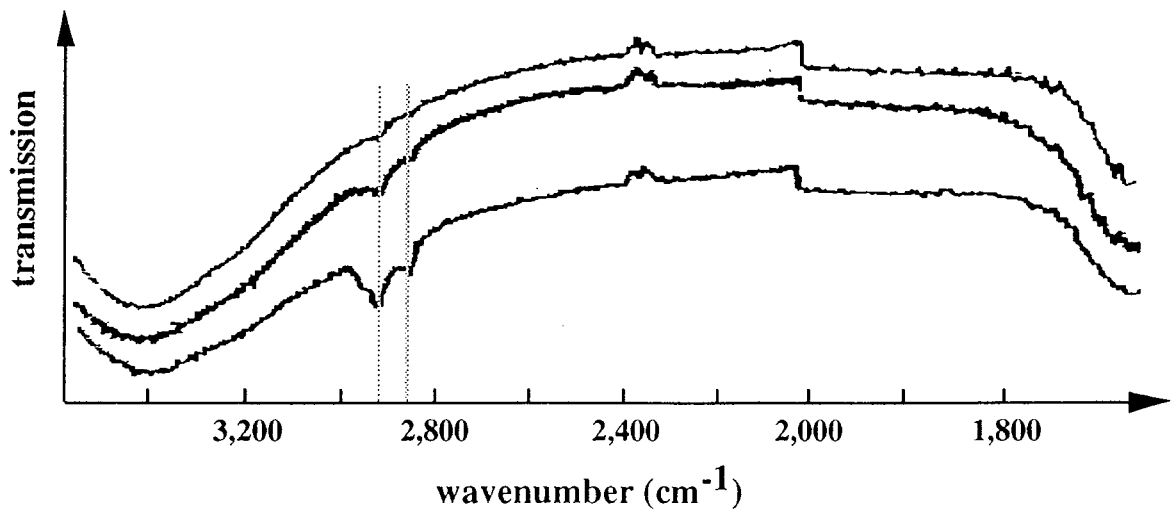


Figure 3 : IR absorption spectra of three reservoir deposits showing differences in the aliphatic bands (spectrum baselines were shifted to facilitate comparison)

Biological features

Macro- and microscopic observations were used to detect which organisms colonize the deposits of pipes and reservoirs. Bacterial numbers were determined by counting the culturable bacteria (heterotrophic plate counts - HPC) on deposit samples.

Only two out of the thirteen sampled reservoirs sediments contained organisms (3-10 mm) easily visible by the naked eyes and these were identified as the crustacean *Asellus*, and gastropods. These animals were associated with channels (width: 2-5 mm) visible at the surface of the reservoir sediment before sampling. Some copepods (about 1 mm) were also observed in these sediments (Fig. 4a). Microscopic observation of the samples revealed in most cases a high diversity of the fauna. Nematodes, rotifers, ciliated and flagellated protozoa were found almost universally (Fig. 4b and 4c), and diatoms (Fig. 4d) were found mainly upstream in the distribution system. Invertebrates were also found in most of the deposits obtained by hydrant flushing: 6 out of 8 samples contained macroscopic crustaceans (often damaged by the sampling procedure), and sometimes gastropods (Fig. 4e). Microscopic examination of flushed samples confirmed the presence of this kind of detrital biological matter, and the existence of a trophic chain associated to pipe deposits including also nematodes and protozoa.

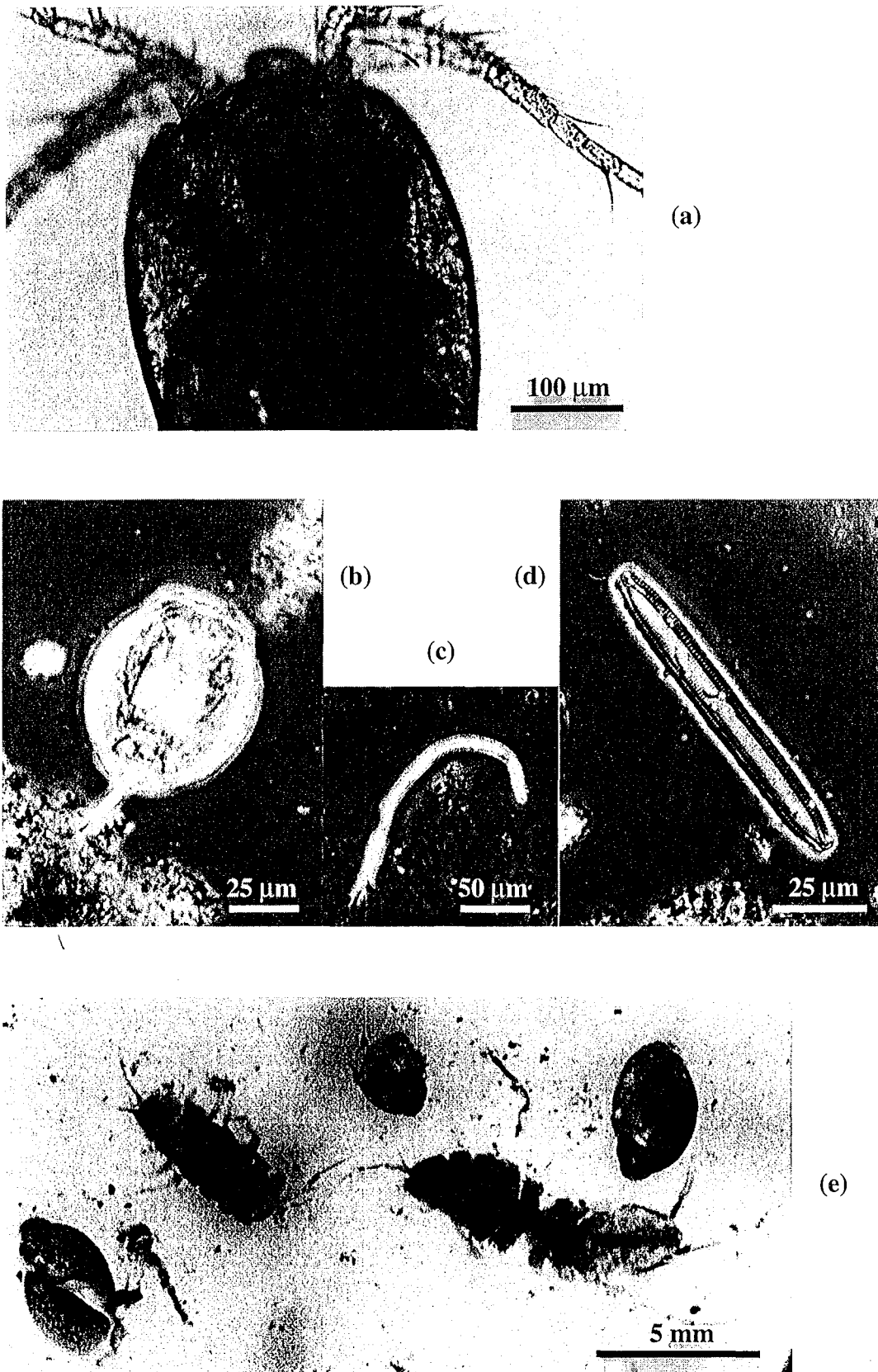


Figure 4 : Biomass from reservoir and pipe deposits : (a) Copepod; (b) Rotifer; (c) Nematod; (d) diatom; (e) Asellus and Gasteropoda

Bacteria counts in reservoir sediments were in a relatively narrow range, and were similar throughout the distribution system (Fig. 5): all but one reservoir sediments (containing only $2.2 \cdot 10^7$ CFU 14 days g^{-1} , a high proportion of sand and having the lowest organic carbon content) contained on average of $2.7 \pm 1.3 \cdot 10^8$ CFU 14 days g^{-1} (n=11). Only 4% of the bacteria growing on the agar plates could be counted after 3 days of incubation. Such high bacterial densities were also found in the fine settleable fraction $<100 \mu m$ of the pipe deposits, but for two out of eight of these samples, the HPC's were about 50 times lower (2 and $4 \cdot 10^6$ CFU 14 days g^{-1}) which corresponded with the lowest organic carbon fraction (Gauthier *et al.*, 1996). Such a relationship between organic matter and bacterial densities is presented in Fig. 6: with the assumption of a linear interpolation, a 1% increase in the organic carbon fraction corresponds to $1.2 \cdot 10^8$ additional bacteria (CFU 14 days) per g of sediment, and also to an increase of 0.12% of the nitrogen fraction.

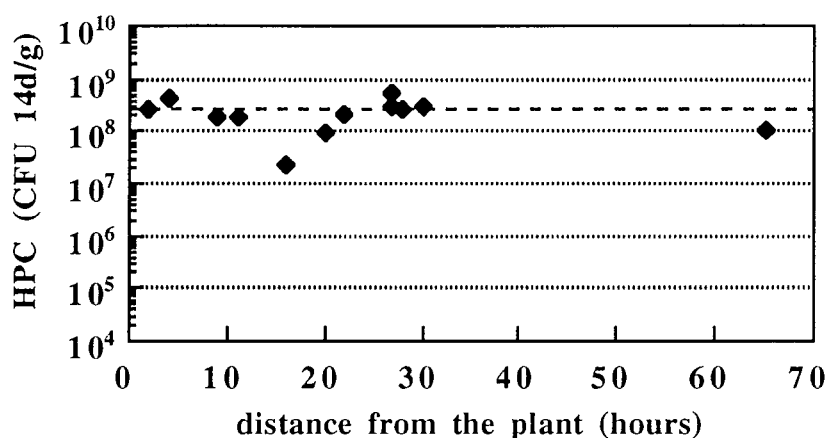


Figure 5 : Cultivable bacteria in reservoir sediments as a function of the distance from the treatment plant.

Based on these results, one of the questions is how the bacterial biomass influences the organic content of the deposits ? This was addressed using the bacterial elementary formulation of McCarty (1969): assuming that one bacterium is $0.1 \cdot 10^{-12}$ g of organic C, and that only 1% of the total number of bacteria were counted with the agar culture technique, it follows that bacterial biomass could represent 1.1 to 12% of the organic carbon measured in reservoir sediments. Moreover, biomass deposits were not limited to the presence of bacteria as discussed above, and a complex trophic chain was established in deposits including protozoa and nematodes, and, in some cases, macroscopic organisms. This suggests that the biomass represents a high fraction of the organic matter found in the deposits, and correlates well with the low C/N measured in most samples.

Bacterial counts in water sampled from hydrant flushing were also measured in the supernatant after 5 hours settling. They ranged from 0 to 4,900 CFU 3 days mL^{-1} (average: 870

CFU; n=8). In 5 cases out of 8, HPC's exceed the European Community's recommended value of 100 CFU 3d mL⁻¹, which demonstrates that resuspended pipe deposits may result in microbial contamination of water.

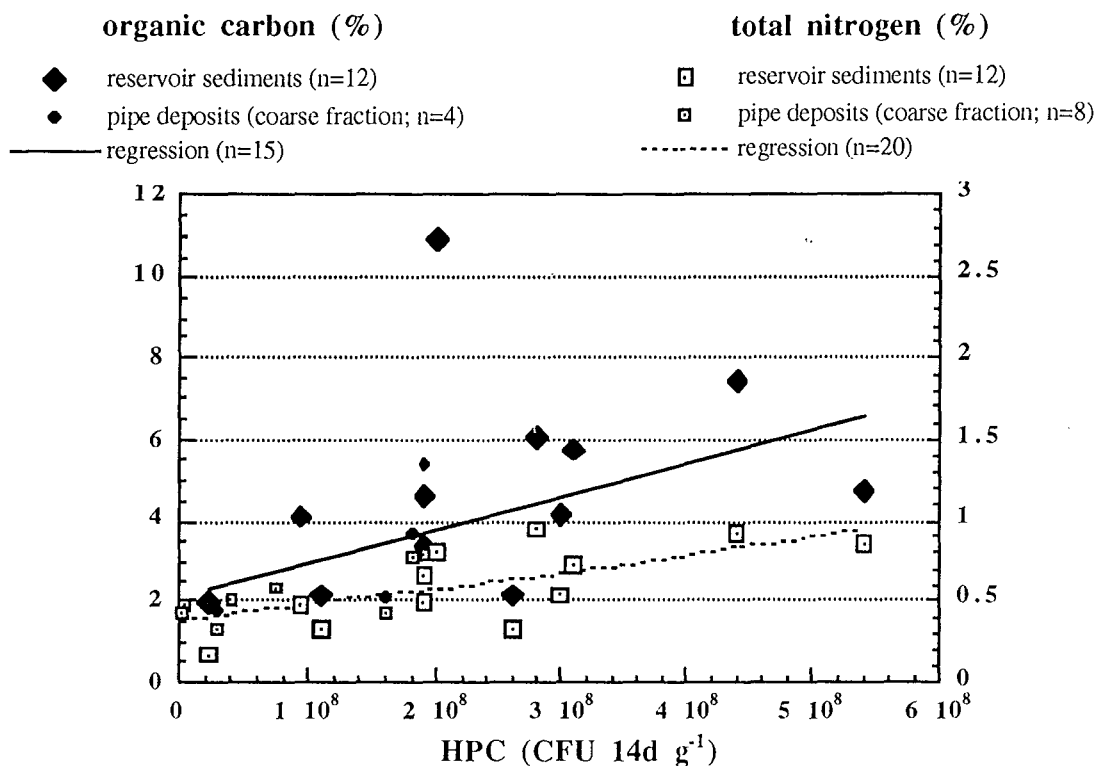


Figure 6 Relationships between bacterial counts and organic matter composition in the different deposits (linear fittings: $HPC = 1.2 \cdot 10^8 C_{\text{organic}} - 2.6 \cdot 10^8$; $R^2=0.45$; $p > 99\%$; $HPC = 9.7 \cdot 10^8 \text{ Nitrogen} - 3.8 \cdot 10^8$; $R^2=0.46$; $p > 99.9\%$).

Chlorine demand of loose deposits

Different types of deposits were tested to evaluate their potential for chlorine consumption in the case of a resuspension. It is also indicative of how reductive deposits can be, and of the extent to which bacteria accumulated in deposits are protected from a water-borne oxidant. The chlorine decay curves fitted well with a first order model ($R^2 > 0.94$). Such models were then used to interpolate the concentration curves, enabling comparison of decay values of all samples at the times when concentrations were not measured.

Chlorine demand from reservoir sediments over 72 hours of contact time is presented in Fig. 7 as a function of organic carbon and nitrogen concentrations. Even when tests were performed with the same quantity of sediment (20 mg) and chlorine (2 mg Cl₂ L⁻¹), the 72 hours-chlorine demand varied over a wide range from 21 to 91 mg Cl₂ g⁻¹. This corresponds to a first order kinetic constant varying from 0.08 to 0.82 day⁻¹ under the test conditions. These different values correlated well with nitrogen concentration of the sediment (Fig. 7), showing that organic

matter was mainly responsible for chlorine consumption, and that nitrogen compounds were the main reducing entities of the tested sediments (nitrogen content variations explain 89% of the chlorine demand variations). Chlorine demand was proportional to the quantity of nitrogen in the resuspended sediment, with an average 72 hours-demand of 10.3 ± 1.5 (n=12) mg Cl₂ per mg of N. This result also shows that the mineral fraction of the deposits had little influence on their reductive capacity, even if mineral compounds constitute the major fraction of the deposits. Chlorine demand results were also examined as a function of the reservoir location within the system, but did not reveal any peculiar trend: sediments exposed to chlorinated water (close to the treatment plant outlet) did not have a lower reductive capacity than those located further into the system, probably because both types of sediments were able to accumulate comparable quantities of nitrogen compounds.

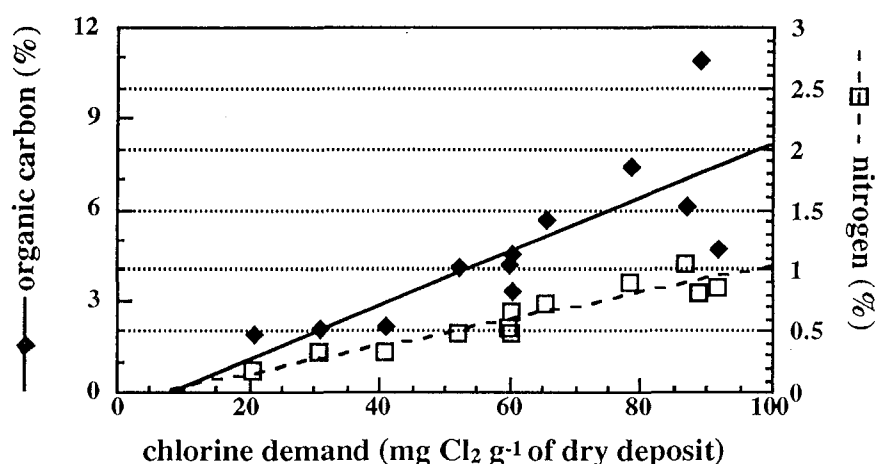


Figure 7: Relationships between the organic carbon and nitrogen concentration and the 72 h - chlorine demand for resuspended sediments (linear fittings: $\Delta\text{Cl}_2 = 11.2 C_{\text{organic}} + 7.5$; $R^2=0.63$; $n=12$; $p > 99\%$; $\Delta\text{Cl}_2 = 90.9 \text{ Nitrogen} + 5.4$; $R^2=0.89$; $n=12$; $p > 99.9\%$).

The chlorine decay kinetic constants for the water sampled from hydrant flushing were measured independently of the amount of suspended matter present. Thus, they were directly representative of the chlorine decay in pipes as and when the deposits were resuspended at the different sampling points. The k values were in the range of $0.52\text{-}2.2 \text{ day}^{-1}$ which corresponds to a chlorine decay of 40 to 89 % within 24 hours for an initial dose of $2 \text{ mg L}^{-1} \text{ Cl}_2$. Therefore, it is unlikely that any chlorine residual will remain in drinking water following a resuspension event.

Discussion

The distribution of treated surface water of high quality can lead to the formation of unwanted loose deposits in reservoirs and pipes of distribution systems. It is important to evaluate to what extent the organic matter accumulates since it can play a major role in the biostability of treated water during distribution. By analogy with freshwater and marine systems, accumulation of

organic and biological matter in distribution system loose deposits can take place through (a) sedimentation of particulate matter (DePinto *et al.*, 1993; Roden and Tuttle, 1996), (b) diffusion processes (Drury *et al.*, 1993; Hendricks, 1996; Findlay and Sobczack, 1996), or even (c) capture of planktonic prey by benthic organisms (LaBarbera, 1984; Schlacher and Wooldridge, 1996). Benthic biological activity can also result in the accumulation of biogenic organic matter in deposits, following biomass production (Lyche *et al.*, 1996) and exopolymers and detrital material excretion (Underwood *et al.*, 1995). Some decay of organic matter in deposits can be attributed to its mineralization, but also to losses by diffusion or resuspension processes (DePinto *et al.*, 1993; Valsaraj *et al.*, 1993). Unfortunately, the relative importance of all these processes under drinking water distribution system conditions has not been evaluated, since even the quantity of suspended particulate organic matter (and deposits transfer rates) has not yet been studied under these conditions.

Data regarding organic content in the distribution system loose deposits are scarce in literature and the results of our study, expressed as volatile solids (range 5.9-28% of the dried material) can only be compared with those obtained by Sly *et al.* (1990) who measured 7.4% of volatile solids (VS) at 550°C in the sediments of a treated water reservoir, and 23.5% of VS in a pipe deposit composed mainly from manganese oxides. Ridgway and Olson (1981) suggested that the organic fraction of suspended particles can be higher than 20%. Even if differences in organic content are a function of each distribution system, it appears that deposits found in pipe systems are mainly composed of various types of minerals (Gauthier *et al.*, 1996; Smith *et al.*, 1997).

Organic carbon and nitrogen content in loose deposits vary a lot from one sampling point to another (by a factor from 1 to 6); this can be partially explained because these concentrations are expressed as percentages. The deposition rate of minerals appears to directly affect the organic content of the deposits. For example, in reservoir sediments where iron or sand content is high (Gauthier *et al.*, 1996), the organic matter expressed as a % appears lower. Only a quantitative approach expressing the concentration per unit area or per unit volume will enable comparison of organic carbon and total nitrogen accumulation rates from different locations of distribution systems. The use of the atomic C/N ratio does not require such quantitative measurements and allows the type of organic matter in soils, sediments and waters to be qualified (Steelink, 1985; Duchaufour, 1995). C/N values found in distribution system deposits were closer to those observed for several biomass types (bacteria, algae, fungi) rather than to those of plants, humic materials or soils, indicating a relatively “fresh” organic matter, strongly influenced by biological activity (Håkanson, 1995; Rostad *et al.*, 1997). This kind of signature was found in nearly all sampled reservoirs and pipes, independent of their distance from the treatment plant. A more detailed analysis of the organic compounds (IR spectrophotometry, humic substances extractions) indicates differences in composition of the organic fraction of deposits (aliphaticity, humic/fulvic acids) and demonstrates that the organic nature of deposits was not uniform even inside a distribution system supplied with only one type of treated water.

Organic matter as well as bacterial biomass were much more concentrated (200 to 2,000 times higher) in loose deposits of reservoirs than in the circulating water after a conversion from mass to volumic concentration was performed. It appears that deposits constitute a reserve of organic matter within the distribution system, that may be available for the growth of heterotrophic bacteria.

It is interesting to note that bacterial densities found in pipe deposits (average $8.4 \cdot 10^7$ CFU 14 d g^{-1}) were exactly of the same order of magnitude as those found by De Rosa (1993) in UK distribution systems, while water origins and characteristics widely differ. Similar bacterial densities were also found by Stringfellow *et al.* (1993) on fines from a GAC filter (about $4 \cdot 10^8$ CFU g^{-1}), while only $5 \cdot 10^6$ CFU g^{-1} were recovered from colonized sand particles. Loose deposits from pipes and reservoirs may therefore be comparable with GAC particles for bacterial colonization.

Relationships between bacterial densities and protozoa have already been reported in drinking water (Servais *et al.*, 1995) and on pipe surfaces of an experimental distribution system (Pedersen, 1990). Thus it is not surprising that high bacterial numbers in loose deposits lead to the development of many predators as observed in this study (some of them may also originate from the treatment plant (Léger and Boudouresque, 1992; Schreiber *et al.*, 1997)). Presence of such organisms has been reported in drinking water reservoirs (Léger and Boudouresque, 1992; Amblard *et al.*, 1996) and in pipes of distribution systems (Block *et al.*, 1997; Van Lieverloo *et al.*, 1994; Aulicino *et al.*, 1996; Sibille *et al.*, 1998), but a detailed description of the corresponding ecosystems is still lacking. In freshwater ecosystems, high numbers of microorganisms are usually associated with low flow regions (Robertson *et al.*, 1995). Deposits sampled in this study were also located in low flow areas of pipes or reservoirs, and they can provide refuges for animals to escape being flushed by the drinking water flow. The motile capacity of many of these animals and their frequent presence in our observations confirms that deposits play a major role in contamination of water by such organisms.

The control of benthic biological populations using a water-borne biocide seems difficult to achieve due to the high reducing capacity of the deposits: diluted to 40 mg L^{-1} , *i.e.* 1250 fold from their original concentration, reservoir sediments still generate a 0.14 to $1.1 \text{ mg Cl}_2 \text{ L}^{-1}$ decay within 24 hours. Therefore, it is probable that residual chlorine from the water of distribution system is readily reduced at the surface of the deposits and provide a limited disinfectant efficiency against microorganisms from the deposits. DeBeer *et al.* (1994) who measured chlorine concentration gradient at the surface of a biofilm, and Parent *et al.* (1996) who measured chlorine decay in a pipe section colonized with a biofilm, reported that the disinfectant is rapidly consumed at the material-water interface, and thus is inefficient against attached biomass. It is reasonable to assume that deposits exert a higher oxidant demand than a biofilm and thus provide the

microorganisms with a protection zone against dissolved oxidants. Measurement of chlorine demand of the deposits as performed in the present work is new and provides complementary data for the challenge of modelling disinfectant decay in pipe systems (Biswas et al., 1993; Parent et al., 1996).

The chlorine demand of resuspended loose deposits is controlled by organic matter, similar to the chlorine demand of treated water (Jadas-Hécart *et al.*, 1992, Dossier-Berne *et al.*, 1997), even if organic matter is present in much smaller quantities than mineral matter. However, contrary to Martin-Mousset *et al.* (1997) who found a chlorine demand proportional to the dissolved organic carbon content of surface waters, a better correlation was obtained for loose deposits with the nitrogen fraction. This indicates that nitrogen compounds accumulate in sediments where they are not exposed to oxidants, contrary to the water phase where they are easily oxidized during treatment (Scully *et al.*, 1996).

When deposit resuspension occurs due to hydraulic disturbance, the efficiency of the disinfectant residual in the water phase is very limited: chlorine demand of resuspended deposits is high (from 0.8 to 1.8 mg Cl₂ L⁻¹ within 24 hours) and far higher than the residuals usually found in pipework. This results in a microbial contamination of circulating water which can be detected even after a 5 hours settling period, as measured in these studies. In other networks, coliforms were often associated with loose deposits resuspension (Oliver and Harbour, 1995). Moreover, flushing experiments reveal the existence of a well developed trophic web in the pipework deposits, while normal analytical procedures fail to detect such organisms. Microbial pollution of water resulting from deposits resuspension is difficult to control due to the inefficiency of disinfectants, and can be carried over long distances depending on flows in the pipes (De Rosa, 1993). The ability of the consumer to detect such a water quality problem is low since turbidity quickly decreases after settlement of the largest particles.

Conclusions

Unwanted loose deposits are often found in reservoirs and pipes of drinking water distribution systems. Such deposits were collected from a large distribution system where the water fully complies with current regulations. The amount of deposits was determined and the organic fraction characterized. Variable (but always minority) fractions of organic matter were associated with mineral deposits. None of the measured parameters (C, N, C/N, HPC) showed a correlation with the distance from the treatment plant. Organic matter contained significant fractions of nitrogen indicating the presence of fresh biogenic material in most samples. Microbiological analyses confirmed that bacterial biomass may represent 1 to 12% of the organic matter accumulated in the deposits. Organic matter supports bacterial growth, 1% of organic carbon corresponding to 1.2 10⁸ CFU in the case of the studied deposits. A more detailed qualitative

approach showed that different types of deposited organic matter were present in this system despite being supplied by a single water source. Quantification of the chlorine demand of the deposits revealed a linear dependency with the nitrogen fraction, providing important information for the modelling of chlorine stability in pipework.

The role of organic matter appears crucial for growth of microorganisms in loose deposits for at least two reasons: it enables survival and growth of micro- and macro-organisms inside loose deposits; organic deposits also provide a favourable ecological niche through the high surface/volume ratio and reduction of residual disinfectants. Understanding the dynamics of biomass and organic matter at the deposit-water interface is then a key-point to explain and for the control of bacterial and invertebrate contamination of drinking water systems. In particular, the relative importance of dissolved organic matter *versus* particulate organic matter on the biomass growth in the deposits can determine the choice of treatment to limit this type of contamination inside distribution systems.

Acknowledgements:

This work was carried out as part of a larger research programme entitled "Biofilm" and co-ordinated by the Centre International de l'Eau de Nancy (NANCIE, France). It was funded by: Agence de l'eau Seine-Normandie (AESN), Anjou-Recherche (CGE, France), Communauté Urbaine du Grand Nancy (France), Office National de l'Eau Potable (ONEP, Morocco), Syndicat des Eaux d'Ile de France (SEDIF, France), Pont-à-Mousson S.A. (France), and NANCIE. Sampling of deposits in the Grand Nancy water distribution system was performed with the help of J. César, P. Chaix and M. Thèse. Thanks to R. Desjardins for discussing a previous version of the manuscript.

References:

- Amblard C., Bourdier G., Carrias J.F., Maurin N. and Quiblier C. (1996) Seasonal evolution of microbial community structure in a drinking water reservoir, *Water Res.*, **30**, 3, 613-624.
- Aulicino F.A., Palin L., Bernabei S. and Orsini P. (1996) Microbiological regrowth in a drinking water system, *Proceedings Hydrotop Conf., Marseille, France*, 77-86.
- Biswas P., Lu C. and Clark R.M. (1993) A model for chlorine concentration decay in pipes, *Water Res.*, **27**, 12, 1715-1724.
- Block J.C., Servais P., Clark R.M., Joret J.C., Gauthier V., Fontvieille D. (1998) Biodegradable organic matter in water distribution systems, in *"Biodegradable Organic Matter in Drinking Water"*, M. Prévost, J.C. Joret (eds), (in press).
- Block J.C., Sibille I., Gatel D., Reasoner D.J., Lykins B. and Clark R.M. (1997) Biodiversity in drinking water distribution systems: a brief review, in *"The microbiological quality of water"*, ed by D.W. Sutcliffe, *Freshwater Biolog. Assoc., Ambleside, Cumbria, UK and IWSA, London, UK (publishers)*, 64-70.
- Bourbigot M.M., Pagliardini A. and Marteil P. (1988) Etude des facteurs déterminant la fuite en aluminium dans les eaux potables - cas de l'usine de Super-Rimiez, *T.S.M. l'Eau*, **83**, 2, 73-77.
- Brazos B.J. and O'Connor J.T. (1990) Seasonal effects on the generation of particle-associated bacteria during distribution, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Water Wks Assoc., San Diego, Ca*, 1073-1101.
- Bucklin K.E., McFeters G.A. and Amirtharajah A. (1991) Penetration of coliforms through municipal drinking water filters, *Water Res.*, **25**, 8, 1013-1017.
- Camper A.K., LeChevallier M.W., Broadway S.C. and McFeters G.A. (1986) Bacteria associated with granular activated carbon particles in drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, **52**, 3, 434-438.
- Cappelier M., Picoche C. and Deguin A. (1992) Devenir du CODB dans les réseaux de distribution: étude de deux cas, *Revue des Sciences de l'Eau*, **5**, 51-67.

- DeBeer D., Srinivasan R. and Stewart P.S. (1994) Direct measurement of chlorine penetration into biofilms during disinfection, *Appl. Environ. Microbiol.*, **60**, 12, 4339-4344.
- DePinto J.V., Raghunathan R., Bierman V.J.Jr., Rodgers P.W., Young T.C. and Martin S.C. (1993) Analysis of organic carbon sediment water exchange in green bay, lake Michigan, USA, *Water Sci. Tech.*, **28**, 8/9, 149-159.
- DeRosa S. (1993) Loose deposits in water mains, *Report DoE 3118-/2, Department of the Environment, London, UK, 161 pages*
- Desjardins R., Lavoie J., Lafrance P. and Prévost M. (1991) Comparaison de l'évolution de la qualité de l'eau dans deux réseaux de distribution, *Sciences et Techniques de l'Eau*, **24**, 4, 321-331.
- Dossier-Berne F., Panais B., Merlet N., Jadas-Hécart A., Cauchi B. and Legube B. (1997) Automation of long term chlorine demand measurement of treated waters, *Water Res.*, **31**, 3, 375-384
- Drury W.J., Characklis W.G. and Stewart P.S. (1993) Interactions of 1 µm latex particles with *Pseudomonas aeruginosa* biofilms, *Water Res.*, **27**, 7, 1119-1126.
- Duchaufour P. (ed.) (1995), *Pédologie: sol, végétation, environnement*, 4th edition, Masson, Paris, 319 p.
- Findlay S. and Sobczak W.V. (1996) Variability in removal of dissolved organic carbon in hyporheic sediments, *J. N. Am. Benthol. Soc.*, **15**, 1, 35-41.
- Gauthier V., Rosin C., Mathieu L. Portal J.M., Block J.C., Chaix P. and Gatel D. (1996) Characterization of the loose deposits in drinking water distribution systems, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA.*
- Goshko M.A., Minnigh H.A., Pipes W.O. and Christian R.R. (1983) Relationships between standard plate counts and other parameters in distribution systems, *J. Am. Wat. Wks Assoc.*, **75**, 568-571.
- Håkanson L. (1995) Models to predict organic content of lake sediments, *Ecological Modelling*, **82**, 233-245.
- Hendricks S.P. (1996) Bacterial biomass, activity, and production within the hyporheic zone of a north-temperate stream, *Arch. Hydrobiol.*, **136**: 4, 467-487.
- Herson D.S., McGonogole B., Payer M.A. and Baker K.H. (1987) Attachment as a factor in the protection of *Enterobacter cloacae* from chlorination, *Appl. Environ. Microbiol.*, **53**, 5, 1178-1180.
- Jadas-Hécart A., El Morer A., Stitou M., Bouillot P. and Legube B. (1992) The chlorine demand of a treated water, *Water Res.*, **26**, 8, 1073-1084
- Jones J.G. and Tuckwell S.B. (1993) Aesthetic aspects of drinking water quality - what do our customers want ?, *Water supply*, **11**, 3/4, 37-51.
- LaBarbera M. (1984) Feeding currents and particle capture mechanisms in suspension feeding animals, *Amer. Zool.*, **24**, 71-84.
- LeChevallier M.W., Lowry C.D., Lee R.G. and Gibbon D.L. (1993) Examining the relationship between iron corrosion and the disinfection of biofilm bacteria, *J. Am. Water Wks Assoc.*, **85**, 111-123.
- LeChevallier M.W., Welch N.J. and Smith D.B. (1996) Full-scale studies of factors related to coliform regrowth in drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, **62**, 7, 2201-2211.
- Léger G. and Boudouresque B. (1992) Présence d'organismes planctoniques dans les eaux traitées: essai d'une technique permettant l'amélioration de leur rétention au niveau des filtres, *T.S.M. l'Eau*, **87**, 7-8, 375-380.
- Lévi Y., Randon G., Denojean C., Pagliardini A., Vajente G. and Champsaur H. (1992) Etude d'un réseau à très faible teneur en matière organique biodégradable: le réseau de la ville de Nice, *Revue des Sciences de l'Eau*, **5**, 225-243.
- Levy R.V., Cheetham R.D., Davis J., Winer G. and Hart F.L. (1984) Novel method for studying the public health significance of microinvertebrates occurring in potable water, *Appl. Environ. Microbiol.*, **47**, 5, 889-894.
- Logsdon G.S. and Rice E.W. (1985) Evaluation of sedimentation and filtration for microorganisms removal, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Water Wks Assoc.*, 1177-1197.
- Lyeche A., Andersen T., Christoffersen K., Hessen D.O., Hansen P.H.B. and Klynsner A. (1996) Mesocosm tracer studies. 2. The fate of primary production and the role of consumers in the pelagic carbon cycle of a mesotrophic lake, *Limnol. Oceanogr.*, **41**: 3, 475-487.
- Martin-Mousset B., Croué J.P., Lefebvre E. and Legube B. (1997) Distribution and characterization of dissolved organic matter of surface waters, *Water. Res.*, **31**, 3 541-553.
- Mathieu L., Block J.C., Prévost M., Maul A. and DeBischof R. (1995) Biological stability of drinking water in the city of Metz distribution system, *J. Water SRT - Aqua*, **44**, 5, 230-239.
- Mathieu L., Paquin J.L., Block J.C., Randon G., Mailliard J. and Reasoner D. (1992) Paramètres gouvernant la prolifération bactérienne dans les réseaux de distribution, *Revue des Sciences de l'Eau*, **5**, 91-112
- McCarty P.L. (1969), Energetics and bacterial growth, *presented at the 5th Rudolf Res. Conf., Rutgers - the State University, New-Brunswick, New-Jersey.*
- Mouchet P., Montiel A. and Rigal S. (1992) Dégradations physico-chimiques de l'eau dans les réseaux de distribution, *T.S.M. l'Eau*, **87**, 6, 299-306.
- Nagata T. (1986) Carbon and nitrogen content of natural planktonic bacteria, *Appl. Environ. Microbiol.*, **52**, 28-32.

- Oliver E.D. and Harbour J.D. (1995) Speciation of total coliforms isolated from sediments in brown water released during a flushing program undertaken by the Seattle Water Department, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Water Wks Assoc., New Orleans, La, USA, 1487-1498.*
- Parent A., Saby S., Sardin M., Block J.C. and Gatel D. (1996) Contribution of the biofilm to the chlorine demand of a drinking water distribution system, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Wat. Wks Assoc., Boston, Ma, USA.*
- Pedersen K. (1990) Biofilm development on stainless steel and PVC surfaces in drinking water, *Water Res., 24, 2, 239-243.*
- Ridgway H.F. and Olson B.H. (1981) Scanning electron microscope evidence for bacterial colonization of a drinking water distribution system, *Appl. Environ. Microbiol., 41, 1, 274-287.*
- Ridgway H.F. and Olson B.H. (1982) Chlorine resistance patterns of bacteria from two drinking water distribution systems, *Appl. Environ. Microbiol., 44, 4, 972-987.*
- Robertson A.L., Lancaster J. and Hildrew A.G. (1995) Steam hydraulics and the distribution of microcrustacea: a role for refugia ?, *Freshwater Biology, 33, 469-484.*
- Roden E.E. and Tuttle J.H. (1996) Carbon cycling in mesohaline Chesapeake Bay sediments 2: Kinetics of particulate and dissolved organic carbon turnover, *J. Mar. Res., 54, 2, 343-383.*
- Rostad C.E., Leenheer J.A., Daniel S.R. (1997) Organic carbon and nitrogen content associated with colloids and suspended particulates from the Mississippi river and some of its tributaries, *Environ. Sci. Technol., 31, 11, 3218-3225.*
- Sabater S. (1995) Algae in urban drinking water in N-E Spain, *Appl. Phycol., 7, 455-460.*
- Schlacher T.A. and Wooldridge T.H. (1996) Origin and trophic importance of detritus - Evidence from stable isotopes in the benthos of a small, temperate estuary, *Oecologia, 106, 3, 382-388.*
- Schreiber H., Schoenen D. and Traunspurger W. (1997) Invertebrate colonization of granular activated carbon filters, *Water Res., 31, 4, 743-748.*
- Scully F.E., Hartman A.C., Rule A. and Leblanc N. (1997) Disinfection interference in wastewaters by natural organic nitrogen compounds, *Environ. Sci. Technol., 30, 5, 1465-1471.*
- Servais P., Laurent P. and Randon G. (1995) Comparison of the bacterial dynamics in various French distribution systems, *J. Water SRT- Aqua, 44, 1, 10-17.*
- Sibille I., Sime-Ngando T., Mathieu L. and Block J.C. (1998) Protozoan bacterivory and *Escherichia coli* survival in drinking water distribution systems, *Appl. Environ. Microbiol., 64, 1, 197-202.*
- Sly L.I., Hodgkinson M.C. and Arunpairojana V. (1990) Deposition of manganese in a drinking water distribution system, *Appl. Environ. Microbiol., 56, 3, 628-639.*
- Smith S.E., Colbourne J.S., Holt D., Lloyd B.J. and Bisset A. (1997) An examination of the nature and occurrence of deposits in a distribution system and their effect on water quality, *J. New England Water Wks Assoc., 111, 2, 135-150.*
- Standard methods for the examination of water and wastewater (1992) 18th edition, *American Public Health Association, Washington, DC, USA.*
- Steelink C. (1985) Implications of elemental characteristics of humic substances, in "Humic substances in soil, sediment, water: geochemistry, isolation and characterization", G.R. Aiken, D.M. McKnight, R.L. Wershaw and P. McCarthy (eds), *John Wiley & Sons, New-York, 457-476.*
- Stringfellow W.T., Mallon K. and Digiano F.A. (1993) Enumerating and disinfecting bacteria associated with particles released from GAC filters-adsorbers, *J. Am. Water Wks Assoc., 5, 8, 70-80.*
- Underwood G.J.C., Paterson D.M. and Parkes R.J. (1995) The measurement of microbial carbohydrate exopolymers from intertidal sediments, *Limnol. Oceanogr., 40, 7, 1243-1253.*
- Valsaraj K.T., Thoma G.J., Porter C.L., Reible D.D. and Thibodeaux L.J. (1993) Transport of dissolved organic carbon-derived natural colloids from bed sediment to overlying water: laboratory simulations, *Water Sci. Tech., 28, 8/9, 139-147.*
- Van der Kooij D. (1995) Significance and assessment of the biological stability of drinking water, in "Quality and treatment of drinking water", *The Handbook of Environ. Chem., Springer Verlag, 5B, 89-102.*
- Van Lieverloo J.H.M., Van der Kooij D. and Veenendaal G. (1994) National survey of invertebrates in drinking water distribution systems in the Netherlands, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Water Wks Assoc., San Francisco, Ca, USA, 2065-2081.*
- Woodward C.A., Ta C.T., Colbourne J. and Holt D. (1995) Behaviour of particles in a large scale experimental pipe system, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Water Wks Assoc., New-Orleans, La, USA, 641-658.*

II.4 How good are distribution systems for the transport of particulate matter ?

Dans cette section sont en particulier caractérisées les particules en suspension dans l'eau traitée et dans l'eau distribuée du réseau de Nancy. La méthode de récupération mise au point est basée sur la séparation des particules par filtration. Les analyses gravimétriques et de la composition élémentaire sont réalisées directement sur les filtres sans remise en suspension. Une telle méthode permet de récupérer quelques mg de particules à partir d'une centaine de litres filtrés. L'examen au microscopique révèle la présence de nombreux organismes dans l'eau traitée et distribuée, et une grande diversité de forme de particules. Les analyses chimiques mettent en évidence la grande quantité de matière organique associée aux particules en suspension, contrairement aux dépôts du même réseau de distribution, et une différence de composition des particules résultant de leur transit dans le réseau, même si les concentrations massiques restent du même ordre de grandeur. Une tentative de bilan massique montre que le transport d'eau potable en réseau de distribution induit une production de matière particulaire à partir de la matière dissoute et des parois du réseau. Cette production est traduite par une accumulation de dépôts dans les ouvrages de distribution, mais ne provoque pas d'augmentation spectaculaire de la concentration particulaire de l'eau distribuée par rapport à l'eau traitée, tout du moins en dehors des phénomènes de remise en suspension.

Ces résultats sont détaillés ci-après dans le texte d'une communication à la "Water Quality Technological Conference" de l'American Water Works Association (Denver, Co, USA, Nov. 1997) qui constitue le corps de cette section.

How good are water distribution systems for transport of particulate matter?

Vincent GAUTHIER¹,
Jean-Marie PORTAL², Christophe ROSIN³,
Jean-Claude BLOCK¹, Jacques CAVARD⁴, Dominique GATEL⁵

¹ NANCIE, GIP STELOR, LSE

*Faculté des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques, Université Henri Poincaré-Nancy I, 5 rue Albert Lebrun,
B.P. 403, 54001 Nancy cedex, France,
tel: 33-(0)383 17 88 49; fax: 33-(0)383 17 88 79;
e-mail: gauthier@pharma.u-nancy.fr*

² CPB, CNRS UPR n°6831

17, rue Notre-Dame des Pauvres, 54501 Vandoeuvre-les-Nancy, France

³ LHRSP, GIP STELOR, *Faculté de médecine, Université Henri Poincaré-Nancy I*

11 bis rue Gabriel Péri, 54500 Vandoeuvre-les-Nancy, France

⁴ SEDIF, *185 rue de Bercy, 75579 Paris Cedex 12, France*

⁵ CGE, *32 place ronde, 92982 Paris-La Défense, France*

Introduction

Drinking water systems are supposed to transport only dissolved matter: nobody likes to find a few visible particles in his glass, or drink turbid water. Nevertheless, besides these organoleptic aspects, water contains invisible particles, transparent or smaller than 50 µm which can reveal a deterioration of the water quality. One aspect of the microbial contamination of drinking water by particles is the transport of attached bacteria: a few authors detected bacteria fixed on the surface of particles suspended in drinking water [1], and such micro-organisms are supposed to be less affected by the disinfectant residuals usually present in treated and distributed water [2]. For example, GAC-particles attached bacteria could break through the disinfection barriers at the outlet of treatment plants [3,4].

The presence of particulate matter in distribution systems is detected from the coloration and clogging of point-of-use filters, and from the accumulation of loose deposits in drinking water reservoirs and pipe systems [5]. Loose deposits are also responsible for severe drinking water quality problems when they are resuspended: the bacterial concentration in water may then attain values much higher than acceptable standards, and this is reinforced by the reductive capacity of loose deposits which rapidly decreases the disinfectant concentration of water [6]. Moreover, deposited particles are also suspected to accumulate organic molecules (pesticides, polycyclic aromatic hydrocarbons), especially the ones with a low solubility [5]. The capability of particles to transport microbial or organic contaminants highlights the importance of controlling the nature and quantity of suspended particles.

Particles in the distribution systems may have several origins, and many hypotheses try to explain the nature and quantity of suspended particles or deposits found in pipework. First of all, treated water produced from surface water contains particles since the efficiency of coagulation/flocculation/filtration processes is never 100%, especially for particle sizes around 1 µm [7]. Moreover, filter materials (sand, GAC, anthracite) include fines which can be released in the treated water during the treatment [8]. In the pipework, dissolved material can be flocculated or precipitated following changes in environmental conditions. Water dissolved organic matter also results in particle production through the trophic web activity [9]. Contributions of the distribution

systems components should not be forgotten: corrosion of metal surfaces [10] or erosion of cement-lined pipes also results in the accumulation of loose deposits in the pipework. Transport processes within the system - including exchanges between deposits and the water phase - are dynamic processes not adequately described in the literature, since accumulation is a very slow process dealing with very small quantities, and since resuspension is a very local (in time and space) event.

The question here is to try to identify these processes affecting the nature and quantity of particles in drinking water, *i.e.* to find which particles are transported in which part of a distribution system. The interrogation is even more relevant at present when many utilities are starting to count the number of particles in treated water in order to monitor treatment efficiency: what do they represent compared to what is produced/resuspended in the pipework ?

To address this question, the drinking water system of Nancy Metropolitan Area (France) was investigated for characterising the quantity and nature of particulate matter both in treated and distributed water. Particles were concentrated by filtration of tens to hundreds of litres on a 5 µm membrane or glass fibre filters to obtain a few milligrams of dry matter, followed by detailed elemental analysis. The particulate concentration and the corresponding organic and mineral fractions can then be compared throughout the system and differences attributed to distribution system effects. Moreover, these values are also compared with standard values and with the composition found for loose deposits in a previous study of this network using the same analytical techniques [11].

Material and methods

Distribution system

The distribution system of Nancy Urban Community serves a population of 300,000 inhabitants. It is supplied with water from the Moselle river treated by: prechlorination, aluminium sulphate coagulation-flocculation-settling, rapid sand filtration, ozonation, GAC filtration, chalk remineralisation and post-chlorination. The distribution system pipes are made of grey cast iron, cement-lined ductile iron, PVC and polyethylene. The system includes 30 covered reservoirs for gravity-fed distribution; they are cleaned annually.

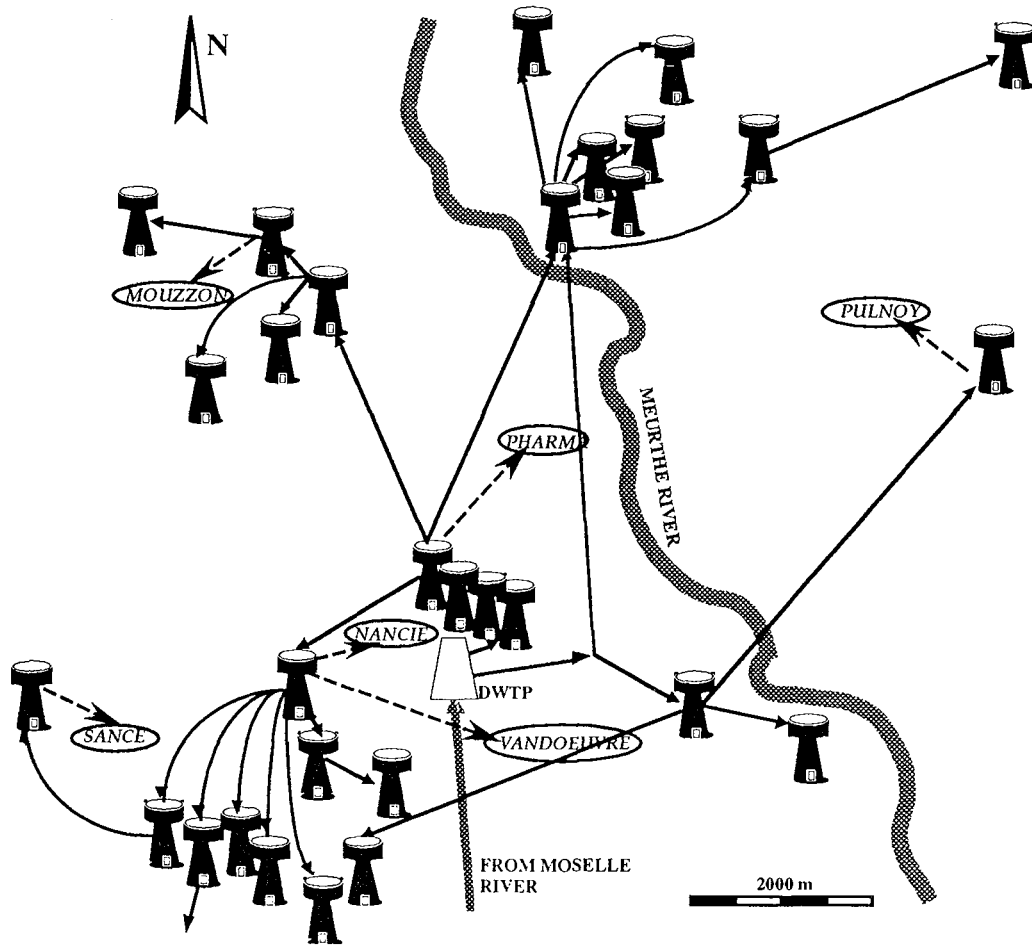
Distribution system sampling points for this study were selected to cover a wide range of distances from the treatment plant and to concentrate on the area where loose deposits had also previously been sampled (Fig. 1). Special care was taken to minimise the distance between the distribution mains and the sampling points, to reduce the specific impact of the private pipe system on results. In any case distance from the main to the sampling point was smaller than 10 m.

Suspended particles sampling

Suspended particles were sampled and concentrated on Ø47 mm filters using a 3-lines filtration system (Fig. 2). Each line consisted of a cascade-two filters-assembly, the first filter being the one retaining the "particulate matter" from the water while the second one is a reference filter, exposed exactly to the same conditions (preparation, type and quantity of water, analysis). This prevents problems such as confusion between particulate and adsorbed material when analysing the filter, since the value of the reference filter is systematically deduced from the value of the exposed filter.

The nature of filters is determined by their filtration capacity and the type of analysis to be performed afterwards:

(a) Organic matter analysis requires filters free from organic matters so as to avoid interference with the low quantities to be measured. Two 550°C-precombusted glass-fibre filter pairs (Millipore, ref. AP40) were used in parallel for this study, one for the gravimetric analysis (105°C dry matter, 550°C volatile fraction), and the other for elemental analysis (carbon and nitrogen fractions);



DWTP = Imbeaux drinking water treatment plant

Figure 1: Location of the reservoirs and the suspended particles sampling points

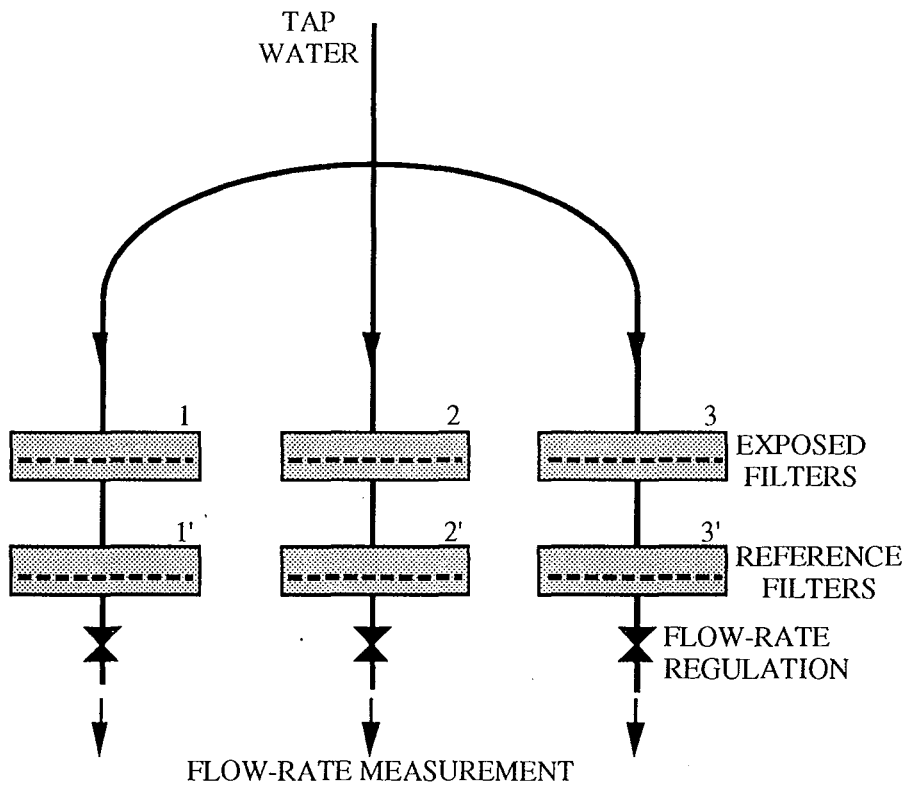


Figure 2: Principle of the particle sampling system

(b) Metals analysis requires non-metallic acid-soluble filters allowing an easy recovering of the sample after mineralisation (a non-soluble filter would prevent the determination of insoluble material by gravimetry in such low-concentration conditions). 5 µm cellulose-acetate filters (Millipore, ref. SMWP) were selected for this purpose. They were preweighed after drying at 37°C.

A fourth line of filtration (not represented on Fig. 2) consisted only of one 5 µm cellulose-acetate filter which was used for visual examination of the retained particles.

Before each filtration experiment, the system (without filters) was thoroughly washed, and rinsed with the tap water to be studied, for a period of 15 minutes. The filters were then placed into the Swinnex filters holders (Millipore, ref. SX00). During the filtration process, the pressure upstream to the filters varied from 0 to 1.5 bars depending on to the clogging of the filters, while maximum flow rates were limited to 2 litres per minute. The total volume filtered for each line was deduced from integration of the filtered flowrate measured at regular time interval.

After filtration, water in the filter holders was eliminated, and filters were transferred into clean glass crucible and dried according to the type of analysis to be performed.

Suspended and volatile solids analysis

Filters (n° 2 and 2' on Fig. 2) were weighed after successive drying at 37°C and 105°C for 48 hours each. They were then combusted in a muffle furnace at 550°C for 3 hours and weighed again. The loss of mass due to the combustion was attributed to the volatile solids.

Reference filter mass values were subtracted from the ones of the exposed filter and the suspended and volatile solids concentrations were expressed as µg.L⁻¹ after division by the filtered volumes. The accuracy is estimated to be around 10% for 37°C- and 105°C-suspended solids, and 20% for volatile solids due to the small mass collected on filters (1 to 8 mg).

Carbon and Nitrogen concentrations analysis

Filters (n° 1 and 1' on Fig. 2) were weighed after drying at 37°C. Filters were then cut in four to six parts, approximately equal. The total carbon and nitrogen contents of each of these parts were measured with an element analyser (Carlo-Erba EA 1108): they were burned at 1080°C in a stream of ultra-pure oxygen; corresponding C and N masses were then measured by gas chromatography. Particulate C and N concentration in water were then computed as µgC (or N) per litre by adding the measured mass of each part, subtracting the reference filter values and dividing by the filtered volume.

Mineral elements analysis

Filters (n° 3 and 3' on Fig. 2) were weighed after drying at 37°C. They were then placed in a Teflon pot containing 1.5 mL HNO₃ and 1.5 mL H₂O₂ and 1 mL ultra-pure water, and digested in a microwave oven (Milestone 1200 Mega). The sample was then filtered through a preweighed glass-fibres filter (Whatman GF/C). Insoluble material was determined by weighing the 105°C dried residue of the filter. The filtrate was analysed for Al, Mn, Cu, Zn, Ba, Pb by inductively-coupled plasma+mass spectrometry (ICP-MS, Fisons PQ2+), for Fe by graphite-furnace atomic absorption spectrometry (GF-AAS, Varian Zeeman SpectrAA 400), and for Ca, Na and K by flame photometry (Eppendorf Elex 6361). Results are expressed as µg per litre or as percentages of the dry weight at 105°C (the 37°C-dry weight was corrected by a factor 0.93 to cope with the weight loss between 37°C and 105°C. This 0.93 value was obtained from 37°C/105°C suspended solids measurement mentioned above).

Visual examination

Filters were kept humid after sampling. Macroscopic characteristics (objects, colour) were noted and the particles retained on filters were then described and photographed with a microscope (Olympus BX 60, magnification 100 to 1000x). For a few samples, DAPI staining of the filter was performed, which allowed a better visualisation of animals and particle-attached bacteria with UV light. This fluorescent dye visualisation technique is derived from those described in [12] and [13].

Water analysis

Traditional water analyses techniques were used [14,15]: turbidity was measured using a Hach laboratory turbidimeter; free and total chlorine were measured using the DPD colorimetric method and a portable colorimeter (CIFEC Lovibond). TOC (Total Organic Carbon) content of water was obtained with a Dohrmann DC80 TOC meter, after preliminary acidification of samples (0.5% HNO₃). For measuring the bacterial concentration of water, 1 ml of pure or diluted sample was incorporated into agar without glucose (AFNOR NF T 90-402). The plates were incubated at 22°C, and the colony forming units (CFU) were counted after 3 and 14 days and expressed as CFU 3-or 14-days.mL⁻¹.

Results

Particle collection and examination

Sampling of suspended particles in drinking water was performed over a 5 months period: 5 samplings were performed at the treatment plant, and six at distribution points. Characteristics of water at the sampling points are presented in Table 1. Treated water and distributed water have very similar overall characteristics (temperature, pH, TOC, turbidity). Differences are noted mainly for the free chlorine residual which is always greater than 0.3 mg Cl₂.L⁻¹ for treated water and lower than 0.03 mg Cl₂.L⁻¹ for all distribution points except the closest to the treatment plant.

Table 1: Overall characteristics of the water sampled for particulate analysis in this study

| Parameter | Treated water | | Distributed water | |
|--|---------------|-----------|-------------------|-----------|
| | min value | max value | min value | max value |
| Temperature (°C) | 12 | 23 | 11.6 | 22.7 |
| pH | 7.65 | 7.90 | 7.70 | 7.85 |
| Turbidity (NTU) | 0.08 | 0.21 | 0.10 | 0.25 |
| TOC (mgC.L ⁻¹) | 1.12 | 1.72 | 1.11 | 2.03 |
| Free chlorine (mg Cl ₂ .L ⁻¹) | 0.32 | 0.89 | 0 | 0.3 |
| Bacteria (CFU-3 days.mL ⁻¹) | 0 | 3.5 | 0 | 23 |
| Bacteria (CFU-14 days.mL ⁻¹) | 4 | 71 | 1 | 213 |

During experiments, the particulate content of water led to rapid clogging of filters (after 30 to 80 L, i.e. less than 1 hour for cellulose-acetate membranes, after 120 to 250 L, i.e. 1.5 to 3 hours for glass-fibre filters). Macroscopic aspect of exposed filters changed according to the sampling point and the time: for distribution points, the filter colour was generally red-brown with some exceptions more greenish. At the treatment plant, first sampling provided black filters which is probably linked to the release of GAC fines after renewal of GAC-filter material two months earlier. Afterwards, sampling at Imbeaux Treatment Plant provided light-grey filters, except on 29 July when a significant pressure increase occurred during the sampling (water hammer), leading to resuspension of deposits accumulated in pipes upstream from the sampling point: all filters clogged instantaneously, and exhibited a black colour as mentioned before (this set of samples were not included in the data processing).

Microscopic examination revealed a wide range of particle shapes, structure and colours, mainly with a size lower than 20 µm (the variety of particles collected on a filter during a filtration experiment is amazing and should not be forgotten while examining the following analytical results

presenting an average concentration for each filtration sample). It was not possible to observe the filter-retained biological entities under phase-contrast microscopy, therefore DAPI staining was used for that purpose. UV lighting allowed observing micro-organisms on filters both from treatment plant and distribution system sampling. The most commonly observed organisms (100x magnification) were probably nematodes, which were so numerous on some filters that some quantification of their concentration was attempted (about 412 nematodes on one filter, *i.e.* 4 nematodes.L⁻¹). Many rotifers and protozoa were also found, and it may be noted that most organisms observations were performed with the 100 to 400x magnifications, dealing with organisms between 20 and 200 µm. Even if not quantified, the number of DAPI-stainable particles was important and reinforce the need to include biological entities in the pool of particulate matter produced by the plant and transported by the system. Lastly, the examination of DAPI-stained filters also revealed the presence of colonized particles: some mineral ones had isolates or patchy bacteria on their surface, while other particles merely looked like a geometrical-shaped floc, with bacteria "regularly-spaced" and included at any depth inside the particle. This last type of particle was only found in distribution system samples.

Whatever the clogging of the filter, the quantity of material collected with this type of filtration is small: less than 4.3 mg on 5 µm cellulose-acetate filters, and less than 9 mg on glass-fibre filters. The capacity of filtration is probably larger with this second type of filter because it relies on the "depth filtration" principle contrary to the 5 µm filter which acts as a membrane. Nevertheless, taking into account the larger volume filtered through fiber-glass filters, the particulate matter concentration computed from the mass collected from the two types of filters were very similar.

In all cases, reference filters mounted downstream from the exposed-filters revealed no colour during macroscopic examination. Their mass variations never exceeded 15% of the mass collected on exposed filters, mainly consisting in 550°C volatile products.

Analytical results

Suspended solids (defined as material collected on an exposed filter compared with a reference filter located downstream) were measured using water from the treatment plant and from distribution points. Even if the mass collected varied greatly between the different samples (from 3.2 to 7.2 mg per filter), the resulting concentrations remained quite stable both at the plant and in the distribution system during the five months (Table 2 and Fig. 3). These results are remarkable since distribution sampling points cover a wide range of configurations where particulate concentration stability was not *a priori* expected. Average values in treated and distributed waters are also very close (Fig. 4): $34 \pm 8 \mu\text{g.L}^{-1}$ for treated water (n=4), and $44 \pm 14 \mu\text{g.L}^{-1}$ for distributed water (n=6). This means that quantitatively, transport of water through this distribution system does not affect drastically the total particulate load of water.

Average values are even closer between the treatment plant and distribution points where volatile solid concentrations are considered: in treated water, $26 \pm 6 \mu\text{g.L}^{-1}$ of volatile solids are found, while $27 \pm 7 \mu\text{g.L}^{-1}$ are measured in tap water (Fig. 4). This results in proportions of volatile solids which are slightly higher (76%) in treated water than in tap water (61%)(Fig. 5 and 6). C and N analysis yielded C/N ratio between 4.7 and 8.7 indicating a high proportion of biogenic material in organic matter. Thus, it appears that suspended particles contain a very large fraction of organic matter, much larger than that obtained for loose deposits sampled from pipes and reservoirs in a previous study (fig.6 and [11]).

Indeed, mineral fractions are proportionately much smaller in suspended particles than in deposits and comprised between 10 and 40%. Insoluble matter was never found after the HNO₃/H₂O₂ microwave mineralisation of cellulose-acetate filters, which indicates always less than 10% of insoluble material in particulate matter (and about less than 5 µg.L⁻¹ expressed as concentration of insoluble particulate material). This detection level is unfortunately quite high because of the too low quantity of collected material combined with gravimetric technique. This relative absence of insoluble material in transported particles is to be compared with the 18% found in reservoir deposits particles on average (Fig. 6).

Table 2: Particulate concentration and composition in treated and distributed water (as $\mu\text{g.L}^{-1}$)

| Type | Location code | SS | VS | C | N | Fe | Ca | Al | Mn | Zn | K | Pb |
|-------------------|---------------|-------|-------|------|-----|------|------|------|------|--------|--------|--------|
| treated water | Imbeaux | 36 | 20 | 12.5 | 1.4 | 0.6 | 0.42 | 0.5 | 0.26 | 0.09 | 0.00 | 0.00 |
| treated water | Imbeaux | 26 | 23 | 11.2 | 2.1 | 0.3 | 0.39 | 0.6 | 0.17 | 0.04 | 0.00 | 0.02 |
| treated water | Imbeaux | 31 | 31 | 11.8 | 2.5 | 0 | 0.45 | 0.6 | 0.08 | 0.00 | 0.00 | 0.00 |
| treated water | Imbeaux * | 177 * | 106 * | ND | ND | 23* | 3.9* | 8.2* | 4.5* | 0.85 * | 0.43 * | 0.17 * |
| treated water | Imbeaux | 44 | 31 | ND | ND | 2.0 | 0.65 | 1.4 | 0.36 | 0.09 | 0.00 | 0.02 |
| treated water | average | 34 | 26 | | | 0.74 | 0.48 | 0.79 | 0.22 | 0.06 | 0.00 | 0.01 |
| treated water | SD | 7.7 | 5.7 | | | 0.89 | 0.12 | 0.44 | 0.12 | 0.05 | 0.00 | 0.01 |
| Type | Location code | SS | VS | C | N | Fe | Ca | Al | Mn | Zn | K | Pb |
| distributed water | CT pulnoy | 33 | 15 | 7.9 | 1.3 | 3.8 | 1.26 | 1.1 | 0.49 | 0.13 | 0.05 | 0.03 |
| distributed water | CT vand. | 69 | 33 | 13.6 | 2.3 | 6.2 | 0.45 | 0.8 | 0.20 | 0.24 | 0.09 | 0.10 |
| distributed water | Pharma | 29 | 22 | 7.4 | 1.4 | 0.4 | 0.45 | 0.4 | 0.09 | 0.04 | 0.03 | 0.02 |
| distributed water | Nancie | 37 | 26 | ND | ND | 2.5 | 0.36 | 0.8 | 0.10 | 0.04 | 0.06 | 0.04 |
| distributed water | Sance | 45 | 32 | ND | ND | 3.3 | 1.65 | 0.9 | 0.39 | 0.11 | 0.17 | 0.06 |
| distributed water | Mouzon | 52 | 35 | ND | ND | 2.0 | 0.95 | 1.1 | 0.33 | 0.11 | 0.09 | 0.04 |
| distributed water | average | 44 | 27 | | | 3.0 | 0.85 | 0.84 | 0.27 | 0.11 | 0.08 | 0.05 |
| distributed water | SD | 15 | 7.4 | | | 2.0 | 0.53 | 0.26 | 0.16 | 0.07 | 0.05 | 0.03 |

ND= not determined; SD = standard deviation; SS = suspended solids; VS = volatile solids

*These data were not taken into account for further analysis (loose deposits resuspension problem due to pressure variation during sampling)

Table 3: Metal particulate content in treated water with average values for total (dissolved + particulate) metals in treated water, compared with European Community standards

| Parameter | Al ($\mu\text{g.L}^{-1}$) | Fe ($\mu\text{g.L}^{-1}$) | Cu ($\mu\text{g.L}^{-1}$) | Zn ($\mu\text{g.L}^{-1}$) | Mn ($\mu\text{g.L}^{-1}$) |
|---------------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
| European Standard | 200 | 200 | 1000 | 5000 | 50 |
| Treated water (total) | 58 | <5 | 1 | 12 | <1 |
| Treated water (particulate) | 0.79 | 0.74 | <0.01 | 0.06 | 0.22 |
| Distributed water (particulate) | 0.84 | 3.02 | 0.03 | 0.11 | 0.27 |

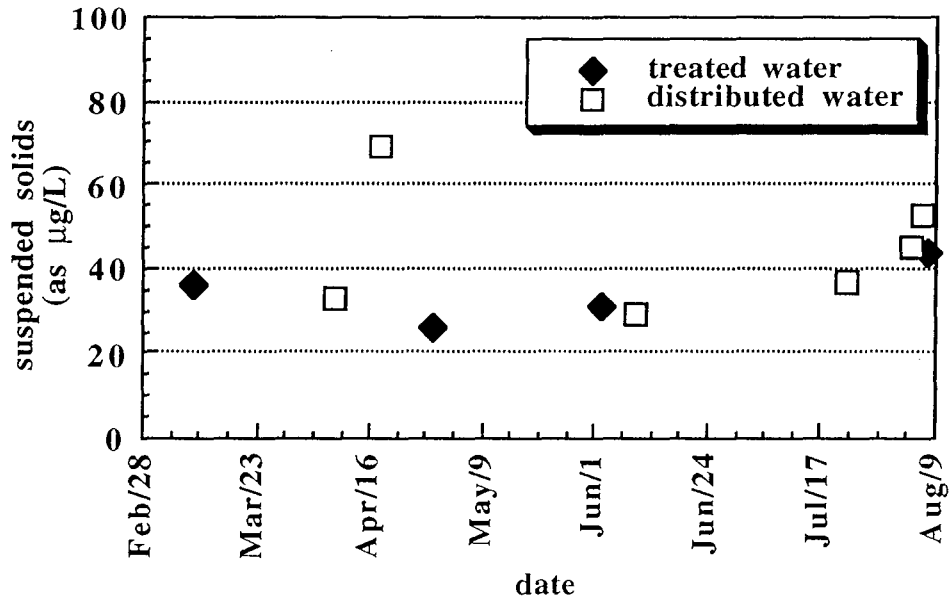


Figure 3: Suspended solids in treated and distributed water of the Nancy distribution system

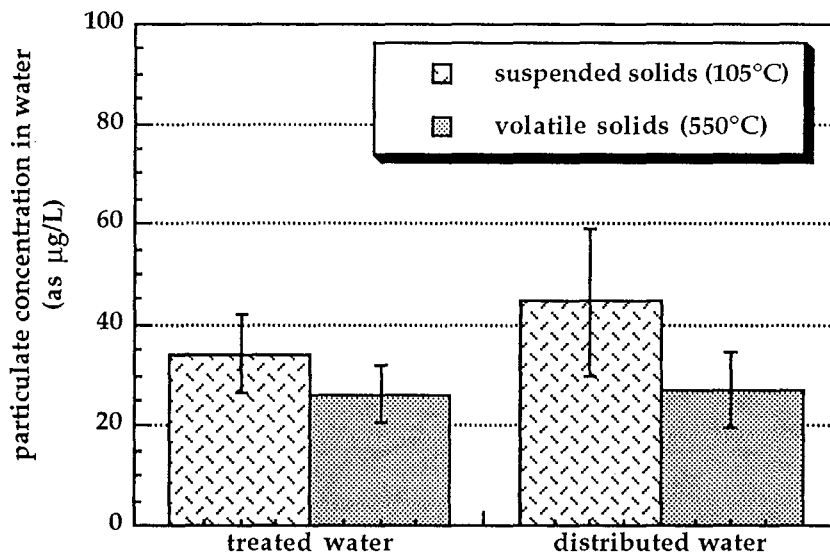


Figure 4: Average concentrations of suspended solids and volatile suspended solids in treated (n=4) and distributed (n=6) water

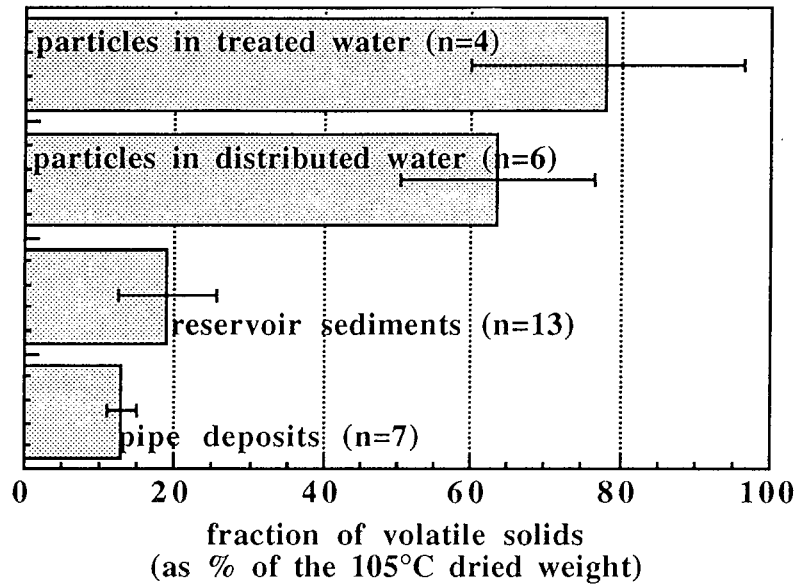


Figure 5: Comparison of volatile fractions in the different types of particles of the Nancy distribution system (pipe deposits and reservoirs sediments data are from [11])

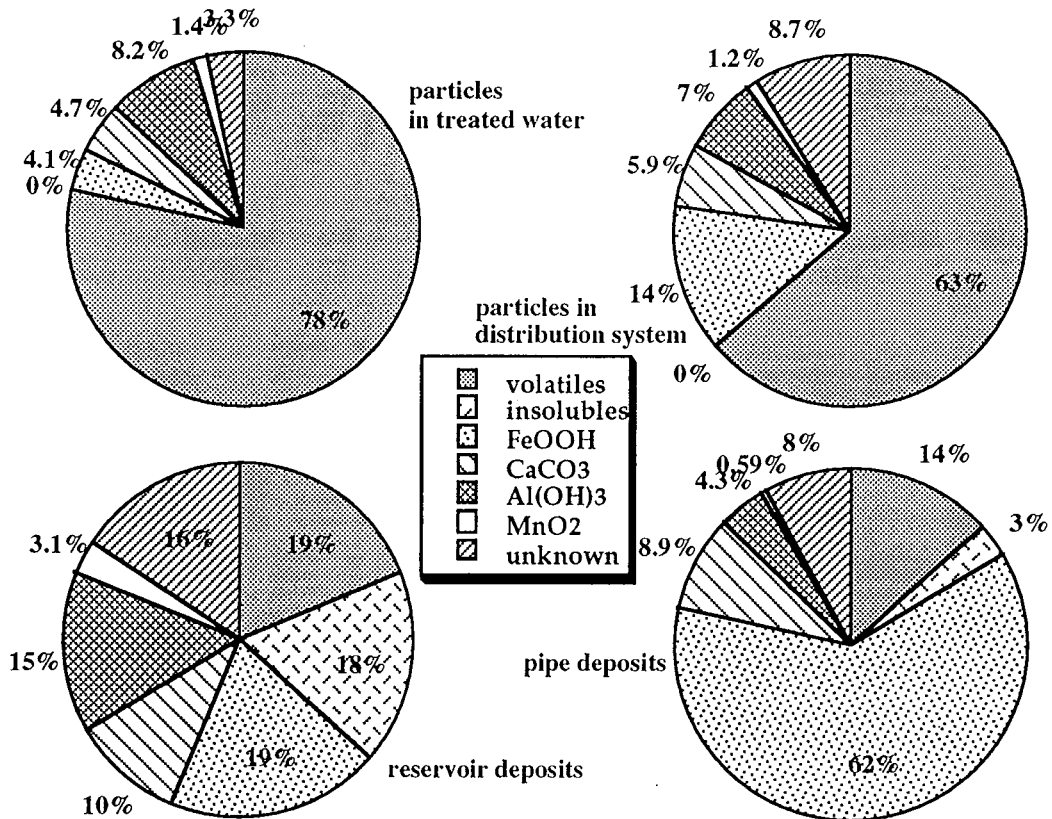


Figure 6: Changes in particle composition within the DWDS (pipe and reservoirs deposits are from [11])

Amongst mineral components, two groups can be separated as function of levels observed in their concentration in treated and distribution water particles. First, calcium, aluminium, manganese and zinc fractions are very similar in the particles of the two types of waters (distinction is tested using the non-parametric U Mann-Whitney test). Moreover, the ratio Al/Mn remains quite constant for particles along the network: it is on average 3.7 at the treatment plant and 4.0 at the tap, which is also close to the 4.4 average value obtained for reservoirs [11].

On the contrary, the particulate concentrations of Fe, Pb, and K are significantly higher in distributed water than in treated water (U Mann-Whitney test, $p=0.05$). Particulate Fe concentration increases from 0.74 to 3.02 $\mu\text{g.L}^{-1}$ on average during transport in the system, while Pb reaches at the same time from 0.01 to 0.05 $\mu\text{g.L}^{-1}$ on average. Particulate potassium is never detected in treated water, while it is measured in all distribution system samples (average $0.08 \pm 0.05 \mu\text{g.L}^{-1}$).

Calcium concentrations in distributed water is sometimes very close to (0.36 to $0.45 \mu\text{g.L}^{-1}$) and sometimes quite higher than (0.95 to $1.65 \mu\text{g.L}^{-1}$) the one of treated water ($0.48 \pm 0.12 \mu\text{g.L}^{-1}$). This can be quite easily related to the distance of the sampling point from the treatment plant (Fig. 1): increased concentration of particulate calcium are only found in remote locations and could be explained by precipitation of calcium carbonates after modification of the equilibrium of water during transit in pipes and reservoir. This observation correlates well with the higher calcium content measured in loose deposits of most remote reservoirs during a previous study [11].

Principal component analysis (Fig. 7) confirms this first approach distinguishing these parameters: this type of statistical analysis shows a similar behaviour inside three main groups of parameters, which are not interrelated:

- (a) Fe, Zn, Pb and the mineral fraction concentrations increase during transit in pipework allowing an easy distinction between treated water samples and distribution samples (the mineral fraction is computed as the complement to the volatile solids fraction);
- (b) Al, Mn, and Ca have values in pipework close to the one at the plant;
- (c) Volatile solids form the third kind of parameter showing an independent behaviour.

The potassium fraction has an intermediate behaviour between the three groups mentioned above.

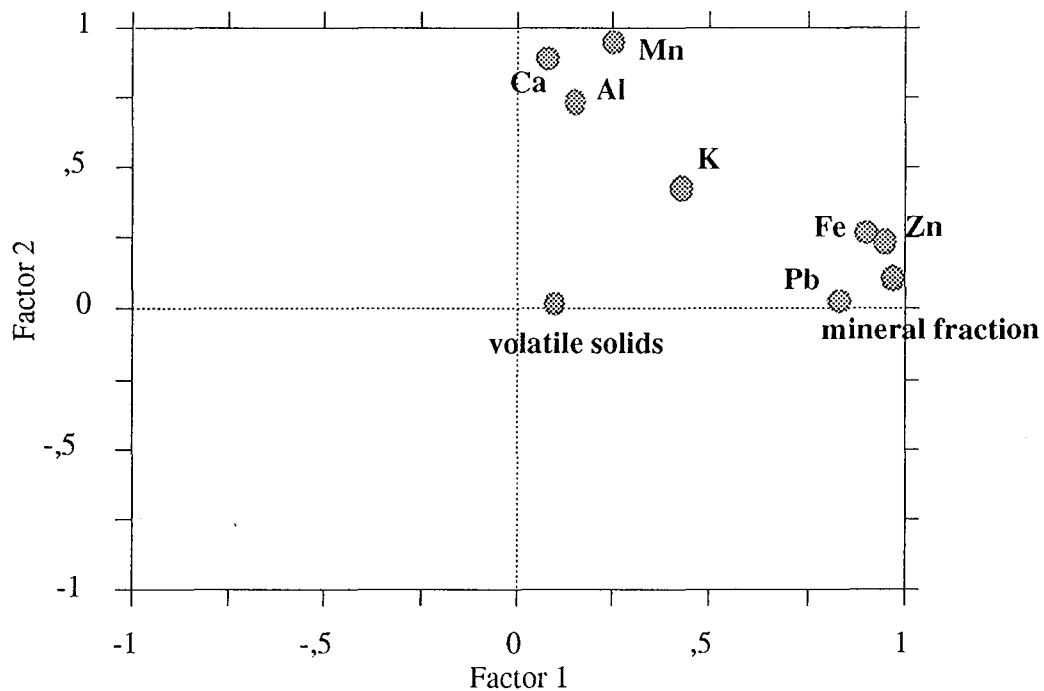


Figure 7: Principal components analysis using particulate concentrations in treated and distributed water ($n=10$)

Discussion/Conclusions

The purpose of this study was to investigate the particulate content of water in distribution systems, and to identify some of the mechanisms which lead to particulate contamination of tap water. Particulate contamination can be of a biological type if animals (including pathogenic protozoa or amoeba [16]) or bacteria-colonised particles are transported throughout the system to the consumer tap. This particulate contamination can also have a toxicological nature if for example lead particles [17] or other particle-adsorbed molecules [5] are resuspended after sedimentation/accumulation processes. The identification of the particle origin is a secondary step of this study after the quantification and characterisation of particles both at treatment plant and at distribution points.

Contrary to many authors [18-20], particle counting was not used here to describe the water samples because this measurement technique - which is taking an increasing importance in the management of treatment plant filters - does not allow determination of the nature of particles as a function of the size range studied. Numbers obtained from particle counting are easy to compare with previous or reference data at the same location but difficult to compare with other experiments especially if the predefined-size classes are different. Lastly, the highest numbers of particles are generally found in the smallest classes, which is generally at the detection limit of measurement devices, resulting in a high dispersion of results as a function of instrument performance.

The approach chosen here is probably also simplistic: it does not discriminate particles sizes and relies on an arbitrary definition of the smallest particle considered, which has the size of the filter's porosity, a very theoretical value indeed. Nevertheless, it allows a quantification of particulate concentration and composition in water, which helps a lot in defining how important is the solid matter transport in pipework. A more detailed and expensive approach of the particulate fraction characterization could include for example the coupling of electron X-ray microanalysis with image analysis [21], but such a technique would be so much time-consuming that it would limit the number of examined samples.

The release of particulate biomass by biofilters into the treated water has recently been documented [22,23], especially concerning the nematode content, and these findings are confirmed here by visual examination and by the high organic matter content (expressed as volatile solids) found in treated water particles. The presence of GAC fines at this level is not excluded (fines were visually identified on membranes); nevertheless particulate organic matter suspended in treated water can not be only GAC because C/N ratio for new GAC was found to be more than 100 while C/N values for our samples were in the range 4.7 - 8.7, much similar to some organic material with biological origin (eventually adsorbed on GAC).

The importance of the organic fraction is not specific to the treated water samples: volatile solids are also always a majority fraction of particles downstream in this distribution system. This is to be compared to the results of Ridgway and Olson [1], who indicated that the organic fraction in the 10-50 μm particles of another network was greater than 20%. In other studies, Sly *et al.* [24] found 21 to 32% of volatile solids in suspended particles, Brazos and O'Connor [25] mainly identified biological entities (bacterial rods, algal cells) in their system.

The predominance of organic matter in transported particles found here shall also be compared to the low quantities found in loose deposits inside the same system (<20%; [11]). An explanation for this difference between suspended and deposited particles composition is the lowest density of organic compounds compared to mineral ones, which enables a slower sedimentation and an easier resuspension during water flow changes. Moreover, organic matter accumulated in deposits is probably at least partially mineralised because of the high microbial activity in this medium (about $2.5 \cdot 10^8$ CFU 14-days.g⁻¹; [11]). Lastly, one should not neglect that the loose deposits organic matter fraction can be underestimated due to methodological bias: deposits sampling is performed after the annual reservoir emptying and loss of the finest fraction of deposits could eventually have occurred at that time.

The apparent stability of volatile solids concentration between the plant ($26 \pm 6 \mu\text{g.L}^{-1}$) and the distribution system ($27 \pm 7 \mu\text{g.L}^{-1}$) does not mean that the organic particles are the same in

both types of water: biological growth, (bio)degradation, sedimentation, biofilm shearing and loose deposits resuspension are probably the main processes which will modify the nature of the organic matter fraction. Nevertheless the small quantities of suspended particles sampled in this study do not allow performing a detailed analysis of its composition. An apparent stability of total particulate concentration of water is also observed in the system: the treatment plant produces water with a low particulate content, independently of the raw water quality variations during the period of the study. The particulate concentration downstream in the distribution system is on average about the same, but this does not mean that the nature of the particles is also the same. Results presented above demonstrate that the iron and lead content of the particulate fraction increase during the transport in pipework, probably as a consequence of corrosion inside the system; particulate calcium occurrence may be attributed to the release of calcium hydroxides from cement lining, or from precipitation of Ca^{2+} following pH increase [26] in the most remote parts of the system; an opposite process (Ca-rich particles dissolution) was described by Alere and Hanæus [20] in another system, who also noted an unexplained apparition of particulate potassium, like in this study.

Comparison of the values obtained for particulate matter with equivalent dissolved concentrations show that dissolved concentrations are generally much higher than particulate ones: for Nancy distribution system, about $40 \mu\text{g.L}^{-1}$ of particulate matter have to be compared to about 200mg.L^{-1} of dissolved compounds, and for example, about $10 \mu\text{g.L}^{-1}$ of particulate C to 1.5mg.L^{-1} TOC. Details of this type of comparison for the elemental metal concentrations (Table 3) reinforce this conclusion. Looking at the current European Community water quality standards (Table 3), particulate metals concentrations found here seem negligible compared with the authorised thresholds. Nevertheless one should not forget that particulate matter accumulates in sedimentation area of the pipework: hydraulic disturbances will then produce very high concentrations of these particles in water along with associated microbial contamination.

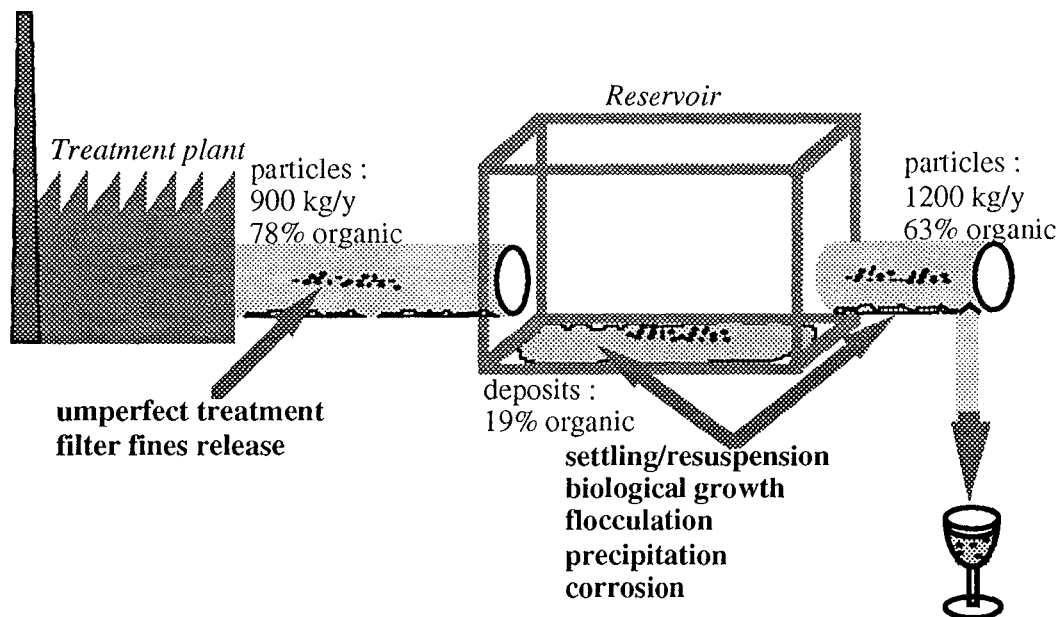


Figure 8: Principles of the particulate matter dynamics in distribution systems

For example, from a rapid computation, we obtain that the particulate mass introduced yearly in this distribution system is about 900 kg suspended solids ($34 \mu\text{g.L}^{-1}$ - $74000 \text{m}^3/\text{day}$), which would make a considerable amount of loose deposits in the case of a 100% sedimentation. Such a total sedimentation does probably not occur, since about 1200 kg suspended solids would annually come out of the network with tap water according to our measurements. But one has to consider that particulate matter is produced inside the system (Fig. 8), from transformation of dissolved matter (precipitation, biological growth) or from alteration of the solid surfaces (corrosion/erosion). There is thus a wide potential for accumulating particles as loose deposits contributing to the global deterioration of water quality in distribution systems, and the proportion of organic matter found here to be associated with suspended solids, including biological entities

(bacterial aggregates, particle-attached bacteria, animals) reinforce the need to control particulate matter in treated and distributed water.

The transport of particulate matter by distribution systems is finally a very selective process, since organic matter will be more easily transported than mineral one. The capacity of the system to transport particles seems important (more particles are found at the outlet than released by treatment plant), but one should not forget the internal reactivity of the system which can amplify any particulate contamination problem through accumulation/resuspension cycles.

Acknowledgements:

This work was carried out as part of a larger research programme entitled "Biofilm" and coordinated by the Centre International de l'Eau de Nancy (NANCIE, France). It was funded by: Agence de l'Eau Seine-Normandie (AESN, France), Anjou-Recherche (CGE, France), Communauté Urbaine du Grand Nancy (France), Office National de l'Eau Potable (ONEP, Morocco), Syndicat des Eaux d'Ile de France (SEDIF, France), Pont-à-Mousson S.A. (France), and NANCIE. The sampling of deposits in the Grand Nancy water distribution system was performed with the help of G. Blachère, J. César and M. Thèse. Special thanks to B. Gérard, T. Orel, N. Sciaux and C. Magnier for analytical support and to J. Yvon for stimulating discussions.

References

- [1] Ridgway H.F. and Olson B.H., 1981, Scanning electron microscope evidence for bacterial colonization of a drinking water distribution system, *Appl. Environ. Microbiol.*, **41**, 1, 274-287.
- [2] Herson D.S., McGonogole B., Payer M.A., Baker K.H., 1987, Attachment as a factor in the protection of *Enterobacter cloacae* from chlorination, *Appl. Environ. Microbiol.*, **53**, 5, 1178-1180.
- [3] Camper A.K., LeChevallier M.W., Broadway S.C., McFeters G.A., 1986, Bacteria associated with granular activated carbon particles in drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, **52**, 3, 434-438.
- [4] Morin P., Camper A., Jones W., Gatel D., Goldman J.C., 1997, Colonization and disinfection of biofilms hosting coliform-colonized carbon fines, *Appl. Environ. Microbiol.*, **62**, 12, 4361-4366.
- [5] De Rosa S., 1993, Loose deposits in water mains, *Report DoE 3118-/2*, Department of the Environment, London.
- [6] Gauthier V., Gérard B., Portal J.M., Block J.C., Gatel D., Organic matter as loose deposits in drinking water distribution systems, *Wat. Res.*, submitted.
- [7] Ginn T.M., Amitharajah A., 1990, Characterization and modelling of particle size distribution in water filtration, *proceedings of the 5th world filtration congress, Nice, France*, **3**, 351-361
- [8] Stringfellow W.T., Mallon K. and Digiano F.A., 1993, Enumerating and disinfecting bacteria associated with particles released from GAC filters-adsorbers, *J. Am. Water Wks Assoc.*, **5**, 8, 70-80.
- [9] Servais P., Laurent P. and Randon G., 1995, Comparison of the bacterial dynamics in various French distribution systems, *J. Water SRT- Aqua*, **44**, 1, 10-17.
- [10] Smith S.E., Colbourne J.S., Holt D., Lloyd B.J., Bisset A., 1996, An examination of the nature and occurrence of deposits in a distribution system and their effect on water quality, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA*.
- [11] Gauthier V., Rosin C., Mathieu L. Portal J.M., Block J.C., Chaix P. and Gatel D., 1996, Characterization of the loose deposits in drinking water distribution systems, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA*.
- [12] Porter K.G., Feig Y.S., 1980, The use of DAPI for identifying and counting aquatic microflora, *Limnol. Oceanogr.*, **25**, 943-948
- [13] Saby S., Sibille I., Mathieu L., Paquin J.L., Block J.C., 1997, Influence of water chlorination on the counting of bacteria with DAPI (4',6-Diamidino-2-Phenylindole), *Appl. Environ. Microbiol.*, **63**, 4, 1564-1569.
- [14] Standard methods for the examination of water and wastewater, 1992, 18th edition, American Public Health Association, Washington, DC, USA.
- [15] Rodier J., 1996, L'analyse de l'eau, Dunod, Paris, 1384 pages

- [16] **Ministère Français du Travail et des Affaires Sociales, Direction Générale de la Santé, 1997**, Microbiologie et eaux d'alimentation : problèmes liés à certaines parasitoses - recommandation pour les malades immunodéprimés, *14 pages*
- [17] **Leroy P., Le Gentil L., 1992**, Influence des conditions de soutirage sur la teneur en plomb de l'eau issue d'un réseau en plomb, *J. Fr. Hydrol.*, **23**, 2, 171-181.
- [18] **Silverman G.S., Nagy L.A., Olson B.H., 1983**, Variations in particulate matter, algae, and bacteria in an uncovered, finished drinking-water reservoir, *J. Am. Wat. Wks As.*, **75**, 191-195
- [19] **McCoy W.F., Olson B.H., 1986**, Relationship among turbidity, particle counts and bacteriological quality within water distribution lines, *Water Res.*, **20**, 8, 1023-1029
- [20] **Alere I., Hanæus, J, 1997**, Particle dynamics in the distribution system of Luleå, *Vatten*, *accepted for publication*
- [21] **Bernard P.C., Van Grieken R.E., Eisma D., 1986**, Classification of estuarine particles using automated electron microprobe analysis and multivariate techniques, *Environ. Sci. Technol.*, **20**, 5, 467-473
- [22] **Beaudet J.F., Prévost M., Arcouette N., Niquette P., Coallier J., 1996**, Controlling annelids in biological activated carbon filters, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf., Am. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA.*
- [23] **Schreiber H., Schoenen D., Traunspurger W., 1997**, Invertebrate colonization of granular activated carbon filters, *Wat. Res.*, **31**, 4, 743-748.
- [24] **Sly L.I., Hodgkinson M.C., Arunpairojana V., 1990**, Deposition of manganese in a drinking water distribution system, *Appl. Environ. Microbiol.*, **56**, 3, 628-639
- [25] **Brazos B.J., O'Connor J.T., 1990**, Seasonal effects on the generation of particle-associated bacteria during distribution, *proc. AWWA Wat. Qual. Technol. Conf., San Diego*, 1073-1101.
- [26] **Sigg L., Stumm W., Behra P., 1992**, Chimie des milieux aquatiques, *Masson, Paris*, 391pages.

II.5 Caractérisations complémentaires

La caractérisation présentée plus haut (§ II.2 à II.4), associe principalement la gravimétrie, l'analyse chimique élémentaire (organique et minérale) et le dénombrement des bactéries cultivables. Malgré son intérêt, cette approche fournit seulement une description sommaire des dépôts et particules en suspension du réseau de distribution étudié, car elle ignore presque totalement la spéciation des différents éléments ; c'est d'ailleurs pourquoi les essais de bilan massiques nécessitent des hypothèses de statuts pour le fer et le calcium (oxydes et carbonates). Seules quelques analyses complémentaires de la matière organique ont été présentées (cf. § II.3), elles pourront servir d'éléments de comparaison pour des études ultérieures, mais sont évidemment trop fragmentaires pour autoriser une interprétation quantitative et qualitative complète.

Dans le même ordre d'idée, on a analysé les micropolluants organiques associés aux dépôts de réservoir et les fractions minérales des dépôts et particules en suspension. Ces résultats complémentaires donnent le plus souvent une bonne "photographie" des dépôts étudiés, et précisent la nature et les conditions d'une approche analytique plus globale dont l'ambition serait de tracer l'origine des composés retrouvés dans les dépôts.

II.5.1 Micropolluants associés aux dépôts de réservoir

Les micropolluants organiques (pesticides et hydrocarbures) ont été recherchés dans quatre échantillons de dépôt. Ces substances peuvent être peu solubles et s'accumuler dans les sédiments des hydrosystèmes (Zhou *et al.*, 1995 ; Hegeman *et al.*, 1996 ; McGroddy *et al.*, 1996). En réseau de distribution, le risque de contamination résulte alors du transfert dans la phase liquide à l'occasion d'une remise en suspension éventuelle. La durée de contamination sera alors *a priori* limitée au passage du pic de turbidité, et le dépassement des normes n'affectera pas forcément la santé des consommateurs, puisque les limites fixées ne correspondent pas à des seuils de toxicité aiguë, mais au risque sanitaire résultant de l'accumulation par consommation régulière d'une eau contaminée (Funari, 1995). Peu de données existent toutefois sur la présence et les risques associés aux micropolluants dans les dépôts de réseau d'eau potable.

Dans le cas présent, les micropolluants ont été recherchés par le Laboratoire d'Hygiène et de Recherche en Santé Publique (LHRSP) à partir de 0,5 g de dépôt lyophilisé selon la procédure en vigueur dans ce laboratoire (extraction au dichlorométhane (5 mL) à froid, chromatographe en phase gazeuse Varian 3400 couplé à un spectromètre de masse Varian Saturn 2, colonne JW scientific (réf. DB5MF, longueur 30 m, Ø 0,25 mm, film 0,25 µm), injection : 1 µL, programmation de température de la colonne : 4°C/min de 40 à 300°C).

Les échantillons choisis correspondent à différents types de dépôts (cf II.2) :

STCHC2 est un réservoir situé directement en sortie d'usine dont les dépôts comprennent proportionnellement beaucoup d'insolubles et de carbone organique,

HDBL, situé à quelques kilomètres de l'usine, dont les dépôts comprennent essentiellement du sable et peu de matière organique,

JUST, à l'extrémité d'un sous-réseau, dont les dépôts étaient abondants et contenaient du calcium, des insolubles et de l'aluminium, mais peu de matière organique

GUDL, qui a une composition assez moyenne.

On note une quasi-absence de pesticides organo-chlorés, phosphorés, azotés, ou soufrés (Tableau II.5.1) : seules des traces de lindane sont détectées dans tous les échantillons, ce qui peut être expliqué (a) par la présence régulière de ce composé dans l'eau brute (Moselle) alimentant le réseau étudié d'une part, (b) par la relativement faible solubilité de ce composé par rapport à d'autres pesticides, qui favoriserait son piégeage par les sédiments d'autre part. Les seuils de détection (0,1 à 1 mg kg⁻¹) sont relativement élevés en raison de la faible quantité de sédiment disponible pour l'analyse ; ils permettent cependant d'estimer que même en cas d'importante remise en suspension de dépôt (100 mg L⁻¹), la concentration dans l'eau serait inférieure à 0,1 µg L⁻¹, ce qui est assez faible puisque voisin des recommandations actuelles pour la qualité de l'eau distribuée (0,03 à 0,1 µg L⁻¹) ; de plus, une telle remise en suspension engendrerait une turbidité facilement détectable par le consommateur, ce qui limite le risque de consommation d'eau contaminée. Des résultats comparables ont été relevés en Grande Bretagne (De Rosa, 1993) où de faibles concentrations en pesticides (simazine, atrazine, furan) ont été détectées dans l'eau, lors de la remise en suspension de dépôts par purge de canalisation.

Seuls les hydrocarbures polycycliques aromatiques (HPA) soumis à réglementation ont été quantifiés, quelques autres font l'objet d'une semi-quantification par rapport au fluoranthène (pas d'étalon spécifique)(Tableau II.5.1). Ces composés sont détectés à des teneurs toujours inférieure à 17 mg/kg, avec des quantités nettement plus faibles en sortie d'usine (STCHC2) et dans le réservoir JUST que dans les réservoirs GUDL et surtout HDBL. Ceci incite à incriminer des sources "locales" d'HPA, plutôt qu'une introduction dans le réseau à partir de l'usine de traitement. Ainsi, le composé bitumineux "ORKIT" appliqué sur les parois de certains réservoirs, peut en contaminer les dépôts ; on note que le revêtement du réservoir HDBL est encore en place et apparemment en bon état (au fur et à mesure de leur dégradation, les revêtements de type ORKIT sont remplacés par des mortiers de ciment). La présence d'hydrocarbures dans l'eau à partir de la remise en suspension de revêtement de canalisation dégradé a d'ailleurs déjà été observée dans d'autres réseaux (De Rosa, 1993, Maier *et al.*, 1996). Comme pour les pesticides, les concentrations mesurées peuvent provoquer un dépassement ponctuel des valeurs guides pour l'eau potable (0,2 µg/L pour le total des 6 HPA règlementés), mais probablement sans dégrader durablement la qualité de l'eau en réseau.

Tableau II.5.1 : Micropolluants organiques dans quatre dépôts de réservoir

| Composé recherché | seuil de détection (mg/kg) | Réservoir STCHC2 | Réservoir HDBL | Réservoir JUST | Réservoir GUDL |
|---|-------------------------------|---------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| <i>Pesticides organo-phosphorés-azotés-soufrés</i> | | | | | |
| Atrazine désisopropyl | 1 | ND | ND | ND | ND |
| Atrazine déséthyl | 1 | ND | ND | ND | ND |
| Simazine | 1 | ND | ND | ND | ND |
| Atrazine | 1 | ND | ND | ND | ND |
| Prométryne | 1 | ND | ND | ND | ND |
| Malathion | 1 | ND | ND | ND | ND |
| Parathion | 1 | ND | ND | ND | ND |
| <i>Pesticides organo-chlorés et apparentés</i> | | | | | |
| Trifluralin | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| Alpha HCH | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| Hexachlorobenzène | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| Beta HCH | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| Gamma HCH (Lindane) | 0,1 | traces | traces | traces | traces |
| Heptachlor | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| Aldrin | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| Heptachlore époxyde | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| 2-4' DDE | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| Dieldrin | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| 4-4' DDE | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| 2-4' DDD | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| Endrin | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| 4-4' DDD | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| 2-4' DDT | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| 4-4' DDT | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| PCB - PCT | 0,1 | ND | ND | ND | ND |
| <i>Hydrocarbures Polycycliques Aromatiques</i> | | | | | |
| Fluoranthène | 0,1 | 1,7 | 17 | 3 | 15 |
| Benzo (3-4)Fluoranthène | 0,1 | (a) | (a) | (a) | (a) |
| Benzo (11-12)Fluoranthène | 0,1 | (b) (a+b=0,7) | (b) (a+b=6) | (b) (a+b=0,8) | (b) (a+b=3,4) |
| Benzo (3-4)Pyrène | 0,1 | 0,5 | 6 | 2 | 3 |
| Benzo (1-12)Pérylène | 0,5 | ND | 15 | ND | 9 |
| Indéno (1-2-3)Pyrène | 1 | ND | ND | ND | 7 |
| <i>Semi-quantification par rapport au Fluoranthène</i> | | | | | |
| Phénanthrène ou Anthracène | | 1 | 9 | 2 | 10 |
| Anthracène méthyl | | ND | 1 | ND | 2 |
| Benzo-fluorène ou Pyrène 2-méthyl | | ND | 5 | traces | ND |
| Benzo-anthracène | | ND | traces | ND | ND |
| Benzo-phénanthrène ou Triphénylène | | ND | traces | ND | 1 |

ND : non détecté

II.5.2 Classification des échantillons de dépôts par analyse en composante principale

Pour compléter l'approche statistique réalisée sur la composition élémentaire des dépôts de réservoir et de canalisation (cf II.2, Tableau 4 et 5), on a projeté la position des différents échantillons dans le plan principal (Fig II.5.1). Le plan factoriel principal indiquait (cf II.2, Fig. 3) que le facteur 1 correspond à de fortes teneur en matière organique et bactéries, alors que le facteur 2 représente les fractions d'insolubles, les fortes teneurs en aluminium apparaissant alors dans ce plan au nord-est, à l'opposé du fer (sud ouest). La représentation des individus (échantillons de dépôts) révèle :

- la distinction faite entre les dépôts récupérés par purge de canalisation et qui contiennent plus de fer (tous localisés ici dans le cadran sud-ouest) et les dépôts de réservoir ;
- la ressemblance des dépôts des deux réservoirs proches de la sortie de l'usine de traitement (STCHC2 et STCHC4) à forte teneur en aluminium et matière organique ;
- l'importante fraction d'insolubles semble rapprocher HDBL d'une part avec JUST et SCHPS d'autre part, même si ces deux derniers dépôts de réservoirs contenaient nettement plus d'aluminium, de matière organique et surtout de calcium.
- les échantillons de MVXCG, TRIC2, TRIC1 et GUDL spatialement et hydrauliquement proches apparaissent assez groupés même si l'abondance de matière organique semble tirer les deux derniers vers l'est du diagramme.
- les dépôts des réservoirs CHCEXT et BLVC1 contiennent une fraction importante de manganèse et peu d'insolubles et de calcium ; ils sont aussi proches hydrauliquement et géographiquement.

Cette analyse discrimine nettement les dépôts en deux origines : les purges de canalisation et les fonds de réservoirs, ce qui résulte des fractions de fer bien plus importantes dans les dépôts de purge, et des teneurs en aluminium et matière organique plus fortes dans les dépôts de réservoir. Cette classification indique soit un mode de dépôt différent, soit une remise en suspension impliquant un arrachage d'une partie des dépôts incrustés (tubercules de corrosion) non récupérés dans les réservoirs du fait de la méthode "douce" et de la nature différente du matériau support. Ces deux mécanismes sont probablement simultanés et leurs effets difficiles à séparer. Les dépôts de réservoirs sont en effet accumulés dans les zones hydrauliquement calmes et ne subissent donc pratiquement aucune remise en suspension à l'échelle annuelle d'un cycle de nettoyage, tandis que les dépôts de canalisation sont *a priori* beaucoup plus exposés aux variations de flux, et susceptibles de subir des cycles remise en suspension/redéposition plus fréquents. En ce sens, les réservoirs représentent probablement des puits (zone d'accumulation sans exportation de matière) pour les dépôts amenés lors des remises en suspension régulières (mise en route des groupes de pompe) dans les canalisations d'aménée.

L'ACP discrimine aussi plusieurs sous-groupes de réservoirs comme décrits ci-dessus, même s'ils ne se présentent pas toujours selon l'organisation hydraulique des sous-réseaux

présentés sur la figure II.5.1 : si certains réservoirs des sous-réseaux Haut de Blémont (HDBL et JUST), Mainvaux (MVXCG, TRIC1, TRIC2, GUDL) et Bellevue (BLVC1, CHU et CHDP) apparaissent relativement groupées (Fig II.5.1), ce n'est pas le cas pour d'autres réservoirs (SCHPS, CHDP) où l'accumulation de dépôts est probablement contrôlée par des caractéristiques locales du réseau de distribution. Le vieillissement de l'eau dans le réseau de distribution ne se traduit pas non plus de manière uniforme sur cette représentation des dépôts, puisqu'à partir de l'usine de traitement (STCHC2 et STCHC4), les directions prises sont multiples pour arriver en extrémité de réseau à des compositions de dépôt très différentes dans les réservoirs JUST, SCHPS, CHDP, CHCEXT ou GUDL.

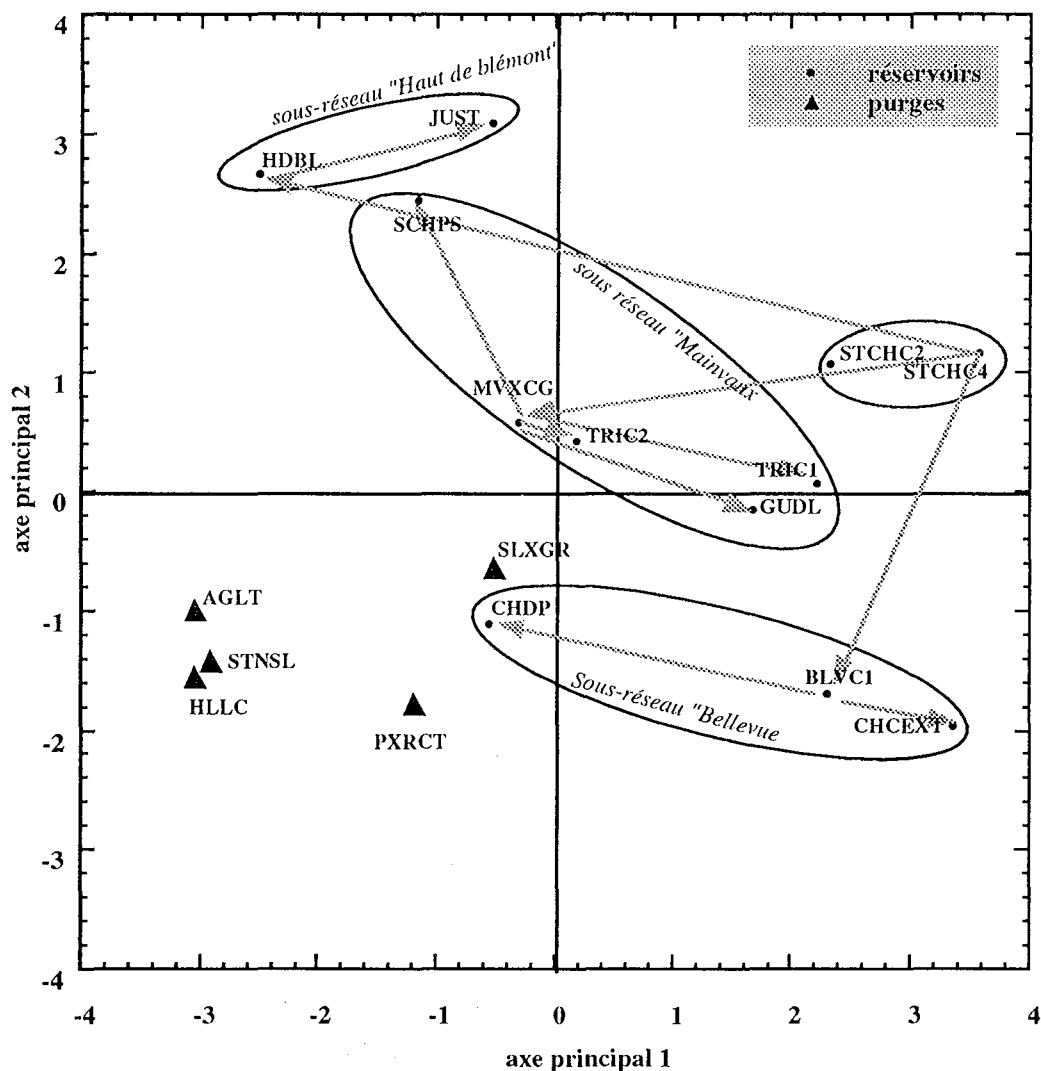


Figure II.5.1 : Représentation dans le plan principal des échantillons de dépôts de réservoir et de canalisations (les flèches représentent les connexions hydrauliques entre réservoirs)

II.5.3 Fraction minérale des dépôts de réservoir et canalisation

II.5.3.1 Caractérisation de la fraction minérale des dépôts par diffraction X et spectrométrie infrarouge

Cette caractérisation a été réalisée par Mr J. Yvon et collaborateurs (Laboratoire Environnement-Minéralurgie, ENSG, INPL). L'analyse par diffraction X est une technique semi-quantitative qui a permis ici d'identifier les éléments cristallins principaux suivants à partir de 300 mg d'aliquote de chaque dépôt lyophilisé (résultats en Annexe 1) :

- **quartz** (SiO_2) : c'est l'élément cristallisé globalement dominant, retrouvé dans tous les réservoirs et dans 7 dépôts de canalisation sur 9 ; les plus fortes teneurs en quartz sont souvent associées aux fortes teneurs en insolubles, surtout en tête de réseau (STCHC2, STCHC4, HDBL), alors qu'en extrémité de réseau (JUST, SCHPS), les teneurs en insolubles mesurées ne sont pas liées à la présence de composés ordonnés, ce qui laisse supposer qu'ils sont amorphes.
- **feldspath** ($\text{Si}_3\text{AlO}_8 + \text{K, Na, ou Si}_2\text{Al}_2\text{O}_8\text{Ca}$) : systématiquement identifié en accompagnement des fortes teneurs en quartz, dans les dépôts de réservoir et de canalisation ;
- **mica** ($\text{Al}_2\text{Si}_3\text{AlO}_{10}(\text{OH})_2\text{K}$): uniquement identifié en faible concentration dans quatre réservoirs ou les quantités de quartz étaient importantes ; ces minéraux détritiques (feldspath et mica) accompagnent classiquement les sables siliceux (quartz) ;
- **kaolinite** ($\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$): détectée une seule fois dans le réservoir HDBL, relativement proche de la sortie usine ; ce minéral est en général dans l'exogangue des sables siliceux.
- **calcite** (CaCO_3): surtout dans les dépôts récupérés par purges de canalisation en extrémité de réseau ;
- **dolomie** ($\text{Ca}_{0,5}\text{Mg}_{0,5}\text{CO}_3$): identifiée dans trois réservoirs et deux canalisations, surtout en extrémité de réseau ;
- **sidérite** (FeCO_3) : dans un seul réservoir en extrémité de réseau
- **goethite** ($\alpha\text{-FeOOH}$): le plus présent des oxydes de fer, surtout au niveau des dépôts de canalisation, mais aussi dans un quart des réservoirs ; une goethite manganésifère ($\text{Fe}_{0,67}\text{Mn}_{0,33}\text{OOH}$) a été détectée une seule fois dans un dépôt de réservoir directement en sortie usine ;
- **lépidocrocite, magnétite et hématite** : détectée pratiquement uniquement dans les dépôts de canalisation remis en suspension, ils indiquent peut-être l'arrachage de tubercules de corrosion où se présentent ces différentes espèces chimiques (Smith *et al.*, 1996) . Il faut toutefois souligner que le protocole de prélèvements n'empêchait pas l'oxydation éventuelle des espèces par contact avec l'air.

On note donc une tendance générale à trouver, en tête de réseau des fractions détritiques issues de sables siliceux, et en extrémité de réseau des substances dont la précipitation est plus probablement d'origine chimique. La plus grande abondance des carbonates en extrémité de réseau est attribuable à trois phénomènes : (a) la non dilution par les fractions détritiques, (b) une perte de CO₂ par contact avec l'air dans les réservoirs provoquant la précipitation des carbonates. La présence de sidérite en extrémité de réseau peut indiquer (c) une production de CO₂ dans un milieu où il y a moins de calcium disponible et contenant du fer en solution. Ces conditions de formation de précipités n'ont toutefois pas été caractérisées ici.

L'analyse par spectrométrie IR fait de plus ressortir quelques caractéristiques supplémentaires : hormis l'échantillon HDBL (déjà mentionné pour ses teneurs en insolubles, quartz, feldspath, et kaolinite qui présente un spectre original), tous les spectres IR obtenus pour les dépôts de réservoirs présentent des caractéristiques semblables indiquant une grande quantité d'eau liée, une quantité variable de matière organique aliphatique comme discuté au chapitre II.3, et une bande composite des carbonates plus ou moins développée. Les échantillons de dépôts de réservoir TRIC1, TRIC2, GUDL, JUST et SCHPS présentent globalement des caractéristiques de gels de silice alumine. Dans les canalisations les carbonates sont moins hydratés, ce qui traduit probablement des différences de conditions locales de cristallisation ; les régimes hydrauliques ne sont en effet pas les mêmes : en canalisation la précipitation s'effectue sur une surface, alors que dans les réservoirs, elle s'effectue dans la masse liquide ou les dépôts.

Tout comme les résultats d'analyse élémentaire, les résultats des analyses spectroscopiques présentés ci-dessus donnent des informations macroscopiques. Des informations à l'échelle de particules individuelles sont maintenant présentées.

II.5.3.2 Caractérisation de la fraction minérale des dépôts par microscopie électronique

Pour tenter d'affiner la caractérisation des particules composant les dépôts, et éventuellement identifier les principaux types de particules, des analyses complémentaires ont été effectuées par microscopie électronique à balayage sur un nombre limité de dépôts. Ces analyses renseignent sur la distribution des éléments de masse atomique supérieure à 12. Les mesures ont été réalisées par le Laboratoire de Microanalyse de l'Université de Nancy I à l'aide d'un microscope électronique à balayage Hitachi S 2500 associé à un spectromètre dispersif d'énergie Super Quantum Delta et à un détecteur d'électrons rétrodiffusés K.E. Development.

Une caractéristique générale des échantillons est la présence des éléments minéraux sous forme oxydée. Ceci complète les observations réalisées au sujet de la demande en chlore (cf II.3) indiquant que la matière organique est responsable de la demande en oxydant, alors que la matière minérale, largement majoritaire en masse n'y participerait que peu ou pas. Ce point traduit l'absence de zones anoxiques au sein des dépôts (ceux-ci ne forment jamais de zones plus épaisses

que quelques mm dans les réservoirs). On pourrait objecter que les dépôts ont été oxydés à la suite de leurs prélèvement (mise à l'air, séchage, homogénéisation des échantillons). Il faut cependant noter que l'oxydation rapide des formes sulfurées du fer conduirait à des sulfates, celle des formes métalliques conduirait à des carbonates hydroxy-hydrates (dont des hydroxydes lamellaires carbonatés), toutes formes aux signatures spectroscopiques sans équivoques et qui sont absentes ici ; enfin, aucune voie d'oxydation rapide de ce type ne fournirait les formes ordonnées de goëthite, hématite et magnétite observées. Le seul doute possible quant aux formes du fer concerne les oxy-hydroxydes ferriques amorphes qui pourraient dériver de formes réduites présentes dans les dépôts et situeraient alors la fugacité de l'oxygène à la limite de l'équilibre entre les oxydes ferrique et ferreux, donc en milieu toujours oxydant.

Un type de particules fréquemment observées dans les réservoirs est de type "concrétion du fer" (photo 1), avec toutefois un certain nombre de nuances : lorsqu'il est précipité sous forme de concrétions bactériennes, le fer n'est pas associé à d'autres éléments (Zn, phosphates) contrairement à certaines particules d'origine différente. Ceci est en particulier observé pour les concrétions présentées sur les photos 2 et 4 en électrons secondaires (visualisation de l'ensemble de la matière), et sur les images d'électrons rétrodiffusés correspondantes (photos 3 et 5) (localisation des porteurs d'élément lourds), qui ne contiennent que des oxy-hydroxyde de fer. Les concrétions de la photo 2 présentent en particulier une structure hélicoïdale typique de certaines accumulations bactériennes du fer déjà identifiée en réseau d'eau potable (Ridgway et Olson, 1981).

Les autres particules identifiées démontrent une grande diversité des particules prises individuellement avec par exemple :

- des oxydes de fer à Mn, P et S (bille) dans une matrice de carbonate de calcium (photo 6)
- des sulfates de fer et de cuivre (photo 7) de formule $\text{Cu}_{(1-x)}\text{Fe}_x\text{SO}_4$. Ce minéral automorphe a poussé sans contraintes, et compte tenu de sa solubilité, ce composé ne peut avoir germé que dans une zone assez confinée pour atteindre localement la saturation, ou lors du séchage par épuisage des espèces contenues dans le fluide interstitiel.
- des oxydes de fer sur du quartz (au centre), et du feldspath potassique (en haut à gauche) (photo 8)
- de l'albite (feldspath sodique) (photo 9)
- des oxy-hydroxydes d'aluminiums (photo 10).

On peut au final classer les particules dans trois catégories : les débris à oxydes de fer seul présentant une signature biologique ; les précipités à base d'oxyde de fer comptant du phosphore (accessoirement du soufre) et des métaux de transition comme le zinc et le manganèse, analogues à certains composés classiques structurant les sédiments de rivières polluées et dont l'origine chimique suppose une capture d'éléments en solution ; des "mouches" (nanoparticules sphériques) à forte teneur locale en zinc, fer, plomb, baryum, chrome ou molybdène dont l'origine est à chercher dans l'usure de certains composants du réseau.

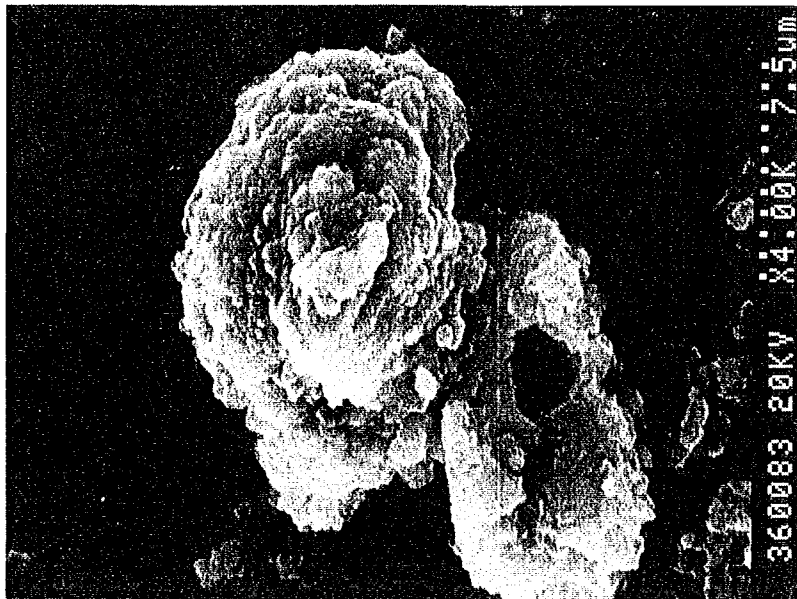


Photo 1



Photo 2



Photo 3

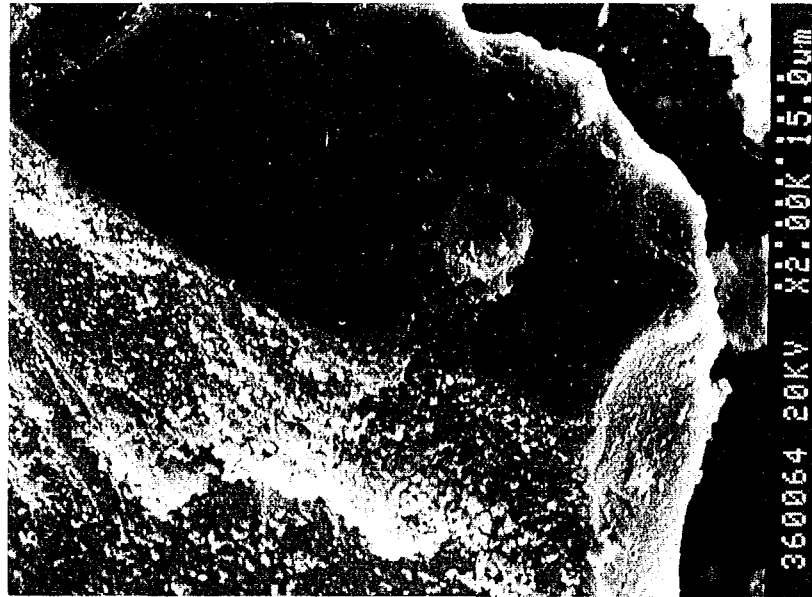


Photo 6



Photo 5



Photo 4

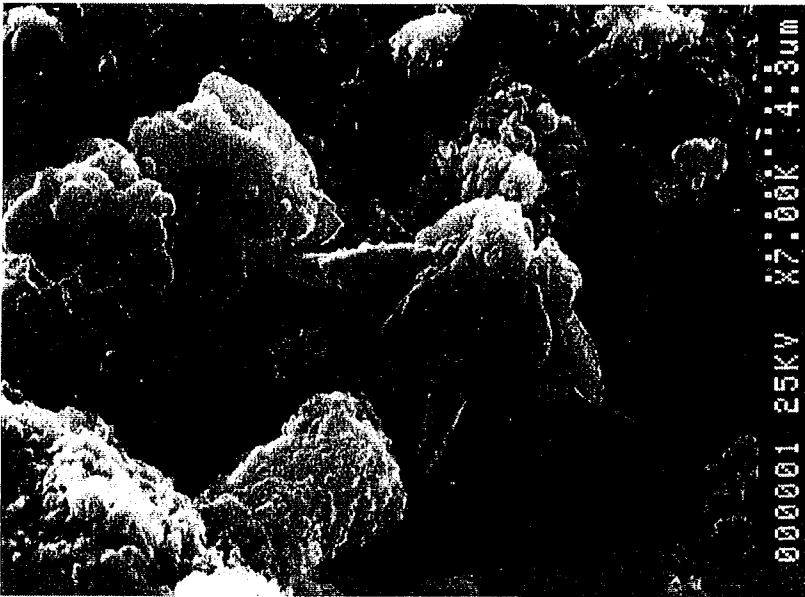


Photo 7



Photo 8



Photo 9

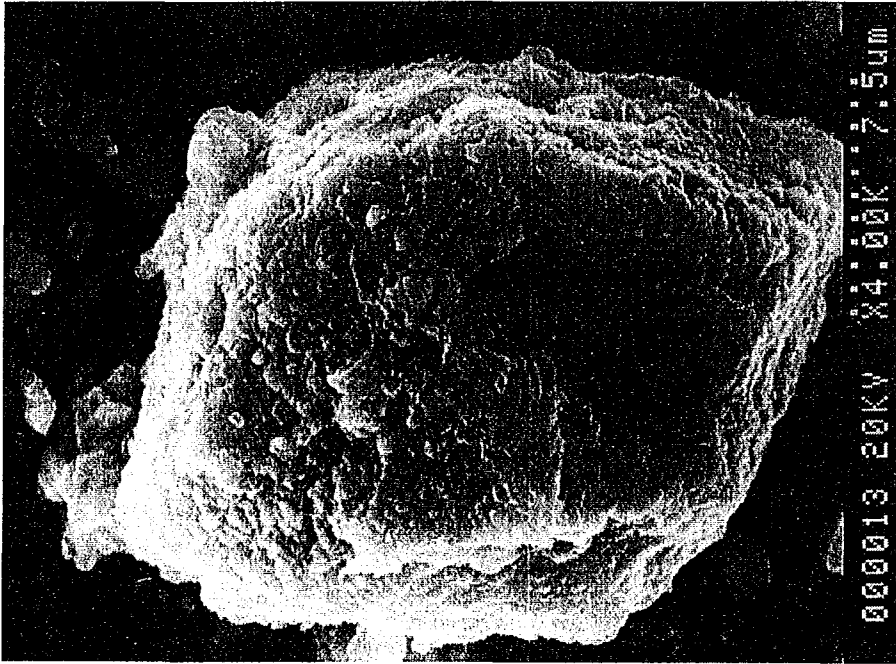


Photo 10

II.5.4 Fraction minérale des particules en suspension

L'examen au microscope photonique des filtres chargés en particule en suspension révèle une grande diversité de forme, taille et couleur pour les particules retenues. Néanmoins, l'analyse chimique des filtres ne permet que d'obtenir une composition moyenne de ces particules. Les analyses complémentaires présentées ici ont été effectués sur un nombre limité de filtres par microscopie électronique. Les informations complémentaires ainsi obtenues concernent la répartition des porteurs d'éléments plus lourds que le carbone et ponctuellement, la composition de particules homogènes. Ces analyses ont été effectuées comme décrit au paragraphe II.5.3.2 ci-dessus.

La microscopie électronique montre des différences entre les particules récupérées en sortie d'usine de traitement (photo 12) et les particules récupérées en un point de consommation (CT Pulnoy - photo 13) alimenté à partir du réservoir JUST, un filtre vierge (acétate de cellulose 5 μm) étant présenté à titre de référence (photo 11). De toute évidence, l'eau en sortie d'usine contient nombre de cellules algales qui ne sont pas toutes retrouvées en aval dans le réseau, ce qui explique les observations de plus fortes densité algales réalisées au niveau des dépôts. Des vues de détail des particules biologiques en sortie de station (photos 14 à 17) et dans le réseau de distribution (photos 18 et 19) sont aussi présentées.

A part ces particules biologiques, les particules retrouvées sur les filtres ont pour la plupart une taille inférieure à 10 μm , et la matière minérale n'apparaît pas localisée sous forme de particules minérales bien identifiable, à quelques exceptions près : oxy-hydroxide de fer (photos 20 et 21), d'oxydes de Fe avec phosphates (photo 22). D'autres particules ont une signature spectrale plus difficile à interpréter comme ce précipité de Mn, Al et Ca accolé à une chlorite (Mg, Al et Si)(photo 23) et les particules des photos 24 et 25. Les informations récupérées dans le cadre de ces analyses ne mettent pas en évidence un type de particules minérales majoritaire pour les échantillons d'eau traitée ou distribuée, mais mettent en évidence la petite taille et la diversité des structures, de manière tout à fait complémentaire avec les observations réalisées en microscopie photonique.

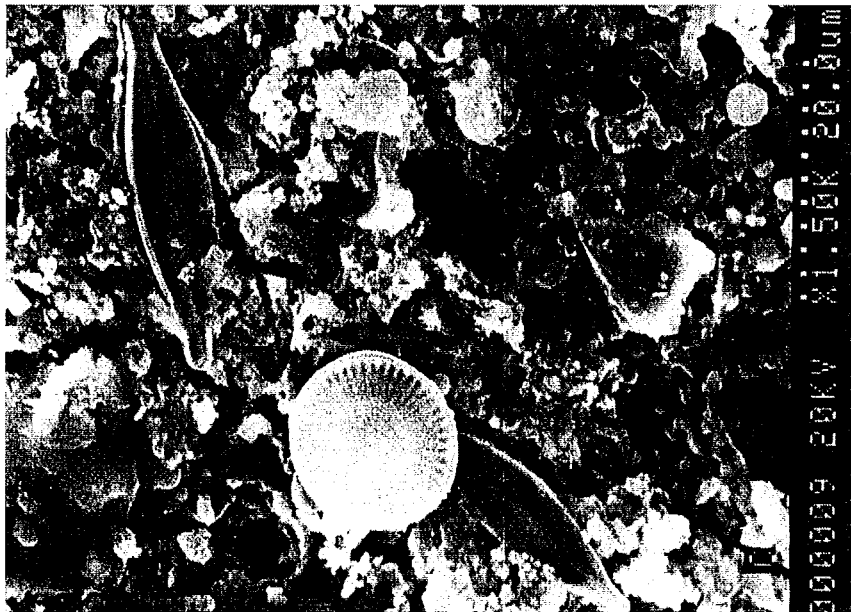


Photo 14

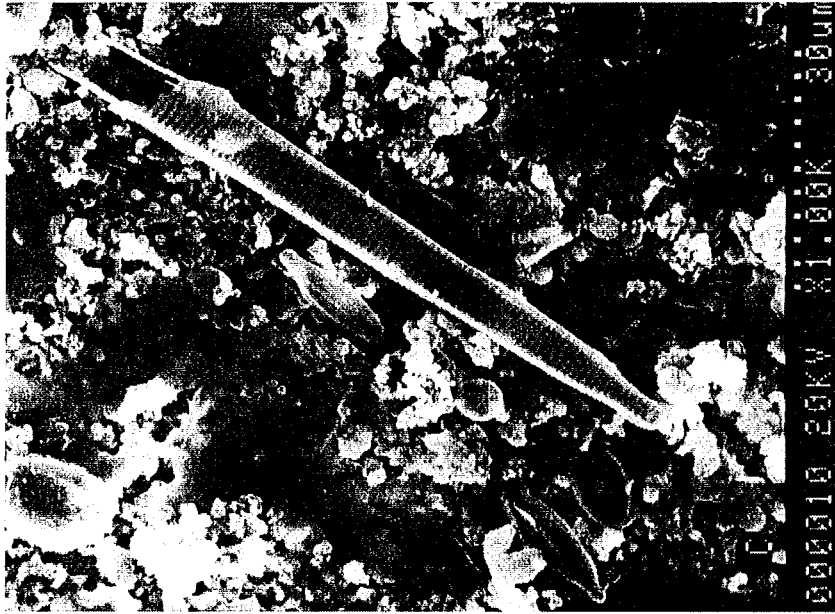


Photo 15

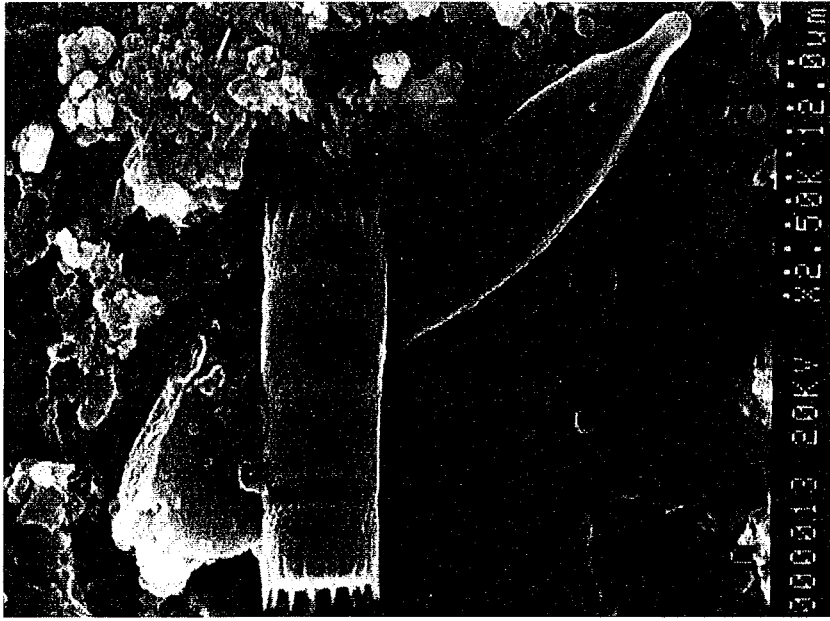


Photo 16

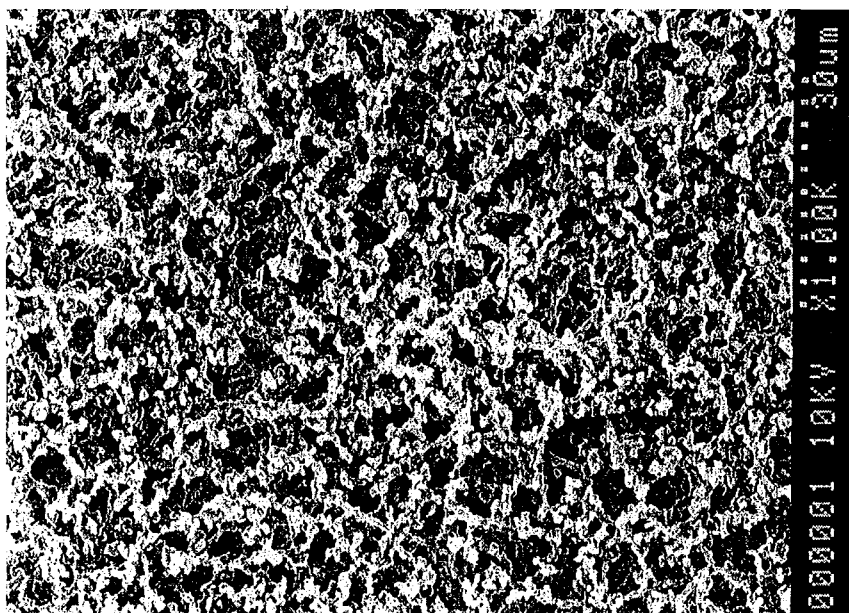


Photo 11

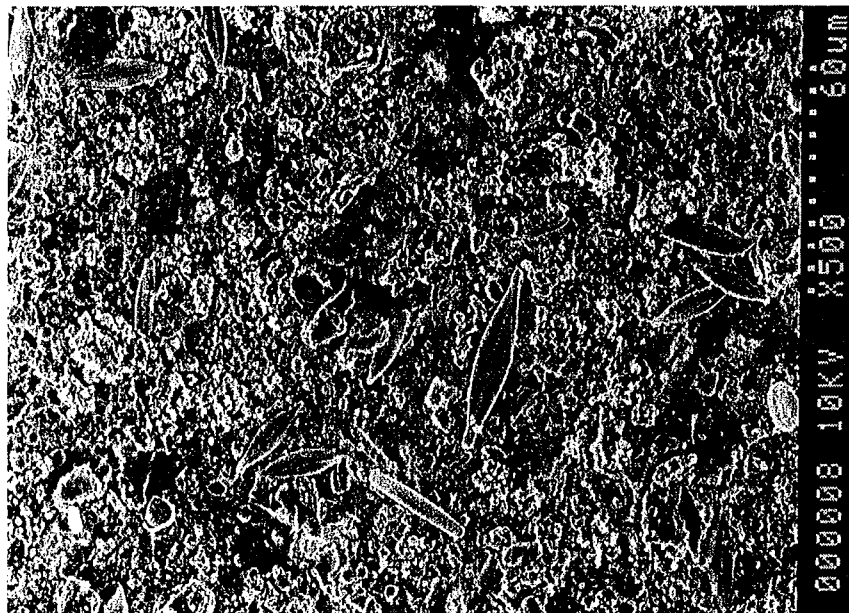


Photo 12

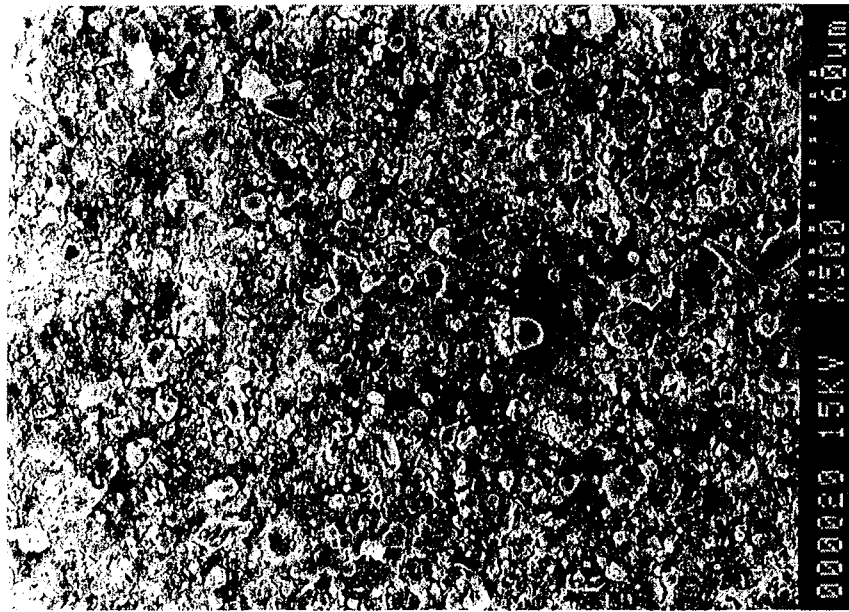


Photo 13

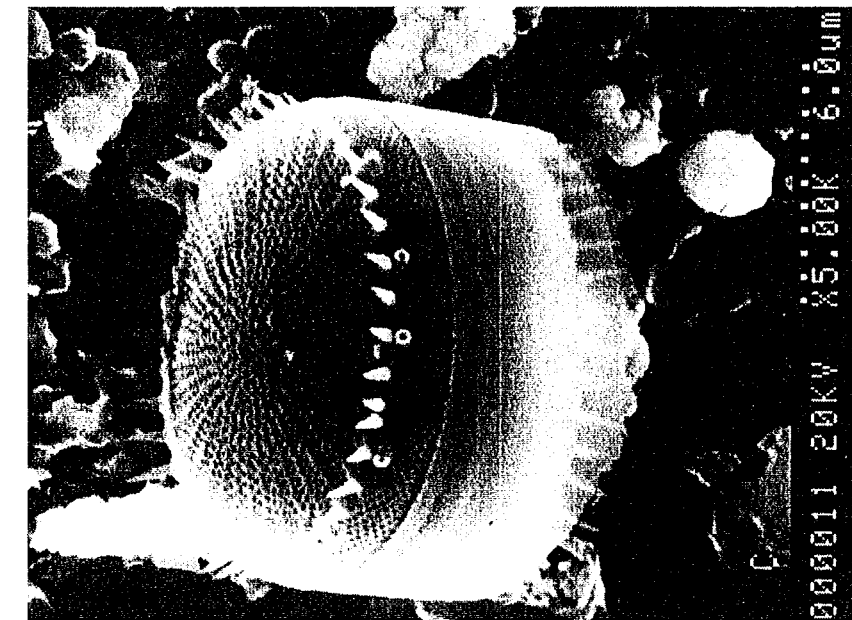


Photo 17

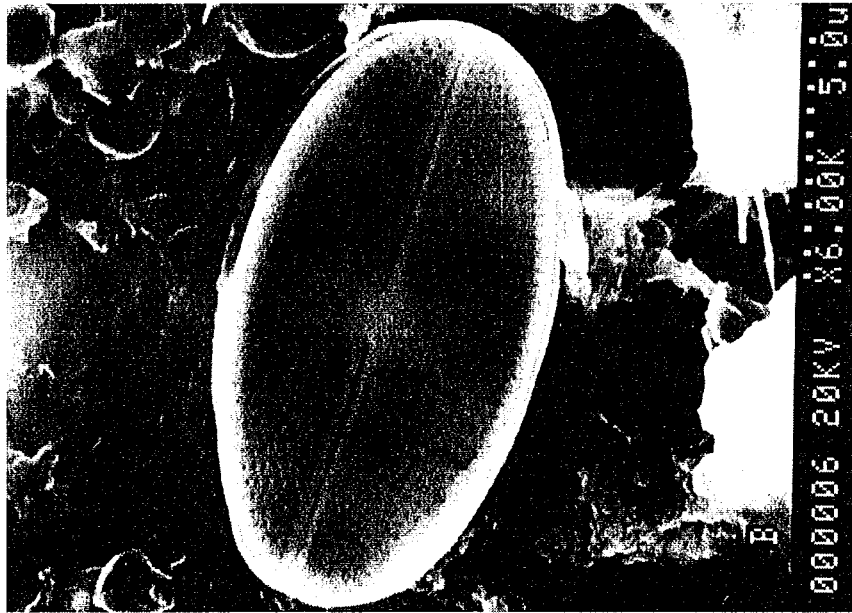


Photo 18

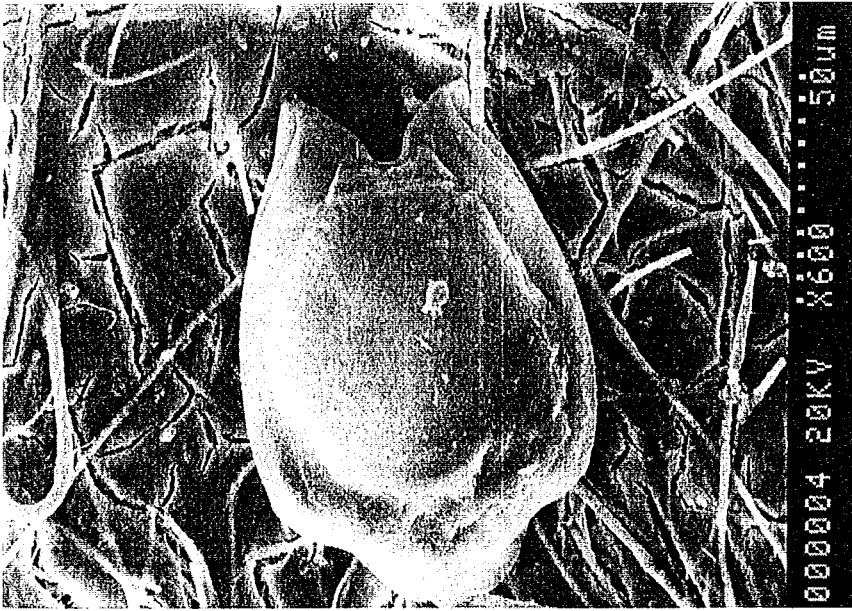


Photo 19

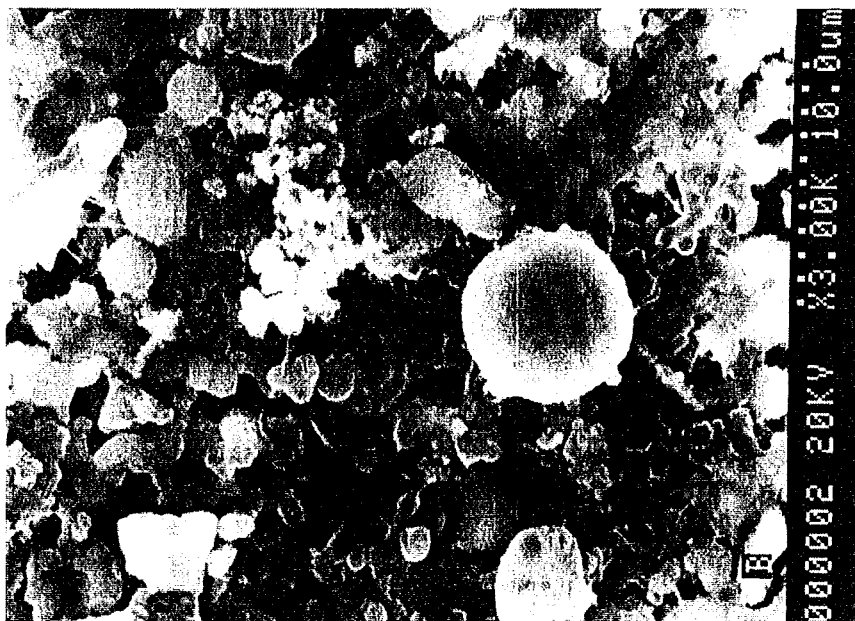


Photo 20

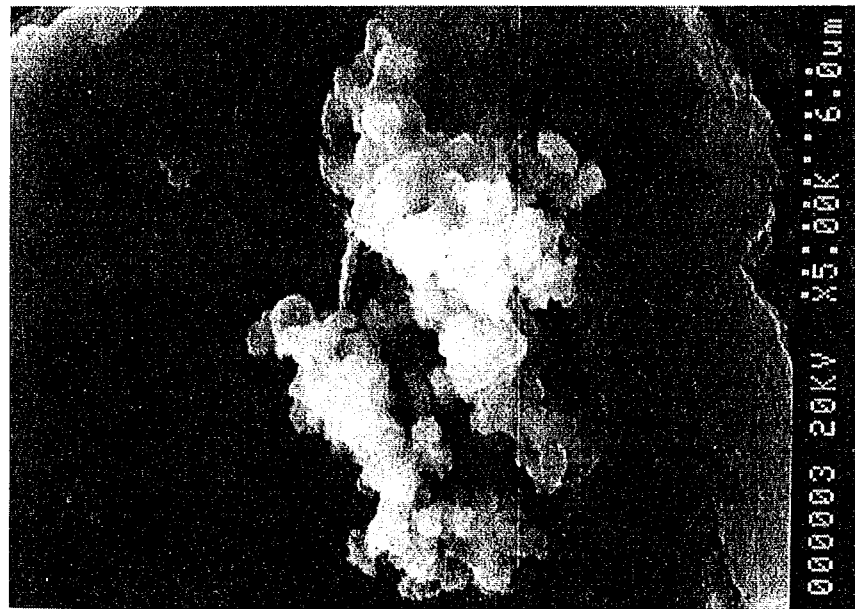


Photo 21

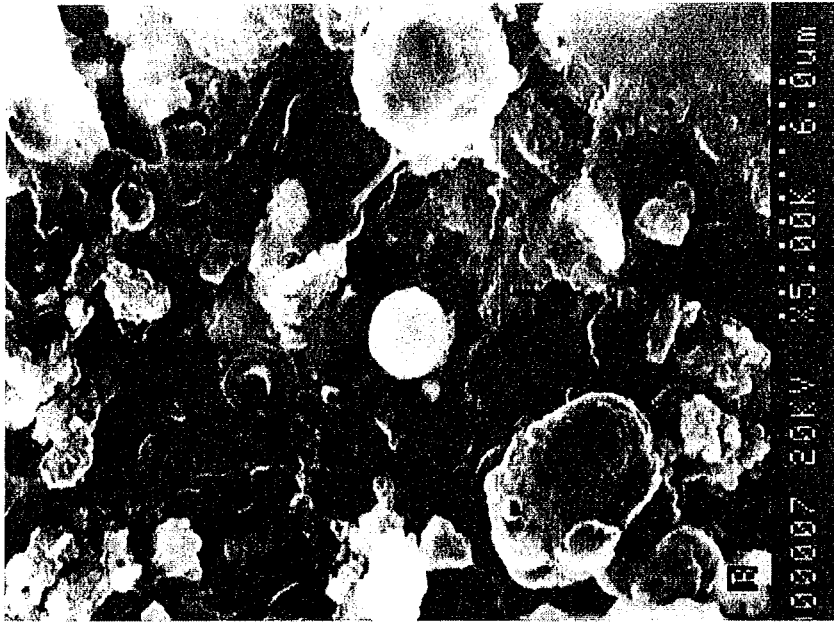


Photo 22



Photo 23

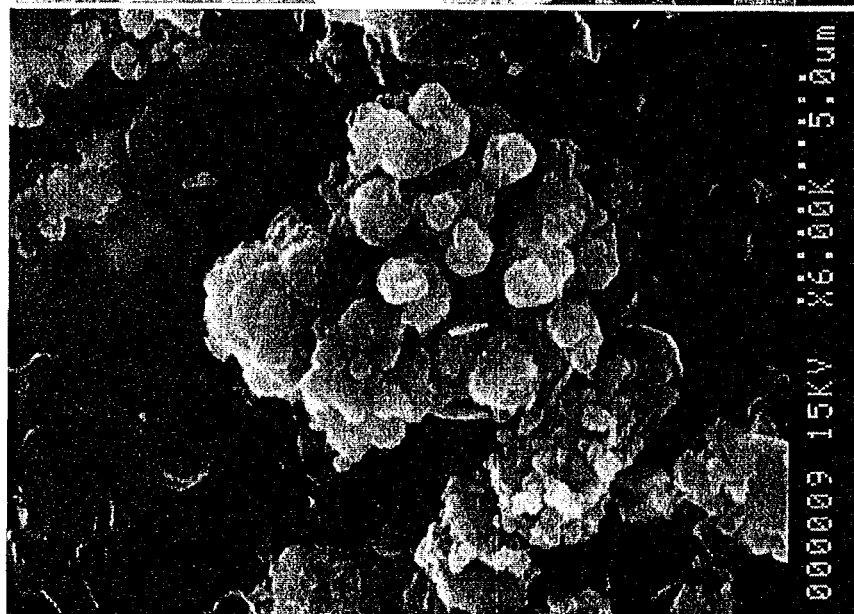


Photo 24

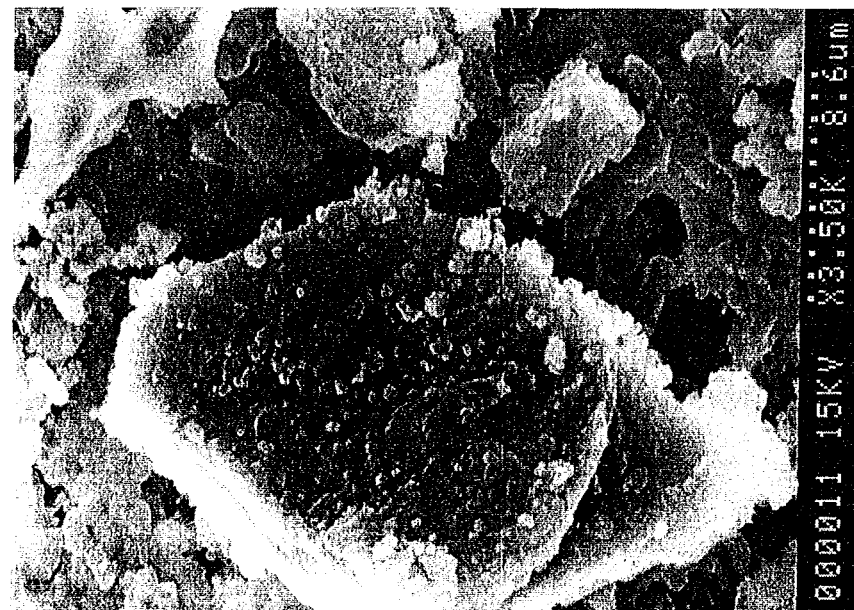


Photo 25

II.6 Discussion

La caractérisation de la matière particulaire a été réalisée au niveau de l'eau et des dépôts du réseau de la Communauté Urbaine du Grand Nancy. La complémentarité des approches expérimentales et des outils analytiques employés ici (analyse gravimétrique, analyse chimique élémentaire organique et minérale, analyse microbiologique, analyse cristallographique et spectrométrie, examen au microscope photonique et électronique), apportent un certain nombre de réponses sur la dynamique des particules dans les réseaux de distribution qu'il convient de resituer ici dans un contexte plus global. Les principaux biais et limitations des méthodes de prélèvement et d'analyse sont aussi discutées dans cette section.

Le nombre d'échantillons caractérisés, qu'il s'agisse de dépôts (13 réservoirs et 8 dépôts de canalisation) ou de particules en suspension (5 en sortie d'usine et 6 en réseau de distribution) est forcément limité et ne permet certainement pas de décrire un réseau alimentant près de 300 000 habitants, même si le choix des points de prélèvement, en particulier les réservoirs, est réalisé pour couvrir une large gamme de temps de séjour et de distances par rapport à l'usine de traitement. En particulier les variations temporelles (journalières à saisonnières) ne sont pas considérées dans l'étude des particules en suspension. Pour ce qui est des dépôts de réservoir, cet aspect apparaît moins important, puisque les dépôts récupérés intègrent les mécanismes d'accumulation sur une période d'environ un an, entre deux nettoyages de ces ouvrages. Les techniques d'analyse chimique et microbiologique mises en oeuvre permettent d'obtenir des signaux clairs et comparables entre les différents types d'échantillons. Il faut toutefois noter la quantité souvent limitée de matériel disponible pour l'ensemble de la caractérisation d'un échantillon (5 à 20 mg pour les particules en suspension).

Méthodologie de la caractérisation des particules des réseaux

La récupération des dépôts de réservoir est relativement aisée lorsqu'elle est effectuée après vidange de l'ouvrage. Ceci a été réalisé ici en profitant des vidanges annuelles préalables aux opérations de nettoyage. Plusieurs points méritent d'être soulignés concernant la représentativité de tels échantillons. La quantification des dépôts accumulés (en g m^{-2}) est difficile du fait de l'hétérogénéité de la répartition des particules sur le fond du réservoir, résultant sans doute du fonctionnement hydraulique particulier de chaque bassin de stockage (zones mortes, court-circuit, etc). De plus, la perte d'une partie du dépôt remis en suspension et entraîné lors de la vidange ne peut jamais être exclue, à moins de contrôler précisément les conditions opératoires de celle-ci. Enfin, les dépôts des réservoirs d'eau potable ne représentent les dépôts que d'une partie relativement amont du réseau de distribution : ils ne piègent par décantation que les particules présentes dans l'eau traitée ou produites durant le transport dans des canalisations d'amenée de diamètre important (250 à 1400 mm dans le réseau considéré) avec des conditions hydrauliques

précises définies par le fonctionnement des pompes. En ce sens, les dépôts de réservoirs ne reflètent pas les dépôts produits dans le "chevelu" des conduites de faibles diamètres (< 200 mm) et desservies gravitairement à partir des réservoirs.

La récupération des dépôts dans les conduites pourrait être réalisée par extraction d'une section de canalisation après congélation pour éviter les pertes par remise en suspension (Ainsworth, 1978). Néanmoins cette technique est très lourde à mettre en oeuvre et il est plus souvent procédé à une purge de canalisation au travers d'un poteau à incendie pour récupérer les dépôts alors remis en suspension (Ridgway et Olson, 1981 ; Herson *et al.*, 1987 ; LeChevallier *et al.*, 1987 ; De Rosa, 1993 ; cette étude). La technique de purge est peu quantitative car tous les dépôts ne sont pas forcément remis en suspension (Sakakibara, 1996) et de plus certains dépôts incrustés (corrosion, calcaire) peuvent être aussi arrachés par ces conditions hydrauliques extrêmes, ce qui expliquerait la présence d'oxydes de fer (magnétite, lépidocrocite), habituellement associés aux tubercules de corrosion (Smith *et al.*, 1997), et retrouvés ici dans les dépôts récupérés par purge plutôt que dans les dépôts de réservoir.

La caractérisation des particules dans les eaux de purge nécessite souvent leur concentration et peut aussi induire des biais : la technique de filtration en ligne dans un filet à plancton provoque probablement la perte des petites particules, floccs et autres structures fragiles fractionnées par l'écoulement, et il paraît *a posteriori* préférable de collecter directement l'intégralité des eaux de purge dans une large citerne pour les concentrer ensuite dans des conditions directement fonction des objectifs recherchés (granulométrie, mesure de vitesse de sédimentation, quantification des microorganismes, analyse chimique, etc...).

Concernant les protocoles analytiques, notre étude a principalement mis en évidence la difficulté de quantifier la matière organique des dépôts *via* la mesure des solides volatils : la matière particulaire des dépôts est fortement hydratée, et peut inclure des composés carbonatés volatils en dessous de 550°C (cas des carbonates de fer, plomb, zinc et cuivre - Mackenzie, 1957), ce qui conduit à une forte surestimation de la matière organique lorsqu'elle est assimilée aux solides volatils : ainsi, dans notre étude, la fraction volatile des dépôts représente près du double de la fraction organique si l'on accepte (autre approximation) que le carbone organique représente environ la moitié de la matière organique.

Les analyses réalisées par microscopie électronique permettent de caractériser individuellement les particules récupérées sur filtre et dans les dépôts. Elles ont montré une grande diversité dans la composition minérale de ces particules. Une telle diversité et la lourdeur relative de la technique utilisée limitent toutefois la définition d'une typologie de la composition des particules formant les dépôts. On reste ici loin d'une approche quantitative permettant de distinguer des différences de composition entre les dépôts de canalisation et de réservoir. Seules des techniques de traitement d'image automatisé couplées à une microscopie électronique (Eisma

1986) permettraient à terme d'obtenir une caractérisation plus objective de la nature des différentes particules formant ces dépôts.

Particules en suspension

Les concentrations de matière sèche particulaire trouvée en réseaux de distribution sont de l'ordre de quelques dizaines de microgrammes par litre, valeurs notablement plus faibles que pour la matière dissoute qui est habituellement de l'ordre de 10 à 1000 mg/L. Des concentrations de particules en suspension semblables à celles mesurées ici en réseau de distribution ont été retrouvées dans le milieu naturel dans les océans (Eisma, 1993) et en profondeur dans les lacs (Hofmann et Dominik, 1995), avec des turbidités correspondant à celles observées ici en réseau.

La matière organique représente la fraction principale de ces particules, et les concentrations de carbone mesurées (de l'ordre de 10 µg/L) confirment la relative pauvreté des eaux étudiées ici par rapport aux eaux de lac et rivière dont les teneurs en carbone organique particulaire varient de 110 à 73000 µg/L (Striquer-Soares et Chevolot, 1996). Les concentrations de matière organique mesurées en sortie d'usine de traitement sont comparables à celles mesurées aux points de consommation, ce qui indique une faible sédimentation des particules organiques (Perret *et al.*, 1994) et/ou une élimination/remise en suspension constante dans le réseau de distribution à partir du biofilm (Stewart *et al.*, 1993) ou des dépôts de canalisation et réservoir. Ces mécanismes sont difficiles à distinguer et seule une approche réalisée à l'aide de molécules et de particules marquées permettrait d'appréhender les temps de transport en suspension et de piègeage dans les dépôts des différentes particules, en supposant qu'elles ne soient pas intégralement dégradées dans le réseau. Une telle approche, réalisée au niveau du milieu naturel a mis en évidence des cycles de dépôt/remise en suspension avec des pas de temps courts (quelques heures) pour la majorité des particules (Cushing *et al.*, 1993). Néanmoins, ces résultats ne peuvent être directement transposés ici en réseau de distribution en raison du fonctionnement hydraulique et des surfaces en contact avec l'eau très différentes dans ces deux types d'hydrosystèmes.

La nature des particules en suspension, outre la proportion de matière organique, présente une grande diversité à la fois en sortie d'usine et dans le réseau, et il est difficile de définir la composition d'une particule-type tout autant que sa taille ou sa forme. Ceci reflète (a) la diversité des particules introduites dans le réseau à partir de la ressource, (b) des mécanismes de formation de matière particulaire probablement très différents dans les réseaux, incluant la précipitation chimique ou biologique, (c) la remise en suspension d'éléments constituant les canalisations ou les revêtements de réservoir, sans oublier (d) les contaminations externes impossibles à chiffrer, mais qui sont une hypothèse majeure (avec le relargage depuis l'usine) en particulier pour expliquer la présence de sable en réseau de distribution.

Dépôts de réservoir et canalisation.

Les dépôts sont majoritairement composés de matière minérale (oxydes et hydroxydes de fer, d'aluminium ou de manganèse, carbonates, insolubles). Une grande hétérogénéité est toutefois observée au niveau des dépôts des réservoirs et canalisations étudiées : à part pour les deux réservoirs situés en sortie d'usine, on peut dire qu'il n'y a pas eu deux dépôts identiques retrouvés dans le réseau (à l'échelle des paramètres mesurés), ce qui indique que non seulement le facteur "distance par rapport à l'usine de traitement" influence la nature des dépôts (en particulier pour le calcium), mais aussi de nombreux autres facteurs parmi lesquels sans doute la nature et l'âge des canalisations amont, les vitesses de pompage, l'hydraulique du réservoir, etc... Une telle indétermination est problématique car elle ne permet pas par exemple d'identifier l'origine des macroorganismes retrouvés régulièrement associés aux dépôts de deux des réservoirs étudiés, alors que leur présence n'est pas détectée ailleurs. Les faibles quantités de matière minérale en suspension ne permettent pas de plus de corréler la nature des particules véhiculées par l'eau à celle des dépôts récupérés dans les réservoirs ou canalisations correspondantes.

Malgré cette diversité de composition minérale, plusieurs traits communs caractérisent les dépôts, principalement au niveau organique et microbiologique, qui indiquent en particulier qu'une forte activité microbiologique est associée aux dépôts, et influence la composition de la matière organique benthique évaluée au travers du rapport $C_{\text{organique}}/N$ ($C/N = 7,0$ pour les dépôts de réservoir). Ainsi, pour les réservoirs, la quantité de bactéries cultivables par unité de masse est quasiment constante ($2,7 \pm 1,3 \cdot 10^8$ UFC/g), et les faibles variations observées autour de cette valeur sont corrélées avec celles des teneurs en matière organique et en aluminium des dépôts. Une telle relation UFC/matière organique avait déjà été observée par Ainsworth (1978), avec des teneurs relativement similaires compte tenu des techniques de récupération de dépôts et d'analyse différentes. Les concentrations de bactéries cultivables obtenues par De Rosa (1993) sont dans la gamme $7,8 \cdot 10^7 - 2,1 \cdot 10^9$ UFC/g pour les dépôts des réseaux alimentés à partir d'eaux de surface traitées (tout à fait comparables à celles mesurées ici), alors que les dépôts des réseaux alimentés en eau plus pauvre en matière organique contiennent jusqu'à 100 fois moins d'UFC. Ainsi les réseaux transportant des quantités suffisantes de matière organique seraient capables d'accumuler de l'ordre de 10^8 - 10^9 bactéries cultivables/g de dépôts, indépendamment des autres paramètres hydrauliques ou chimiques forcément différents entre ces trois études. Ceci signifierait que l'accumulation de bactéries à ce niveau résulte plutôt de la consommation de matière organique dissoute (similairement au biofilm), et non pas de la sédimentation de matière organique et biologique. Même si elle n'a pas été étudiée en tant que telle, l'influence du taux de chlore dans l'eau ne devrait pas non plus influencer les densités bactériennes au sein du dépôt en raison de la forte capacité réductrice de celui-ci résultant de l'accumulation de matière organique, et inhibant l'action des désinfectants véhiculés par l'eau lors de sa diffusion dans les dépôts.

Les résultats obtenus dans cette étude permettent donc d'avoir une vue d'ensemble inédite sur la matière particulaire d'un réseau de distribution d'eau potable. Certaines des observations renforcent les résultats obtenus dans le cadre d'études plus partielles, d'autres appellent des études complémentaires sur d'autres réseaux pour parfaire en particulier les résultats sur les relations matière organique-microorganismes-demande en chlore. Des expériences ont d'ailleurs été réalisées dans le cadre de ce travail pour mieux détailler les mécanismes d'accumulation de la matière organique et de la biomasse dans les réservoirs (chapitre III). L'image des particules en suspension en réseau réel reste aussi incomplète vis à vis de certaines particules (agrégats bactériens, particules colonisées) dont la quantification mériterait d'être réalisée afin de mieux préciser l'impact des particules sur la qualité de l'eau, comme discuté au chapitre IV ci-après.

Chapitre III : Accumulation de bactéries et de matière organique dans les dépôts des réservoirs d'eau potable

Ce chapitre est présenté sous forme de projet de publication à soumettre à Water Research.

Sommaire

| | |
|---|------------|
| III.1 Introduction..... | 110 |
| III.2 Matériel et méthodes..... | 112 |
| III.2.1 Réservoirs étudiés..... | 112 |
| III.2.2 Dépôts et prélèvements | 114 |
| III.2.3 Analyses de l'eau..... | 115 |
| III.2.4 Particules en suspension..... | 116 |
| III.2.5 Quantité de dépôts accumulés..... | 116 |
| III.2.6 Carbone et azote dans les dépôts | 116 |
| III.2.7 Bactéries des dépôts..... | 117 |
| III.3 Résultats | 117 |
| III.3.1 Caractéristiques des eaux d'alimentation des réservoirs | 117 |
| III.3.2 Accumulation de dépôts dans les réservoirs..... | 120 |
| III.3.3 Impact de la filtration de l'eau sur l'accumulation de matière organique et de bactéries dans les dépôts | 125 |
| III.3.4 Impact de la filtration sur la qualité de l'eau en sortie de réservoir | 127 |
| III.4 Discussion/conclusion | 128 |
| Références bibliographiques..... | 131 |

Accumulation de bactéries et de matière organique dans les dépôts des réservoirs d'eau potable

Vincent GAUTHIER¹, Jean-Marie PORTAL², Jacques YVON³, Christophe ROSIN⁴
Jean-Claude BLOCK^{1*}

- ¹ GIP STELOR, NANCIE, LSE-LCPE UMR Université-CNRS 7564, *Faculté de Pharmacie, 5, rue Albert Lebrun, 54000 Nancy, France*
- ² CPB, UPR CNRS 6831 associée à l'UHP, *17, rue Notre-Dame des Pauvres, 54500 Vandoeuvre-les-Nancy, France*
- ³ LEM, UMR ENSG-CNRS 7569, *Rue du Doyen M. Roubault, 54500 Vandoeuvre-les-Nancy, France*
- ⁴ LHRSP, INSERM U420 *11 bis rue G. Péri, 54500 Vandoeuvre-les-Nancy, France*
- * correspondance : tél : +33-(0)383 17 88 49 ; fax : +33-(0)383 17 88 79 ; e-mail : block@pharma.u-nancy.fr

III.1 Introduction

La distribution d'eau potable induit dans de nombreux cas la formation de dépôts dans les ouvrages utilisés pour stocker et amener l'eau traitée jusqu'au point d'utilisation. Ces dépôts sont soit solidaires des surfaces (entartrage, tubercules de corrosion), soit se présentent sous forme de "boue" plus ou moins dense et transférable dans la phase eau lors d'une accélération soudaine de l'écoulement. La qualité de l'eau est fortement affectée par de telles remises en suspensions, qui se traduisent par la dégradation de ses propriétés organoleptiques (couleur et turbidité), chimiques (concentration de micro-polluants) ou microbiologiques (bactéries et autres organismes remis en suspension)(De Rosa, 1993 ; van Lieverloo *et al.*, 1997, Gauthier *et al.*, accepté pour publication). De tels événements sont quasi-impossibles à maîtriser par le traiteur d'eau du fait de leur localisation dans l'espace et le temps résultant du fonctionnement hydrodynamique complexe des réseaux de distribution.

De plus, comme dans les milieux naturels, les dépôts constituent des sites d'accumulation de la matière organique et de colonisation par les bactéries (Ainsworth, 1978 ; LeChevallier *et al.*, 1987 ; Gauthier *et al.*, accepté pour publication) fournissant alors au sein du réseau la base d'une chaîne trophique s'étendant jusqu'aux crustacés macroscopiques (Mouchet et Pourriot, 1992) d'une manière probablement similaire aux écosystèmes des eaux souterraines (Creuzé des Chatelliers *et al.*, 1991). Similairement aux populations bactériennes formant un biofilm à la surface des canalisations (Morin *et al.*, 1998), les micro-organismes benthiques sont peu ou pas exposés au désinfectant résiduel véhiculé par l'eau, du fait de la forte demande en oxydant des dépôts (Kiéné *et al.*, 1996) proportionnelle à leur teneur en matière organique (Gauthier *et al.*, accepté pour publication).

Les taux et mécanismes d'accumulation de dépôts, en particulier organiques, et leur colonisation bactérienne ne sont pas décrits dans le cadre des réseaux de distribution. Par analogie avec les hydrosystèmes naturels, l'accumulation de matière organique et biologique dans les dépôts des réseaux de distribution résulte (a) de la sédimentation de matière organique particulaire (DePinto *et al.*, 1993 ; Roden and Tuttle, 1996), (b) de la diffusion de matière colloïdale ou dissoute (Drury *et al.*, 1993 ; Hendricks, 1996 ; Findlay and Sobczak, 1996), ou même (c) de la prédation d'organismes en suspension (LaBarbera, 1984 ; Schlacher and Wooldridge, 1996). L'activité biologique dans les dépôts provoque aussi l'accumulation de matière organique, par production de biomasse (Lyche *et al.*, 1996), d'exopolymères et de débris organiques (Underwood *et al.*, 1995). Enfin, la matière organique des dépôts peut être éliminée par minéralisation, mais aussi exportée par diffusion ou remise en suspension (DePinto *et al.*, 1993; Valsaraj *et al.*, 1993). L'importance relative de ces mécanismes n'est quasiment pas évaluée en réseau où seules quelques données sont disponibles sur la concentration de matière organique particulaire en suspension (Brazos et O'Connor, 1987 ; Gauthier *et al.*, 1997) et dans les dépôts (Gauthier *et al.*, 1996).

En pratique, l'élimination de la matière particulaire en suspension est menée de manière préventive en amont du réseau de distribution *via* des unités de décantation et de filtration des usines d'eau potable, et de manière curative par des campagnes de nettoyage des ouvrages qui nécessitent la mobilisation de moyens importants (Charpentier et Courcier, 1989 ; Vibert *et al.*, 1991), et ne sont pas toujours d'une efficacité avérée à moyen et long terme (De Rosa, 1993). La présence de matière particulaire principalement organique par la phase eau des réseaux de distribution a été mesurée ponctuellement par Gauthier *et al.* (1997), mais seules quelques données issues du milieu naturel sont disponibles sur le transport et le stockage de matière organique particulaire à l'interface eau-sédiment (Cushing *et al.*, 1993). Les rôles respectifs de la matière organique dissoute et particulaire sur l'accumulation de bactéries dans les dépôts ne sont pas toujours clairement identifiés (Finlay et Sobczak, 1996 ; Chafiq et Gibert, 1996) et dépendent probablement de l'importance des échanges eau-sédiment gouvernée par l'hydrodynamique des systèmes (Claret et Fontvieille, 1997).

L'objectif de cette étude est d'évaluer les taux et mécanismes d'accumulation de la matière organique et des bactéries dans les dépôts de réservoirs d'eau potable. Pour cela, des dispositifs (réservoirs, pièges à sédiment) ont été mis en oeuvre à différentes échelles expérimentales (pilote de 12 L et 15 m³, réservoir réel de 450 m³) permettant de mesurer :

- a) la vitesse de formation de dépôts par sédimentation "naturelle",
- b) la colonisation et l'accumulation de matière organique dans deux types de sédiment artificiels (billes de verre et floes d'aluminium),
- c) l'impact de la matière organique particulaire/dissoute apportée par l'eau sur l'accumulation des dépôts et sur la qualité de l'eau est aussi évalué en comparant des réservoirs pilotes alimentés en eau filtrée ou non filtrée.

Les résultats obtenus montrent que les particules en suspension dans l'eau sont peu ou pas piégées lors du séjour de l'eau dans les réservoirs, et que leur élimination en amont n'a aucun effet sur les concentrations en matière organique et en bactéries dans les dépôts. Ceci démontre *a contrario* l'utilisation principale de carbone organique dissous pour la croissance biologique à ce niveau. Les densités de bactéries observées dans le fond des réservoirs apparaissent principalement liées à la quantité et à la nature de matière minérale accumulée, les floccs d'aluminium supportant 200 fois plus de bactéries cultivables que les billes de verre poreux à poids égal.

III.2 Matériel et méthodes

III.2.1 Réservoirs étudiés

L'accumulation de matière organique et de micro-organismes a été étudiée dans trois types de réservoirs alimentés en eau du réseau de distribution de Nancy (Fig. 1) :

- quatre réservoirs pilotes petit volume (12 L),
- un réservoir pilote grand volume (15 m³),
- un réservoir réel (450 m³).

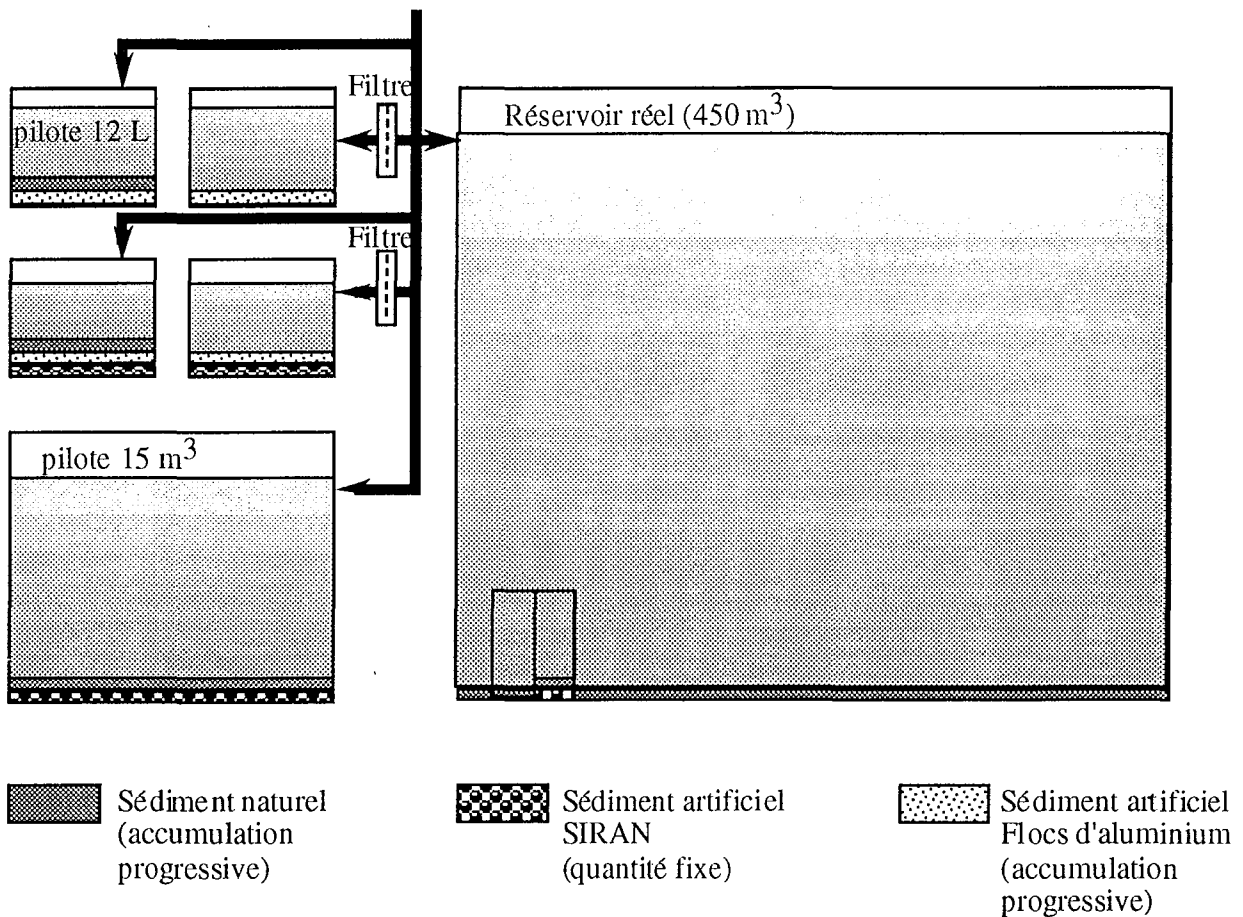


Figure 1 : Dispositifs d'étude de l'accumulation de matière organique et de bactéries au sein de sédiments naturels ou artificiels.

Les réservoirs pilotes petit volume sont construits en inox type 316 L et comprennent deux compartiments principaux (Fig. 2) : le compartiment supérieur où s'effectuent l'entrée et la sortie d'eau, et qui est parfaitement mélangé grâce à une agitation lente ($50 \text{ tours min}^{-1}$) ; le compartiment inférieur n'est pas agité et permet la décantation des particules qui sont transférées depuis le premier compartiment au travers d'une grille type "nid d'abeille" en aluminium 3003 (3 couches d'épaisseur 20 mm ; maille 19,2 mm ; Eurocomposites Systems, Luxembourg). Les quatre réservoirs pilotes de volume 12 L sont alimentés en parallèle par des canalisations en Téflon opacifié avec un débit constant de 3 L h^{-1} . Les lignes d'alimentation de deux de ces réservoirs comprennent de plus une unité de filtration (support Swinnex et filtre fibre de verre type AP40, porosité indicative $0,8 \mu\text{m}$, Millipore) permettant la rétention des particules en suspension dans l'eau (Fig. 2).

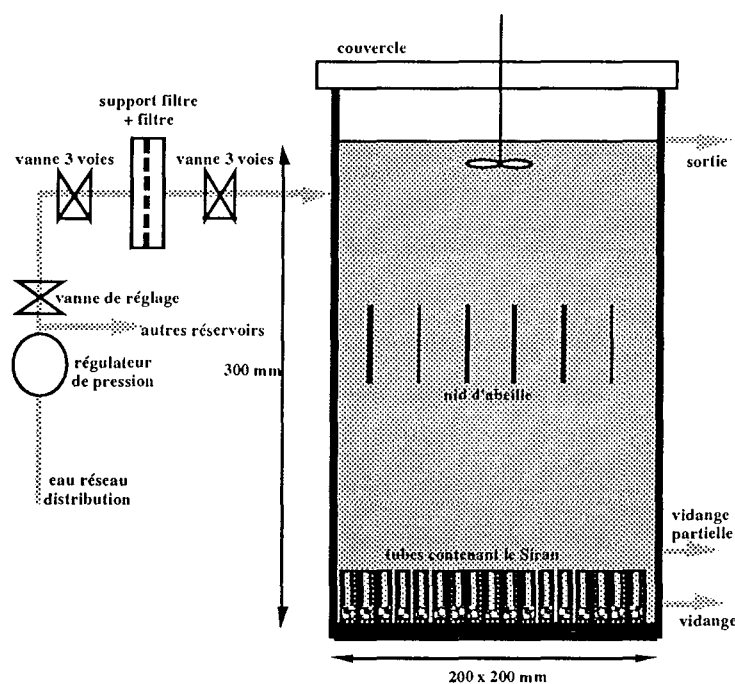


Figure 2 : Alimentation et configuration hydraulique des réservoirs pilote 12 L.

Le réservoir pilote grand volume (15 m^3) est aussi parallélépipédique et construit en tôle galvanisée recouverte de peinture époxy alimentaire, le sol étant couvert d'un revêtement PVC. Ce bassin expérimental a été décrit ailleurs (Collin *et al.*, 1991). L'eau d'alimentation ne subit pas de filtration et est injectée par une buse conique encastrée dans le sol dans un coin du réservoir avec une évacuation simultanée par trop plein dans le coin opposé à l'injection. Le débit d'alimentation est réglé à 800 L h^{-1} pour obtenir un flux surfacique (rapport débit/surface du fond) égal à $75 \text{ L m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, identique à celui des réservoirs pilote 12 L.

Le réservoir réel étudié (450 m^3) est utilisé pour le stockage et la distribution gravitaire d'eau potable, et les dépôts ont été caractérisés dans une autre étude (Gauthier *et al.*, 1996). Ce réservoir est cylindrique, et ses parois sont couvertes de mortier de ciment. Son fonctionnement est caractérisé par un marnage quotidien de 2,4 m entre 1,9 et 4,3 m, le remplissage par pompage étant

effectué principalement entre 3 et 6 h chaque matin et le temps de séjour moyen est de 16 h. Une unique canalisation assure le remplissage et la distribution d'eau à partir du réservoir.

L'eau de distribution de Nancy alimentant tous ces réservoirs est produite à partir d'eau de surface traitée par préchloration, coagulation au sulfate d'alumine, décantation, filtration sur sable, ozonation, filtration sur charbon actif, reminéralisation à la chaux et postchloration. Le réseau de distribution est constitué de canalisations principalement en fonte revêtue de ciment et PVC.

III.2.2 Dépôts et prélèvements

Les accumulations de matière organique et de micro-organismes ont été comparées durant 137 à 145 jours pour trois types de dépôts dans les réservoirs (Tableau 1) :

- des dépôts "artificiels" en verre macroporeux placés dans certains réservoirs dès le début de l'expérience pour reconstituer un dépôt préexistant ;
- des dépôts "artificiels" constitués de floccs d'aluminium accumulés progressivement dans les réservoirs pilote 12 L ;
- les dépôts "naturels" résultant de la sédimentation de particules présentes dans l'eau distribuée.

Les dépôts artificiels en verre macroporeux sont réalisés à l'aide de billes de Siran de diamètre 0,4 à 1 mm (Schott, réf. 041/120/A) habituellement utilisées pour servir de support inerte à la colonisation bactérienne dans les bioréacteurs (Ribas *et al.*, 1991 ; Dubreuil *et al.*, 1997). 163 ± 2 mg de billes de Siran préalablement séchées à 105°C sont placés dans des tubes en verre à fond plat (\varnothing_{ext} 15 x 45 mm, ép. 1 mm, Polylabo, réf. 50950) et y forment une couche de 2 mm environ, soit 123 mg cm⁻². Ces tubes sont ensuite placés dans les réservoirs (Tableau 1) et utilisés pour l'échantillonnage et la caractérisation des dépôts : ainsi, les fonds de deux des réservoirs pilote 12 L sont couverts de tels tubes placés jointivement (Fig. 2), alors que pour le réservoir pilote 15 m³ et pour le réservoir réel, les tubes sont placés dans un panier d'autoclavage (inox 316 L) immergé. Ce panier est relié à la surface par un filin permettant de le remonter pour prélever les échantillons sans vider les réservoirs. De plus, le sol du réservoir pilote 15 m³ est couvert d'une couche 2 mm de Siran (18 L) pour simuler la présence d'un dépôt préexistant dans l'ensemble du réservoir au début de l'expérience.

Les dépôts artificiels constitués de floccs d'aluminium sont, contrairement au dépôts de Siran, accumulés progressivement au cours des expériences en fonction du temps. Ils résultent de la corrosion du nid d'abeille en aluminium exposé dans les réservoirs pilote 12 L (Fig. 2 et Tableau 1). La caractérisation de tels dépôts par diffraction X et spectrophotométrie infrarouge ne montre pas de structure cristalline et révèle la présence de carbonate-hydrate d'aluminium associé à de l'hydroxyde (ou oxy-hydroxyde ou hydroxy-hydrates) d'aluminium, plus un peu de calcite. La quantité totale d'aluminium dans de tels dépôts après 145 jours d'accumulation est de 1,3 mg Al cm⁻².

Tableau 1 : Différentes configurations de taille de réservoir, type de dépôt et type d'eau d'alimentation testées.

| réservoir | eau d'alimentation | dépôts artificiels Siran | dépôts artificiels flocs d'Al | dépôts naturels seuls |
|--------------------------|---------------------------|---------------------------------|--------------------------------------|------------------------------|
| pilote 12 L | non filtrée | non | oui | |
| pilote 12 L | non filtrée | oui (182 tubes) | oui | |
| pilote 12 L | filtrée | non | oui | |
| pilote 12 L | filtrée | oui (182 tubes) | oui | |
| pilote 15 m ³ | non filtrée | oui (85 tubes + 18 L) | non | |
| réservoir réel | non filtrée | oui (45 tubes) | non | 40 tubes |

Les dépôts naturels sont accumulés par sédimentation et mesurés uniquement dans le réservoir réel où des tubes vides sont exposés simultanément aux tubes contenant du Siran (Tableau 1).

Les prélèvements de dépôts sont réalisés après 7, 14, 28, 63, 89, 126 et 145 jours pour les réservoirs pilote 12 L contenant du Siran et pour le réservoir pilote 15 m³, et seulement après 62 et 137 jours pour les tubes exposés en réservoir réel. Préalablement aux analyses microbiologiques, le contenu d'un tube est transféré dans un pot stérile et le tube est rincé quatre fois avec de l'eau physiologique stérile (9 g L⁻¹ NaCl) projetée avec une seringue 2 mL pour récupérer l'intégralité du dépôt. Préalablement aux analyses chimiques et gravimétriques, les tubes contenant les dépôts sont congelés, puis lyophilisés à l'aide d'un lyophilisateur à plateau. Ils sont ensuite stockés à l'étuve à 37°C. Pour les pilotes 12 L ne contenant pas de Siran, l'ensemble des dépôts de type "flocs d'aluminium" couvrant le fond est collecté après 145 jours dans un pot stérile. Un aliquote est dilué au 1/10^{ème} avec de l'eau physiologique pour l'analyse microbiologique, tandis que le reste de l'échantillon est congelé et lyophilisé préalablement aux analyses chimiques et gravimétriques.

III.2.3 Analyses de l'eau

Les principales caractéristiques de l'eau en entrée/sortie des réservoirs pilotes ont été mesurées quotidiennement ou de manière bihebdomadaire durant l'étude : température (°C), pH (pH-mètre Métrohm 558), turbidité (NTU)(Turbidimètre Hach Ratio XR 43900), chlore libre et chlore total (mg Cl₂ L⁻¹)(méthode colorimétrique à la DPD, AFNOR T90-038, colorimètre CIFEC Lovibond).

Le carbone organique et les densités de bactéries cultivables dans l'eau ont été mesurés le jour du prélèvement de dépôts. Les concentrations de carbone organique total (COT) dans l'eau sont mesurées par la méthode persulfate-UV à l'aide d'un analyseur Dohrmann DC 80 après

acidification des échantillons (0.5% HNO₃) et exprimées en mg C L⁻¹. La densité de bactéries cultivables est obtenue par incorporation d'un mL d'échantillon pur ou dilué dans un milieu nutritif sans glucose (AFNOR T90-402). Les boîtes de Pétri sont incubées à 22°C, et les unités formant colonie sont comptées après 14 jours et exprimées en UFC mL⁻¹. Le nombre total de cellules bactériennes dans l'eau est mesuré par comptage au microscope à épifluorescence après marquage des bactéries au DAPI (Saby *et al.*, 1997).

III.2.4 Particules en suspension

Les particules en suspension ont été quantifiées en duplicat à partir de leur rétention par les filtres placés sur les circuits d'alimentation de deux des réservoirs pilote 12 L : ces filtres en fibre de verre (Millipore, Réf. AP40), préalablement calcinés à 550°C pendant 3h et pesés, se chargent de quelques milligrammes de matière durant la filtration de 108 à 144 L (3 L h⁻¹ durant 36 à 48 heures). La masse mesurée après séchage à 105°C, rapportée au volume d'eau filtrée durant la même période, permet de calculer la concentration des particules en suspension (en µg L⁻¹). L'incinération ultérieure à 550°C durant 3 heures de chaque filtre permet de déterminer la fraction de solides volatils dans les particules retenues sur filtre.

III.2.5 Quantité de dépôts accumulés

Les tubes contenant les dépôts ont été séchés jusqu'à un poids constant à 105°C, placés au dessiccateur et pesés avec une précision de 0,5 mg. La masse de dépôts accumulés a été obtenue par soustraction du poids original tube + Siran et exprimée en mg cm⁻². Pour les pilotes 12 L ne contenant pas de tubes de Siran (Tableau 1), la masse totale de dépôts lyophilisés a été pesée, puis corrigée après évaluation de la perte de poids par séchage à 105°C d'un aliquote d'environ 100 mg. La masse obtenue est ramenée à la surface totale du réservoir et évaluée en mg cm⁻². Les analyses sont réalisées en triplicat (3 tubes provenant du même prélèvement).

III.2.6 Carbone et azote dans les dépôts

Les concentrations de carbone total et d'azote dans les dépôts lyophilisés ont été déterminées à l'aide d'un analyseur élémentaire (Carlo Erba 1108) : des aliquotes (3 à 20 mg selon la teneur en C) sont calcinés à 1080°C sous flux d'oxygène ultra pur ; les teneurs en C et N sont mesurées par chromatographie gazeuse. Les analyses sont réalisées en triplicat (3 tubes provenant du même prélèvement).

Le carbone organique a été mesuré après élimination des carbonates par acidification à chaud de l'échantillon (HCl, 2M, 40°C) jusqu'à la fin de l'effervescence. L'échantillon est ensuite séché, chauffé à 940°C sous flux d'oxygène et le carbone organique est mesuré par conductimétrie différentielle. Les résultats sont exprimés en % ou en mg cm⁻². Les analyses sont réalisées en duplicat (2 x 8 tubes de Siran mélangés pour obtenir une quantité de carbone organique supérieure au seuil de détection de 0,5 mg, soit 0,03 %) ; cette analyse a été réalisée uniquement pour le dernier prélèvement (j = 145).

III.2.7 Bactéries des dépôts

Les échantillons de dépôts, placés dans des pots en polycarbonate 40 mL stériles sont dispersés à l'aide d'une sonde ultrasonique (Labsonic 2000 U ; sonde 19 mm ; 15 s ; 20 W). L'échantillon dispersé et ses dilutions sont incorporés en milieu nutritif et les bactéries sont dénombrées comme décrit ci-dessus (§ II.3) pour l'analyse de l'eau. Les résultats sont exprimés en UFC cm⁻² sous forme de moyenne géométrique des triplicats (trois tubes analysés à chaque fois, plus une double incorporation de chaque dilution).

III.3 Résultats

III.3.1 Caractéristiques des eaux d'alimentation des réservoirs

Les caractéristiques moyennes de l'eau potable utilisée pour l'alimentation des réservoirs étudiés ici (Fig. 1) sont regroupées dans le Tableau 2 et montrent en particulier que la quantité de désinfectant résiduel ainsi que la turbidité sont faibles dans le réseau de distribution étudié, comme précédemment observé (Gauthier, 1997). La concentration de bactéries cultivables (UFC 3 jours) est toujours inférieure au nombre-guide fixé par les autorités sanitaires (100 UFC mL⁻¹), même si elle représente moins de 0,01% du nombre de cellules bactériennes présentes dans l'eau.

Tableau 2 : Caractéristiques principales de l'eau du réseau de distribution utilisée pour l'alimentation des réservoir-pilotes.

| Paramètre | Unité | Moyenne | Ecart-type | Min | Max | Nombre d'analyses |
|-----------------------|------------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|-------------------|
| Température | °C | 20,5 | 2,2 | 17,0 | 24,7 | 87 |
| Turbidité | NTU | 0,13 | 0,06 | 0,07 | 0,35 | 20 |
| pH | | 7,73 | 0,12 | 7,45 | 7,85 | 13 |
| Cl ₂ libre | mg Cl ₂ L ⁻¹ | 0,01 | 0,02 | 0,00 | 0,05 | 22 |
| Cl ₂ total | mg Cl ₂ L ⁻¹ | 0,08 | 0,04 | 0,05 | 0,16 | 22 |
| COT | mg L ⁻¹ | 1,67 | 0,21 | 1,34 | 2,03 | 10 |
| Bactéries totales | cellules mL ⁻¹ | 6,59 10 ⁴ | 7,46 10 ⁴ | 1,85 10 ⁴ | 2,01 10 ⁵ | 7 |
| Bactéries cultivables | UFC 3 j mL ⁻¹ | 3,7* | 9,9 | 0 | 30 | 9 |
| Bactéries cultivables | UFC 14 j mL ⁻¹ | 54* | 61 | 10 | 185 | 9 |

* : moyennes géométriques

Les particules en suspension ont été définies par leur rétention sur les filtres (0,8 μm) placés sur l'eau d'alimentation de deux des réservoirs pilote 12L. Elles ont été caractérisées par : (a) la concentration de particules en suspension et leur fraction volatile évaluée par des mesures gravimétriques sur le filtre ; (b) la mesure des densités bactériennes dans l'eau en amont et en aval des filtres.

La concentration de particules en suspension varie d'un facteur 2,5 environ (entre 50,7 et 128 $\mu\text{g L}^{-1}$) durant la période de l'étude (Fig. 3 et Tableau 3). Il faut toutefois noter que ces valeurs ne sont pas instantanées, mais moyennées sur les 36 à 48 h de filtration effective durant lesquelles chaque filtre se charge en particules, ce qui implique que des concentrations plus fortes, mais temporaires pourraient ne pas avoir été détectées. Les variations de concentration des particules dans le temps n'apparaissent pas très importantes et ne présentent pas de tendances saisonnières remarquables durant la période considérée. La concentration de particules en suspension mesurée ici en un point du réseau de distribution est bien moins importante que la plus faible valeur (0,5 mg L^{-1}) mentionnée par Eisma (1993) pour les particules en suspension des eaux de rivière, et est plus proche des valeurs mesurées dans l'océan en dehors des zones côtières.

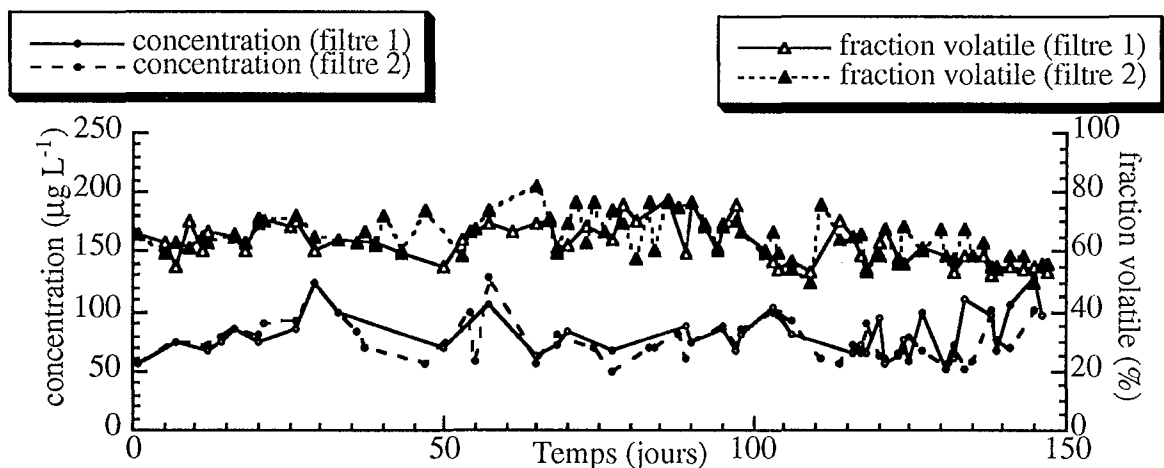


Figure 3 : Concentration de particules en suspension et fraction volatile dans l'eau d'alimentation des réservoirs pilote 12 L et 15 m^3 (les filtres 1 et 2 correspondent aux deux unités de filtration fonctionnant en parallèle (duplicats) pour l'alimentation des réservoirs pilotes).

Ces particules en suspensions dans l'eau potable sont majoritairement composées de matière organique (63,9 %), comme l'indique leur importante fraction volatile relativement stable tout au long de la période d'étude (Fig. 3 et Tableau 3). Ces valeurs sont d'ailleurs confirmées par les analyses des teneurs en C et N (Tableau 3) qui montrent que la teneur en carbone représente une fraction constante (27,1%) de la masse de particules en suspension, soit près de la moitié de la fraction volatile. La concentration de carbone particulaire est toutefois près du centième de celle de carbone dissous, par comparaison avec les valeurs de COT dans l'eau d'alimentation des réservoirs pilotes (Tableau 2).

carbone dissous, par comparaison avec les valeurs de COT dans l'eau d'alimentation des réservoirs pilotes (Tableau 2).

Tableau 3 : Caractéristiques des particules en suspension retenues par les filtres (**nota** : seules les valeurs de carbone total sont présentées, le carbone organique (mesuré une fois) représentant environ 80% du carbone total de ces particules).

| | | Moyenne | Ecart-type | Min | Max | Nombre |
|--------------------|------------------------|---------|------------|------|------|--------|
| Concentration | $\mu\text{g L}^{-1}$ | 78,8 | 18,1 | 50,7 | 128 | 90 |
| Fraction volatile | % en masse | 63,9 | 6,9 | 49,5 | 82,2 | 131 |
| C _{total} | % en masse | 27,1 | 2,4 | 23,7 | 31,8 | 9 |
| C _{total} | $\mu\text{g C L}^{-1}$ | 21,3 | 4,1 | 15,4 | 26,7 | 9 |
| N | $\mu\text{g L}^{-1}$ | 3,6 | 0,7 | 2,6 | 4,7 | 9 |
| C/N | | 5,94 | 0,43 | 5,44 | 6,84 | 9 |

Cette apparente stabilité de la composition des particules en suspension retenues par le filtre est aussi traduite par les valeurs du rapport C/N, plus faibles encore que celles mesurées dans les dépôts de réservoir. La forte proportion de composés azotés observée implique que la matière organique particulaire transportée par l'eau est principalement composée de molécules biogéniques, et que la biomasse joue un grand rôle dans la masse de particules organiques véhiculées par l'eau et retenue par le filtre.

Cet impact de la biomasse bactérienne sur la charge particulaire retenue par les filtres en fibre de verre a été mieux évalué au travers d'une expérience mesurant la quantité de cellules bactériennes en amont et en aval des deux unités de filtration, en fonction du volume filtré (Fig. 4) : sur un cycle de filtration de 32 heures, et à partir d'une concentration bactérienne dans l'eau d'alimentation de l'ordre de 10^5 cellules/mL, environ la moitié des bactéries sont éliminées par rétention sur le filtre (le pourcentage de rétention varie de 33 à 65% du début à la fin du cycle). Le seuil de coupure du filtre se situe donc au milieu de la gamme de taille des bactéries de l'eau potable, et évolue légèrement avec son colmatage. De plus, en utilisant la composition théorique élémentaire d'une bactérie proposée par McCarthy (1969), indiquant qu'une bactérie représente approximativement 10^{-13} g de carbone, et en considérant que 50% des 10^5 cellules/mL sont en moyenne retenues par les filtres, on obtient que les bactéries représentent environ $5 \mu\text{g L}^{-1}$ de carbone particulaire, soit environ un quart de la masse de carbone retrouvée sur les filtres. Ceci expliquerait la faible valeur de C/N obtenue, d'autant plus que la biomasse n'est pas limitée aux bactéries et que d'autres organismes (protozoaires, rotifères, nématodes) ont été systématiquement observés sur les filtres.

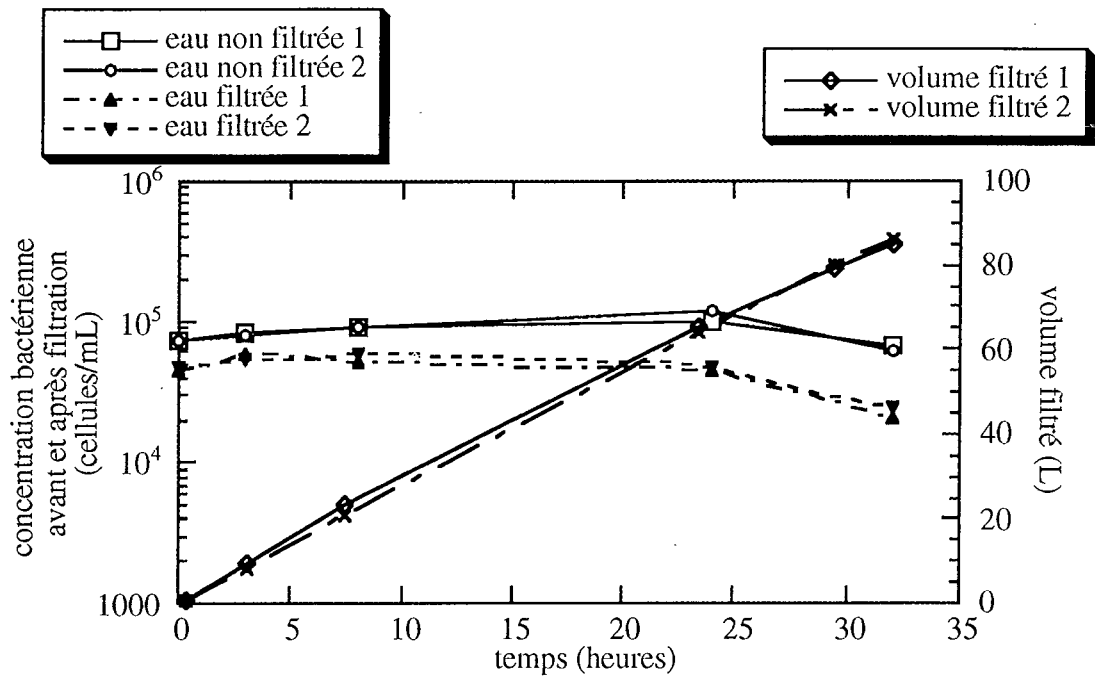


Figure 4 : Élimination des cellules bactériennes en suspension par rétention sur les filtres en fibre de verre durant un cycle de filtration à débit constant (les filtres 1 et 2 correspondent aux deux unités de filtration fonctionnant en parallèle).

III.3.2 Accumulation de dépôts dans les réservoirs

Les dépôts des réservoirs alimentés en eau non filtrée sont susceptibles d'être formés par sédimentation des particules véhiculées par l'eau, ou à partir de la matière dissoute, par croissance biologique, précipitation ou adsorption sur les matériaux déjà déposés. Les expériences menées ici permettent d'estimer certaines de ces vitesses d'accumulation en fonction du type de dépôt étudié. Ainsi la sédimentation naturelle est estimée à $8 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$, par pesée de tubes de verre jouant le rôle de piège à sédiments exposés en réservoir réel (Fig. 5). Cette valeur est à comparer au flux de matière sédimentable théorique ($14 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$), calculé en ramenant la concentration de particules en suspension moyenne ($78,8 \mu\text{g L}^{-1}$) au débit d'alimentation et à la surface au sol du réservoir considéré. Cette valeur calculée est supérieure à la valeur mesurée, indiquant probablement une sédimentation partielle de la population des particules en suspension durant le transit dans le réservoir, ou bien une élimination des dépôts accumulés par remise en suspension et/ou dissolution.

Lorsqu'un sédiment artificiel de type Siran est placé dans le même réservoir ou bien dans le réservoir pilote 15 m^3 , un phénomène parasite de dissolution du matériau provoque une perte régulière de masse bien plus importante que la sédimentation. Des expériences complémentaires (non présentées) ont montré que cette perte de masse était principalement attribuable à la libération dans l'eau des éléments suivants à partir du Siran neuf : SiO_2 (71% de la masse libérée), Na

(19%), Ca (3.5%), chlorures (2,1%), ainsi que du bore et du baryum. A l'issue de 145 jours d'expérience, cette dissolution continue aboutit à une perte en masse supérieure à 3,3% de la masse initiale de Siran et cette instabilité du sédiment artificiel rend impossible la distinction des termes d'accumulation de masse par croissance biologique et adsorption sur ce type de support, la masse de référence du Siran n'étant pas stable. Seul, le terme global (dissolution+adsorption+croissance biologique) a été estimée à $-28 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$ (Tableau 4), et a été systématiquement déduite pour évaluer les taux d'accumulation de matière en présence de Siran (Figure 5).

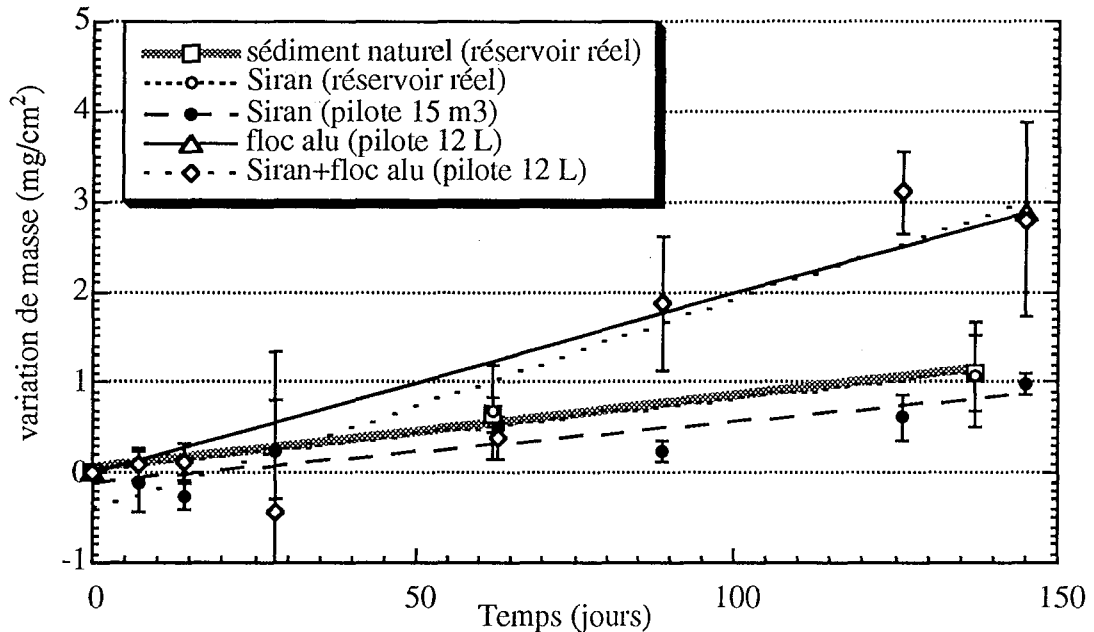


Figure 5 : Accumulation de dépôts (matière sèche à 105°C) en fonction du temps dans les réservoirs alimentés en eau non filtrée et contenant différents types de sédiment (les données concernant les masses de Siran ont été corrigées par le terme de (dissolution+adsorption+croissance biologique) v_{diss} estimé au Tableau 5).

La vitesse d'accumulation de floccs d'aluminium dans les pilotes 12 L (Figure 5) s'élève à $12 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$, une fois soustraite la vitesse de sédimentation naturelle. Ces différentes vitesses d'accumulation mesurées sont regroupées dans le Tableau 4 et permettent de prédire la variation de masse au niveau des tubes contenant du Siran et accumulant simultanément des floccs d'aluminium dans le réservoir pilote 12 L à l'issue de l'expérience. La valeur théorique obtenue ainsi est $-8 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$, parfaitement comparable à la masse déterminée expérimentalement par pesée ($-9 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$) (Tableau 4).

L'accumulation de dépôts dans les réservoirs d'eau potable est accompagnée d'une accumulation de bactéries comme dans les milieux sédimentaires naturels. Cette colonisation est difficile à évaluer au moyen des techniques à épifluorescence classiques du fait de la présence de nombreuses particules organiques et minérales perturbant le dénombrement direct au microscope.

Les techniques de culture ont été utilisées pour suivre l'accumulation de bactéries revivifiables dans les dépôts de type Siran et Siran + floccs d'aluminium en pilotes 12 L et 15 m³ équipés de tube de prélèvement (Fig. 6).

Tableau 4 : Détermination des différentes constantes d'accumulation de dépôts .

| Réservoir étudié | Vitesse mesurée en $\mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$ | Mécanismes d'accumulation | Vitesse calculée en $\mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$ |
|---|---|--|--|
| Réservoir réel sans Siran | +8 (a) | sédimentation naturelle | $v_{\text{sed}} = (a) = +8$ |
| Réservoir réel et pilote 15 m ³ avec Siran | -20 et - 21 (b) (deux valeurs mesurées) | sédimentation naturelle+ (dissolution+croissance biologique+adsorption) | $v_{\text{diss}} = (b)-(a)$ $= -28$ |
| Pilote 12 L sans Siran et avec floccs d'Al | +20 (c) | sédimentation naturelle + accumulation floccs d'Al | $v_{\text{floc}} = (c)-(a)$ $= +12$ |
| Pilote 12 L avec Siran et floccs d'Al | -9 (d) | sédimentation naturelle+ (dissolution+croissance biologique+adsorption)+ accumulation floccs d'Al | $v_{\text{total}} = (a)+(b)+(c)$ $= -8$ |

Pour les dépôts formés de Siran, plus de $4,8 \cdot 10^5 \text{ UFC cm}^{-2}$ sont mesurées lors du prélèvement effectué après une semaine de contact avec l'eau (Fig. 6). Néanmoins les densités bactériennes sont bien plus faibles les semaines suivantes, ce qui peut résulter (a) soit de la régulation des populations bactériennes fixées par la mise en place d'une chaîne trophique décalée de quelques jours par rapport à la colonisation bactérienne ; (b) soit plus probablement de la présence de traces de substrat biodégradable associé au Siran, qui favoriserait la croissance des bactéries au début d'expérience (la quantité de carbone total dans le Siran neuf était inférieure au seuil de détection de la technique utilisée (0,03%) ce qui peut représenter tout de même jusqu'à $37 \mu\text{g cm}^{-2}$).

Les quantités de bactéries associées aux différents types de dépôts divergent au bout de quelques semaines (Fig. 6): pour le dépôt de type Siran, la densité de bactéries reste pratiquement constante entre le 14^{ème} et le 145^{ème} jour ($1,4 \pm 0,5 \cdot 10^5 \text{ UFC cm}^{-2}$, n=6), alors qu'elle augmente régulièrement pour les dépôts de type Siran + floccs d'aluminium, au fur et à mesure de l'accumulation de floccs d'aluminium. Elle est cinq fois supérieure à celle obtenue sans floccs d'aluminium au bout de 145 jours, ce qui démontre que la déposition de floccs d'aluminium est ici déterminante vis-à-vis de l'accumulation des bactéries

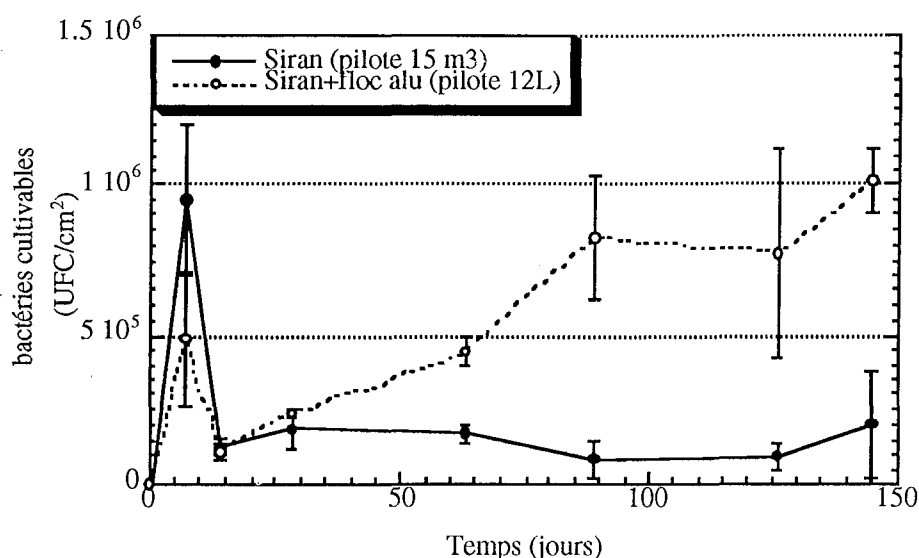


Figure 6 : Accumulation des bactéries cultivables dans deux types de dépôts (Siran et Siran + flocs d'aluminium) (n=3).

A l'issue de l'expérience, les densités bactériennes par cm^2 sont identiques pour les dépôts constitués de flocs d'aluminium en présence et en absence de Siran (Pilote 12 L) (Fig. 7). En l'absence de flocs d'aluminium, les concentrations bactériennes sur Siran sont cinq fois plus faibles et semblables pour les tubes placés en pilote 15 m³ et en réservoir réel, indiquant une bonne cohérence entre les différentes échelles expérimentales. Enfin, en l'absence de support artificiel, les concentrations bactériennes par cm^2 sont 50 fois plus faibles qu'en présence de flocs d'aluminium.

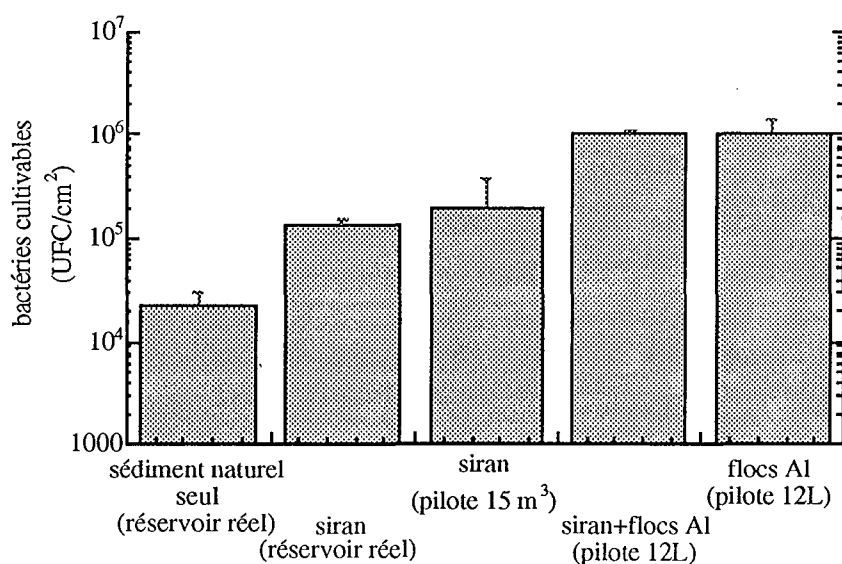


Figure 7 : Bactéries cultivables dans les différents types de dépôts (sédiment naturel, Siran et Siran + flocs d'aluminium) après 137 ou 145 jours d'exposition dans les réservoirs (n=3).

Les densités bactériennes rapportées à la masse de dépôt par cm^2 mesurées après 145 jours (Tableau 5) illustrent mieux encore la capacité d'accumulation de bactéries pour chacun des sédiments testés : les floccs d'aluminium constituant certains dépôts sont vingt fois plus favorables à l'accumulation de bactéries que les sédiments naturels, eux même dix fois plus favorables que le Siran. Ces différences sont probablement dues à la nature, aux propriétés texturales et aux densités des dépôts. Ainsi, non seulement la quantité, mais aussi le type des dépôts gouvernent l'accumulation de bactéries au niveau des dépôts.

Tableau 5 : Quantités de dépôts accumulées par unité de surface et densité de bactéries cultivables correspondantes.

| | Sédiment naturel | Siran+ sédiment naturel | Floccs Al + sédiment naturel |
|---|-------------------|-------------------------|------------------------------|
| Quantité totale de dépôt (mg cm^{-2}) | 1,1 | 122 | 2,9 |
| Densité bactérienne (UFC 14 j g^{-1}) | $2,15 \cdot 10^7$ | $1,6 \cdot 10^6$ | $3,5 \cdot 10^8$ |

Les quantités de carbone organique associées aux dépôts montrent le même type de hiérarchisation entre les matériaux testés (Fig. 8) : $50 \mu\text{g cm}^{-2}$ de carbone organique sont retrouvés dans les dépôts incluant du floccs d'aluminium à l'issue de l'expérience, indépendamment de la présence de Siran, alors que pour le Siran seul ces quantités sont environ deux fois plus faibles (13 à $29 \mu\text{g cm}^{-2}$). La quantité de carbone organique n'a pu être déterminée pour les échantillons de sédiment naturel en raison de la trop faible quantité de matériau récupérée, et seul le carbone total a été mesuré ($40 \mu\text{g cm}^{-2}$). Le rapport $C_{\text{organique}}/C_{\text{total}}$ dans une précédente étude des sédiments naturels du même réservoir était de 66% (Gauthier *et al.*, 1996), ce qui situe la teneur en carbone organique au voisinage de $26 \mu\text{g cm}^{-2}$ pour le sédiment naturel, tout à fait comparable à celui retrouvé dans les dépôts de Siran.

La teneur en azote des dépôts est inférieure au seuil de détection (0.01%) pour tous les échantillons de dépôts composés de Siran, soit $10 \mu\text{g cm}^{-2}$, ce qui traduit que la masse de matière organique accumulée après 145 jours reste très faible par rapport à celle de Siran initialement introduite (123mg cm^{-2}). Pour les dépôts composés de floccs d'aluminium sans Siran, la teneur en azote est 0,20%, soit $6,9 \mu\text{g cm}^{-2}$. Ceci correspond à un rapport $C_{\text{organique}}/N$ s'élevant à 7,0 indiquant une forte influence de l'activité biologique sur la composition de la matière organique des dépôts, comme observé précédemment pour la plupart des dépôts naturels de réservoir du même réseau de distribution (Gauthier *et al.*, accepté pour publication).

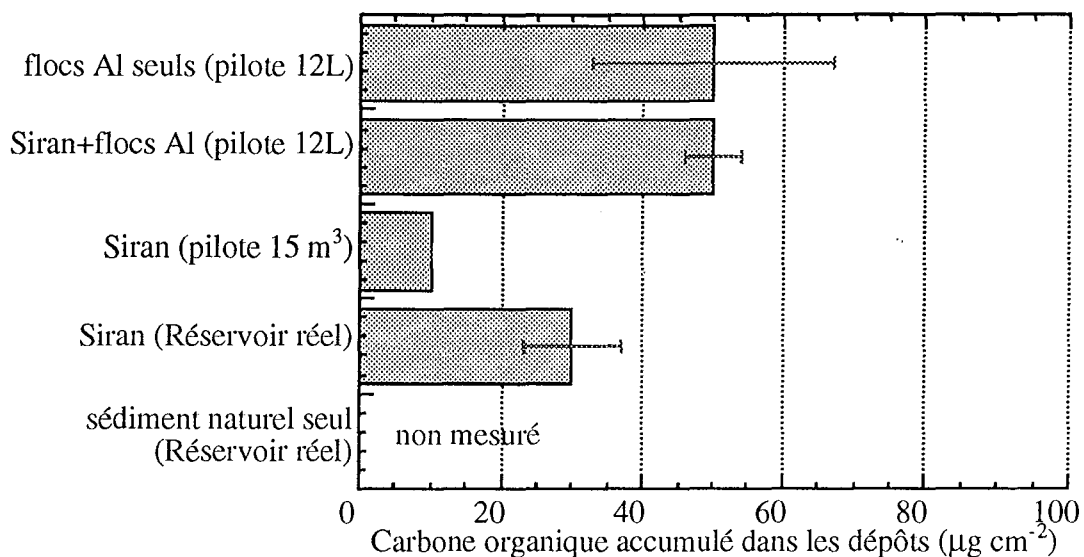


Figure 8 : Carbone organique dans les différents types de dépôts (Siran et Siran + floccs d'aluminium) après 137 ou 145 jours d'exposition dans les réservoirs (n=3).

Au final, le dépôt de type floccs d'aluminium favorise l'accumulation de matière organique et de bactéries cultivables, par rapport aux deux autres types de dépôts étudiés (Siran et dépôts naturels), sans qu'il soit possible de dire *a priori* si l'accumulation de matière organique provoque ou résulte de la plus forte concentration bactérienne.

III.3.3 Impact de la filtration de l'eau sur l'accumulation de matière organique et de bactéries dans les dépôts

Pour évaluer l'importance du flux de particules apportées par l'eau par rapport à l'accumulation de matière organique et de bactéries au niveau des dépôts, deux des réservoirs pilotes 12 L ont été alimentés durant 145 jours avec une eau contenant en moyenne $78,8 \mu\text{g L}^{-1}$ de particules en suspension, alors qu'une telle charge était éliminée de l'eau d'alimentation des deux autres pilotes 12 L. De plus, la concentration de cellules bactériennes était deux fois plus faible dans l'eau d'alimentation filtrée que dans celle non-filtrée.

Aucune différence significative de masse de dépôts accumulés n'a été observée entre les réservoirs pilotes alimentés en eau filtrée et en eau non filtrée (Tableau 1). Ceci s'explique par deux hypothèses : (a) les particules ont en partie un comportement colloïdal dans le réservoir et sédimentent peu ou pas dans la configuration étudiée (forme de l'écoulement, temps de séjour) ; (b) les techniques gravimétriques employées ne sont pas assez précises pour apprécier ce facteur

"sédimentation naturelle", dans le cas où les masses de Siran et de floes d'aluminium pesées sont bien plus conséquentes.

L'accumulation des bactéries dans les dépôts de réservoirs alimentés en eau filtrée/non filtrée est présentée à la figure 9. Outre un pic de densité en début d'expérience, le nombre de bactéries cultivables par cm^2 croît régulièrement avec l'accumulation de floes d'aluminium et aucune différence statistiquement significative n'est observée en fonction de l'alimentation filtrée ou non du réservoir, que le dépôt soit constitué de Siran + floes d'aluminium (environ 122 mg cm^{-2}) ou de floes d'aluminium seulement ($2,8 \text{ mg cm}^{-2}$). L'élimination des particules et de 50% des cellules bactériennes dans l'eau d'alimentation n'affecte pas la densité de bactéries cultivables au niveau des dépôts.

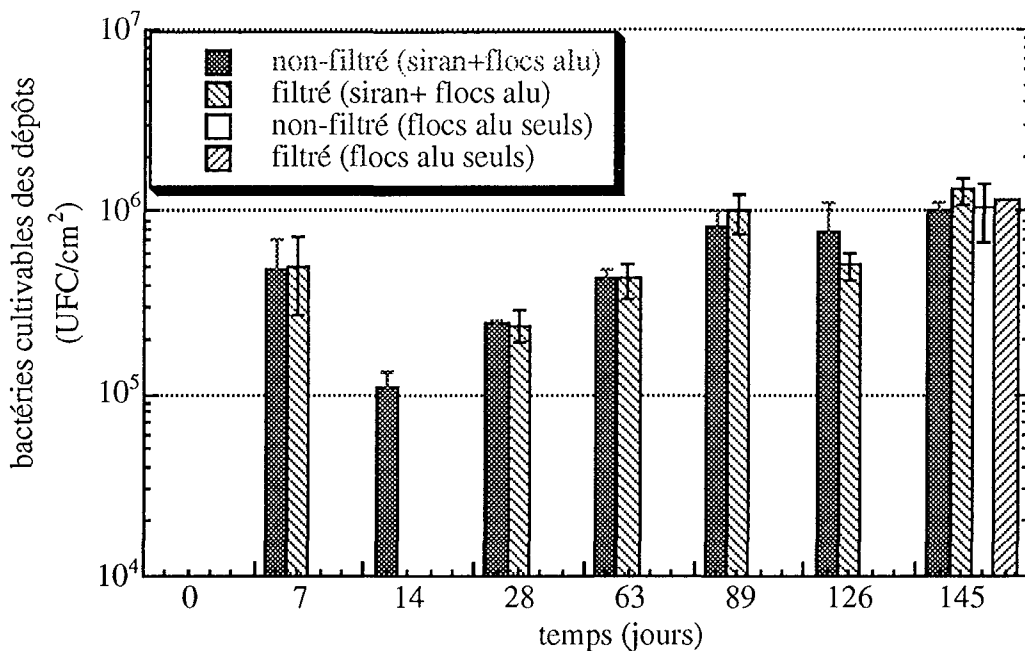


Figure 9 : Cinétique d'accumulation de bactéries cultivables dans les dépôts de réservoir alimentés avec de l'eau filtrée ou non filtrée (n=3).

Ceci est aussi observé pour la matière organique, aucune différence significative n'étant mesurée au niveau des dépôts en fonction de la filtration de l'eau d'alimentation (Fig. 10). De toute évidence, la matière organique particulaire de l'eau (environ $20 \mu\text{g L}^{-1}$ de carbone organique) n'est pas transférée dans les dépôts car elle représenterait une masse accumulée de $520 \mu\text{g cm}^{-2}$ au bout de 145 jours pour les réservoirs alimentés en eau non filtrée, bien au delà des valeurs effectivement mesurées qui sont plus de dix fois plus faibles. La sédimentation de la matière organique particulaire apparaît faible ce qui résulte potentiellement (a) de la configuration hydrodynamique testée (b) d'une faible différence de densité par rapport à l'eau des particules organiques et (c) de la capacité motrice de certains organismes biologiques. De plus, l'élimination continue de la matière organique sédimentée par biodégradation ne peut être exclue même si elle n'est probablement pas

un mécanisme important ici puisque les dépôts des réservoirs alimentés en eau filtrée ont un comportement identique à ceux alimentés en eau non filtrée.

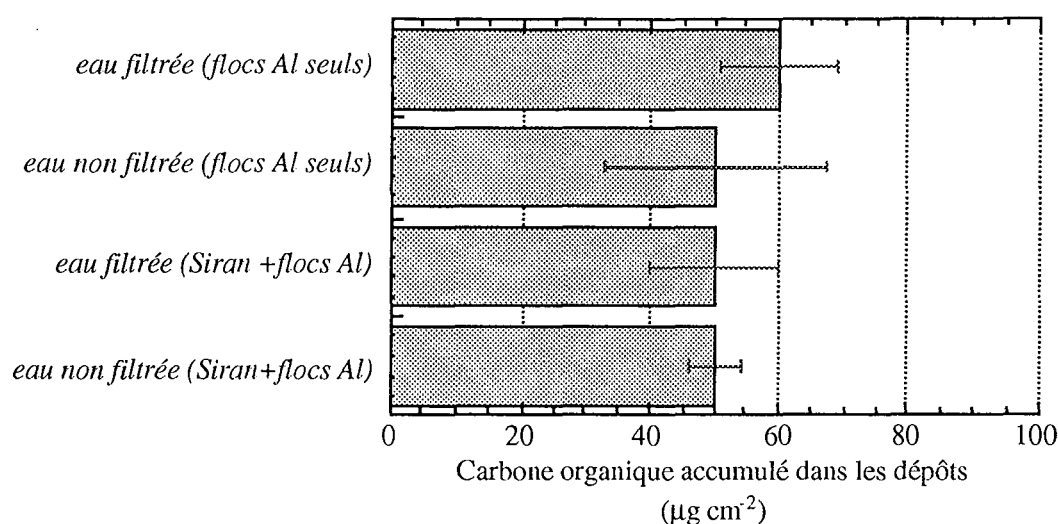


Figure 10 : Carbone organique en fonction du type d'eau d'alimentation (filtré ou non filtré) dans deux dépôts de réservoir (Siran et Siran + flocs d'aluminium) après 145 jours d'exposition dans les réservoirs (n=2).

III.3.4 Impact de la filtration sur la qualité de l'eau en sortie de réservoir

La qualité de l'eau en sortie des réservoirs pilote 12 L a été suivie tout au long de l'accumulation des dépôts et de leur colonisation, et est décrite en fonction de la filtration préalable de l'eau d'alimentation. La turbidité de l'eau en sortie de réservoir n'est pas significativement différente de celle de l'eau d'entrée, que celle-ci ait été filtrée (Δ turbidité = $0,01 \pm 0,11$, n=22) ou non filtrée (Δ turbidité = $0,03 \pm 0,07$, n=22). Un tel résultat est confirmé à l'échelle du réservoir pilote 15 m³ (Δ turbidité = $0,00 \pm 0,06$, n=10). Par rapport aux concentrations particulières présentes initialement dans l'eau, les réservoirs étudiés ne modifient donc pas sensiblement la charge particulaire de l'eau pour de faibles valeurs de turbidité. Le mauvais rendement de sédimentation des particules mesuré au niveau des dépôts est ainsi confirmé au niveau de la phase eau.

Ces conclusions ne sont pas valables en ce qui concerne les concentrations en bactéries cultivables (Fig. 11) : dans l'eau d'alimentation, les teneurs en bactéries cultivables sont comprises entre 10 et 200 UFC 14j mL⁻¹, variant à l'inverse de la teneur en chlore (de 0 à 0,05 mg L⁻¹). Dans l'eau de sortie des réservoirs pilotes 12 L, la teneur en chlore est nulle et les concentrations en bactéries revivifiables varient de 300 à 5400 UFC mL⁻¹ (Fig. 11), soit 0,5 à 2 log₁₀ de plus que

dans l'eau d'alimentation, ce qui traduit une dégradation des caractéristiques microbiologiques de l'eau durant son séjour dans le réservoir, qu'elle soit ou non filtrée préalablement.

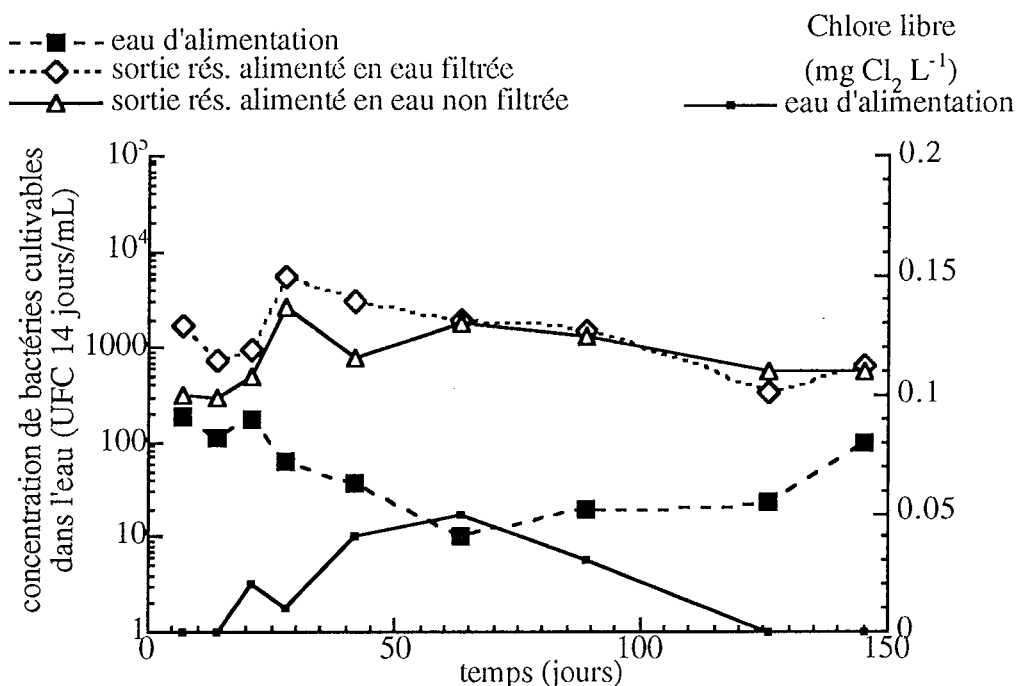


Figure 11 : Concentration de bactéries cultivables dans l'eau en entrée et sortie des réservoirs pilote 12 L alimentés en eau filtrée ou non filtrée, et chlore libre dans l'eau d'alimentation en fonction du temps.

Durant les premiers 30 jours de l'expérimentation, les densités de bactéries cultivables sont légèrement plus élevées (facteur 5 à 2) à la sortie des réservoirs alimentés en eau filtrée que non filtrée, ce qui peut être interprété comme un phénomène de croissance dans l'eau faisant suite à l'élimination de la moitié de la population bactérienne planctonique et des organismes prédateurs lors de la filtration. Les dénombrements de cellules totales (DAPI) ont d'ailleurs confirmé que les concentrations en cellules mL⁻¹ étaient durant cette période deux fois plus faibles en sortie de réservoir alimenté en eau filtrée qu'en eau non filtrée (résultats non présentés). Ainsi placée en amont des réservoirs et en l'absence de chlore, la filtration provoque donc au moins temporairement une diminution du nombre total de cellules dans l'eau en aval qui est aussi traduite par une plus grande cultivabilité de la fraction de population bactérienne restant en suspension. Une telle différence n'est toutefois sensible que pendant quelques semaines.

III.4 Discussion/conclusion

Dans un réservoir de distribution d'eau potable, l'accumulation de dépôts résulte *a priori* principalement de deux mécanismes principaux : (i) la sédimentation de particules en suspension introduites avec l'eau d'alimentation, et (ii) la précipitation, adsorption, ou croissance biologique qui permettent le transfert de matière de la phase dissoute à la phase particulaire. Les concentrations

de matière organique et de bactéries observées dans de tels dépôts (Gauthier 1996) permettent l'établissement d'une chaîne trophique benthique (van Lieverloo *et al.*, 1997 ; Gauthier *et al.*, accepté pour publication), qui est probablement en partie responsable des concentrations plus fortes en micro-organismes en sortie de réservoir que dans leur eau d'alimentation (Amblard *et al.*, 1996). Des dégradations d'origine biologique des matériaux de réservoirs ont d'ailleurs été observées à plusieurs reprises (Schoenen, 1994 ; Herb *et al.*, 1995).

Les concentrations de particules en suspension véhiculées par l'eau, caractérisées par leur rétention sur un filtre de seuil de coupure 0,8 μm , sont toujours inférieures à 130 $\mu\text{g L}^{-1}$, soit mille fois moins que les matières dissoutes évaluées par la mesure du résidu sec, et aussi bien plus faible que les concentrations mesurées pour la plupart des eaux douces superficielles (Eisma, 1993). Ceci indique que les larges variations de turbidité de la ressource en eau brute sont bien écrêtées par l'usine de traitement et ne sont pas répercutées en aval dans le réseau de distribution. D'autre part, les remises en suspension éventuelles en amont du point de mesures ne sont pas détectées avec le protocole de mesure utilisé qui moyenne la charge particulaire sur 48 heures. Les concentrations particulières obtenues sont supérieures à celles de l'usine de traitement et d'autres points de consommation du même réseau de distribution mesurées dans une autre étude (Gauthier *et al.*, 1997)(moyennes : 78,8 versus 39 $\mu\text{g L}^{-1}$), mais ceci résulte sans doute de la vitesse de filtration mise en oeuvre pour la récupération des particules qui était moins importante lors la présente étude. La fraction de matière organique des particules du réseau de distribution (évaluée *via* la fraction volatile) est par contre parfaitement cohérente avec la précédente étude (64 versus 63 %) et confirme que les particules transportées en réseau en régime hydraulique "normal" comprennent *grosso modo* 2/3 de matière organique. Cette relative richesse des particules en suspension en matière organique résulte d'ailleurs probablement d'une sédimentation plus rapide des particules minérales plus denses (De Rosa, 1993). Néanmoins, un biais de la technique de filtration mise en oeuvre ici pour sélectionner les particules en suspension est la rétention de la moitié de la population bactérienne par le filtre, alors que les bactéries sont en général considérées comme faisant partie de la fraction colloïdale, donc non décantable (Gustafsson et Gschwend, 1997). Ceci met en évidence la difficulté de définir une limite entre la fraction décantable et celle soumise au mouvement Brownien, d'autant plus que bon nombre de particules-organismes biologiques ont des capacités motrices propres. Il est donc relativement normal qu'une plus forte quantité de matière organique d'un certain type (faible C/N, origine bactérienne, métabolites...) soit associée aux plus petites particules, et ceci a d'ailleurs été mesuré récemment par Rostad *et al.* (1997) pour les particules et colloïdes d'une eau de rivière.

Les quantités de dépôts résultant de la sédimentation naturelle sur une surface de verre vierge a été évaluée à 8 $\mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$ au niveau d'un réservoir réel. Même si cela correspond à une masse (1,1 mg cm^{-2}) 10 fois plus importante que celle obtenue pour un biofilm établi sur une surface inerte exposée à l'eau potable au bout de quelques mois (63 à 109 $\mu\text{g cm}^{-2}$)(Percival *et al.*, 1997), une telle accumulation correspond à un taux de capture des particules en suspension

relativement faible : si l'on calcule le flux de particules sédimentables correspondant à partir de la concentration de particules en suspension ($78 \mu\text{g L}^{-1}$), du débit journalier dans le réservoir (675 m^3) et de la surface de ce dernier (100 m^2), on obtient un flux potentiel de $53 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ jour}^{-1}$, soit environ 7 fois plus que la masse de dépôts effectivement mesurée. Néanmoins, comme observé précédemment, l'intégralité de la matière en suspension n'est pas décantable et de plus l'exportation de matière organique particulaire déposée par diffusion ou remise en suspension (Valsaraj *et al.*, 1993 ; De Pinto *et al.*, 1993) ou par biodégradation n'est pas exclue. La configuration hydraulique des réservoirs (Clark *et al.*, 1996 ; Lindeborg *et al.*, 1996 ; Gatel *et al.*, 1996) peut aussi favoriser l'accumulation de dépôts au niveau de certaines zones mortes et provoquer une hétérogénéité dans la répartition spatiale des dépôts au sein d'un même réservoir.

Les densités bactériennes mesurées pour le sédiment naturel et les floccs d'aluminium ($2,2 \cdot 10^7$ à $3,5 \cdot 10^8 \text{ UFC } 14\text{j g}^{-1}$) sont tout à fait comparables à celles rapportées par De Rosa (1993) et Gauthier *et al.* (1996) pour des dépôts naturels de réservoir et des dépôts de canalisation récupérés par purge. De plus, les quantités de bactéries par unité de surface de réservoir sont liées à la quantité de solides accumulés : De Rosa (1993) observait une corrélation positive entre la quantité de dépôts récupérés par purge et le nombre de bactéries, et nous avons observé, directement au niveau du dépôt, une augmentation régulière des bactéries cultivables au fur et à mesure de l'accumulation artificielle de floccs d'aluminium. La présence d'aluminium sous forme de flocc favorise de toute évidence l'accumulation de bactéries, puisqu'une corrélation positive avait déjà été établie par Gauthier *et al.* (1996) entre la concentration de bactéries cultivables et la teneur en aluminium des dépôts naturels récupérés dans plusieurs réservoirs du même réseau. A l'opposé, les structures plus denses et moins poreuses (Siran - cette étude ; sable - Gauthier *et al.*, accepté pour publication) conduisent à des densités bactériennes par gramme de sédiment 10 à 100 fois plus faibles.

Les concentrations de matière organique des dépôts reflètent cette même tendance (plus forte accumulation liée au flocc d'aluminium), ce qui peut être lié aux capacités d'adsorption des floccs ou résulter de l'accumulation de bactéries. La biomasse bactérienne représente en effet environ $10 \mu\text{g cm}^{-2}$ dans les dépôts formés de floccs d'aluminium (hypothèses : 1% de bactéries cultivables et 10^{-13} g de carbone organique /cellule bactérienne (McCarthy, 1969)), ce qui indique une forte proportion de biomasse dans les $40 \mu\text{g cm}^{-2}$ de carbone organique mesurés. La croissance biologique *in situ* à partir de matière organique dissoute représenterait d'ailleurs le principal mécanisme d'accumulation, puisque l'élimination de la matière particulaire par filtration n'a aucun effet sur les quantités de bactéries cultivables et de carbone organique retrouvées dans les sédiments. En ce sens, le fonctionnement des dépôts des réseaux de distribution recoupe largement celui de certains dépôts des eaux de surfaces ou marines où la matière organique dissoute a un rôle prépondérant par rapport à la matière particulaire sur le fonctionnement des écosystèmes benthiques (Marmonier *et al.*, 1995 ; Chafiq et Gibert, 1996 ; Findlay et Sobczak, 1996 ; Ritzrau et

Thomsen, 1997), en particulier lorsque le renouvellement de l'eau en contact avec le sédiment est important (Claret et Fontvieille, 1997).

Dans les configurations de réservoir étudiées, la matière particulaire en suspension n'est donc pas un facteur déterminant pour l'accumulation de bactéries et de matière organique dans les dépôts, et une élimination des particules en suspension par filtration n'a d'effet à long terme ni sur la qualité de l'eau distribuée en aval, ni sur la formation de dépôts. L'élimination des cellules en suspension dans l'eau peut provoquer une amélioration sensible de la qualité microbiologique de l'eau si elle est accompagnée d'une élimination de la matière organique dissoute (Sibille *et al.*, 1997). Ce n'est pas le cas du type de filtration étudiée ici, et la recroissance dans l'eau et les dépôts des réservoirs à partir de la matière organique dissoute ne permet pas de distinguer les effets bénéfiques de cette filtration après un temps de séjour de quelques heures seulement dans les réservoirs étudiés.

Il paraît nécessaire de mieux identifier les mécanismes de formation des dépôts minéraux dans les réservoirs puisque ceux-ci servent de support à une colonisation bactérienne importante et permettent l'accumulation de matière organique, tous deux facteurs importants de la stabilité biologique dans les réseaux de distribution.

Références bibliographiques

- Ainsworth R.G. (1978) Discolored water in distribution systems. *Proc.Amer. Water Wks Assoc. Annual Conf., Atlantic City, NJ, USA*. Paper 33-6, 1-12.
- Amblard C., Bourdier G., Carrias J.F., Maurin N. and Quiblier C. (1996) Seasonal evolution of microbial community structure in a drinking water reservoir. *Water Res.* **30:3**, 613-624.
- Brazos B.J. and O'Connor J.T. (1987) The partitioning of organic carbon in drinking water, *Proc. Wat. Quality Technol. Conf. of Am. Wat. Wks Assoc., Portland, Or, USA, November 1986*, 387-416.
- Chafiq M. and Gibert J. (1996) Relationships between solutes, nutrients, and the biofilm in sediments of floodplain karstic and alluvial springs. *Int. Revue Ges. Hydrobiol.* **81:3**, 399-416.
- Charpentier B. and Courcier J.P. (1989) Méthode d'évaluation des dépôts dans les canalisations d'eau potable. *T.S.M. l'Eau* **84:7-8**, 413-416.
- Claret C. and Fontvieille D. (1997) Characteristics of biofilm assemblages in two contrasted hydrodynamic and trophic contexts. *Microb. Ecol.* **34**, 49-57.
- Clark R.M., Abdesaken F., Boulos P.F. and Mau R.E. (1996) Mixing in distribution system storage tanks: Its effect on water quality. *J. Environ. Engin.- ASCE* **122:9**, 814-821.
- Collin J.F., Gauthier V., Grapin G. and Boulangé M. (1991) Hydraulicité dans les piscine thermales : influence du nombre et de la forme des buses d'arrivée d'eau sur la circulation de l'eau. *J. Fr. Hydrol.* **22:1**, 67-75.
- Creuzé des Chatelliers M., Turquin M.J. and Gibert J. (1991) Les aquifères : des systèmes biologiques. *Hydrogéologie* **91/3**, 163-185.
- Cushing C.E., Minshall G.W. and Newbold J.D. (1993) Transport dynamics of fine particulate organic matter in two Idaho streams. *Limnol. Oceanogr.* **38:6**, 1101-1115.
- De Rosa S. (1993) Loose deposits in water mains. *Report DoE 3118-2, Dept of the Environ., London, UK*, 161 p.
- DePinto J.V., Raghunathan R., Bierman V.J.Jr., Rodgers P.W., Young T.C. and Martin S.C. (1993) Analysis of organic carbon sediment water exchange in green bay, lake Michigan, USA. *Water Sci. Tech.* **28:8/9**, 149-159.
- Drury W.J., Characklis W.G. and Stewart P.S. (1993) Interactions of 1µm latex particles with *Pseudomonas aeruginosa* biofilms, *Water Res.* **27:7**, 1119-1126.
- Dubreuil G., Prévost M., Desjardins R. and MacLean R.G. (1997) Bioreactors for the rapid determination of biodegradable dissolved organic carbon (BDOC) in drinking water : feed mode impact. *Environ. Technol.* **18**, 363-374.

- Eisma D. (1993) Suspended matter in aquatic environment. *Springer-Verlag (Pub.), Berlin*, 315 p.
- Findlay S. and Sobczak W.V. (1996) Variability in removal of dissolved organic carbon in hyporheic sediments. *J. N. Am. Benthol. Soc.* **15:1**, 35-41.
- Gatel D., Henriot C., Braekman T., Servais P., Maret A. and Cavard J. (1996) Impact of reservoirs on drinking water quality. *Proc. Water Quality Technol. Conf. of Amer. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA*.
- Gauthier V., Gérard B., Portal J.M., Block J.C. and Gatel D. Organic matter as loose deposits in a drinking water distribution system. *Accepted for publication in Water Res.*
- Gauthier V., Portal J.M., Rosin C., Block J.C., Cavard J. and Gatel D. (1997) How good are distribution systems for transport of particulate matter. *Proc. Water Quality Technol. Conf. of Amer. Water Wks Assoc., Denver, Co, USA*, 18 pages.
- Gauthier V., Rosin C., Mathieu L., Portal J.M., Block J.C., Chaix P. and Gatel D. (1996) Characterization of the loose deposits in drinking water distribution systems. *Proc. Water Quality Technol. Conf. of Amer. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA*.
- Gustafsson O. and Gschwend P.M. (1997) Aquatic colloids: concepts, definitions and current challenges. *Limnol. Oceanogr.* **42:3**, 519-528.
- Hendricks S.P. (1996) Bacterial biomass, activity, and production within the hyporheic zone of a north-temperate stream, *Archiv Fur Hydrobiologie.* **136:4**, 467-487.
- Herb S., Stair J.O., Ringelberg D.B., White D.C. and Flemming H.C. (1995) Characterization of biofilms on corroded surfaces in drinking water reservoirs. *Water Sci. Tech.* **32:8**, 141-147.
- Kiééné L., Lu W. and Lévi Y. (1996) Relative importance of phenomena responsible for chlorine consumption in drinking water distribution systems. *Proceedings of the Water Quality Technology Conference of Amer. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA*.
- LaBarbera M. (1984) Feeding currents and particle capture mechanisms in suspension feeding animals. *Amer. Zool.* **24**, 71-84.
- LeChevallier M.W., Babcock T.M. and Lee R.G. (1987) Examination and characterization of distribution systems biofilms. *Appl. Environ. Microbiol.* **53:12**, 2714-2724.
- Lindeborg C., Wiberg N. and Seyf A. (1996) Studies of the dynamic behaviour of a primary sedimentation tank. *Water Sci. Tech.* **34:3-4**, 213-222.
- Lyche A., Andersen T., Christoffersen K., Hessen D.O., Hansen P.H.B. and Klysner A. (1996) Mesocosm tracer studies .2. The fate of primary production and the role of consumers in the pelagic carbon cycle of a mesotrophic lake. *Limnol. Oceanogr.* **41:3**, 475-487.
- Marmonier P., Fontvieille D., Gibert J. and Vanek V. (1995) Distribution of dissolved organic carbon and bacteria at the interface between the Rhône river and its alluvial aquifer. *J. N Am. Benthol. Soc.* **14:3**, 382-392.
- McCarthy P.L. (1969) Energetics and bacterial growth. *Proceed. 5th Rudolf Res Conf., Rutgers-The State Univers., New Brunswick, New-Jersey*.
- Morin P., Gauthier V., Saby S. and Block J.C. (1998) Bacterial resistance to chlorine through attachment to particles and pipe surfaces in drinking water distribution systems. *Proceedings of the conference "Biofilms in aquatic systems" organized by the Royal Society of Chemistry at the University of Warwick, UK, 14-16 April 1997*.
- Mouchet P. and Pourriot R. (1992) Pénétration et développement de microinvertébrés dans les réseaux de distribution d'eau potable. *T.S.M. l'Eau* **87:7-8**, 353-368.
- Percival S.L., Knapp J.S., Edyvean R. and Wales D.S. (1998) Biofilm development on stainless steel in mains water. *Water Res.* **32:1**, 243-253.
- Ribas F., Frias J. and Lucena F. (1991) A new dynamic method for the rapid determination of the biodegradable dissolved organic carbon in drinking water. *J. Appl. Bacteriol.* **71**, 371-378.
- Ritzrau W. and Thomsen L. (1997) Spatial distribution of particle composition and microbial activity in benthic boundary layer (BBL) of the Northeast Water Polynya. *J. Marine Systems* **10**, 415-428.
- Roden E.E. and Tuttle J.H. (1996) Carbon cycling in mesohaline Chesapeake Bay sediments 2: Kinetics of particulate and dissolved organic carbon turnover. *Journal of Marine Research* **54:2**, 343-383.
- Rostad C.E., Leenheer J.A. and Daniel S.R. (1997) Organic carbon and nitrogen content associated with colloids and suspended particles from the Mississippi River and some of its tributaries. *Environ. Sci. Technol.* **31:11**, 3218-3225.
- Saby S., Sibille I., Mathieu L., Paquin J.L., Block J.C. (1997) Influence of water chlorination on the counting of bacteria with DAPI (4,6-Diamidino-2-Phenylindole). *Appl. Environ. Microbiol.* **63:4**, 1564-1569.
- Schlacher T.A. and Wooldridge T.H. (1996) Origin and trophic importance of detritus - Evidence from stable isotopes in the benthos of a small temperate estuary. *Oecologia* **106:3**, 382-388.
- Schoenen D. (1994) Fleckige Farbveränderungen und Zerstörung von weißer Zementmörtelauskleidung in Trinkwasserbehältern. *Wasser-Abwasser.* **135:12**, 669-676.
- Sibille I., Mathieu L., Paquin J.L., Gatel D. and Block J.C. (1997) Microbial characteristics of a distribution system fed with nanofiltrated drinking water. *Water Res.* **31:9**, 2318-2326.

- Underwood G.J.C., Paterson D.M. and Parkes R.J. (1995) The measurement of microbial carbohydrate exopolymers from intertidal sediments. *Limnol. Oceanogr.* **40:7**, 1243-1253.
- Valsaraj K.T., Thoma G.J., Porter C.L., Reible D.D. and Thibodeaux L.J. (1993) Transport of dissolved organic carbon-derived natural colloids from bed sediment to overlying water : laboratory simulations. *Water Sci. Tech.* **28:8/9**, 139-147.
- van Lieverloo H., van Buuren R., Veenendaal G. and van der Kooij D. (1997) How to control invertebrates in distribution systems: by starvation or by flushing. *Proc. Wat. Quality Technol. Conf. of Am. Wat. Wks Assoc., Denver, Co, USA, 9-12 November 1997*, 26 p.
- Vibert A., Gayaud P. and Amyot D. (1991) Une unité mobile de diagnostic et d'évaluation des dépôts dans les réseaux de distribution. *L'Eau, l'Industrie, les Nuisances* **149**, 49-52.

Chapitre IV : Inactivation des bactéries associées aux particules en réseau de distribution

Sommaire

| | |
|--|------------|
| IV.1 Introduction..... | 136 |
| IV.2 Bacterial Resistance to Chlorine through Attachment to Particles and Pipe Surfaces in Drinking Water Distribution Systems..... | 137 |
| IV.3 Chlorine inactivation of bacteria attached to goethite particles in drinking water..... | 158 |
| IV.4 Discussion..... | 166 |

Chapitre IV : Inactivation des bactéries associées aux particules en réseau de distribution

IV.1 Introduction

Les particules organiques et minérales en suspension dans l'eau potable peuvent être colonisées à leur surface par des bactéries, comme dans la plupart des systèmes aquatiques (Pedros-Alio *et al.*, 1983, Irriberri *et al.* 1990, etc), et quelques observations réalisées en sortie d'usine de traitement de potabilisation (Camper *et al.*, 1987) ou en réseau de distribution (Brazos et O'Connor, 1990) ont démontré le bien-fondé de cette hypothèse. De plus, d'autres bactéries peuvent être considérées comme associées à la fraction particulaire dans l'eau, comme (i) les bactéries agrégées (McMath *et al.*, 1997), (ii) les bactéries transitant par l'appareil digestif des micro-invertébrés (Levy *et al.*, 1984) ou des protozoaires (King *et al.*, 1988), ou (iii) les bactéries associées à une gangue de composés minéraux (Ridgway *et al.*, 1981 ; Sly *et al.*, 1989). Toutes ces bactéries forment une sous-population particulière des réseaux de distribution, et peuvent être comparées, suivant les phénomènes étudiés, d'autres sous-populations présentes en réseau :

- les bactéries isolées en suspension avec lesquelles elles sont transportées,
- les bactéries fixées des biofilms et des dépôts (fixation à une surface, proximité d'autres cellules bactériennes).

Comme les biofilms, ces bactéries associées aux particules sont susceptibles de présenter une résistance apparente à la désinfection par rapport aux populations en suspension expliquée par (a) une exposition moindre au désinfectant résultant d'une limitation des transferts aux interfaces, (b) une résistance cellulaire, ce terme recouvrant à la fois les caractéristiques intrinsèques de la cellule et des mécanismes de résistance génétique induits.

La présence de telles bactéries pose le problème de l'efficacité des traitements de désinfection en particulier ceux appliqués au niveau des usines de traitement : dans quelle mesure des bactéries pathogènes ou opportunistes associées à des particules provenant de la ressource en eau brute ou d'ouvrages de traitement sont-elles capables d'atteindre le réseau de distribution et de le contaminer, remettant ainsi en cause la notion de barrière de désinfection ? Dans le réseau de distribution, la présence de bactéries associées aux particules peut impliquer une sous-évaluation des populations bactériennes véhiculées par l'eau lors des analyses de routine, et une surévaluation de l'efficacité de la désinfection.

L'objectif de ce chapitre est de mieux identifier les facteurs responsables de la résistance apparente des populations bactériennes fixées sur les particules. Ceci est réalisé ci-après au travers de deux approches différentes :

- une étude bibliographique sur la résistance à la désinfection des biofilms et des bactéries associées aux particules (la prise en compte des populations fixées de type biofilm permet de distinguer le rôle de l'attachement aux surfaces souvent non identifiables dans les études spécifiques des particules colonisées).

- une étude expérimentale visant à déterminer les influence respectives de l'attachement à une surface et de l'agrégation sur la résistance à la désinfection par le chlore d'une souche bactérienne isolée à partir d'un réseau d'eau potable.

Ces deux études font l'objet de communications internationales ou de projets de publication, et sont présentées en Anglais.

IV.2 Bacterial Resistance to Chlorine through Attachment to Particles and Pipe Surfaces in Drinking Water Distribution Systems

Ce chapitre présente (a) les populations bactériennes fixées aux surfaces des canalisations et des particules, et (b) l'impact sur ces populations des techniques de désinfection mises en oeuvre dans le cas de la distribution d'eau potable. Dans la plupart des cas, les désinfectants véhiculés par l'eau ont pour but de limiter le nombre de bactéries cultivables en suspension dans l'eau. Ils ne sont pas ou peu efficaces pour limiter les populations fixées aux parois des conduites qui jouissent d'une relative protection résultant de leur moindre exposition à l'oxydant. Cette moindre exposition résulte d'une limitation du transport de molécules oxydantes par advection ou diffusion, couplée à leur réduction au contact de la surface ou des molécules organiques accumulées dans le biofilm. De plus, les populations fixées peuvent s'adapter aux conditions environnementales des réseaux de distribution en modifiant leur taille, leur forme, ou en produisant des molécules réductrices susceptibles de neutraliser les oxydants.

Ces différents points ont fait l'objet d'une communication dont le texte constitue le corps du Chapitre IV.2. Cette communication a été présentée à la conférence internationale "Biofilms in Aquatic Systems" organisée par la Royal Society of Chemistry à l'Université de Warwick, Grande-Bretagne, du 14 au 16 avril 1997. Elle est en cours de publication dans un livre coordonné par C.W. Keevil.

Bacterial Resistance to Chlorine through Attachment to Particles and Pipe Surfaces in Drinking Water Distribution Systems

Morin P., V. Gauthier, S. Saby, and J-C. Block

Laboratoire Santé et Environnement, Faculté des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques, Université H. Poincaré-Nancy I, 5 rue A. Lebrun, B. P. 403, 54001 Nancy cedex, France. Tél.: 33 (0) 383 17 88 00; e-mail: block@pharma.u-nancy.fr

1 - Introduction

The recurrent contamination of drinking water distribution systems by autochthonous microbial populations has been extensively described in the past.^{9,60,96} This active biomass is remarkable by its diversity (bacteria, fungi, protozoan, ...). It is frequently attached in the form of heterogeneous and dispersed biofilms,^{9,60} in association with particles present in the bulk flow and the sediments,³³ or as bacterial aggregates pulled out from the biofilm (Maier *et al.*, this book). This population of microorganisms is evidently finding in the distribution networks a favorable environment for its multiplication and survival. Through the combination of the presence of biodegradable organic carbon⁶³ (BDOC from 0.1 to 10 mg L⁻¹) and of electron acceptors⁴³ (dissolved oxygen, nitrates, ferric ions) a large number of heterotrophic microorganisms can multiply and be the starting point of a diversified trophic chain.⁷ The use of post-disinfectants (sodium hypochlorite, monochloramine, chlorine dioxide) was considered until the 80's as a quasi-unique solution to control biological instability of water (unstable water results in bacterial proliferation - so-called aftergrowth or regrowth - above the maximum values allowed by the European Union standards of 100 CFU 3 days mL⁻¹, 20°C). An alternative to disinfection is to limit growth by eliminating the organic matter in water. Nowadays, in most of the cases the solution is a compromise between the chlorination of distributed water and a treatment line only allowing the partial removal of organic matter.

Distribution network chlorination is not meant to be a water treatment but a way to limit microorganism proliferation (including opportunistic pathogens) and accidental contamination. The use of chlorine has beneficial and detrimental effects that are poorly understood (Table 1).

The efficacy of chlorine to disinfect water has been known for decades, and the dose-effect relationship is generally log-linear. However, it appeared that even with concentrations up to

several mgL⁻¹ (too high for human consumption), fixed bacteria are more difficult to inactivate than single bacteria in suspension in the bulk phase.^{13,83,70,54} Therefore, it is customary to admit that adhesion is a factor of protection for bacteria, even if the generalized concept of protection covers very different mechanisms related to (i), the limitation of the transport of chlorine to the water-substrate interface and, (ii) the bacterial species and the cell activity. These two groups of parameters are discussed in this paper following the presentation of the bacterial populations in chlorinated and un-chlorinated distribution systems.

Table 1: *Beneficial and detrimental effects of the chlorination of distributed water.*

| <i>Beneficial effects</i> | <i>Potentially detrimental effects</i> |
|--|---|
| <ul style="list-style-type: none"> • Inactivation of free suspended and fixed bacteria • Persistent action | <ul style="list-style-type: none"> • Release of bacteria and soluble organic matter from the biofilm • Chlorination by-products formation • Adaptation of surviving bacteria to higher disinfectant concentrations • Possible inhibition of the protozoan grazing |

2 - Attachement of bacteria in drinking water distribution systems

Bacterial populations are here distinguished by their mode of attachment and by the type of support they attach to. Bacteria can attach to a solid support, which can be the surface area of a pipe or of a particle, or to each other in clumps. The first organizational form is constitutive of biofilms and the second of bacterial aggregates. However, in the literature colonized particles and aggregates may be found under the single global term “particles”, in reference to their presence in the bulk phase or loose sediments and by opposition to the biofilm fixed on immobile surfaces.

Because of the difficulty to reach and to sample pipe surfaces of actual drinking water distribution systems, very few studies have been published precisely describing biofilms in such systems. In most cases, mere visual observations, or destructive sample techniques that made impossible the collection of certain data (thickness of the biofilm,...) were used. In actual drinking water distribution systems as they could be observed, biofilms appeared constituted of microcolonies sparsely distributed on pipe wall surfaces,^{89,99} with a large microbial diversity comprising heterotrophic, chemolithotrophic as well as nitrogen-fixing bacteria.⁸⁸ Biofilms are dynamic systems where deposition, growth, mortality and detachment of bacteria intricately coexist^{16,19} and are difficult to separate. The maximum bacterial densities are in the order of 10⁵-10⁸ cells/cm², depending on the study and on what was measured^{60,96,23} (HPC, active or total bacteria). Apparent growth rates were calculated in the biofilm between 0.002 and 0.014 hr⁻¹ by Servais *et al.*⁹⁶ The biofilm bacterial population was found to be greater than the suspended one. The ratio of biofilm/bulk phase calculated from total bacteria data was between 50 and 60 in actual distribution systems (pipe section of 100 mm) in absence of free chlorine residual.^{70,53}

The data concerning the presence of particles in actual drinking water distribution systems are even more sparse than for biofilms. Nevertheless, we know diverse origins for these particles. First of all, the presence of particles in drinking water distribution systems may be due to insufficient removal from raw water during the treatment train; they also can originate within the treatment train,¹² as sand and carbon particles from the filtration step,^{14,104} or precipitates of chemicals used in the treatment⁹⁸. Second, particles come from the corrosion of the distribution pipe walls and the suspension in the bulk liquid of corrosion particles,⁵⁷ from solute precipitation,⁷⁹ or even from outside the system with introduction of dirt during work on the pipes. Part of the planktonic particles found in the distribution network contributes to the creation of sediments that can be resuspended by the way of hydraulic changes,³³ therefore forming a sedimentation-resuspension cycle breakable only by extensive cleaning of the system.

Ridgway and Olson⁸⁹ found between 100 and 1,000 particles in a diameter range of 10-50 μm per mL in a drinking water distribution systems, in the same order of magnitude as the concentrations of particles larger than 3 μm sampled by Brazos and O'Connor¹⁰ (290 to 1100 mL⁻¹). The particles found in distribution systems can be colonized with bacteria.^{89,90,61} Between 10 and 100 bacteria were counted per particles by Ridgway and Olson,⁸⁹ with around 17% of particles bearing attached bacteria. In another study Ridgway and Olson⁹⁰ observed that only 1% of the particles had between 5-10 to several hundred attached bacteria. Brazos and O'Connor¹⁰ recovered between 1.8 and 3.5 (depending on the season) particles $> 3\mu\text{m}$ having more than 5 bacteria attached per mL from a distribution system. In this study, the authors observed the disappearance of particle-associated bacteria throughout the treatment line, and their quasi-absence in the effluent of the plant, without distinguishing between bacteria attached to particles and bacterial clumps.

Aggregates are thought to originate from the release of bacterial clumps from the biofilms on the pipe walls or from resuspension of deposits in the distribution networks. Also, under certain conditions, bacteria have a tendency toward the formation of aggregates.^{75,87} McCoy and Olson⁷⁴ observed cell aggregates to be the most predominant particles in their study of a drinking water distribution systems, with an average number of nine cells per aggregate. However, for aggregates as well as for particles colonized with bacteria, the published studies do not present data allowing the quantification of such a phenomenon and its comparison with the bacteria in biofilm or with the single suspended bacterial population. This lack of information is due in part to the methodological difficulties in isolating bacterial aggregates and attached bacteria. Numeration techniques generally induce detachment and dispersion of these structures. As a consequence, while it was shown that bacteria present in finished water come from breakthrough in the final disinfection step^{29,71} and from detachment of bacteria from the biofilm existing on the pipe walls, and that bacterial growth in the bulk phase is negligible in comparison with those in the biofilm,^{109,8,60,53,96} we do not know about the importance of the aggregates and the colonized particles in the contamination of the distribution systems.

Figure 1 summarizes the different forms of organization under which bacteria are found in the drinking water distribution systems as presented here above.

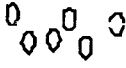



| | <u>Bacterial population</u> | <u>Estimated density</u> | |
|---|-----------------------------|-------------------------------------|---|
|  | Free planktonic cells | ? | } → $10^4 - 10^6 \text{ cells mL}^{-1}$ |
|  | Aggregated | ? | |
|  | Attached to particles | 10 to 15,000 cells mL ⁻¹ | |
|  | Biofilm | $10^5 - 10^8 \text{ cells cm}^{-2}$ | |

Figure 1: Summary of the different types of bacterial populations (microscopic counting) found in drinking water distribution systems (adapted from Brazos and O'Connor, 1990; Donlan and Pipes, 1988; LeChevallier *et al.*, 1987; Ridgway and Olson, 1981; Servais *et al.*, 1992a).

The difficulty of such a classification is that it is hard to observe and itemize the various classes. This is why no estimations are presented for the free planktonic and the aggregated bacterial populations; these populations are extremely hard to separate. Instead, we have numbers for the total number of bacteria found in water flow (by opposition to biofilm) that incorporate these two sub-populations as well as the bacteria attached to particulate matter. A knowledge of the global bacterial population divided into these categories in water would give us tools to perform water disinfection with increased efficiency.

3 - Bacterial occurrences in disinfected drinking water distribution systems

The goal of raw water treatment for consumption purposes is to produce water that is aesthetically pleasant (no color, tastes, or odors) and without danger from a public health viewpoint. Drinking water must meet regulations, which are the product of historical, economical and political influences that are not necessarily universal. For example, the North American regulations for drinking water require the control of the coliform bacteria potentially by using high concentration of disinfectant, while the European Community regulations include standards on coliforms, HPC bacteria and a maximal chlorine concentration at the consumer tap. But in every case, the presence of disinfectant, along with the concentration of biodegradable dissolved organic carbon (BDOC) in water and the water temperature, are major parameters in maintaining water quality by controlling bacterial load in the plant effluent and by limiting bacterial regrowth in the distribution system. The presence of disinfectant in the distribution network is ensured by the final disinfection, and sometimes in large systems also by disinfectant boosters, where the disinfectant

generally used is chlorine, as chlorine hydroxide, sodium hypochlorite, monochloramines, and chlorine dioxide.

It has been shown that a bacterial population can develop and persist in the distribution system in spite of the disinfectant applied at the outlet of the plant and at booster locations.⁷² As for the development of biofilm in presence of disinfectant, Hermanowicz and Filho³⁹ used a parameter characterizing bacterial attachment on a rotating disc to show that chlorine (0.2 and 0.6 mgL⁻¹) and monochloramine (1 and 4 mgL⁻¹) affected bacterial attachment without avoiding it. Mathieu *et al.*⁷¹ showed that a biofilm could develop on concrete surface in presence of disinfectant residuals (0.43 mgL⁻¹ chlorine and 1.06 mgL⁻¹ monochloramine) with concentrations of fixed bacteria between 3.7×10^5 and 14×10^5 total cell/cm², respectively, after chlorination and monochloramination. Paquin *et al.*⁸³ also reported that biofilm development occurs on plastic or concrete new surfaces in a simulated distribution system despite the presence of residual chlorine. The extrapolation of results presented by Mathieu *et al.*⁷⁰ showed that a theoretical concentration of residual chlorine of 1.8 mgL⁻¹ and of residual monochloramine of 8.8 mgL⁻¹ would be needed to control biofilm formation. Lund and Ormerod⁶⁹ presented surprising results showing that biofilm development could be prevented on new plastic pipes by a free chlorine residual of 0.05 mgL⁻¹. The authors pointed out that biofilm would eventually occur in a long distribution system.

All these results show that the development of biofilms in drinking water distribution systems cannot generally be prevented by the mere application of disinfectants. Table 2 presents observations of biofilms in actual or simulated drinking water distribution systems in the presence of disinfectants.

The continuous presence of bacteria in the distribution system in spite of relatively high concentrations of disinfectants, as shown in Table 2, is explained by the biofilm growth, but also by the survival of subgroups of heterotrophic plate count (HPC) bacteria resistant to disinfection,^{85,111} and by cell aggregation and bacterial attachment to suspended particulate matter.^{4,40,90,61,18} Herson *et al.*⁴⁰ showed the increasing resistance of bacteria with increasing attachment time to particles. In a study of actual drinking water distribution systems, Ridgway and Olson⁹⁰ proved that suspended aggregated and particle-bound cells treated with 10 mgL⁻¹ Cl₂ exhibited more than ten-fold better survival than single suspended bacteria. Redercher⁸⁷ found similar results but pointed out the importance of aggregation compared to cell attachment on goethite particles (exerting low Cl₂ demand) in the resistance to chlorine disinfection. Bacteria attached to high-chlorine demand material (activated carbon) were shown to be very resistant to chlorine and monochloramine.^{103,58,78} Camper *et al.*¹³ demonstrated that bacteria attached to large carbon fines survived to 2 mgL⁻¹ Cl₂ for 30 minutes.

Table 2: Examples of biofilms observed in presence of disinfectant. Disinfectant used in the study: * chlorine, ** monochloramine. DWDS = drinking water distribution system; PVC = polyvinylchloride; PE = polyethylene.

| Authors | Tem. (°C) | Total residual disinfectant (mgCl ₂ L ⁻¹) | Biofilm density (cm ⁻²) CFU cells | Nature of the substratum | Experimental system |
|------------------------------------|-------------|--|--|--------------------------|---------------------------|
| Donlan and Pipes, 1988 | 22.8 4.7 | 0.89* 1.20* | 3.7 10 ⁷ 1.0 10 ² | cast-iron | sample device on DWDS |
| Mathieu <i>et al.</i> , 1992 | 19-23 | 0.5* 0.5** | 6.7 10 ² 10 ⁵ 5.9 10 ⁴ 2 10 ⁶ | cement | pilot plant |
| Neden <i>et al.</i> , 1992 | 5-15 | 0.2-0.5* ≥ 1.0 | 3.2-5.7 10 ⁵ 1.4-1.7 10 ⁵ | unlined cast iron | actual DWDS |
| Paquin <i>et al.</i> , 1992 | 20 | 1.28* | 4.6 10 ⁴ 8.6 10 ⁵ | PVC, PE, cement | pilot plant |
| Van der Wende <i>et al.</i> , 1989 | 21 | > 0.05* > 0.5* | 10 ⁶ -10 ⁸ 10 ⁴ -10 ⁵ | PVC | annular reactors in serie |

The mechanisms of apparent resistance of attached bacteria to disinfection are extensively presented and discussed in part 4 - **Apparent Resistance Mechanisms of Attached Bacteria to Disinfection.**

The disinfectants have two effects on attached bacteria. One is the inactivation of the bacteria, and the second is the detachment of the bacteria from the support, which is a slower effect. What we observe in disinfection experiments is a global effect resulting from the action of the disinfectant on the biofilm growth rate, the mortality and removal rates of the attached bacteria, as well as on the deposit rate of the bacteria in the biofilm.

As pointed out by Srinivasan *et al.*¹⁰⁰, disinfection and detachment are independent processes, and disinfection can occur without detachment of the bacteria from the surface. That also can depend on the employed disinfectant: working with pure *Klebsiella pneumoniae* biofilms grown in reactors, Yu *et al.*¹¹² showed that bacterial viability was more affected by chlorine than by monochloramine, but that the latter detached three times more bacteria than the former. In contrast, Morin *et al.*⁷⁶ showed a greater effect of chlorine compared to monochloramine for the disinfection of mixed bacterial biofilms as well as for their detachment.

In conclusion, bacterial populations are abundant in drinking water distribution systems in spite of the use of disinfectants meant to control their proliferation. The attachment of bacteria to pipe walls and particles, and their aggregation in clumps appear to be the major reason for the survival of the microorganisms in disinfecting conditions. As described in the next section, the bacterial resistance we observe is the apparent result of complex mechanisms that only begin to be discovered and understood.

4 - Apparent resistance mechanisms of attached bacteria to disinfection

The apparent resistance of attached bacteria to disinfection is difficult to study because of the general lack of adequate techniques and of the intricate interactions between all the involved processes. For instance, in the theoretical relationship between the bacterial density and the disinfectant dose used against fixed bacterial populations presented in Figure 2, we observe three distinct phases.

In the first phase, the low disinfectant doses take care of the chlorine demand of the system and have an oxidative action that is too weak to inactivate or kill the bacteria. The second phase shows the log-linear relationship existing between the bacterial density and the disinfectant dose, for colony forming unit (CFU) results as well as for total bacterial results as shown by Mathieu *et al.*⁷⁰ and Servais *et al.*⁹⁶ At high disinfectant dosage (phase 3), LeChevallier *et al.*⁵⁵ observed a plateau where greater dose did not result in greater bacterial inactivation. However, the concentrations used in this experiment to attain the maximum efficacy of the disinfectant and to see the plateau would have been too high (in the order of tens of mgL^{-1}) to be tolerated for human consumption.

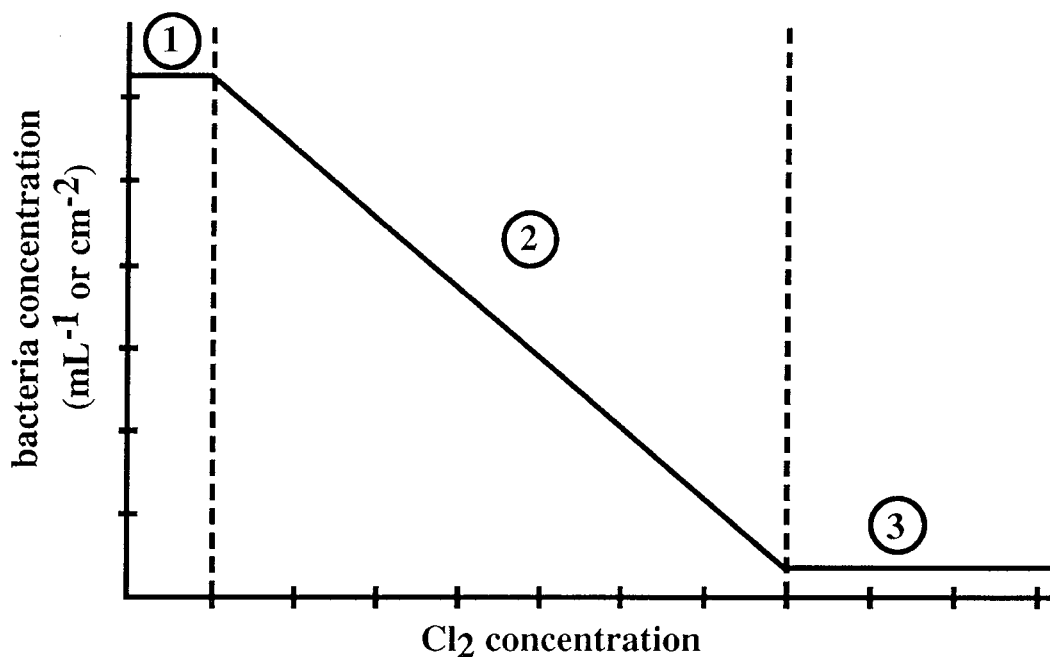


Figure 2: Theoretical relationship between the bacterial concentration and the disinfectant dose used against fixed and planktonic bacterial populations (adapted from Mathieu *et al.*, 1992; Servais *et al.*, 1992b; LeChevallier *et al.*, 1988b).

Practically, the inactivation curve of bacteria is different for each population. Because many of bacterial sub-populations coexist in water (free and attached bacteria, biofilm and colonized particles, single and aggregated bacteria), the disinfection kinetic observed for a given global

bacterial population is the resultant of several first order kinetics that are not distinguished from each other. Under-exposure of bacterial cells to disinfectant and intrinsic and gene mediated cell resistance mechanisms are participating phenomena in this response of attached bacteria to disinfection. They are successively presented and discussed in this chapter, in order to propose a tentative global explanation of the apparent resistance mechanisms of attached bacteria to disinfection.

4.1 Exposition of Attached or Clumped Bacteria to Disinfectant

The exposure of attached bacteria to disinfectant depends on the physical/thermodynamic capacity of the flow to transport the disinfectant to the reactive sites,^{22,5} and on the disinfectant demand of the attached bacterial environment (*i.e.* substratum surface, biofilm and water). The under-exposure of bacterial cells to disinfectant is the result of a combination of mass transfer limitations and from concurrent reduction of the oxidant by chemical species other than the bacterial cells.

Very little information exists that weights the respective contribution of these two mechanisms on the local "efficient" disinfectant concentration. The mechanisms are not independent because transport due to molecular diffusion to reactive sites directly results from the establishment of concentration gradients related to the reduction of the oxidant in the biofilm and at surfaces¹⁷. Additional difficulties to compute the mass transfer/reactivity limitations result from the heterogeneity of data defining water, biofilm and surface reactivity in literature, due to the fact that the measure of the parameters affecting the kinetic of oxidation/reduction reactions are not standardized⁴⁴. This results in a great variability in the form of the presented data (order of the reaction, kinetic constants, consumption rates for different times and initial concentration ratio...).

4.1.1 Transport of Disinfectant to Attached Bacteria

The transport of dissolved substances from bulk liquid to surfaces can be separated in several zones reflecting different hydraulic regimes. Schematically, the reactive system is composed of a core of water (the bulk liquid), of a layer (continuous or not) of organic and inorganic material (the biofilm), and of a solid substratum. Transport in the bulk liquid is controlled by the flow hydrodynamics, while several different approaches have been used to describe the transport of materials within biofilms.

The quantity of disinfectant transported to the bulk/biofilm interface^{68,6} (according to mass balance equations) is function of the disinfectant concentration in the bulk, of its effective diffusivity in the system, and of its consumption inside the water phase. Disinfectant consumption in the water phase results mainly from the reduction of dissolved organic matter^{44,24}. When the flow is laminar, radial mass transport is only governed by the molecular diffusion, while in the case of turbulent flow, three main zones are characterized by different hydraulic regimes⁹⁴ (**Figure 3**):

- a turbulent zone where the transport is mainly controlled by the eddy diffusivity D_e ,
- a viscous sub-layer including the biofilm, where laminar advection and molecular diffusion (D_m) are the major mechanisms,
- an intermediate zone where both mechanisms are combined (D_e and D_m of the same order).

In the turbulent zone, high velocities enhance the transport of reactant towards surfaces because the resulting eddy diffusivities are often much higher than the molecular diffusivity. For example, Lu *et al.*⁶⁸ reports an eddy diffusivity $D_e = 2.15 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ to be compared to a molecular diffusivity $D_m = 1.25 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ for a 0.35 m/s flow in a 5 cm radius pipe. Inside the viscous sub-layer, as for laminar flows, the transversal flux of disinfectant can be described according to Fick's law, and the flux of disinfectant reaching the biofilm layer can be increased by increasing the molecular diffusivity (that means to increase water temperature, resulting in other water quality problems), or by increasing the disinfectant concentration in the bulk liquid. This can only be achieved by augmenting the water velocity in turbulent conditions or the disinfectant dosage injected in the system.

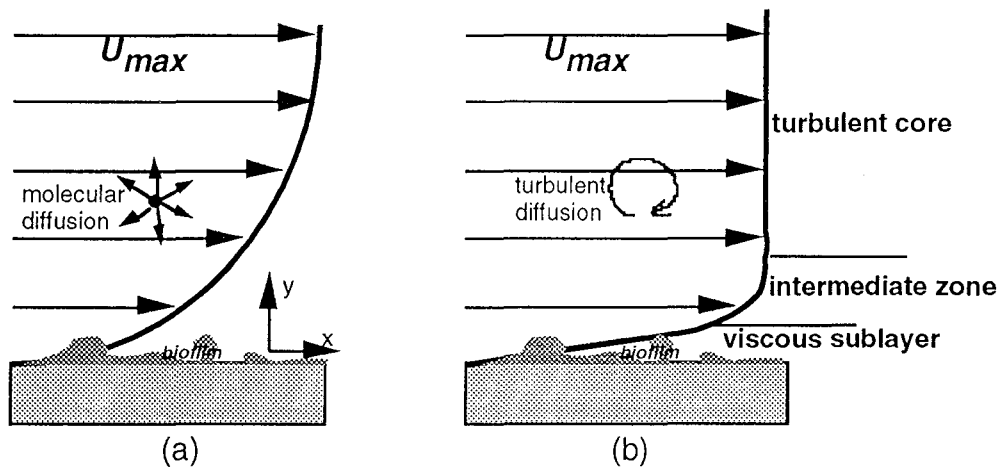


Figure 3: (a) laminar velocity profile; (b) turbulent velocity profile (adapted from Schlichting, 1968 and De Beer *et al.*, 1994).

Thus, mass transport limitations from the bulk to the biofilm should be considered important mainly in a few unfavorable configurations: low disinfectant dosages and/or laminar hydraulic conditions. This can lead to limited disinfection efficacy from limited transport, as was observed by Chen *et al.*¹⁷

Biofilms are located on the pipe walls of distribution systems and therefore are *a priori* implicitly included in the viscous hydrodynamic boundary layer.^{46,21,5} Therefore, the transport is dominated by molecular or viscous forces, and not by inertia-driven forces. To detail the transport phenomena in that zone, the definition of the term "biofilm" is fundamental.

The description of the biofilm as an homogeneous gel matrix was used by Lu *et al.*⁶⁸ to model the transport and reactivity of chlorine. Transport was described as a transversal molecular diffusion/reaction process and longitudinal effects were neglected. In that model, the biofilm was considered as a very porous structure that only slightly affects the diffusion of chemical species, with a molecular diffusivity estimated to be 80% of the one of water. Chen *et al.*¹⁷ detailed the computation of such a corrected molecular diffusivity in biofilm compared to water, assessing that this correction was only function of the volume fraction of polymers and cells in the biofilm. The obtained result (82% of the water value) was similar to Lu's, for a biofilm estimated to be 30 μm thick. These two approaches considered pure molecular diffusion in the biofilm and neglected advective transports of disinfectant in that layer. However, tracer studies combined with microscopy techniques recently revealed that biofilms were composed of a complex structure of clusters and voids (or channels). Water velocities were measured up to 15 mm/s in the biofilm voids²² (for a bulk flow velocity of 165 mm s⁻¹), but no flow inside these cell clusters was detected, suggesting that the molecular diffusion was the dominating force inside them (molecular diffusion velocities were of the order of 0.01 mm/s). In such a case, the transport of chemical species in biofilms as a whole resulted both from laminar advection in voids and from molecular diffusion in clusters.

The apparent porosity of biofilms enhances the flux of disinfectant that can be transferred to the surface supporting the biofilm or to the clusters containing the cells to disinfect. The role of diffusion is therefore very important and direct quantification of the diffusion coefficient was necessary in the new context of this specific porous medium configuration: De Beer *et al.*²⁰ measured coefficients in voids and clusters of biofilms using a combination of microprobe/confocal microscopy techniques. They found that small molecular weight compounds had identical molecular diffusivity in clusters and in the water phase, meaning that a unique type of coefficient can be used for transport models in several zones of the flow.

The transport of disinfectant from the bulk liquid to the attached cells is thus composed of a succession of stages (Figure 4) that combine turbulent and laminar advection, and molecular diffusion. The disinfection of attached bacteria can be mainly limited in two non-exclusive configurations:

a) when the conditions are unsteady (for example, when a higher concentration of disinfectant is injected in the bulk, a time period is necessary before the disinfectant concentration increases at the surface);

b) when there is a higher disinfectant demand at the pipe wall than can be transferred through hydrodynamic/thermodynamic processes.

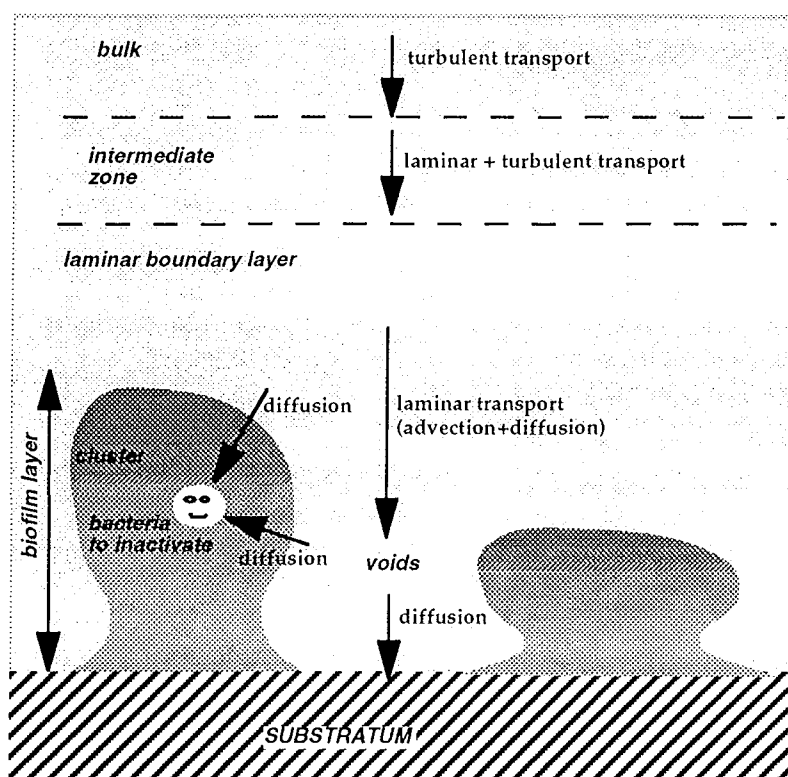


Figure 4: Successive stages of the transport of the disinfectant from the bulk liquid to the attached cells organized in biofilm.

Transport of the disinfectant does not end at the surface of the attached bacteria, but continues inside the cells through the bacterial envelope. Consequently, the oxidant will not only react with superficial sites of the cell wall and cytoplasmic membranes, but also more deeply with internal structures. Such an effect is indirectly shown by the fact that chlorinated bacteria stained with a fluorochrome as DAPI (4',6-diamino-2-phenylindole) poorly fluoresce,⁹³ and can be related to an oxidation of DNA and the damage of DAPI binding sites in the cells. The capacity of bacteria to be cultivated (CFU counting) can be lost for low concentrations of chlorine¹¹² and in a faster manner than the apparition of DNA damages.⁹³ The process of penetration inside the cells is poorly described, but it appears to be controlled in some cases not only by the standard redox potential of the oxidant, but also by its size and charge. As an example, the dissociated form of chlorine ClO^- diffuses less efficiently through the hydrophobic membranes than HClO does.^{31,92}

True disinfection of bacteria in water and biofilm requires full penetration of the chlorine through the multilayer of attached cells and into the bacteria, leading to some irreversible damages (DNA oxidation, repair system destruction).

4.1.2 Disinfectant Reactivity with Biofilms and Surfaces

In areas close to surfaces (including the biofilm) and inside aggregates, where the flow is laminar (or null) and molecular processes predominant, the flux is directly proportional to the concentration gradient. Therefore it is function of the reactivity of the different elements (surface

substratum, accumulated exopolymers and inorganic materials, bacterial cells) with the disinfectant. The respective contributions of these elements to the reactivity of the system to disinfectant are important to know, because this information partially explains the efficacy of the disinfection of attached bacteria and the disinfectant decay through the whole system. Using new procedures for independent determination of the disinfectant consumption by each reactive compartment (water phase, material, deposits and biofilms) in stable flow conditions, Parent *et al.*⁸⁴ and Ki  n   *et al.*⁴⁸ demonstrated the high reactivity of the biofilm and deposit compartments. Also, Thogersen and Dahi¹⁰⁵ measured a chlorine decay rate constant 16-fold higher in a polyethylene pipe system including biofilm than in the supply water alone, demonstrating that both surfaces and deposits were important disinfectant reducers. Full understanding of the oxidant demand phenomenon in the distribution network would be definitively useful to ameliorate disinfection practices and efficacy.

The reduction of oxidant by substratum surface molecules can deplete the local chlorine concentration and result in an inefficient disinfection of surfaces, while less reactive surfaces can be more easily disinfected. The reactivity of disinfectant with pipe materials has only been recently considered to explain the decay of oxidant concentration in pipe systems.^{84,35} A recent study¹⁰⁷ compared the consumption of 7 different materials in identical simulated pipe-flow conditions, and emphasized the consumption differences between the ferrous (very reactive) pipes and the lined or plastic pipes, especially for never-used materials. The testing of materials is nevertheless not standardized, and the definition of representative procedure (mass transfer, test duration...) is necessary to provide information for the comparison of materials.

On the pipe wall, several deposits can reduce the oxidant, which can be arbitrarily separated in (i) biofilms, including the exopolymer matrix, and (ii) particles and other sediments. Distinction between these elements is not easy because materials exposed to water for realistic tests are covered with biofilm and particles, and thus the disinfectant demand is generally not measured independently in drinking water distribution systems configurations. LeChevallier *et al.*⁵⁶ specifically measured biofilms for their oxidant demand after their resuspension by scraping. One advantage of this method is that it allows an absolute determination of the demand without interference from the transport mechanisms, even if such a disruption process could modify the biofilm reactivity and does not permit distinction between the particles and the hosting biofilm.

Biswas *et al.*⁶ invoked the presence of chlorine-consuming biofilms in specific areas of the distribution network to explain the differences observed between computed predictions and field measurements of chlorine concentrations. They have been able to quantify this biofilm demand through model constant optimization *a posteriori* (chlorine consumption rate at the pipe wall with biofilm from $1.15 \cdot 10^{-6}$ to $2.2 \cdot 10^{-5}$ m/s instead of 10^{-7} m/s without biofilm). In a laboratory experiment, biofilm disinfectant demand was first determined by Chen *et al.*¹⁷ who globally measured steady state monochloramine fluxes to a biofilm-colonized stainless steel slide from 20.8 to 37.9 mg h⁻¹ m⁻² for bulk concentrations between 2 and 4 mgL⁻¹. Detailing this approach, De

Beer *et al.*²² measured the corresponding concentration profile, and revealed that the disinfectant penetrated only slowly inside the cell clusters due to the progressive saturation of the reactive sites.

Inorganic particles from corrosion of metal pipes can generate a high disinfectant demand as shown by LeChevallier *et al.*⁵⁶ Srinivasan *et al.*¹⁰⁰ demonstrated that the inclusion of inorganic particulate matter in the biofilm resulted in a decrease of biocide efficiency, what was not observed by Morin *et al.*^{76x} However, it was shown⁷⁷ that simulated drinking water distribution system biofilms contaminated with colonized carbon fines retained residual concentration of fines and transported bacteria in spite of continuous chlorination. In the same manner, many authors suggested that bacteria fixed on carbon fines were protected from disinfection, probably because of the dechlorination capacity of activated carbon.^{14,103,78,104}

Gauthier *et al.*³² found that the high reactivity of resuspended loose deposits was linked to the organic matter content even if inorganic particles constituted the major fraction (more than 80% as dry weight) of the deposits.

Because of the presence of disinfectant reducing deposits and the oxidant demand exerted by the pipe material of networks transporting disinfected water, there are an abundant of reactive sites and disinfecting efficacy is reduced.

4.1.3 Conclusion

Disinfection strategies should take into consideration both the hydraulic conditions and the disinfectant demand of the treated system. High water speed (turbulent flow) locally enhances the transport of disinfectant to the pipe wall, which will not be transported downstream in the system. Therefore, the choice of having laminar flow regime corresponds to a bulk water disinfection target, while turbulent flow, that requires a greater disinfectant dosage to obtain a similar residual at the end of the network, is more efficient against attached biomass. Nevertheless, for most part of distribution systems, the hydraulic conditions are more dependent on the fluctuations of the consumer water demand or on pumping costs than on disinfectant concentration purposes. The problem is that a distribution system demand is probably caused by the biofilm before the disinfectant can reach and disinfect the cells. The residual disinfectant concentration, also depleted by the demand exerted by the water and the pipe wall surface, is therefore not sufficient to have an effective and massive killing action on the attached bacteria. What is actually seen by most of the attached and aggregated bacteria is a sublethal concentration of disinfectant that may in fact induce physiological cell resistance, as explained in the next part.

4.2 Physiological Cell Resistance

Despite the fact that chlorination is the most widely used -and studied- method for the disinfection of water, the mechanisms by which HOCl, and *a fortiori* other less-employed disinfectants, exert their lethal effects on microorganisms are not fully elucidated. However,

numerous observations of the resistance of bacterial cells to disinfection have been made. Two main groups of examples about the variations of bacterial sensibility to disinfectants are abundantly reported in the literature. They are related to:

- the growth conditions of the microorganism;
- the previous exposure to the disinfectant.

Since the work of Berg *et al.*³ showing the increased chlorine sensibility of *E. coli* grown at high growth rate, there is a general consensus on the effect of growth conditions: bacteria cultivated in low-nutrient media (like drinking water) are more difficult to disinfect.^{15,101,102,54} Also, the previous exposition of bacteria to disinfectants showed that the surviving microorganisms had a resistance that was clearly higher than those of the initial population.^{64,50}

In addition, the specie and the origin of the microorganisms were shown to be factors in the resistance of bacteria to disinfection. Several studies^{75,59} demonstrated that the Gram-positive strains were more resistant to chlorine than Gram-negative strains. Hiraishi *et al.*⁴¹ proved that among 84 strains of *Methylobacterium*, none of the laboratory ones were resistant to chlorine (0.1 mgL⁻¹, 5 minutes), while all the environmental strains were resistant in the same conditions. In other words, there is a selection of bacteria under environmental pressure that leads to the development of bacterial populations particularly resistant to detrimental conditions like disinfection.⁸²

The resistance of bacteria to disinfection can therefore be understood by the history and the living conditions of the microorganisms and can be explained through a global model of genetically-mediated response to oxidants.

4.2.1 Genetic Systems of Bacterial Resistance to Disinfection

The phenomenon of bacterial resistance to bactericides in distribution systems can be ascribed to a process of adaptation¹¹ (*i.e.* induction of genetic mechanisms) and not only to selection of resistant bacteria (*i.e.* intrinsic cell resistance by organization and composition of bacteria). Prokaryote cells respond to environmental stresses by induction of a large range of specific proteins.³⁶ The specific set of genes activated by an environmental stress constitutes a *stimulon*^{108,49} such as the heat shock regulation system, the SOS genetic system and the oxidative stress regulation system. Table 3 presents a succinct synthesis of the current knowledge on the resistant mechanisms of bacteria to different stresses.

These studies clearly show the complexity of the genetic systems involved in bacterial stress response, due to the fact that the genetic mechanisms of cell repair and resistance can be induced by different stresses that may overlap.

Table 3: Examples of genetic systems involved in bacterial responses to stress

| <i>Factor of stress</i> | <i>Genetic system or regulation system</i> | <i>Principal effects</i> | <i>Authors</i> |
|-------------------------|--|--|---|
| DNA damage | SOS system LexA/RecA regulation | <ul style="list-style-type: none"> • Double-strand break repair • Inhibition of cell division | Walker, 1996 |
| Temperature | Heat shock system | <ul style="list-style-type: none"> • Protein stability • Chaperon protein | Lepock, 1997 Muffler <i>et al.</i> , 1997 Yura <i>et al.</i> , 1993 |
| Ion superoxide | SoxR and SoxS regulation | <ul style="list-style-type: none"> • Elimination of O₂⁻ (superoxide dismutase) • Repairs oxidative sugar damages in DNA (exonuclease IV) | Tsaneva and Weiss, 1990 Greenberg <i>et al.</i> , 1991 |
| Hydrogen peroxide | Oxy R regulation and SOS system | <ul style="list-style-type: none"> • DNA protection (Dps) • Elimination of H₂O₂ (catalase) • Recovery of membrane transport • Glutathion (gorA), redox potential | Altuvia <i>et al.</i> , 1994 Farr <i>et al.</i> , 1988 Goerlich <i>et al.</i> , 1989 Loewen <i>et al.</i> , 1985 |
| Starvation | σ^S regulation | <ul style="list-style-type: none"> • DNA protection (Dps) • Elimination of oxidant (catalase) • Increased resistance to autolysis • Cell morphology (bolA, ficA) | Almiron <i>et al.</i> , 1992 Kolter <i>et al.</i> , 1993 Loewen and Hengge-Aronis, 1994 Siegele and Kolter, 1992 |

4.2.2 Bacterial Stress Responses to Starving and Disinfecting Conditions

Within the genetic systems presented in Table 3, the σ^S regulation system is particularly interesting because it is related to the growth conditions of the microorganisms, and because several authors observed that a nutritive stress decreased the sensitivity of bacteria to chlorination.^{3,15,101,86,54} This system is induced by the starvation as for bacteria in stationary phase, and for many free living and biofilm bacteria in distribution systems.

Starvation of *E. coli* activated about thirty genes regulated by the σ^S factor.^{73,38,51,52} The proteins coded by these genes are involved in diverse regulations; and some of them lead to increased bacterial protection against disinfectants. The protein Dps was shown *in vitro* to coat the DNA,¹ and is therefore in a position to reduce the access of the oxidant to the nucleic acid and its

efficacy. Second, the gene *bolA* is recognized to code for proteins involved in the shape of the cell,⁴⁹ thus explaining the diminishing size of the cells in starving conditions.^{91,42,45} This diminution in bacterial size can be a mechanism of resistance to disinfection, a smaller cell having less surface area in contact with the disinfectant. A third gene activated under starving conditions is *katE*, coding for a catalase that will eliminate the oxidant, as shown for the hydrogen peroxide.⁶⁵ The gene *osmB* is also induced when the bacteria are starving;^{47,49} coding for a lipoprotein, it could be involved in bacterial aggregation that leads to bacterial survival to disinfection (see **3-Bacterial Occurrences in Disinfected Drinking Water Distribution Systems**).

One generally assumes that under starving conditions the genetic systems involved in the response to the stress are permanently activated. The constant production of a low level of proteins by the bacteria is, from an energetic viewpoint, the best solution when the metabolic activity of the cell is not sufficient to quickly react to an aggressor. In contrast, cells in exponential phase are able to rapidly express the genes necessary to their protection. However, these cells would not resist to a high chlorine slug dose as successfully as the cells with already induced defense systems (starving cells).

Another detrimental condition met by the bacteria during water treatment and distribution is the exposure to sublethal doses of disinfectants. Dukan *et al.*²⁸ and Dukan and Touati²⁷ showed that the genes induced by exposure of *E. coli* to sublethal chlorine doses belonged to the heat shock and SoxR systems and that the previously exposed bacteria presented enhanced resistance to chlorine. These systems are involved in the response of bacteria to temperature stress and exposure to the superoxide ion. The authors also observed in these conditions -previous chlorine exposure- an increased resistance of the bacteria to hydrogen peroxide, without the expression of the genetic systems specific of this stress (SOS system and OxyR regulation). This illustrates once again the complexity of the mechanisms involved in the resistance of bacteria to disinfection, and the fact that even if the genetic systems presented in Table 3 are individually studied, they are most probably functioning as a global system in order to preserve the bacteria in difficult environments.

The study of the genetic mechanisms of resistance gives us a better understanding of the problems of drinking water and biofilm disinfection. To take this last case, the biofilms developing on the pipe walls of the distribution systems contain bacteria that are in part coming from the treatment plant through the final disinfection barrier and that also are in limited nutrient conditions.^{25,26} The conditions met by the bacteria -exposure to sublethal doses of disinfectant and removal of bacterial nutrients throughout the treatment line- lead to the induction of genetic systems that help ensuring the currently observed survival of these bacteria to disinfection. It therefore appears that, in opposition to the current disinfection practices which favor successive disinfection steps throughout the treatment line and the distribution network, the solution to actually kill bacteria may be the use of one single high slug dose of disinfectant.

5 - Conclusions

The purpose of this paper was to present a global picture of the problem related to the survival of bacteria in disinfecting conditions through their attachment to particles and pipe surfaces in drinking water distribution systems.

Several conclusions and points can be made:

- While the biofilm bacterial population of drinking water distribution systems may be quantified, the actual proportion of the aggregated and particle-bound bacteria to the total suspended bacterial counts is not known.
- Therefore, we do not really know what we are disinfecting in the drinking water delivered in the distribution systems. The bacteriological controls performed on bulk water detect a small and perhaps unrepresentative portion of the bacterial populations, and the study of potentially important sub-populations like bacterial aggregates and bacteria attached to floating particles is, at best, still in its infancy.
- The disinfection of potable water, following the current industrial practices, is always incomplete. Some bacteria survive and are therefore able to inoculate the distribution system.
- The reactivity of the disinfectant with pipe surface substratum, biofilm materials, particulate matter, and other organic and inorganic materials present in the distribution systems reduce the impact of the disinfection.
- Attachment is a factor of protection when (1) the attached bacteria are organized in aggregates or in biofilm on surfaces and particles, and/or (2) the support material exerts a chlorine demand. In these conditions, bacteria resist doses of disinfectant as high as it can be used in treatment of drinking water.
- Beside the existence of a potential intrinsic resistance, bacteria have genetic systems allowing them to induce resistance mechanisms to disinfection. Low growth rates (starvation) and previous sublethal exposures to chlorine provide conditions for adaptive response to oxidants. Unfortunately, these conditions are generally those of drinking water distribution systems.
- We do not have much reliable information on the detrimental effect of distribution system disinfection practices on protozoa. However, one may assume that these bacterial predators are more sensitive to disinfectants than their prey, may be eliminated, and therefore not contribute to the limitation of bacterial populations.
- A truly effective disinfection practice (*i.e.* a perfect murder) comprises a single high dose of chlorine to avoid the adaptive response of bacteria to a second trial. Therefore, the usefulness of the successive disinfection steps throughout the water treatment train and the network (boosters) is questionable.

Acknowledgments - The authors thank Anne Camper for her reviewing of the manuscript.

References

1. Almirón M., A.J. Link, D. Furlong, and R. Kolter, *Genes & Development*, 1992, **6**: 2646.
2. Altuvia S., M. Almirón, G. Huisman, R. Kolter, and G. Storz, *Molecular Microbiology*, 1994, **13**, **2**, 265.
3. Berg J. , A. Matin, and P. V. Roberts, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1982, **44**, **4**, 814.
4. Berman D., E. W. Rice, and J. C. Hoff, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1988, **54**, **2**, 507.
5. Bishop P. L., J. T. Gibbs, and B. E. Cunningham, *Environ. Technol.*, 1997, **18**: 375-386.
6. Biswas P., C Lu, and R. M. Clark, *Wat. Res.*, 1993, **27**, **12**, 1715.
7. Block J-C., I. Sibille, D. Gatel, D.J. Reasoner, B. Lykins, and R. M. Clark, 'The Microbiological Quality of Water', Freshwater Biological Association publishing, 1997, p. 63.
8. Block J-C., K. Haudidier, J. L. Paquin, J. Miazga, and Y. Lévi, *Biofouling*, 1993, **6**: 333.
9. Block J-C., 'Biofilms - Science and Technology', Kluwer Academic Publishers, Dordrecht/Boston/London, 1992, p. 469.
10. Brazos B. J., and J. T. O'Connor, 'Proceedings of the Am. Wat. Works Assoc. Water Quality Technology Conference', 1990, San Diego, CA. p. 1073.
11. Brözel V. S., and T.E. Cloete, *Biodeterioration Abstracts*, 1993, **7**, **2**, 57.
12. Bucklin K. E., G. A. McFeters, and A. Amirtharajah, *Wat. Res.*, 1991, **25**, **8**, 1013.
13. Camper A. K., M. W. LeChevallier, S. C. Broadaway, and G. A. McFeters. *Appl. Environ. Microbiol.*, 1986, **52**, **3**, 434
14. Camper A. K., S. C. Broadaway, M. W. LeChevallier, and G. A. McFeters, *J. Am. Wat. Works Assoc.*, 1987, **79**, **5**, 70.
15. Cargill K. L., B. H. Pyle, R. L. Sauer, and G. A. McFeters, *Can. J. Microbiol.*, 1992, **38**, 423.
16. Characklis W. G., and K. C. Marshall, 'Biofilms', 1990, John Wiley and sons, Inc, New York.
17. Chen C-I., T. Griebe, and W. G. Characklis. *Biofouling*, 1993, **7**: 1.
18. Clark R. M., E. W. Rice, B. K. Pierce, C. H. Johnson, and K. R. Fox, *J. Environ. Engng.*, 1994, **120**, 875.
19. Costerton J. W., K. J. Cheng, G. G. Geesey, T. I. Ladd, J. C. Nickel, M. Dasgupta, and T. J. Marrie., *Ann. Rev. Microbiol.*, 1987, **41**, 435.
20. De Beer D., P. Stewart, and Z. Lewandowski, *Wat. Res.*, 1996, **30**, 2761.
21. De Beer D., P. Stoodley, F. Roe, and Z. Lewandowski. *Biotech. Bioeng.*, 1994a, **43**, 1131.
22. De Beer D., R. Srinivasan, and P. S. Stewart, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1994b, **60**, **12**, 4339.
23. Donlan R. M., and W. O. Pipes, *J. Am. Wat. Works Assoc.*, 1988, **80**, **11**, 70.
24. Dossier-Berne F., B. Panais, N. Merlet, A. Jadas-Hécart, B. Cauchi, and B. Legube, *Wat. Res.*, 1997, **31**, **3**, 375.
25. Duguid I. G., E. Evans, M. R. W. Brown, and P. Gilbert. *J. Antimicrob. Chemotherapy*, 1992a, **30**, 791.
26. Duguid I. G., E. Evans, M. R. W. Brown, and P. Gilbert. *J. Antimicrob. Chemotherapy*, 1992b, **30**, 803.
27. Dukan S., and D. Touati, *J. Bacteriol.*, 1996, **178**, **21**, 6145.
28. Dukan S., S. Dadon, D.R. Smulki, and S. Belkin, *Water*, 1996, **62**, **11**, 4003.
29. Dunkelberger G. W., and E. Carey, 'Proceedings of the Am. Wat. Works Assoc. Water Quality Technology Conference', 1991, Orlando, Fl. p. 811.
30. Farr B., D. Touati, and T. Kogoma, *J. Bacteriol.*, 1988, **170**, **4**, 1837.
31. Garnerone A., M. Rumeau, and M. Renaud, *Revue des Sciences de l'Eau*, 1982, **1**: 31.
32. Gauthier V., B. Gérard, J-M. Portal, J-C. Block, and D. Gatel, Submitted to *Water Research*.
33. Gauthier V., C. Rosin, L. Mathieu, J-M. Portal, J-C. Block, P. Chaix, and D. Gatel, 'Proceedings of the Am. Wat. Works Assoc. Water Quality Technology Conference', 1996, Boston, MA. p.
34. Goerlich O., P. Quillardet, and M. Hofnung, *J. Bacteriol.*, 1989, **171**, **11**, 6141.
35. Gotoh K., *Wat. Supply.*, 1988, **7**, **2/3**, SS 21-17.
36. Gottesman S, *Ann. Rev. Genet.*, 1984, **18**, 415.

37. Greenberg J. T., J.H. Chou, P.A. Monach, and B. Demple, *J. Bacteriol.*, 1991, **173**,14, 4433.
38. Hengge-Aronis R., W. Klein, R. Lange, M. Rimmelé, and W. Boos, *J. Bacteriol.*, 1991, **173**, 7918.
39. Hermanowicz S. W. and F. L. Filho, *Wat. Sci. Tech.*, 1992, **26**, 3-4, 655.
40. Herson D. S., B. McGonigle, M. A. Payer, and K. H. Baker, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1987, **53**, 5, 178.
41. Hiraishi A., K. Furuhashi, A. Matsumoto, K. A. Koike, M. Fukuyama, and K. Tabuchi, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1995, **61**, 6, 2099.
42. Holmquist L. and S. Kjelleberg, *FEMS Microbiology Ecology*, 1993, **12**, 215.
43. Ingledew W. J. and R. K. Poole, *Microbiol. Reviews*, 1984, **48**, 3, 222.
44. Jadas-Hécart A., A. Elmoré, M. Stitou, P. Bouillot, and B. Legube, *Wat. Res.*, 1992, **26**, 8, 1073.
45. Jiang X. and T.-J. Chai, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1996, **62**, 4, 1300.
46. Jorgensen B. and D. J. Des Marais, *Limnol. Oceanogr.*, 1990, **35**, 6, 1343.
47. Jung J. U., C. Gutierrez, F. Martin, M. Ardourel and M. Villarejo, *J. Biol. Chem.*, 1990, **265**, 10574.
48. Kiéné L., W. Lu, and Y. Lévi, 'Proceedings of the Am. Wat. Works Assoc. Water Quality Technology Conference', 1996, Boston, MA, p.18.
49. Kolter R., D.A. Siegele, and A. Tormo, *Ann. Rev. Microbiol.*, 1993, **47**, 855.
50. Kuchta J. M., S. J. States, J. E. McGlaughlin, J. H. Overmeyer, R. M. Wadowsky, A. M. McNamara, R. S. Wolford, and R. B. Yee, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1985, **50**, 1, 21.
51. Lange R. and R. Hengge-Aronis, *J. Bacteriol.*, 1991a, **173**, 14, 4474.
52. Lange R. and R. Hengge-Aronis, *Molecular Microbiology*, 1991b, **5**, 1, 49.
53. Laurent P., P. Servais, and G. Randon, *Wat. Supply*, 1993, **11**, 387.
54. LeChevallier M. W., C. D. Cawthon, and R. G. Lee, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1988a, **54**, 3, 649.
55. LeChevallier M. W., C. D. Cawthon, and R. G. Lee, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1988b, **54**, 10, 2492.
56. LeChevallier M. W., C. D. Lowry, and R. G. Lee, *J. Am. Wat. Works Assoc.*, 1990, **82**, 7, 87.
57. LeChevallier M. W., C. D. Lowry, R. G. Lee, and D. L. Gibbon, *J. Am. Wat. Works Assoc.*, 1993, **85**, 7, 111.
58. LeChevallier M. W., M. W., T. S. Hassenauer, A. K. Camper, and G. A. McFeters, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1984, **48**, 5, 918.
59. LeChevallier M. W., R. J. Seidler, and T. M. Evans, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1980, **40**, 5, 922.
60. LeChevallier M. W., T. M. Babcock, and R. G. Lee, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1987, **53**, 12, 2714.
61. LeChevallier M. W., T. M. Evans, and R. J. Seidler, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1981, **42**, 1, 159.
62. Lepock J. R., 'Advances in Molecular and Cell Biology', 1997, **19**, 223.
63. Lévi Y. and J. C. Joret, 'Proceedings of the Am. Wat. Works Assoc. Water Quality Technology Conference', 1990, San Diego, Ca., p. 1267.
64. Leyval C., C. Arz, J.C. Block, and M. Rizet, *Environmental Technology Letters*, 1984, **5**, 359.
65. Loewen P. C. and B.L. Triggs, *J. Bacteriol.*, 1984, **160**, 2, 668.
66. Loewen P. C. and R. Hengge-Aronis, *Annu. Rev. Microbiol.*, 1994, **48**, 53.
67. Loewen P. C., B.L. Triggs, C.S. George, and B.E. Hrabarchuk, *J. Bacteriol.*, 1985, **162**,2, 661.
68. Lu C., P. Biswas, and R. M. Clark, *Wat. Res.*, 1995, **29**, 3, 881.
69. Lund V. and K. Ormerod, *Wat. Res.*, 1995, **29**, 4, 1013.
70. Mathieu L., J. L. Paquin, J.C. Block, G. Randon, J. Mailliard, and D. J. Reasoner, *Revue des Sciences de l'Eau*, 1992, **5** (N° spécial), 91.
71. Mathieu L., J.C. Block, M. Dutang, J. Mailliard, and D. J. Reasoner, *Water Supply*, 1993, **11**, 365.
72. Mathieu L., J.C. Block, M. Prévost, A. Maul, and R. DeBischof, *J. Water SRT-Aqua*, 1995, **44**, 5, 230.
73. McCann M. P., J.P. Kidwell, A. Matin, *J. Bacteriol.*, 1991, **173**, 4188.
74. McCoy W. F. and B. H. Olson, *Wat. Res.*, 1986, **8**, 1023.

75. Mir J., J. Morato, and F. Ribas, *J. Appl. Bacteriol.*, 1997, **82**, 7.
76. Morin P. and A. K. Camper, *Wat. Res.*, 1997, **31**, **3**, 399.
77. Morin P., A. Camper, W. Jones, D. Gatel, and J. C. Goldman, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1996, **62**, **12**, 4428.
78. Morin P., PhD Thesis, *Université H. Poincaré-Nancy I*, 1997. 185 p.
79. Mouchet P., *J. Am. Wat. Works Assoc.*, 1992, **4**, 158.
80. Muffler A., M. Barth, C. Marschall, and R. Hengge-Aronis, *J. Bacteriol.*, 1997, **179**, **2**, 445.
81. Neden D. G., R. J. Jones, J. R. Smith, G. J. Kirmeyer, and G. W. Foust, *J. Am. Wat. Works Assoc.*, 1992, **84**, **7**, 80.
82. Olson B. H. and M. H. Stewart, 'Water chlorination: Chemistry, environmental impact and health effects', 1990, Lewis publishers, Chelsea, MN., volume 6, p. 885.
83. Paquin J-L., J-C. Block, K. Haudidier, P. Hartemann, F. Colin, J. Miazga, and Y. Lévi, *Revue des Sciences de l'Eau*, 1992, **5**, 399.
84. Parent A., S. Saby, M. Sardin, J C., and D. Gatel, 'Proceedings of the Am. Wat. Works Assoc. Water Quality Technology Conference', 1996, Boston, MA. 16 p.
85. Pernitsky D. J., G. R. Finch, and P. M. Huck, *Wat. Res.*, 1995, **29**, **5**, 1235.
86. Preez M. and R. Kfir, *Water Supply*, 1995, **13**, **2**, 75.
87. Redercher S., Master's Thesis, *Université H. Poincaré-Nancy I*, 1996. 30 p.
88. Reilly J. K. and J. S. Kippin, *J. Am. Wat. Works Assoc.*, 1983, **75**, **6**, 309.
89. Ridgway H. F. and B. H. Olson, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1981, **41**, 274.
90. Ridgway H. F. and B. H. Olson, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1982, **44**, **4**, 972.
91. Rockabrand D., T. Arthur, G. Korinek, K. Livers, and P. Blum, *J. Bacteriol.*, 1995, **177**, **13**, 3695.
92. Rumeau M, 'Point sur l'Epuraton et le Traitement des Effluents (eau-air)', Lavoisier, Paris, 1982, p. 141.
93. Saby S., I. Sibille, L. Mathieu, J.L. Paquin, and J.C. Block, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1997, **63**, **4**, 1564.
94. Schlichting H., 'Boundary layer theory', Prentice Hall, Englewood Cliffs, 1968.
95. Servais P., G. Billen, P. Bouillot, and M. Benezet, *J. Water SRT-Aqua*, 1992a, **41**, **3**, 163.
96. Servais P., G. Billen, P. Laurent, Y. Lévi, and G. Randon, *Revue des Sciences de l'Eau*, 1992b, **5** (n° spécial), 69.
97. Siegele A. and R. Kolter, *J. Bacteriol.*, 1992, **174**, **2**, 345.
98. Sly L. I., M. C. Hodgkinson, and V. Arunpairojana, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1990, **56**, **3**, 628.
99. Sly L. I., M. C. Hodgkinson, and V. Arunpairojana, *FEMS Microbiol. Ecol.*, 1988, **53**, 175.
100. Srinivasan R., P. S. Stewart, T. Griebe, C. I. Chen and X. Xu, *Biotech. Bioengng.*, 1995, **46**, 553.
101. Stewart M. H. and B.H. Olson, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1992a, **58**, 2649.
102. Stewart M. H. and B.H. Olson, *Appl. Environ. Microbiol.*, 1992b, **58**, 2918.
103. Stewart M. H., R. L. Wolfe, and E. G. Means. *Appl. Environ. Microbiol.*, 1990, **56**, **12**, 3822.
104. Stringfellow W. T., K. Mallon, and F. A. Digiano, *J. Am. Wat. Works Assoc.*, 1993, **85**, **9**, 70.
105. Thogersen J. and E. Dahi, *World J. Microbiol. Biotechnol.*, 1996, **12**, 549.
106. Tsaneva I. R. and B. Weiss, *Biotech. Progress*, 1990, **3**, **2**, 57.
107. UKWIR, 'UKWIR reports', 1997, London. In press.
108. VanBogelen A., P.M. Kelley, and F.C. Neidhart, *J. Bacteriol.*, 1987, **169**, 26.
109. Van der Wende E., W. G. Characklis, and D. B. Smith, *Wat. Res.*, 1989, **23**, **10**, 1313.
110. Walker G. C., 'Escherichia coli and Salmonella: cellular and molecular biology', 2nd ed. American Society for Microbiology, Washington, D.C, 1996, p. 1400.
111. Wolfe R. L., N. R. Ward, and B. H. Olson, *Wat. Res.*, 1985, **19**, **11**, 1393.
112. Yu F. P., B. H. Pyle, and G. A. McFeters, *J. Microbiol. Meth.*, 1993, **17**, 167.
113. Yura T., H. Nagai, and H. Mori, *Annu. Rev. Microbiol.*, 1993, **47**, 321.

IV.3 Chlorine inactivation of bacteria attached to goethite particles in drinking water

Les facteurs déterminant la résistance apparente des populations fixées aux canalisations et aux particules ont été identifiés au chapitre IV.2. Dans le cas des bactéries associées aux particules en suspension, il apparaît que l'ordre de grandeur de leur concentration est quasi-inconnu du fait de la difficulté à distinguer, lors des analyses réglementaires classiques par culture sur gélose, les bactéries isolées des bactéries associées à la matière particulaire (particule colonisée, agrégats, bactéries associées aux autres entités biologiques). L'inactivation des bactéries associées aux particules en suspension a été principalement étudiée pour des modèles de particules susceptibles d'être relarguées par les usines de traitement, et la résistance à la désinfection de ces bactéries est classiquement attribuée à la fixation sur une surface (Herson *et al.*, 1987 ; Berman *et al.*, 1988 ; Stewart *et al.*, 1990 ; Stringfellow *et al.*, 1993 ; Morin, 1997), sans que le mécanisme principal de résistance soit identifié (moindre exposition au désinfectant, ou résistance cellulaire induite/intrinsèque).

Nous avons voulu ici identifier ce mécanisme dans un cas particulier et simple de bactéries fixées (ou non) sur un type de particule peu réactive avec le chlore, la goethite (oxy-hydroxyde de fer).

Des suspensions (a) de bactéries et (b) de particules colonisées sont désinfectées à l'aide de $1,1 \text{ mg L}^{-1}$ de chlore pendant 30 minutes, et les bactéries survivantes sont dénombrées par culture sur gélose. L'évaluation de la fixation ou de l'agrégation des cellules est obtenue par comparaison d'échantillons dispersés (ou non) par sonication.

La résistance à la désinfection par le chlore n'apparaît pas favorisée par l'adhésion sur les particules de goethite, puisque les abattements obtenus sont les mêmes pour les bactéries fixées et en suspension. Ceci n'est toutefois observable que si l'efficacité désinfectante est mesurée après dispersion des échantillons, ce qui est indispensable dans le cas d'un dénombrement bactérien d'agrégats ou de bactéries fixées par la technique des unités formant colonies.

Dans l'eau, les particules survivant à la chloration sont présentes sous forme d'agrégats comprenant 200 UFC en moyenne et la résistance résulte alors probablement de la diffusion limitée et de la réduction des désinfectants au sein de l'agrégat. Pour les particules colonisées, la notion d'agrégats fixés à la surface des particules et observés en microscopie joue probablement aussi un rôle comparable à celui des agrégats en suspension dans la résistance des bactéries à l'inactivation.

Ainsi, dans le cas d'un support particulaire non consommateur de chlore, c'est l'agrégation à la surface de la particule plutôt que la fixation elle-même qui expliquerait la résistance apparente des bactéries fixées.

Ces résultats sont détaillés dans le projet de publication présenté ci-après et soumis à la revue *Applied and Environmental Microbiology*.

**Chlorine inactivation of bacteria attached
to goethite particles in drinking water**

Running title: Inactivation of particle-attached bacteria in water

Vincent GAUTHIER^{1,2}, Stéphane REDERCHER¹, Jean-Claude BLOCK^{1,2,*}

¹ Laboratoire Santé-Environnement, GIP STELOR, *UMR Université-CNRS n°7564*, 5
rue Albert Lebrun, 54000 Nancy, France,

² NANCIE, *149 rue G. Péri, BP 290, 54515 Vandoeuvre cedex, France,*

* corresponding author: phone: +33 383 17 88 49;

fax: +33 383 17 88 79;

e-mail: block@pharma.u-nancy.fr

Abstract:

Suspensions of tap-water bacteria, attached or not attached to goethite particles, were disinfected with chlorine. No additional protection was provided to the bacteria by their attachment to particles, and the limited efficiency of inactivation by chlorine was attributed to the presence of bacterial aggregates in both types of suspension.

Transport of drinking water in distribution systems generally requires the addition of disinfectants to water in order to limit regrowth of bacteria. The bacteria found in the distribution water may occur as single, aggregated or particle-attached bacteria (Fig. 1). Such bacteria may originate from treatment plants (2), biofilm shearing (18, 21, 25) or resuspension of deposits (9, 14, 19). Concerns about the limited efficiency of the disinfection of particle-attached bacteria have resulted from the observation of colonized particles in treatment plant filter effluents (3, 12, 15-17, 24, 26) or in distribution system water (20). By analogy to biofilms (4, 8), survival of particle-attached bacteria has been mainly attributed to (i) high disinfectant reactivity of the particle surfaces, coupled with (ii) limited mass transfer at the interface, which could lead to low quantities of oxidant available for inactivation of bacterial cells. Thus, it is generally assumed that particle-attached bacteria are more resistant to disinfection than freely suspended bacteria (15, 24).

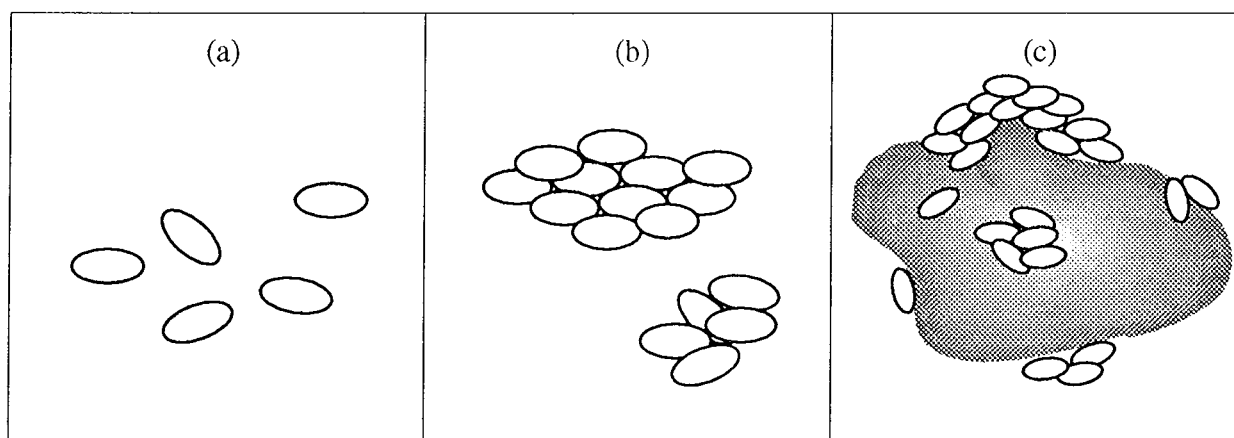


Figure 1: Different types of bacteria in suspension in drinking water: (a) isolated suspended cells; (b) aggregated suspended cells; (c) isolated and aggregated attached cells.

We have shown that this concept is not extrapolable to the case of single bacteria attached to goethite ($\alpha\text{-FeOOH}$) particles, which may represent classical corrosion particles with a low disinfectant demand. Experiments were performed with a bacterial strain isolated from tap water (*Sphingomonas sp.*) which is slightly resistant to chlorine. We compared the results for attached bacteria with the results obtained by disinfecting a particle-free suspension ((c) versus (a) and (b), Figure 1). The number of attached and or aggregated bacteria was evaluated by culture of both sonicated and unsonicated subsamples of chlorinated and control samples.

A *Sphingomonas sp.* bacterial strain was isolated from the Nancy distribution system tap water (after a 1 hour exposure to $1 \text{ mg Cl}_2 \text{ L}^{-1}$ free chlorine). Suspensions of this pure strain were prepared by growing it in nutrient broth (Biomérieux, ref. 51016; 24 h; 30°C), harvesting cells by centrifugation ($15,000 \text{ g}$; 20 minutes; 20°C), washing with Evian water, and centrifuging again to eliminate broth nutrients. Filter-sterilized glass-bottled Evian mineral water was used for all experiments to ensure a constant mineral composition of water and low organic content ($\text{TOC} = 0.3 \text{ mg C L}^{-1}$). Then cells were resuspended in Evian water and incubated (24 h; 20°C) to acclimate them to low nutrient conditions. Polymers released by the organisms during incubation

were eliminated by a double centrifugation/Evian water resuspension as above. The final cell resuspension in Evian water was used for inactivation and particle colonization experiments.

Particle colonization was achieved by mixing for 24 h (20°C; 220 rpm) in a chlorine-demand-free flask (a) 200 mL of a suspension containing 625 mg L⁻¹, *i.e.* about 10⁷ goethite particles L⁻¹ (Aldrich Chemical Co, Inc., ref. 37,125-4, size range 10-50 µm), and (b) 200 mL of a suspension of bacteria acclimated to low nutrient conditions. Particles with firmly attached bacteria were washed by repeating the following cycle 6 times: (i) vigorous hand-shaking for 10 s; (ii) 5-minutes sedimentation; (iii) siphon and discard of the supernatant (350 mL); (iv) resuspension of the remaining 50 mL in 350 mL Evian water.

Inactivation experiments were performed by dosing freely suspended or particle-attached *Sphingomonas* suspensions with chlorine (1.1 mg Cl₂ L⁻¹) in chlorine demand-free flasks. After 30 minutes, biocide action was stopped by adding sodium thiosulfate (10 mg L⁻¹). Free chlorine measurements were performed by the DPD-colorimetric method (AFNOR T90-038) using a Hitachi U-2000 spectrophotometer. The enumeration of culturable bacteria was performed by inoculating 1 mL of appropriate dilutions into 15 mL of glucose-free nutrient agar (AFNOR T90-402). Plates were incubated at 30°C for 15 days to allow enumeration of slow growing bacteria adapted to oligotrophic conditions. Results were expressed as colony forming units (CFU) with one CFU representing a single cell, an aggregate or a colonized particle. Dispersion of attached or aggregated bacteria was performed by sonicating subsamples (sonicator Labsonic 2000 U; 19 mm probe; 20 W; 60 s; ice cooling). Average numbers of culturable bacteria per particle or aggregate were obtained by computing the ratio of CFU mL⁻¹ for sonicated and non-sonicated samples.

During inactivation experiments with freely suspended bacteria, the concentration of free chlorine decreased regularly from 1.1 to 0.2 mg Cl₂ L⁻¹ after 30 minutes with an apparent 6.4 log₁₀ decrease in CFU measured without dispersion by sonication (Fig. 2). The actual disinfection efficiency was limited to only 4.0 log₁₀ if bacteria were counted after dispersion by sonication following the chlorination. This revealed that some of the bacteria that survived disinfection were forming aggregates. The observed difference between the CFU numbers with and without sonication showed an average concentration of 20 aggregates per mL, each aggregate being composed of 200 CFU. For unchlorinated samples, sonication did not reveal aggregated bacteria in the original *Sphingomonas* suspension (Fig. 2). Nevertheless, the presence of aggregates up to 1% of total CFU numbers could have remained undetected in such samples due to the high number of unaggregated cells.

For inactivation experiments with bacteria attached to goethite particles, evidence of bacterial attachment was determined by epifluorescence microscopic examination of the samples: particles were colonized both with single bacteria and with aggregates (as represented in Fig. 1). This was confirmed by a drastic increase in the bacterial density of unchlorinated samples after sonication (from 3.7 × 10⁴ to 2.0 × 10⁷)(Fig. 3); the difference was attributable to the number of bacteria

attached per particle (about 550 CFU/colonized particle). Goethite particles generated little free chlorine demand which resulted in a final concentration of 0.94 mg Cl₂ L⁻¹ for uncolonized particles after 30 minutes; contact with colonized particles resulted in a final concentration of 0.74 mg Cl₂ L⁻¹. Disinfection of colonized particles resulted in an identical 3.4 log₁₀ reduction for both the number of CFU counted prior to sonication and after sonication (Fig. 3). This corresponded to an average of 645 CFU/particle after chlorination, very close to that observed prior to chlorination.

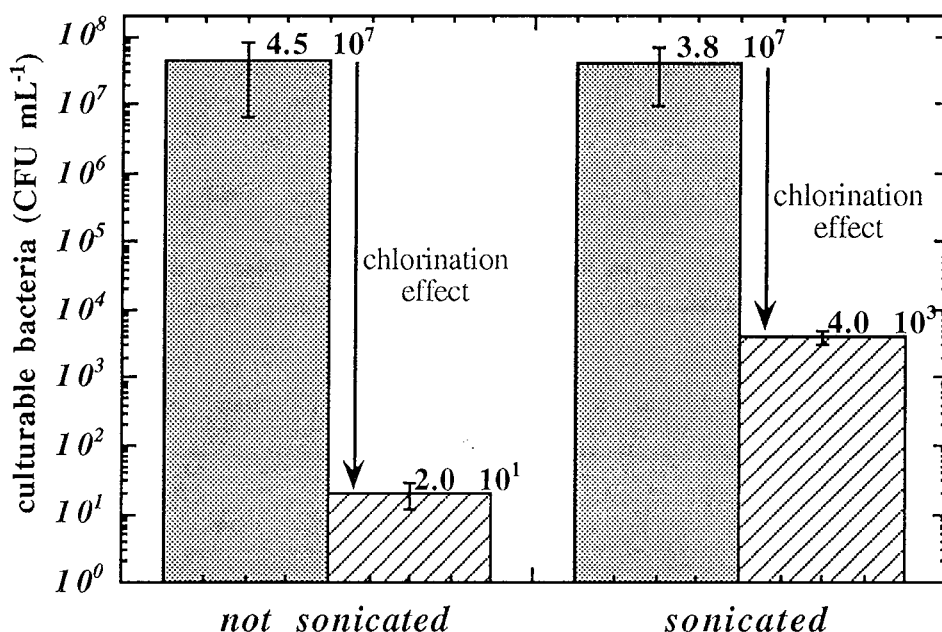


Figure 2: Effect of sonication on chlorinated and unchlorinated *Sphingomonas* in Evian water (■: unchlorinated samples; ▨: chlorinated samples; n=3; **note**: sonication was performed *after* chlorine exposure).

For inactivation experiments with bacteria attached to goethite particles, evidence of bacterial attachment was determined by epifluorescence microscopic examination of the samples: particles were colonized both with single bacteria and with aggregates (as represented in Fig. 1). This was confirmed by a drastic increase in the bacterial density of unchlorinated samples after sonication (from 3.7 × 10⁴ to 2.0 × 10⁷)(Fig. 3); the difference was attributable to the number of bacteria attached per particle (about 550 CFU/colonized particle). Goethite particles generated little free chlorine demand which resulted in a final concentration of 0.94 mg Cl₂ L⁻¹ for uncolonized particles after 30 minutes; contact with colonized particles resulted in a final concentration of 0.74 mg Cl₂ L⁻¹. Disinfection of colonized particles resulted in an identical 3.4 log₁₀ reduction for both the number of CFU counted prior to sonication and after sonication (Fig. 3). This corresponded to an average of 645 CFU/particle after chlorination, very close to that observed prior to chlorination.

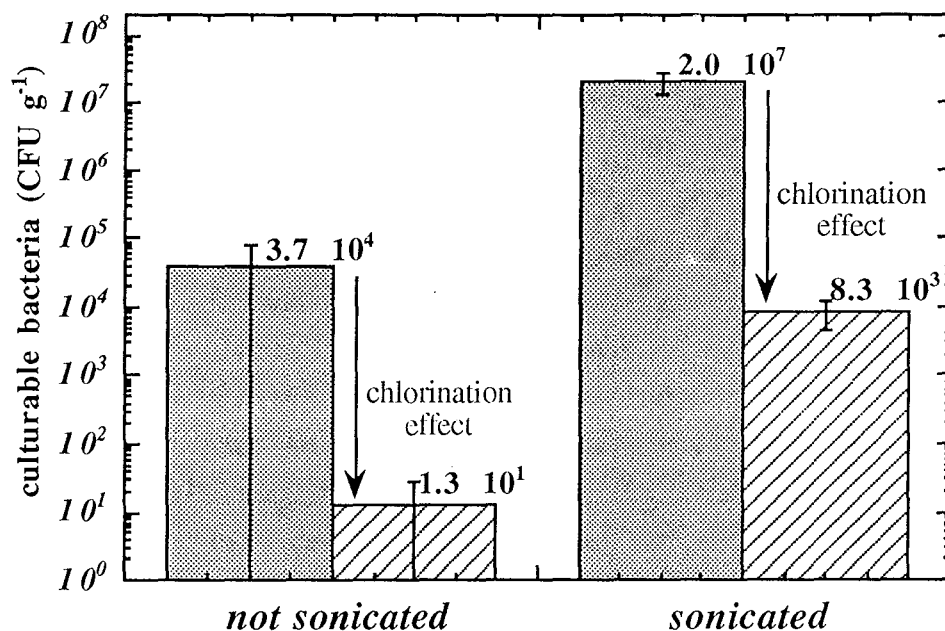


Figure 3: Effect of sonication on chlorinated and unchlorinated *Sphingomonas* attached on goethite particles in Evian water (■: unchlorinated samples; ▨: chlorinated samples; n=3; note: sonication was performed after chlorine exposure).

The comparison of results obtained for freely suspended and attached bacteria (Fig. 2 and 3) showed a similar disinfection efficiency after exposure to 1.1 mg Cl₂ L⁻¹ (4 versus 3.4 log₁₀ reduction). Thus attachment to goethite particles did not provide bacteria with significant protection to disinfection.

These results are contrary to those obtained for inactivation experiments with GAC particles (12, 24), iron and manganese resuspended deposits (10) or waste-water-particles (1). Nevertheless, all of these particles may exert a non-negligible disinfectant demand thus reducing the quantity of oxidant available for bacterial inactivation. This may also explain why Stringfellow *et al.* (26) and Permitsky *et al.* (17) measured a lower disinfection efficiency for high GAC particle concentrations, and why Berman *et al.* (1) observed better disinfection for bacteria fixed on small particles. In our case, a very low disinfectant reduction by the particles was measured (about 10% after 30 minutes), and mass transfer was also enhanced by continuous agitation during experiments. Most of the surviving bacteria appeared within aggregates for suspended bacteria inactivation experiments. On the other hand, only a few particles bore several hundred culturable bacteria on their surfaces, probably in the form of microcolonies or clumps as such formations were observed during microscopic examination of samples. In such a configuration, protection from disinfection resulted from limited diffusion (7, 13) coupled with disinfectant reduction inside bacterial aggregates (8, 23), and resistance due to exopolymers coating aggregated bacterial cells

cannot be excluded (5). The protection of single bacteria gained from attachment to goethite particles was probably negligible, as long as this material which is often found in distribution system corrosion deposits (22) is not coated with organic matter (6, 11) which creates some oxidant demand.

Thus, the general concern about inactivation of particle-attached bacteria should be resolved on the whole without forgetting the simultaneous presence of bacterial clumps in water which are not systematically detected by particle counters. Both clumps and particles can transport culturable bacteria throughout the water system despite the presence of a disinfectant residual in the water.

This work was conducted as part of a larger research program entitled "Biofilm", co-ordinated by the Centre International de l'Eau de Nancy (NANCIE, France). It was funded by: Agence de l'Eau Seine-Normandie (AESN, France), Anjou-Recherche (CGE, France), Communauté Urbaine du Grand Nancy (France), Office National de l'Eau Potable (ONEP, Morocco), Syndicat des Eaux d'Ile de France (SEDIF, France), Pont-à-Mousson S.A. (France), and NANCIE.

References

1. **Berman D., Rice E.W. and Hoff J.C.** 1988. Inactivation of particle-associated coliforms by chlorine and monochloramine. *Appl. Environ. Microbiol.* **54**:507-512.
2. **Bucklin K.E., McFeters G.A. and Amirtharajah A.** 1991. Penetration of coliforms through municipal drinking water filters. *Water Res.* **25**:1013-1017.
3. **Camper A.K., LeChevallier M.W., Broadway S.C. and McFeters G.A.** 1986. Bacteria associated with granular activated carbon particles in drinking water. *Appl. Environ. Microbiol.* **52**:434-438.
4. **Chen C.I., Griebe T. and Characklis W.G.** 1993. Biocide action of monochloramine on biofilm systems of *Pseudomonas aeruginosa*. *Biofouling* **7**:1-17.
5. **Clark R.M., Rice E.W., Pierce B.K., Johnson C.H. and Fox K.R.** 1994. Effect of aggregation on *Vibrio cholerae* inactivation. *J. Environ. Engin.* **120**:875-887.
6. **Day G.M., Hart B.T., McKelvie I.D. and Beckett R.** 1997. Influence of natural organic matter on the sorption of biocides onto goethite. I: gamma-BHC and atrazine. *Environ. Technol.* **18**:769-779.
7. **De Beer D., Stoodley P. and Lewandowski Z.** 1994. Liquid flows in heterogeneous biofilms. *Biotechn. Bioeng.* **44**:636-641.
8. **De Beer D., Srinivasan R. and Stewart P.S.** 1994. Direct measurement of chlorine penetration into biofilms during disinfection. *Appl. Environ. Microbiol.* **60**:4339-4344.
9. **Gauthier V., Gérard B., Portal J.M. and Block J.C.** Submitted for publication.
10. **Herson D.S., McGonagle B., Payer M.A. and Baker K.H.** 1987. Attachment as a factor in the protection of *Enterobacter cloacae* from chlorination. *Appl. Environ. Microbiol.* **53**:1178-1180.
11. **Korshin G.V., Benjamin M.M. and Sletten R.S.** 1997. Adsorption of natural organic matter (NOM) on iron oxide: effects of NOM composition and formation of organohalide compounds during chlorination. *Water Res.* **31**:1643-1650.
12. **LeChevallier M.W., Hassenauer T.S., Camper A.K. and McFeters G.A.** 1984. Disinfection of bacteria attached to granular activated carbon. *Appl. Environ. Microbiol.* **48**:918-923.
13. **Matson J.V. and Characklis W.G.** 1976. Diffusion into microbial aggregates. *Water Res.* **10**:877-885.

14. **McMath S.M., Delanoue A. and Holt D.M.** 1997. "Clumps" shed from pipewalls in distribution systems. *In Proc. Wat. Quality Technol. Conf. of Am. Wat. Wks Assoc., Denver, Co, 9-12 November 1997.* 14 p.
15. **Morin P., Camper A., Jones W., Gatel D. and Goldman J.C.** 1996. Colonization and disinfection of biofilms hosting coliform-colonized carbon fines. *Appl. Environ. Microbiol.* **62**:4428-4432.
16. **Morin P., Gauthier V., Saby S. and Block J.C.** 1998. Bacterial resistance to chlorine through attachment to particles and pipe surfaces in drinking water distribution systems. *In Proc. "Biofilms in Aquatic Systems" Conf. Roy. Soc. Chemistry, Warwick Univ., UK, 14-16 April 1997 (in press).*
17. **Pernitsky D.J., Finch G.R. and Huck P.M.** 1997. Recovery of attached bacteria from GAC fines and implications for disinfection efficacy. *Water Res.* **31**:385-390.
18. **Peyton B.M. and Characklis W.G.** 1992. Kinetics of biofilm detachment. *Water Sci. Tech.* **26**:1995-1998.
19. **Ridgway H.F. and Olson B.H.** 1981. Scanning electron microscope evidence for bacterial colonization of a drinking water distribution system. *Appl. Environ. Microbiol.* **41**:274-287.
20. **Ridgway H.F. and Olson B.H.** 1982. Chlorine resistance patterns of bacteria from two drinking water distribution systems. *Appl. Environ. Microbiol.* **44**:972-987.
21. **Rittmann B.E.** 1982. The effect of shear stress on biofilm loss rate. *Biotechn. Bioeng.* **24**:501-506.
22. **Smith S.E., Bisset A., Colbourne J.S., Holt D. and Lloyd B.J.** 1997. The occurrence and significance of particles and deposits in a drinking water distribution system. *J. New England Water Wks. Assoc.* **111**:135-150.
23. **Stewart M. H. and Olson B.H.** 1986. Mechanisms of bacterial resistance to inorganic chloramines. *In Proc. Wat. Quality Technol. Conf. of Am. Wat. Wks Assoc., Denver, Co, 577-590.*
24. **Stewart M.H., Wolfe R.L. and Means E.G.** 1990. Assessment of the bacteriological activity associated with granular activated carbon treatment of drinking water. *Appl. Environ. Microbiol.* **56**:3822-3829.
25. **Stewart P.S., Peyton B.M., Drury W.J. and Murga R.** 1993. Quantitative observations of heterogeneities in *Pseudomonas aeruginosa* biofilms. *Appl. Environ. Microbiol.* **59**:327-329.
26. **Stringfellow W.T., Mallon K. and Digiano F.A.** 1993. Enumerating and disinfecting bacteria associated with particles released from GAC filters-adsorbers. *J. Am. Water Wks Assoc.* **85**:70-80.

IV.4 Discussion

Les bactéries associées aux particules en suspension méritent d'être distinguées des autres populations bactériennes des réseaux d'eau potable, car :

- elles bénéficient, comme les bactéries des biofilms, d'une certaine protection par rapport aux désinfectants présents dans l'eau,
- elles sont, comme les bactéries isolées en suspension dans l'eau, susceptibles d'être transportées rapidement d'un point à l'autre du réseau et d'atteindre les consommateurs.

Il importe donc d'évaluer leur présence et leur capacité de survie dans les conditions d'exposition à un désinfectant représentatives des réseaux de distribution d'eau potable.

Quantité de bactéries associées aux particules en suspension

La présence de telles bactéries a été mise en évidence par plusieurs auteurs, mais ces données sont fragmentaires et ne permettent pas de se faire une idée précise de l'importance de ces bactéries "particulaires" vis à vis de la contamination microbienne des réseaux. On suppose que le risque existe, un point c'est tout ! En effet, quelques auteurs seulement ont recherché et trouvé des bactéries associées aux particules en réseau de distribution d'eau potable, avec des méthodologies et résultats forts différents :

- Rigway et Olson (1981) ont observé que la majorité des particules [10-50 μm] de leurs échantillons n'étaient pas colonisées. Seules 17% d'entre elles portaient à leur surface 10 à 100 bactéries, habituellement toutes avec la même morphologie. Néanmoins, les conditions de prélèvement (purge d'un poteau à incendie à $48 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ pendant une minute avant récupération des particules par filtration d'un aliquote) correspondent plus à une remise en suspension de dépôts qu'à une récupération de particules habituellement en suspension dans l'eau et ne reflètent donc pas le transport de bactéries par des particules peu sédimentables.
- Brazos et O'Connor (1990) ont filtré l'eau en réseau de distribution sans remise en suspension de dépôts, et différentes fractions particulaires et bactériennes ont été évaluées (Tableau IV.4.1). Les quantités de particules colonisées sont faibles par rapport aux autres particules biologiques, et la fraction bactérienne fixée correspond toujours à moins de 0,01 % du nombre total de cellules en suspension. Le nombre de particules colonisées trouvées ici illustre la difficulté de repérer ces dernières lors d'une numération des bactéries par microscopie à épifluorescence classique (si le volume d'eau filtré est tel qu'un champ de microscope comprend environ 30 cellules bactériennes, il faudra compter 1800 champs avant de tomber sur une particule colonisée !). De même, la dispersion de l'échantillon pour décrocher les bactéries fixées (par sonication par exemple) augmentera le nombre de bactéries isolées d'une fraction $<0,01\%$, indétectable par les techniques microbiologiques classiques.

Tableau IV.4.1 : Types de particules et cellules bactériennes en réseau de distribution (d'après Brazos et O'Connor, 1990)

| Particules $\geq 3 \mu\text{m}$ | | moyenne campagne de février (n=17) | moyenne campagne de septembre (n=16) |
|--|------------------------|---|---|
| Bactéries allongées (bacilles) | mL ⁻¹ | 405 | 97 |
| Cellules algales | mL ⁻¹ | 542 | 25 |
| Particules $\geq 3 \mu\text{m}$ colonisées par plus de 5 bactéries | mL ⁻¹ | 1,87 | 3,51 |
| Total particules $\geq 3 \mu\text{m}$ | mL⁻¹ | 1116 | 293 |
| Bactéries | | | |
| Nombre total de cellules | mL ⁻¹ | 9,1 10 ⁵ | 1,9 10 ⁵ |
| Fraction associée aux particules | % | <0,01 | <0,01 |

Toutefois, on ne peut exclure que les chiffres présentés par Brazos et O'Connors soient aussi sous estimés du fait de la dislocation d'agrégats bactériens (dont rien n'est dit) ou du décrochage de bactéries des particules durant la filtration sur membrane de 3 μm .

- les données McMath *et al.* (1997) donnent une vision différente de la répartition des populations bactériennes associés aux particules (quantifiées aussi par microscopie à épifluorescence) dans l'eau d'un réseau de distribution pilote soumis à des variations de vitesse d'écoulement. Les différents types de bactéries "particulaires" et les proportions correspondantes en régime hydraulique stationnaire et en l'absence de désinfectant sont présentés dans le tableau IV.4.2

Tableau IV.4.2 : Nombre total de cellules bactériennes et fractions associées aux particules dans un réseau de distribution pilote fonctionnant en régime hydraulique stationnaire et sans désinfectant résiduel (d'après McMath *et al.*, 1997)

| | |
|--|---|
| Nombre total de cellules mL ⁻¹ | approx. 2 10 ⁵ à 10 ⁶ |
| Amas ("clumps") organiques incluant plus de 10 bactéries | 0 à 30 % |
| Microcolonies résultant de la division cellulaire | jusqu'à 11% |
| Bactéries fixées à la surface d'une particule minérale | inférieur à 4% |

La fraction de bactéries associée à la matière particulaire en suspension est ici bien plus importante que dans l'étude de Brazos et O'Connor (1990), mais ceux-ci n'identifiaient pas explicitement d'amas dans l'eau de leur réseau. La relativement forte proportion d'amas de plus de 10 bactéries peut être ici expliquée par l'érosion permanente du biofilm (Stewart *et al.*, 1993). Elle est encore plus importante en cas d'augmentation de la vitesse, pouvant alors atteindre 60% du nombre total de bactéries : ceci est attribué à l'arrachage et

à la mise en suspension de "morceaux" de biofilm développé dans des conditions hydrauliques stables et soumis brusquement à une force de cisaillement plus importante. Les mêmes auteurs observent aussi une augmentation de la fraction de bactéries présentes dans l'eau sous forme d'amas lors d'une chloration : ceci peut résulter (a) de l'oxydation de molécules organiques du biofilm provoquant le détachement des cellules fixées (Griebe, 1994), ou d'un moins bon marquage par le fluorochrome des bactéries isolées préalablement exposées au chlore (Saby *et al.*, 1997). Le jeu de données présenté ne permet toutefois pas de trancher par rapport à ces deux hypothèses.

- la filtration d'eau de réseau de distribution couplée à l'observation microscopique réalisées dans le cadre de notre étude ont aussi permis de détecter la présence d'amas et de particules colonisées (Fig. IV.4 (a) à (d)) après marquage des bactéries au DAPI (Porter et Feig (1980) adaptée par Saby *et al.* (1997)). Les tentatives de dénombrement (non détaillées ici) ont principalement mis en évidence les points suivants : (a) les densités de particules colonisées sont faibles, comparables à celles mesurées par Brazos et O'Connor (1990) ; (b) les quantifications apparaissent peu fiables du fait de l'hétérogénéité de la répartition des quelques particules colonisées sur les filtres ; (c) le nombre et la taille des amas diminuent en fonction du volume d'eau filtré pour les récupérer sur membrane, indiquant la destruction de certains amas durant la procédure de filtration.

Au final, le nombre de bactéries associées aux particules en suspension dans l'eau n'est donc que peu évalué en réseau de distribution d'eau potable, ce qui est un corollaire du manque d'informations disponibles sur la nature des particules en suspension dans l'eau déjà noté au chapitre I. Les fortes proportions de bactéries agrégées retrouvées par McMath *et al.* (1997) résultent peut-être du régime hydraulique parfaitement contrôlé dans le réseau expérimental étudié, alors qu'en réseau réel, le régime hydraulique instationnaire et turbulent dans certaines sections de canalisation provoquerait le détachement de cellules du biofilm sous forme d'agrégats de plus petite taille, ou de cellules individuelles. Ceci expliquerait les faibles proportions de bactéries "particulaires" retrouvées par Brazos et O'Connor (1990) et observées dans notre étude.

Le détachement de cellules du biofilm sous forme d'agrégats de plus petite taille en réseau réel serait de toute évidence un facteur favorable à l'inactivation de ces bactéries par un désinfectant présent dans la phase eau. Par contre, les zones mortes ou surdimensionnées des réseaux de distribution seraient plus favorables au relarguage dans l'eau d'amas bactériens de grande taille, en cas d'augmentation rapide de la vitesse de l'écoulement.

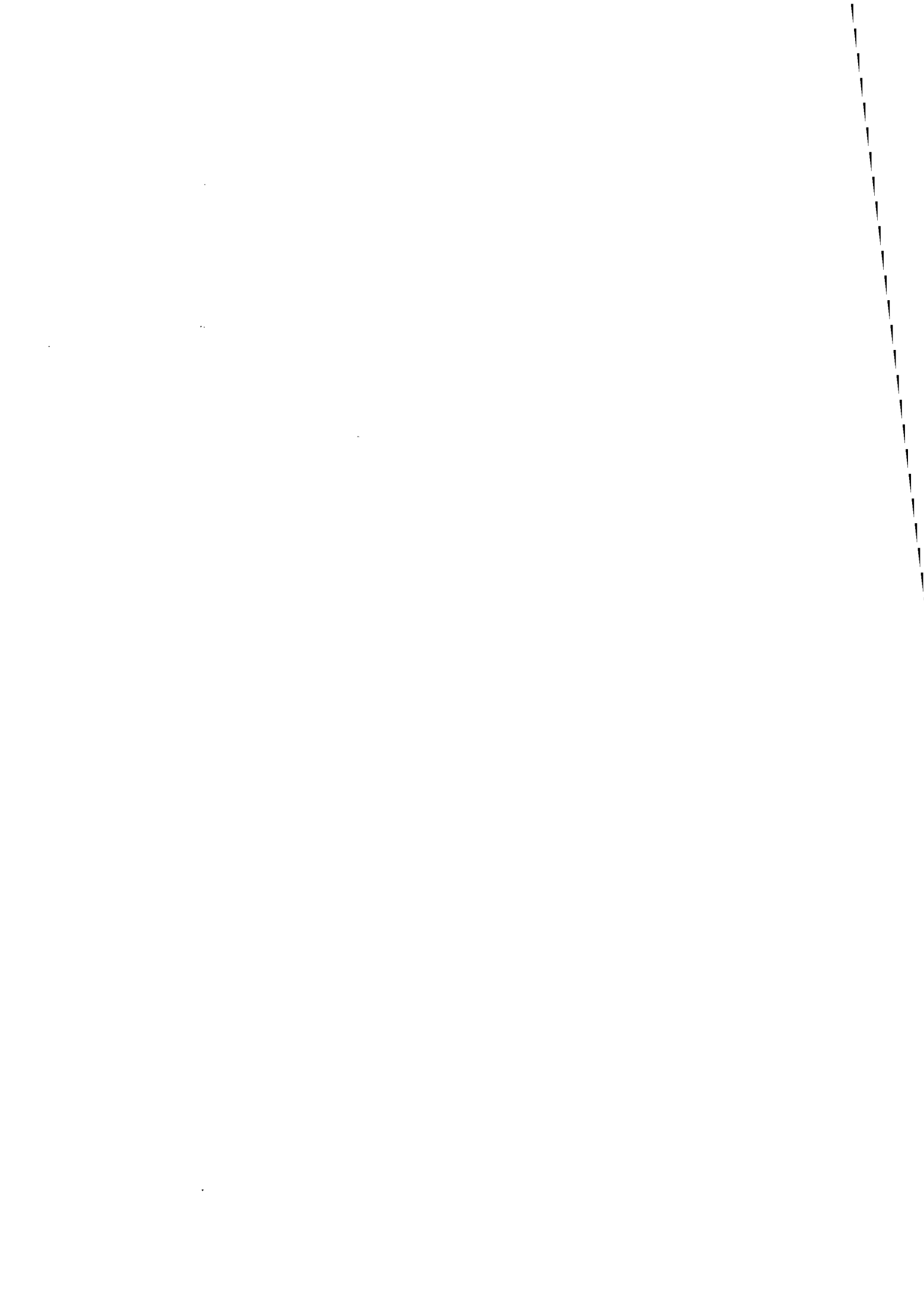
Inactivation des bactéries associées aux particules

La question de l'inactivation des bactéries "particulaires" en réseau de distribution se pose donc tout autant pour les particules colonisées que pour les agrégats bactériens. Pourtant, c'est

l'efficacité de la désinfection vis à vis de bactéries associées aux particules en suspension qui a été principalement étudiée, soit sur des particules de charbon actif récupérées en sortie de filière de traitement (pilote ou usine)(Camper *et al.*, 1986, Stewart *et al.*, 1990 ; Stringfellow *et al.*, 1993 ; Pernitsky, 1997), soit sur des particules colonisées par contact entre une souche bactérienne et des particules-modèles (LeChevallier *et al.*, 1984 ; Herson *et al.*, 1987, Morin, 1997, chapitre IV.3 ci dessus). Les résultats concernent pour la plupart des particules de charbon actif colonisées, et la résistance des bactéries fixées à la désinfection généralement observée résulte probablement de l'accessibilité réduite des bactéries dans les pores du matériau support, et du fort pouvoir réducteur du charbon actif (ce matériau est parfois utilisé pour déchlorer l'eau). Néanmoins, les observations les plus récentes montrent que si la quantité de particules de charbon actif est faible, la désinfection est facilitée probablement du fait d'une moindre réduction de l'oxydant (Stringfellow *et al.*, 1993 ; Pernitsky *et al.*, 1997).

Dans le cas de particules de goethite, le désinfectant réagit peu avec la surface et reste disponible pour inactiver une grande partie des bactéries cultivables (chapitre IV.3). Les bactéries survivantes proviendraient alors d'agrégats dont la matrice organique (i) serait fortement réductrice, (ii) limiterait la diffusion du chlore. Par analogie avec des mesures obtenues sur biofilm, la diffusion de l'oxydant ne devrait toutefois pas être freinée par la structure des agrégats en suspension, puisque Lawrence *et al.* (1994) et DeBeer *et al.* (1997) n'ont pas mis en évidence de différence de coefficient de diffusion entre l'eau et le biofilm pour les petites molécules. D'ailleurs, McMath *et al.* (sous presse, J. CIWEM) ne signalent pas de problème de marquage des bactéries des amas organiques qui résulterait d'une mauvaise diffusion du fluorochrome.

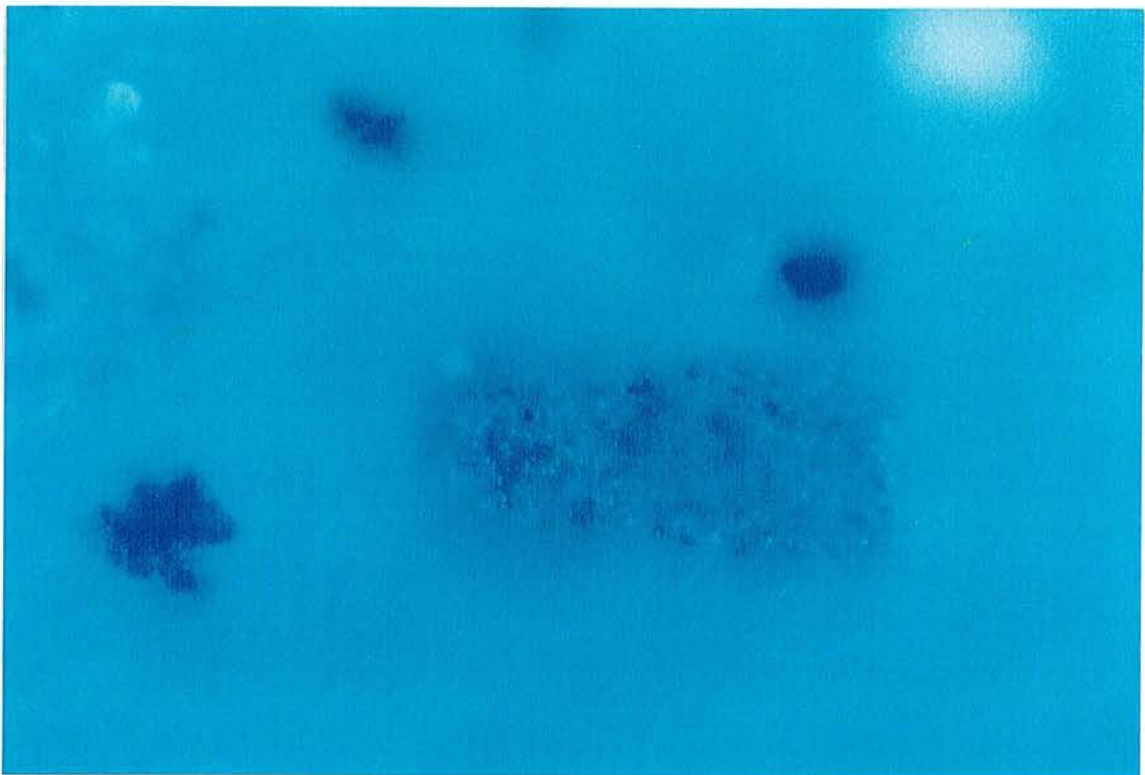
L'inactivation des populations bactériennes "particulaires" et de celles provenant du biofilm mettent donc probablement en oeuvre des mécanismes similaires, avec une résistance résultant principalement d'une moindre exposition au désinfectant qui est réduit rapidement au contact de la matière organique associée à la structure du biofilm (DeBeer *et al.*, 1994 ; Parent *et al.*, 1996). Cette analogie est encore renforcée si l'on considère avec McMath *et al.* (1997) que les particules colonisées et les agrégats en suspension dans l'eau proviennent principalement de la remise en suspension de dépôts colonisés et de l'arrachage de biofilm. La survie des populations bactériennes peut aussi reposer sur des mécanismes de résistance cellulaires intrinsèque ou induite, résultant d'une sélection et d'une adaptation des populations aux conditions environnementales des réseaux d'eau potable. Toutefois, on ne dispose pas de démonstration directe de cette dernière hypothèse pour les populations agrégées ou fixées parce qu'il est difficile de mesurer leur exposition réelle au désinfectant. Néanmoins, pour mieux évaluer le risque de contamination microbiologique lié aux bactéries associées aux particules, il paraît dans un premier temps plus important de quantifier ces populations au niveau du réseau de distribution et de mieux estimer ensuite les besoins de désinfection.





(a)

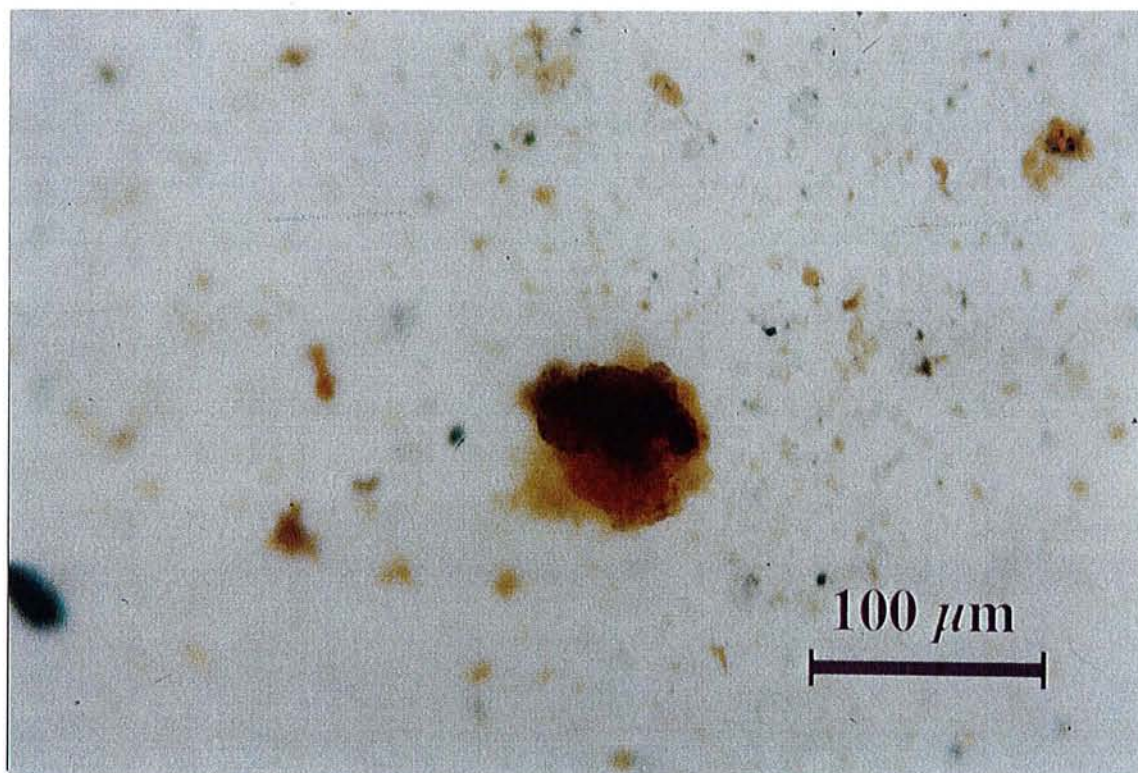
200 μm



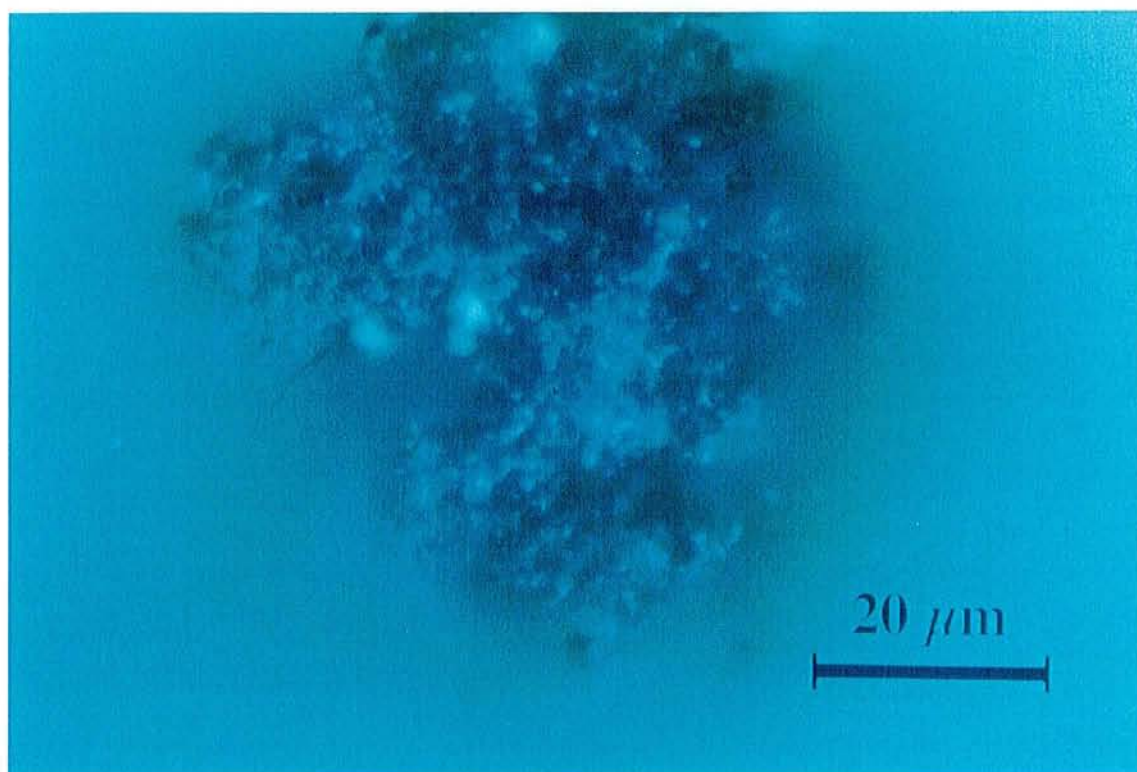
(b)

50 μm

Figure IV.4 a et b : Amas bactériens récupérés par filtration d'eau distribuée (les bactéries sont dans la masse de ces particules transparentes) : (a) en lumière visible ; (b) en lumière U.V. (épifluorescence) après coloration au DAPI.



(c)



(d)

Figure IV.4 c et d : Particule colonisée par des bactéries et récupérée par filtration d'eau distribuée : (c) vue d'ensemble en lumière visible ; (d) vue de détail en épifluorescence après coloration au DAPI.

Conclusions générales

Le transport de particules dans les réseaux d'eau potable est un phénomène en général discret pour les distributeurs et les consommateurs d'eau.

Toutefois, la capacité de la matière particulaire à s'accumuler sous forme de dépôts à l'intérieur du réseau de distribution est *a priori* inquiétante, car de tels dépôts favorisent l'accumulation de matière organique, qui servent de point de départ à l'établissement d'une chaîne trophique riche et diversifiée, susceptible d'être remise en suspension de manière incontrôlée. Lors de tels événements, le consommateur est directement exposé, et si la turbidité le dissuade heureusement de consommer l'eau contaminée dans la plupart des cas, sa confiance dans la qualité de l'eau distribuée en est fortement affectée.

Les données bibliographiques sur les particules en réseau d'eau potable sont rares et souvent fragmentaires, ce qui reflète la difficulté (a) d'échantillonnage de tels matériaux et (b) d'appréciation de leur nature et répartition au sein du réseau.

L'étude présentée ici fournit une vision globale des compositions, flux, et origines de la matière particulaire à l'échelle d'un grand réseau de distribution.

Quantité et nature des particules en suspension

- un flux constant de particules (définies par leur rétention sur filtre de porosité 0,8 μm) est admis dans le réseau à partir de l'usine de traitement dans les conditions normales de fonctionnement. Même si les concentrations sont faibles (de l'ordre de 25 à 50 $\mu\text{g/L}$), ces particules, qui incluent une large fraction organique et même biologique, représentent près d'une tonne de matière introduite annuellement dans le réseau pour une usine produisant 74 000 m^3 par jour.
- les concentrations de particules en suspension de l'eau distribuée sont faibles par rapport à la matière dissoute (30 à 130 $\mu\text{g/L}$) et relativement stables en l'absence de perturbation hydraulique. Néanmoins, comme en sortie des usines de traitement, il est frappant d'opposer cette faible concentration à la coloration et au colmatage d'unités de filtration ($\text{\O} 47 \text{ mm}$) au bout de quelques dizaines de litres seulement. Les particules véhiculées par l'eau sont constitués majoritairement (63%) de matière organique dont l'origine biologique est indiquée par les faibles valeurs du rapport carbone/azote. Elles contiennent aussi plus de fer, potassium, plomb, que les particules introduites dans le réseau à partir des ouvrages de traitement. La résistance à la désinfection des bactéries associées aux particules en suspension dans l'eau potable s'explique principalement par une moindre exposition au désinfectant, résultant (i) de la consommation de chlore par les particules, (ii) de l'état d'agrégation des cellules.

Accumulation des particules sous forme de dépôts

- le transport de l'eau dans le réseau de distribution "produit" des particules qui sont retrouvées au niveau des dépôts, principalement minéraux, des réservoirs et canalisations sous forme d'hydroxydes ou carbonates (fer, aluminium, calcium, manganèse, sables). L'accumulation de ces composés résulte non seulement de la sédimentation des particules en suspension, mais aussi de la transformation de matière dissoute en matière particulaire par précipitation/floculation et de la dégradation des matériaux constituant les réseaux. Une vitesse d'accumulation des dépôts de 8 μg par cm^2 et par jour a été mesurée en réservoir réel. Les différents mécanismes d'accumulation de dépôts sont toutefois fortement dépendant des conditions locales (hydraulique, composition de l'eau, nature des matériaux, distance de l'usine de traitement, etc...). De ce fait, la composition et la répartition des dépôts ne sont pas uniformes au sein du réseau étudié pourtant alimenté par un seul type d'eau.
- la matière organique est accumulée dans les dépôts plutôt à partir de la matière organique dissoute (par adsorption et/ou croissance biologique) que par sédimentation de la matière particulaire. Elle est toujours minoritaire en masse par rapport à la matière minérale, et certaines particules minérales (flocs d'aluminium) sont plus favorables que d'autres (sable, billes de verre) à son accumulation. Les concentrations de matière organique dans les dépôts sont jusqu'à 1000 fois plus importantes que dans l'eau, et de ce fait, les dépôts forment un écosystème fortement colonisé (de l'ordre de $2,5 \cdot 10^8$ bactéries cultivables par gramme de dépôt) et protecteur par rapport au désinfectant véhiculé par l'eau, puisque les composés organiques présents dans les sédiments ont une forte capacité réductrice.
- la matière organique accumulée dans les dépôts est accompagnée d'une importante biomasse bactérienne, et dans certains cas d'une chaîne trophique s'étendant jusqu'au macro-invertébrés. Lors d'une remise en suspension des dépôts, la consommation de chlore est rapide et totale, et une forte concentration de bactéries est mesurée dans l'eau durant plusieurs heures.

Faut-il limiter les particules en suspension dans l'eau traitée ?

Cette étude n'a pas démontré que les particules de l'eau traitée, pour autant qu'elles soient en faible concentration, aient un lien direct avec la quantité de particules retrouvées en réseau déposées ou en suspension. Par exemple, l'accumulation de matière organique et de bactéries dans un réservoir alimenté en eau privée de particules est pratiquement identique à celle d'un réservoir

alimenté normalement : aussi on peut faire l'hypothèse que c'est la matière dissoute qui gouverne ici l'accumulation de dépôts organiques par floculation/adsorption et surtout croissance biologique.

En conséquence, la limitation des problèmes microbiologiques associés aux dépôts passe plus probablement par une réduction de la matière organique dissoute introduite en réseau que par une élimination des particules. Le contrôle de la matière organique dissoute est donc le point-clé pour obtenir une eau biologiquement stable lors de son transport en réseau de distribution, y compris au niveau des dépôts.

De plus, une meilleure connaissance des phénomènes de précipitation/floculation (carbonates, hydroxydes de fer et d'aluminium, oxydes de fer et manganèse) est nécessaire pour limiter l'accumulation de dépôts minéraux qui sont favorables à l'accumulation de matière organique et de bactéries au sein des réseaux, ce qui contribue à la consommation rapide du désinfectant résiduel.

A défaut de pouvoir prévenir cette accumulation des dépôts, il paraît nécessaire de poursuivre leur élimination par des campagnes de nettoyage de réservoirs et éventuellement des canalisations.

Quel est l'impact des particules sur la qualité de l'eau ?

En conditions hydrauliques "normales", la concentration particulaire est faible et ne pose pas de problèmes vis-à-vis des normes de potabilité pour les éléments organiques et minéraux. Au niveau microbiologique par contre, les concentrations de bactéries associées aux particules (amas bactériens, bactéries fixées à la surface des particules ou transportées par les micro-invertébrés) sont très peu évaluées dans le contexte des réseaux de distribution. Et même si on a pu démontrer que ces bactéries sont plus résistantes aux désinfectants en laboratoire, il semble difficile de pouvoir juger de leur impact réel sur la qualité microbiologique de l'eau sans quantification complémentaire.

Lors des variations hydrauliques rapides en réseau, la remise en suspension des dépôts accumulés constitue de toute évidence une menace importante pour la qualité de l'eau, puisque, outre la turbidité, de fortes concentrations d'éléments métalliques accumulés (et éventuellement les micro-polluants associés) peuvent être transportés jusqu'au robinet du consommateur. Les abondantes populations microbiologiques des dépôts sont alors aussi retrouvées dans l'eau sans possibilité de contrôle par un désinfectant résiduel, mais une telle eau turbide n'est en général pas consommée !

Par contre, quelques heures après la remise en suspension, l'essentiel de la turbidité est éliminée par sédimentation si les conditions hydrauliques le permettent, et le consommateur sera alors exposé au risque d'ingérer avec l'eau les populations bactériennes restées en grande partie en suspension de fait de leur moindre décantabilité. La pathogénicité de tels micro-organismes n'est pas démontrée, de même que la fréquence et l'importance des phénomènes de remise en suspension ne sont pas évalués dans les réseaux de distribution. Néanmoins ces éléments invitent à

contrôler les conditions de formation de dépôts et les zones mortes où ils peuvent s'accumuler, et à limiter autant que possible les variations de vitesses rapides dans les canalisations.

Perspectives

La généralisation des compteurs de particules et leur installation pour des mesures en continu en sortie d'usine et en réseau de distribution pourront apporter des informations intéressantes sur la fréquence des épisodes de remises en suspension, et sur le couplage du transport particulaire avec les variations de vitesse dans les canalisations. Les analyses chimiques et microbiologiques restent toutefois indispensables pour connaître la nature des particules transportées.

D'autre part, l'évaluation quantitative des dépôts présents dans les canalisations et réservoirs des réseaux et la mesure systématique des densités bactériennes associées permettrait de comparer les populations microbiennes benthiques et celles présentes dans le réseau sous forme de biofilm et de mieux apprécier l'impact de ces deux populations bactériennes sur la stabilité de l'eau en réseau de distribution. A titre d'exemple, un gramme de dépôts contient autant de bactéries cultivables ($2,5 \cdot 10^8$ UFC 14j/g en moyenne ici) que le biofilm d'une section de 1 mètre de canalisation de diamètre 100 mm (hypothèse : 10^5 UFC 14 j/cm² (Mathieu *et al.*, 1992)). Aussi, la "tonne" de particules en suspension introduites annuellement dans le réseau de Nancy, si elle était intégralement retrouvée sous forme de dépôts, contiendrait donc à peu près autant de bactéries que le biofilm fixé sur les 1000 km de canalisations de diamètre supérieure ou égale à 100 mm de ce même réseau.

Ces éléments donnent un éclairage nouveau sur l'utilité des campagnes de nettoyage et la compréhension des mécanismes de transport et accumulation des dépôts, et renforcent l'argumentaire pour limiter la quantité de matière organique introduite avec l'eau dans les réseaux de distribution.

Références bibliographiques

Les références bibliographiques utilisées dans les sections de cette thèse qui font l'objet d'articles soumis ou publiés sont systématiquement présentées à la fin de chaque article correspondant, alors que les références des autres sections sont regroupées ci-dessous.

- Abasq P., 1997,**
Enquête sur les résultats d'analyses de "conduites neuves" en Loire-Atlantique, *Cahiers de l'Assoc. Europ. pour l'Eau et la Santé*, **2:1**, 37-42.
- Ainsworth R.G., 1978,**
Discoloured water in distribution systems, *proceedings Amer. Water Wks Assoc. Annual Conf., Atlantic City, NJ, USA, paper 33-6*, 1-12.
- Alere I., Hanæus J., 1997,**
Particle dynamics in the drinking water distribution system of Luleå, *Vatten*, **53:4**, 381-390.
- Amblard C., Bourdier G., Carrias J.F., Maurin N., Quiblier C., 1996,**
Seasonal evolution of microbial community structure in a drinking water reservoir, *Water Res.*, **30:3**, 613-624.
- Amirtharajah A., Wetstein D.P., 1980,**
Initial degradation of effluent quality during filtration, *J. Am. Water Wks. Assoc.*, **72**, 518-524.
- Astier F., 1996,**
Caractérisation et contrôle de la flaveur moisie d'une eau de distribution publique, *Thèse de l'Université H. Poincaré-Nancy I*, 320 pages.
- Baker J.S., Judd S.J., 1996,**
Magnetic amelioration of scale formation, *Water Res.*, **30:2**, 247-260.
- Barrett R.A., Parsons S.A., 1998,**
The influence of magnetic fields on calcium carbonate precipitation, *Water Res.*, **32:3**, 609-612.
- Bartsch L.A., Rada R.G., Sullivan J.F., 1996,**
A comparison of solids collected in sediment traps and automated water samplers, *Hydrobiologia*, **323:1**, 61-66.
- Baylis J.R., 1945,**
Quality of water in Chicago's distribution system extremities, *Water Wks Engin.*, **98**, 785-799.
- Beudet J.F., Prévost M., Arcouette N., Niquette P., Coallier J., 1996,**
Controlling annelids in biological activated carbon filters, *Proceedings of the Water Quality Technology Conference of Amer. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA, 17-21 November*.
- Berman D., Rice E.W., Hoff J.C., 1988,**
Inactivation of particle-associated coliforms by chlorine and monochloramine, *Appl. Environ. Microbiol.*, **54:2**, 507-512.
- Biswas P., Lu C., Clark R.M., 1991,**
Particle and chemical transport in drinking water systems, *Proceedings "Water quality modeling in distribution systems" confer. organized by AWWA and USEPA, Cincinnati, OH, USA*, 323-363.
- Bloesch J., 1997,**
Towards a new generation of sediment traps and a better measurement/understanding of settling particle flux in lakes and oceans: a hydrodynamical approach, *Aquatic Sci.*, **58:4**, 283-296.
- Bois F.Y., Fahmy T., Block J.C., Gatel D., 1997 ,**
Dynamic modeling of bacteria in a pilot drinking water distribution system, *Water Res.*, **31:12**, 3146-3156.
- Bonnelye I., Baudin I., Bernazeau F., Gislette P., Mouchet P., 1995,**
Elimination des algues planctoniques : efficacité des filières modernes de traitement, *T.S.M. l'Eau*, **90:10**, 721-727.
- Bourbigot M.M., Pagliardini A., Marteil P., 1988,**
Etude des facteurs déterminant la fuite en aluminium dans les eaux potables - cas de l'usine de Super-Rimiez, *T.S.M. l'Eau*, **83:2**, 73-77.

- Brazos B.J., O'Connor J.T., 1987,**
The partitioning of organic carbon in drinking water, *Proceedings Water Qual. Technol. Conf. Am Water Wks Assoc., Nov. 1986 Portland, OR, USA*, 387-416.
- Brazos B.J., O'Connor J.T., 1990,**
Seasonal effects on the generation of particle-associated bacteria during distribution, *Proceedings AWWA Wat. Qual. Technol. Conf., San Diego*, 1073-1101.
- Bucklin K.E., McFeters G.A., Amirtharajah A., 1991,**
Penetration of coliforms through municipal drinking water filters, *Water Res.*, 25:8, 1013-1017.
- Buffle J., Leppard G., 1995,**
Characterization of aquatic colloids and macromolecules. 2. Key role of physical structures on analytical results, *Environ. Sci. Technol.*, 29, 2176-2184.
- Cai W.J., Sayles F.L., 1996,**
Oxygen penetration depths and fluxes in marine sediments, *Marine Chemistry*, 52:2, 123-131.
- Camper A.K., Broadaway S.C., LeChevallier M.W., McFeters G.A., 1987,**
Operational variables and the release of colonized Granular Activated Carbon particles in drinking water, *J. Am. Water Wks Assoc.*, 79, 70-74.
- Camper A.K., LeChevallier M.W., Broadway S.C., McFeters G.A., 1986,**
Bacteria associated with granular activated carbon particles in drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, 52:3, 434-438.
- Cappelier M., Picoche C., Deguin A., 1992,**
Devenir du CODB dans les réseaux de distribution : étude de deux cas, *Revue des Sciences de l'Eau*, 5, 51-67.
- Charpentier B., Courcier J.P., 1989,**
Méthode d'évaluation des dépôts dans les canalisations d'eau potable, *T.S.M. l'Eau*, 84:7-8, 413-416.
- Chebbo G., Bachoc A., Laplace D., Le Guennec B., 1995,**
The transfer of solids in combined sewer networks, *Water Sci. Tech.*, 31:7, 95-105.
- Chen Y.W., Buffle J., 1996a,**
Physicochemical and microbial preservation of colloid characteristics of natural water samples. I: Experimental conditions, *Water Res.*, 30:9, 2178-2184.
- Chen Y.W., Buffle J., 1996b,**
Physicochemical and microbial preservation of colloid characteristics of natural water samples. II: Physicochemical and microbial evolution, *Water Res.*, 30:9, 2185-2192.
- Clark R.M., Abdesaken F., Boulos P.F., Mau R.E., 1996,**
Mixing in distribution system storage tanks: Its effect on water quality, *Journal of Environmental Engineering - ASCE*, 122:9, 814-821.
- Clark R.M., Rice E.W., Pierce B.K., Johnson C.H., Fox K.R., 1994,**
Effect of aggregation on *Vibrio cholerae* inactivation, *J. Environ. Engin.*, 120:4, 875-887.
- Clark S.C., Lawler D.F., Cushing R.S., 1992,**
Contact filtration: particle size and ripening, *J. Am. Water Wks. Assoc.*, 84:12, 61-71.
- Colton J.F., Hillis P., Fitzpatrick C.S.B., 1996,**
Filter backwash and start-up strategies for enhanced particulate removal, *Water Res.*, 30:10, 2502-2507.
- Cordonnier J., Auvray B., 1996,**
Limitation du plomb et des phénomènes d'eaux rouges par traitements filmogènes centralisés, *Proceedings Hydrotop Conf., Marseille, France*, 115-130.
- Crabtree R.W., Ashley R., Gent R., 1995,**
MOUSETRAP : modelling of real sediment characteristics and attached pollutants, *Water Sci. Tech.*, 31:7, 43-50.
- Creuzé des Chatelliers M., Turquin M.J., Gibert J., 1991,**
Les aquifères : des systèmes biologiques, *Hydrogéologie*, 1991/3, 163-185.
- Cripps G.C., 1995,**
Biogenic hydrocarbons in the particulate material of the water column of the Bellingshausen sea, Antarctica, in the region of the marginal ice zone, *Deep-sea Research II*, 42, n°4-5, 1123-1135.
- Crohn D.M., Yates M.V., 1997,**
Interpreting negative results from highly treated water, *J. Environ. Eng.*, 123:5, 423-430.
- Cushing C.E., Minshall G.W., Newbold J.D., 1993,**
Transport dynamics of fine particulate organic matter in two Idaho streams, *Limnol. Oceanogr.*, 38:6, 1101-1115.

- De Rosa S., 1993,**
Loose deposits in water mains, *Report DoE 3118-12, Dept of the Environ., London, UK, 161 p.*
- DeBeer D., Srinivasan R., Stewart P.S., 1994,**
Direct measurement of chlorine penetration into biofilms during disinfection, *Appl. Environ. Microbiol.*, **60:12**, 4339-4344.
- DeBeer D., Stoodley P., Lewandowski Z., 1994,**
Liquid flows in heterogeneous biofilms, *Biotechn. Bioengng.*, **44**, 636-641.
- DeBeer D., Stoodley P., Lewandowski Z., 1997,**
Measurement of local diffusion coefficients in biofilms by microinjection and confocal microscopy, *Biotech. Bioeng.*, **53**, 151-158.
- Dekov V.M., Komy Z., Araujo F., Van Put A., Van Grieken R., 1997,**
Chemical composition of sediments, suspended matter, river water and ground water of the Nile (Aswan-Sohag traverse), *Sci. Total Environ.*, **201**, 195-210.
- Desjardins R., Jutras L., Prévost M., 1997,**
Water quality in Montréal: effect of the distribution system, *Rev. Sci. Eau*, **10:2**, 167-184.
- Desjardins R., Lavoie J., Lafrance P., Prévost M., 1991,**
Comparaison de l'évolution de la qualité de l'eau dans deux réseaux de distribution, *Sciences et Techniques de l'Eau*, **24:4**, 321-331.
- Drinking Water Inspectorate of United Kingdom, 1992,**
Drinking Water 1991 - A report by the chief inspector, *HMSO, London*, 248-249.
- Driscoll C.T., Letterman R.D., 1995,**
Factors regulating residual aluminium concentrations in treated water, *Environmetrics*, **6**, 287-309.
- Dubrou S., Nahapetian K., Challemel O., Festy B., 1992,**
Protozoa and proliferation of *legionella* in private water distribution systems, *J. Fr. Hydrol.*, **23:2**, 251-259.
- Dukan S., Levi Y., Piriou P., Guyon F., Villon P., 1996,**
Dynamic modelling of bacterial growth in drinking water networks, *Water Res.*, **30:9**, 1991-2002.
- Dumont P., Bechoux E., 1991,**
Fabrication et utilisation des "laits de chaux" pour le traitement des eaux, *Ciments, Bétons, Plâtres, Chaux*, **793:6**, 414-421.
- Eisma D., 1993,**
Suspended matter in the aquatic environment, *Springer Verlag, Berlin (Publ.)*, 315 p..
- Galowin L.S., 1990,**
Separated flow conditions at pipe walls of water distribution mains, *USEPA research report abstract n°EPA/600/S2-90/007, 4 pages.*
- Gardner M.J., Gunn A.M., 1995,**
Speciation and bioavailability of aluminium in drinking water, *Chemical Speciation and Bioavailability*, **7:1**, 9-16.
- Gauriau G., Devauchelle V., 1996,**
La maîtrise des réseaux de distribution d'eau potable : valorisation avancée des débits acquis en continu, *T.S.M. l'Eau*, **91:2**, 121-126.
- Geesey G.G., Lewandowski Z., Flemming H.C. (ed.), 1994,**
Biofouling and biocorrosion in industrial water systems, *Lewis Publ., Boca raton*, 297 p..
- Ginn T.M., Amirtharajah A., Karr P.R., 1992,**
Effects of particle detachment in granular media filtration, *J. Am. Water Wks. Assoc.*, **84:2**, 66-76.
- Ginn T.M., Amitharajah A., 1990,**
Characterization and modelling of particle size distribution in water filtration, *proceedings of the 5th world filtration congress, Nice, France*, **3**, 351-361.
- Gustafsson O., Gschwend P.M., 1997,**
Aquatic colloids: concepts, definitions and current challenges, *Limnol. Oceanogr.*, **42:3**, 519-528.
- Harvey R.W., Kinner N.E., Bunn A., MacDonald D., Metge D., 1995,**
Transport behaviour of groundwater protozoa and protozoan-sized microspheres in sandy aquifer sediments, *Appl. Environ. Microbiol.*, **61:1**, 209-217.
- Haslay C., 1993,**
Microbiologie de la distribution, in *"Microbiologie des eaux d'alimentation"*, C. Haslay & H. Leclerc, *Lavoisier Tec & Doc, Paris*, 389-479.
- Hegeman W.J.M., Van der Weijden C.H., Loch J.P.G., 1995,**
Sorption of Benzo(a)pyrene and phenantrene on suspended harbour sediment concentration and salinity : a laboratory study using cosolvent partition coefficient, *Environ. Sci. Technol.*, **29:2**, 363-371.

- Herson D.S., McGonogle B., Payer M.A., Baker K.H., 1987,**
Attachment as a factor in the protection of *Enterobacter cloacae* from chlorination, *Appl. Environ. Microbiol.*, **53:5**, 1178-1180.
- Hofmann A., Dominik J., 1995,**
Turbidity and mass concentration of suspended matter in lake water : a comparison of two calibration methods, *Aquatic Sci.*, **57:1**, 54-69.
- Holt D.M., Smith S.E., Colbourne J. S., 1995,**
Devising practical operational strategies to control biofilm growth in Londons' water distribution system, *Proceedings Wat. Qual. Technol. Conf. Am. Wat. Wks As., New-Orleans, USA, 1513-1525.*
- Howell J.M., Coyne M.S., Cornelius P.L., 1996,**
Effect of sediment particle size and temperature on fecal bacteria mortality rates and the fecal coliform/fecal streptococci ratio, *J. Environ. Qual.*, **25:6**, 1216-1220.
- Iriberry J., Unanue M., Ayo B., Barcina I., Egea L., 1990,**
Bacterial production and growth rate estimation from [3H]thymidine incorporation for attached and free-living bacteria in aquatic systems, *Appl. Environ. Microbiol.*, **56:2**, 483-487.
- Jones J.G., Tuckwell S.B., 1993,**
Aesthetic aspects of drinking water quality - what do our customers want ?, *Water supply*, **11:3/4**, Berlin, 37-51.
- Jorgensen B.B., Des Marais D.J., 1990,**
The diffusive boundary layer of sediments : oxygen microgradients over a microbial mat, *Limnol. Oceanogr.*, **35:6**, 1343-1355.
- Jorgensen B.B., Revsbech N.P., 1985,**
Diffusive boundary layers and the oxygen uptake of sediments and detritus, *Limnol. Oceanogr.*, **30:1**, 111-122.
- Kalin R.M., Smith B.D., Long A., 1996,**
Rn-222 in the water distribution system of Tucson, Arizona, *Water Resources Bulletin*, **32:3**, 629-635.
- Kerneis A., Nakache F., Deguin A., Feinberg M., 1995,**
The effects of water residence time on the biological quality in a distribution network, *Water Res.*, **29:7**, 1719-1727.
- Kerneis A., Simon P., Deguin A., Feinberg M., 1993,**
Designing a drinking water monitoring system for rural distribution networks, *Water supply*, **11:3/4**, 219-231.
- Kiéne L., Lu W., Lévi Y., 1996,**
Relative importance of phenomena responsible for chlorine consumption in drinking water distribution systems, *Proceedings of the Water Quality Technology Conference of Amer. Water Wks Assoc., Boston, Ma, USA, 17-21 November.*
- King C.H., Schotts E.B., Wooley R.E., Porter K.G., 1988,**
Survival and coliforms and bacterial pathogens within protozoa during chlorination, *Appl. Environ. Microbiol.*, **54**, 3023-3033.
- Kirchman D., 1983,**
The production of bacteria attached to particles suspended in a freshwater pond, *Limnol. Oceanogr.*, **28:5**, 858-872.
- Labrot F., RiberaD., Tisnerat G., Narbonne J.F., Cabridenc R., 1996,**
Contamination des écosystèmes et effets biologiques, in "Aspects analytiques du plomb dans l'environnement", Morlot M. (Edt), Lavoisier Tec et Doc, Paris, 483 p..
- Lawrence J.R., Wolfaardt G.M., Korber D.R., 1994,**
Determination of diffusion coefficients in biofilms by confocal laser microscopy, *Appl. Environ. Microbiol.*, **60:4**, 1166-1173.
- LeChevallier M.W., 1990,**
Coliform regrowth in drinking water : a review, *J. Am. Wat. Wks. As.*, **82:11**, 74-86.
- LeChevallier M.W., Babcock T.M., Lee R.G., 1987,**
Examination and characterization of distribution systems biofilms, *Appl. Environ. Microbiol.*, **53:12**, 2714-2724.
- LeChevallier M.W., Cawthon C.D., Lee R.G., 1988,**
Inactivation of biofilm bacteria, *Appl. Environ. Microbiol.*, **54:10**, 2492-2499.
- LeChevallier M.W., Evans T.M., Seidler R.J., 1981,**
Effect of turbidity on chlorination efficiency and bacterial persistence in drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, **42:1**, 159-167.

- LeChevallier M.W., Hassenauer T.S., Camper A.K., McFeters G.A., 1984,**
Disinfection of bacteria attached to granular activated carbon, *Appl. Environ. Microbiol.*, **48:5**, 918-923.
- LeChevallier M.W., Lowry C.D., Lee R.G., 1990,**
Disinfecting biofilms in a model distribution system, *J. Am. Wat. Wks. As.*, **82:7**, 87-99.
- LeChevallier M.W., Lowry C.D., Lee R.G., Gibbon D.L., 1993,**
Examining the relationship between iron corrosion and the disinfection of biofilm bacteria, *J. Am. Water Wks Assoc.*, **85**, 11-123.
- LeChevallier M.W., Norton W.D., 1992,**
Examining relationships between particle counts and *giardia*, *cryptosporidium* and turbidity, *J. Am. Water Wks. Assoc.*, **84:12**, 54-60.
- Léger G., Boudouresque B., 1992,**
Présence d'organismes planctoniques dans les eaux traitées : essai d'une technique permettant l'amélioration de leur rétention au niveau des filtres, *T.S.M. l'Eau*, **87:7-8**, 375-380.
- Legrand L., Leroy P., 1995,**
Prévention de la corrosion et de l'entartrage dans les réseaux de distribution d'eau, *CIFEC éditeur*, 356 p.
- Leroy P., 1993,**
National report for France on internal corrosion in distribution systems, *Proceedings of the 19th IWSA congress, Budapest, IR 7-17 to 7-20*.
- Leroy P., Le Gentil L., 1992,**
Influence des conditions de soutirage sur la teneur en plomb de l'eau issue d'un réseau en plomb, *J. Fr. Hydrol.*, **23:2**, 171-181.
- Lévi Y., Randon G., Denojean C., Pagliardini A., Vajente G., Champsaur H., 1992,**
Etude d'un réseau à très faible teneur en matière organique biodégradable : le réseau de la ville de Nice, *Revue des Sciences de l'Eau*, **5**, 225-243.
- Levy R.V., 1990,**
Invertebrates and associated bacteria in drinking water distribution lines, in *Drinking Water Microbiology : progress and recent developments*, G. A. McFeters editor, Springer-Verlag, New-York, 224-248.
- Levy R.V., Cheetham R.D., Davis J., Winer G., Hart F.L., 1984,**
Novel method for studying the public health significance of microinvertebrates occurring in potable water, *Appl. Environ. Microbiol.*, **47:5**, 889-894.
- Logsdon G.S., Rice E.W., 1985,**
Evaluation of sedimentation and filtration for microorganisms removal, *Proceedings Annual Conf. Am. Wat. Wks Ass.*, 1177-1197.
- Lu C., Biswas P., Clark R.M., 1995,**
Simultaneous transport of substrates, disinfectants and microorganisms in water pipes, *Water Res.*, **29:3**, 881-894.
- Lu L., Fang M., Wang X., Patni N., Ashendorff A., Principe M., 1997,**
In-situ water main biological study in New-York city, *Proceedings Wat. Quality Technol. Conf. of Am. Wat. Wks Assoc., Denver, Co, USA, 9-12 November 1997*, 15 pages.
- Mackenzie R.C., 1957,**
The differential thermal investigation of clays, *Mineralogical Society of London*, 455 p.
- Maier D., Maier M., Lloyd B., Toms I.P., 1997,**
Remobilization of polynuclear aromatic hydrocarbons from the coal tar lining of water mains, *Ozone Sci. Engin.*, **18**, 517-519.
- Maranger R., Bird D.F., 1996,**
High concentrations of viruses in the sediments of lac Gilbert, Québec, *Microb. Ecol.*, **31**, 141-151.
- Mathieu L., Paquin J.L., Block J.C., Randon G., Mailliard J., Reasoner D., 1992,**
Paramètres gouvernant la prolifération bactérienne dans les réseaux de distribution, *Revue des Sciences de l'Eau*, **5**, 91-112.
- Mau R.E., Boulos P.F., Clark R.M., 1995,**
Multi-compartment models of distribution storage water quality, *Proceedings Am. Wat. Wks. Ass. Comp. Conf., Norfolk, VA*, 147-179.
- Maurer W.R., Claflin T.O., Rada R.G., Rogala J.T., 1995,**
Volume loss and mass balance for selected physicochemical constituents in lake Pepin, Upper Mississippi river, USA, *Regulated Rivers : Research and Management*, **11**, 175-184.
- McCoy W.F., Olson B.H., 1986,**
Relationship among turbidity, particle counts and bacteriological quality within water distribution lines, *Water Res.*, **20:8**, 1023-1029.

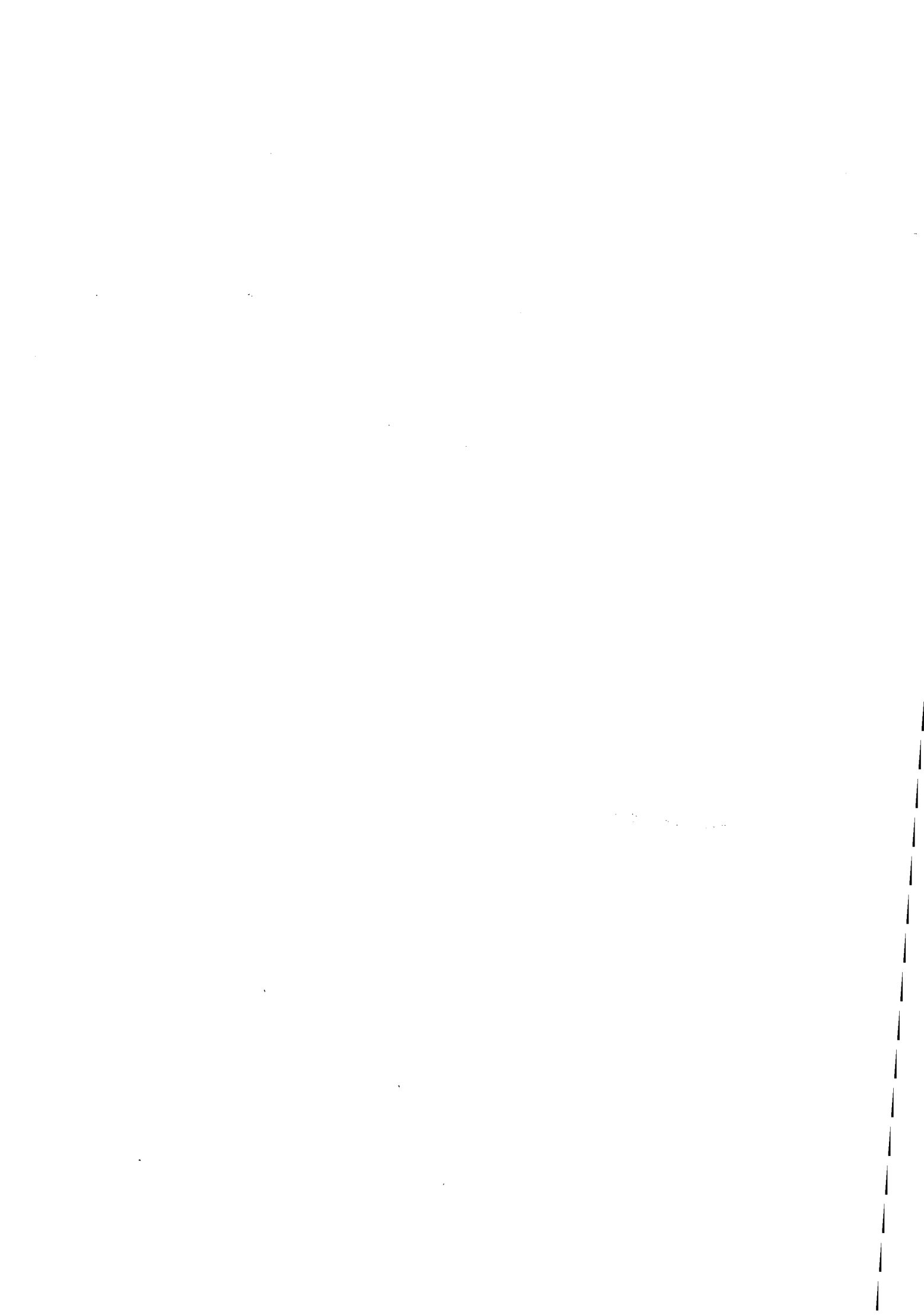
- McGroddy S.E., Farrington J.W., Gschwend P.M., 1996,**
Comparison of the in-situ and desorption sediment-water partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated biphenyls, *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 172-177.
- McMath S.M., Delanoue A., Holt D.M., 1997,**
"Clumps" shed from pipewalls in distribution systems, *Proceedings Wat. Quality Technol. Conf. of Am. Wat. Wks Assoc., Denver, Co, USA, 9-12 November 1997*, 14 pages.
- McMath S.M., Delanoue A., Holt D.M., Chamberlain A.H.L., Lloyd B.J., 1998,**
The optimisation of an epifluorescence technique for the direct counting of clumped bacteria, *J. CIWEM*, *in press (Dec 1997)*.
- Middelboe M., Sondergaard M., 1995,**
Concentration and bacterial utilization of submicron particles and dissolved organic carbon in lakes and coastal area, *Arch. Hydrobiol.*, **133:2**, 129-147.
- Moran D.C., Moran M.C., Cushings R.S., Lawler D.F., 1993,**
Particle behaviour in deep-bed filtration. I: Ripening and breakthrough., *J. Am. Water Wks. Assoc.*, **85:12**, 69-81.
- Moran M.C., Moran D.C., Cushings R.S., Lawler D.F., 1993,**
Particle behaviour in deep-bed filtration. II: Particle detachment, *J. Am. Water Wks. Assoc.*, **85:12**, 82-93.
- Morin P., Camper A., Jones W., Gatel D., Goldman J.C., 1996,**
Colonization and disinfection of biofilms hosting coliform-colonized carbon fines, *Appl. Environ. Microbiol.*, **62:12**, 4428-4432.
- Morin P., Gauthier V., Saby S. Block J.C., 1997,**
Bacterial resistance to chlorine through attachment to particles and pipe surfaces in drinking water distribution systems, *Proceedings of the conference "Biofilms in aquatic systems" organized by the Royal Society of Chemistry at the University of Warwick, UK, 14-16 April 1997*.
- Morlot M. (Edt), 1996,**
Aspects analytiques du plomb dans l'environnement, *Lavoisier Tec et Doc, Paris*, 483 p..
- Morris R.D., Naumova E.N., Levin R., Munasinghe R.L., 1996,**
Temporal variations in drinking water turbidity and diagnosed gastroenteritis in Milwaukee, *Am. J. Publ. Health*, **86:2**, 237-239.
- Mouchet P., 1992,**
From conventional to biological removal of iron and manganese in France, *J. Am. Water Wks. Assoc.*, **84**, 158-167.
- Mouchet P., Montiel A., Rigal S., 1992,**
Dégradations physico-chimiques de l'eau dans les réseaux de distribution, *T.S.M. l'Eau*, **87:6**, 299-306.
- Mouchet P., Pourriot R., 1992,**
Pénétration et développement de microinvertébrés dans les réseaux de distribution d'eau potable, *T.S.M. l'Eau*, **87:7-8**, 353-368.
- Mudroch A., MacKnight S.D., 1991,**
CRC handbook of techniques for aquatic sediments sampling, *CRC Press, Boca Raton*.
- Nagata T., Kirchman D.L., 1997,**
Roles of submicron particles and colloids in microbial food webs and biogeochemical cycles within marine environments, *Advances Microb. Ecol.*, **15**, 81-103.
- Newman M.E., Fillela M., Chen Y., Nègre J.C., Perret D., Buffle J., 1994,**
Submicron particles in the Rhine river - II Comparison of field observations and model predictions, *Water Res.*, **28:1**, 107-118.
- Oliver E.D., Harbour J.D., 1995,**
Speciation of total coliforms isolated from sediments in brown water released during a flushing program undertaken by the Seattle Water Department, *Proceedings Water Qual. Technol. conf., Am. Water Wks As., New Orleans, Louisiana*, 1487-1498.
- Pääkkönen J., 1993,**
National report for Finland on internal corrosion in distribution systems, *Proceedings of the 19th IWSA congress, Budapest, IR 7-16 to 7-17*.
- Paquin J.L., Block J.C., Haudidier K., Hartemann P., Colin F., Miazga J., Levi Y., 1992,**
Effet du chlore sur la colonisation bactérienne d'un réseau expérimental de distribution d'eau, *Rev. Sci. de l'Eau*, **5**, 399-414.
- Pedersen K., 1990,**
Biofilm development on stainless steel and PVC surfaces in drinking water, *Water Res.*, **24:2**, 239-243.

- Pedros-Alio C., Brock T.D., 1983,**
The importance of attachment to particles for planktonic bacteria, *Arch. Hydrobiol.*, **98:3**, 354-379.
- Percival S.L., Knapp J.S., Edyvean R., Wales D.S., 1998,**
Biofilm development on stainless steel in mains water, *Water Res.*, **32:1**, 243-253.
- Pernitsky D.J., Finch G.R., Huck P.M., 1997,**
Recovery of attached bacteria from GAC fines and implications for disinfection efficacy, *Water Res.*, **31:3**, 385-390.
- Perret D., Newman M.E., Nègre J.C., Chen Y., Buffle J., 1994,**
Submicron particles in the Rhine river - I physico-chemical characterization, *Water Res.*, **28:1**, 91-106.
- Qualls R.G., Flynn M.P., Johnson J.D., 1983,**
The role of suspended particles in ultraviolet disinfection, *J. Water Pollut. Control Fed.*, **55:10**, 1280-1285.
- Quignon F., Sardin M., Kiéné L., Schwartzbrod L., 1997,**
Poliovirus-1 inactivation and interaction with biofilm: a pilot-scale study, *Appl. Environ. Microbiol.*, **63:3**, 978-982.
- Rice E.W., Fox K.R., Miltner R.J., Lytle D.A., Johnson C.H., 1996,**
Evaluating plant performance with endospores, *J. Am. Water Wks. Assoc.*, **88**, 122-130.
- Ridgway H.F., Means E.G., Olson B.H., 1981,**
Iron bacteria in drinking water distribution systems: elemental analysis of Gallionella stalks, using X-ray energy dispersive microanalysis, *Appl. Environ. Microbiol.*, **41:1**, 288-297.
- Ridgway H.F., Olson B.H., 1981,**
Scanning electron microscope evidence for bacterial colonization of a drinking water distribution system, *Appl. Environ. Microbiol.*, **41:1**, 274-287.
- Ridgway H.F., Olson B.H., 1982,**
Chlorine resistance patterns of bacteria from two drinking water distribution systems, *Appl. Environ. Microbiol.*, **44:4**, 972-987.
- Ripp S., Miller R.V., 1995,**
Effects of suspended particulates on the frequency of transduction among *Pseudomonas aeruginosa* in a freshwater environment, *Appl. Environ. Microbiol.*, **61:4**, 1214-1219.
- Ristenpart E., 1995,**
Sediment properties and their changes in a sewer, *Water Sci. Tech.*, **31:7**, 77-83.
- Ristenpart E., Ashley R.M., Uhl M., 1995,**
Organic near-bed fluid and particulate transport in combined sewers, *Water Sci. Tech.*, **31:7**, 61-68.
- Rose E., Martens D., Lintelmann J., Kicinski H.G., Gunther W.J., Kettrup A., 1993,**
Behaviour of polycyclic aromatic hydrocarbons and triazine herbicides in water and aquifer material of a drinking water recharge plant, *Fresenius J. Anal. Chem.*, **347**, 44-51.
- Rostad C.E., Leenheer J.A., Daniel S.R., 1997,**
Organic carbon and nitrogen content associated with colloids and suspended particles from the Mississippi River and some of its tributaries, *Environ. Sci. Technol.*, **31:11**, 3218-3225.
- Ryan M., Meiman J., 1996,**
An examination of short term variations in water quality at a karst spring in Kentucky, *Ground Water*, **34:1**, 23-30.
- Sabater S., 1995,**
Algae in urban drinking waters in N.E. Spain, *J. Appl. Phycology*, **7**, 455-460.
- Saby S., Sibille I., Mathieu L., Paquin J.L., Block J.C., 1997,**
Influence of water chlorination on the counting of bacteria with DAPI (4',6-Diamidino-2-Phenylindole), *Appl. Environ. Microbiol.*, **63:4**, 1564-1569.
- Sakakibara T., 1996,**
Sediments flushing experiment in a trunk sewer, *Water Science and Technology*, **33:9**, 229-235.
- Schreiber H., Schoenen D., Traunspurger W., 1997,**
Invertebrate colonization of granular activated carbon filters, *Water Res.*, **31:4**, 743-748.
- Schwarzenbach R.P., Gschwend P.M., Imboden D.M., 1993,**
Environmental organic chemistry, *John Wiley & Sons Inc., New-York*, 681 p.
- Servais P., Laurent P., Billen G., Gatel D., 1995,**
Development of a model of BDOC and bacterial biomass fluctuations in distribution systems, *Revue des Sciences de l'Eau*, **8**, 427-462.
- Servais P., Laurent P., Randon G., 1995,**
Comparison of the bacterial dynamics in various French distribution systems, *J. Water Sci. Res. Technol. - Aqua*, **44:1**, 10-17.

- Sly L.I., Hodgkinson M.C., Arunpairojana V., 1989,
The importance of high aesthetic quality potable water in tourist and recreational area, *Water Sci. Tech.*, **21:2**, 183-187.
- Sly L.I., Hodgkinson M.C., Arunpairojana V., 1990,
Deposition of manganese in a drinking water distribution system, *Appl. Environ. Microbiol.*, **56:3**, 628-639.
- Smith S.E., Bisset A., Colbourne J.S., Holt D., Lloyd B.J., 1997,
The occurrence and significance of particles and deposits in a drinking water distribution system, *J. New England Water Wks. Assoc.*, **111:2**, 135-150.
- Stagg C.H., Wallis C., Ward C.H., 1977,
Inactivation of clay associated bacteriophage MS-2 by chlorine, *Appl. Environ. Microbiol.*, **33:2**, 385-391.
- Standard methods for the examination of water and wastewater, 1992,**
18th edition, American Public Health Association, Washington, DC, USA.
- Stewart M. H., Olson B.H., 1986,
Mechanisms of bacterial resistance to inorganic chloramines, *Proceedings Am. Wat. Wks. As. Wat. Qual. Technol. Conf., Denver, Co*, 577-590.
- Stewart M.H., Wolfe R.L., Means E.G., 1990,
Assessment of the bacteriological activity associated with granular activated carbon treatment of drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, **56:12**, 3822-3829.
- Stewart P.S., Peyton B.M., Drury W.J., Murga R., 1993,
Quantitative observations of heterogeneities in *Pseudomonas aeruginosa* biofilms, *Appl. Environ. Microbiol.*, **59:1**, 327-329.
- Stringfellow W.T., Mallon K., Digiano F.A., 1993,
Enumerating and disinfecting bacteria associated with particles released from GAC Filters-Adsorbers, *J. Am. Water Wks Assoc.*, **85**, 70-80.
- Striquer-Soares F., Chevolot L., 1996,
Particulate and dissolved carbohydrates and proteins in Lobo Reservoir (Sao Paulo State, Brazil): Relationships with phytoplankton, *Journal of Plankton Research*, **18:4**, 521-537.
- Tazi-Pain A., Leborgne R., Butté J.N., 1991,
L'installation de microfiltration tangentielle sur membranes de St Maurice les Chateaufort : premier bilan après un an d'exploitation, *L'eau, l'industrie, Les nuisances*, **146**, 2-6.
- Tkalitch P.V., Cen W., Tay J.H., 1996,
Modeling of heavy metals in a reservoir with diffusive bottom layer, *Water Sci. Tech.*, **34:7-8**, 117-123.
- Tobiason J.E., Johnson G.S., Westerhoff P.K., Vigneswaran B., 1993,
Particle size and chemical effects on contact filtration performance, *J. Environ. Engin.*, **119:3**, 520-539.
- Tranvik L., 1994,
Colloidal and dissolved organic matter excreted by a mixotrophic flagellate during bacterivory and autotrophy, *Appl. Environ. Microbiol.*, **60:6**, 1884-1888.
- Turley C.M., Mackie P.J., 1994,
Biogeochemical significance of attached and free-living bacteria and the flux of particles in the NE Atlantic ocean, *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, **115**, 191-203.
- Valentine R.L., Stearns S.W., 1994,
Radon release from water distribution systems deposits, *Environ. Sci. Technol.*, **28**, 534-537.
- van Lieverloo H., van Buuren R., Veenendaal G., van der Kooij D., 1997,
How to control invertebrates in distribution systems: by starvation or by flushing, *Proceedings Wat. Quality Technol. Conf. of Am. Wat. Wks Assoc., Denver, Co, USA, 9-12 November 1997*, 26 pages.
- van Lieverloo J.H.M., van der Kooij D., Veenendaal G., 1994,
National survey of invertebrates in drinking water distribution systems in the Netherlands, *Proceedings Wat. Qual. Technol. Conf. Am. Wat. Wks. As., San Francisco, Ca*, 2065-2081.
- Vandenabeele J., DeBeer D., Germonpré R., Van de Sande R., Verstraete W., 1995,
Influence of nitrate on manganese removing microbial consortia from sand filters, *Water Res.*, **29:2**, 579-587.
- Veerapaneni S., Wiesner M.R., 1993,
Role of suspension polydispersity in granular media filtration, *J. Environ. Engin.*, **119:1**, 172-190.
- Verbanck M.A., Ashley R.M., Bachoc A., 1994,
International workshop on origin, occurrence and behaviour of sediments in sewer systems: summary of conclusions, *Water Res.*, **28:1**, 187-194.

- Vibert A., Gayaud P., Amyot D., 1991,
Une unité mobile de diagnostic et d'évaluation des dépôts dans les réseaux de distribution, *L'Eau, l'industrie, les nuisances*, **149**, 49-52.
- Vigneswaran S., Chang J.S., Janssens J.G., 1990,
Experimental investigation of size distribution of suspended particles in granular bed filtration, *Water Res.*, **24:7**, 927-930.
- Walski T.M., 1991,
Understanding solids transport in water distribution systems, *Proceedings "Water quality modeling in distribution systems" confer. organized by AWWA and USEPA, Cincinnati, OH, USA*, 305-309.
- Woodward C.A., Ta C.T., Colbourne J., Holt D., 1995,
Behaviour of particles in a large scale experimental pipe system, *Proceedings Wat. Qual. Technol. Conf. Am. Wat. Wks As., New-Orleans, USA*, 641-658.
- Yu K.C., Ho S.T., Chang J.K., Lai S.D., Wang C.H., 1994,
Correlations of water quality, sediments, and benthic invertebrates in Ell-Ren river, Taiwan, *Water Sci. Tech.*, **30:10**, 207-212.
- Yu P., McFeters G.A., 1994,
Physiological responses of bacteria in biofilms to disinfection, *Appl. Environ. Microbiol.*, **60:7**, 2462-2466.
- Zhou J.L., Rowland S., Mantoura R.F.C., 1995,
Partition of synthetic pyrethroid insecticides between dissolved and particulate phases, *Water Res.*, **29:4**, 1023-1031.
- Ziebis W., Huettel M., Forster S., 1996,
Impact of biogenic sediment topography on oxygen fluxes in permeable seabeds, *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, **140**, 227-237.





ANNEXE 1

Analyses XRD (LEM- Jacques Yvon), décembre 96
codage semi quantitatif par hauteur approx. des pics

| n° | RESERVOIRS | CODE | quartz | feldspath | mica | kaolinite | calcite | dolomie | siderite | goethite | lepidocrocite | hematite | magnetite | total |
|----|------------------|--------|--------|-----------|------|-----------|---------|---------|----------|----------|---------------|----------|-----------|-------|
| 7 | Bellevue comp. 1 | BLVC1 | 3 | 0 | 0 | 0 | 1 | 1 | 0 | 1 | 0 | 0 | 0 | 6 |
| 9 | CHU comp. ext | CHCEXT | 10 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 11 |
| 10 | Mainvaux gauche | MVXCG | 5 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 1 | 0 | 1 | 0 | 8 |
| 13 | Trinité comp.1 | TRIC1 | 3 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 3 |
| 14 | Trinité comp. 2 | TRIC2 | 4 | 1 | 0 | 0 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 6 |
| 15 | Gueule du loup | GUDL | 3 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 3 |
| 16 | Haut de Blémont | HDBL | 10 | 3 | 1 | 1 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 16 |
| 17 | Justice | JUST | 5 | 1 | 1 | 0 | 0 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 8 |
| 18 | Chapelle des P. | CHDP | 4 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 1 | 1 | 0 | 0 | 6 |
| 19 | Seichamps | SCHPS | 2 | 0 | 0 | 0 | 0 | 1 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 4 |
| 20 | St Charles C4 | STCHC4 | 10 | 1 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 12 |
| 25 | St Charles C2 | STCHC2 | 8 | 5 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 1* | 0 | 0 | 0 | 14 |
| | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | |
| | PURGES | | | | | | | | | | | | | |
| 21 | Saulxures | SLXRGR | 10 | 3 | 0 | 0 | 3 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 16 |
| 23 | HaieComte | HLCTE | 3 | 0 | 0 | 0 | 2 | 0 | 0 | 1 | 1 | 0 | 2 | 9 |
| 26 | Martinchamps | MRTCH | 7 | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 2 | 1 | 1 | 1 | 13 |
| 28 | Dommartemont | DMTM | 5 | 2 | 0 | 0 | 6 | 0 | 0 | 2 | 1 | 1 | 2 | 19 |
| 30 | Heillecourt | HLLC | 3 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 2 | 1 | 2 | 0 | 8 |
| 32 | Aiguillettes | AGLT | 3 | 1 | 0 | 0 | 2 | 5 | 0 | 2 | 1 | 2 | 2 | 18 |
| 34 | Stanislas | STNSL | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 2 | 1 | 0 | 0 | 3 |
| 36 | Pixéricourt | PXRCT | 0 | 0 | 0 | 0 | 1 | 1 | 0 | 2 | 0 | 1 | 0 | 5 |
| 37 | Pixéricrt -dec | | 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 1 |

* goethite manganèsifère

Nom, Prénom : GAUTHIER Vincent

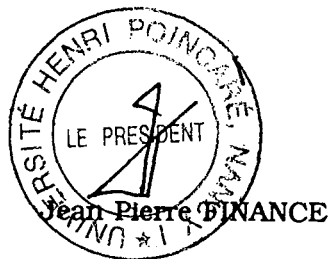
Nature de la thèse :

Doctorat de l'Université Henri Poincaré, Nancy 1
en Biologie et Santé

VU, APPROUVE ET PERMIS D'IMPRIMER

Nancy, le 22 MAI 1998 n. 29.

Le Président de l'Université Henri Poincaré, Nancy 1



Les particules dans les réseaux d'eau potable : caractérisation et impact sur la qualité de l'eau distribuée

Résumé

Ce travail a été initié pour mieux connaître la présence, le transport et l'impact sur la qualité de l'eau de la matière particulaire dans les réseaux d'eau potable.

Un flux constant de particules en suspension a été mesuré à la sortie de l'usine de traitement alimentant le réseau étudié dans les conditions normales de fonctionnement. Même si les concentrations sont faibles (25-50 µg/L), ces particules qui incluent une large fraction organique et même biologique, représentent près d'une tonne introduite dans le réseau.

Le transport de l'eau dans le réseau de distribution "produit" aussi des particules qui sont retrouvées au niveau des dépôts principalement minéraux des réservoirs et canalisations sous forme d'hydroxydes ou carbonates. Les concentrations de particules en suspension (30-130 µg/L) montrent une augmentation liée au transit dans le réseau de distribution.

L'accumulation des composés minéraux dans les dépôts résulte non seulement de la sédimentation des particules en suspension, mais aussi de la transformation de matière dissoute en matière particulaire, probablement par précipitation/floculation, et de la dégradation des matériaux constituant les réseaux. De plus, les concentrations de matière organique dans les dépôts sont environ 1000 fois plus importantes que dans l'eau et l'importante biomasse bactérienne mesurée à ce niveau ($2,5 \cdot 10^8$ bactéries cultivables par gramme de matière sèche) est associée à une chaîne trophique permettant parfois la présence de macro-invertébrés. De fait, les dépôts forment un écosystème protecteur par rapport aux désinfectants véhiculés par l'eau, puisque les composés organiques présents dans les sédiments ont un pouvoir réducteur élevé.

L'accumulation de matière organique et de bactéries cultivables dans les dépôts ne résulte pas de la sédimentation de particules en suspension, mais plutôt de la croissance biologique à partir de la matière dissoute. La limitation de problèmes microbiologiques au niveau de l'eau distribuée, résultant de la remise en suspension de dépôts, dépend donc principalement de la réduction de la matière organique dissoute dans l'eau traitée.

Mots clés : eau potable, réseau de distribution, particules, dépôts, sédiment, matière organique, bactéries, désinfection.

Suspended particles and loose deposits in drinking water distribution systems: characterization and impact on water quality

Abstract

The nature, concentration, and distribution of particles were evaluated in a large water distribution system, both for suspended matter and deposits, to better evaluate their impact on water quality.

A constant flux of particles is found penetrating the distribution system from the treatment plant. Concentrations are low (25-50 µg/L dry matter), and mainly consist in organic and biological material. After one year, such concentrations represent on average 1 ton of particles introduced in the network.

The transport of water in the network produces particles since suspended matter concentration slightly increases (30-130 µg/L), and loose deposits accumulate in pipes and reservoirs. These deposits are mostly minerals (insolubles, hydroxides, carbonates) resulting not only from the sedimentation of particulate matter, but also probably from the precipitation/floculation of dissolved and colloidal material, and from the corrosion of the surfaces in contact with water.

Organic matter is a minority fraction in deposits (less than 20% on average), but corresponds to concentrations about 1000 times higher than in water, resulting in the accumulation of biomass ($2.5 \cdot 10^8$ culturable bacteria per gram), leading in some cases to the presence of macro-invertebrates in deposits. By the way, deposits are forming ecosystems which can act as a refuge *versus* disinfectants carried with water, since organic compounds accumulated in deposits have a high reducing capacity.

The accumulation of organic matter and bacteria in deposits does not result from the sedimentation of suspended particles, but merely from the biological growth on dissolved organic matter. The control of microbial problems resulting from the resuspension of deposits in the water phase can thus mainly be achieved by reducing the quantity of dissolved organic matter introduced in the system.

Key-words: drinking water, distribution system, particle, deposit, sediment, organic matter, bacteria, disinfection