

**Measuring and predicting the fate of contaminants of emerging concern during  
wastewater treatment**

Zeina Baalbaki

A thesis submitted to McGill University in partial fulfillment of the requirements of the  
degree of Doctor of Philosophy

Department of Chemical Engineering  
McGill University  
Montreal, Canada  
August 2016

©Copyright Zeina Baalbaki 2016



## ABSTRACT

The presence of contaminants of emerging concern (CECs) in the aquatic environment and the associated proven toxic impacts have increasingly alarmed researchers. The discharge of wastewater into surface water was identified as the major source for the release of CECs into the environment. Despite the available data on the removal of CECs in wastewater treatment plants (WWTPs) in the literature, previous studies had several shortcomings, resulting in an inaccurate prediction of the CEC fate. This PhD project aimed at monitoring the fate of CECs in different treatment steps with special consideration to the hydrodynamics of the treatment units and adsorption to sludge. The project also aimed at developing and calibrating a model to predict the fate of target CECs in the most widespread secondary treatment technology: the activated sludge process. Among the various classes of CECs, this thesis focused on the widely consumed pharmaceuticals, personal care products, drugs of abuse, hormones, stimulants and artificial sweeteners based on evidences of their presence in treated wastewater implying their inefficient removal during treatment.

Recently, the hydraulic characteristics of WWTPs were demonstrated to bias the calculations of CEC removal if not accounted for. To address this issue, the fractionated approach that integrates hydraulic modelling and improved sampling strategies was recently proposed. In order to verify the capability of the fractionated approach at capturing the hydraulic differences, the temperature and electric conductivity of wastewater were used as tracers to model the hydraulics of two full-scale WWTPs. Results demonstrated that a distinctive model was necessary to describe the hydraulics in each WWTP, requiring different number of days for sampling, as well as different CEC removal calculations.

In order to explore the contribution of the different fate pathways to the removal of CEC during wastewater treatment, a sampling campaign was performed in a WWTP using an optimized sampling strategy based on the fractionated approach to collect and chemically analyze both wastewater and sludge samples. This allowed performing a mass balance on the incoming load of CECs, which was carried out for the first time with consideration to the hydraulic characteristics. Results indicated that for 21 out of 24 investigated CECs, degradation was the major removal process, with sorption accounting for <10% of the input CEC load fate in the

primary clarifier and <5% in the activated sludge process. Most target CECs (22 out of 25) were relatively persistent in rotating biological contactors and sand filtration compared to activated sludge treatment.

In order to predict the fate of CECs, a fate model based on the widespread Activated Sludge Model No. 2d (ASM2d) was further modified to better describe the CEC fate processes in aeration tanks. The state-of-the-art Bürger-Diehl secondary clarifier model was extended to include the CEC fate processes for the first time. The resulting secondary treatment model was calibrated to predict the fate of four target CECs that belong to different classes and undergo different fate processes. Results from global sensitivity analysis indicated that depending on the contaminant's properties, a different set of parameters deserved more attention. Further, dynamic sensitivity analysis should be taken into consideration in future sampling campaigns for model calibration.

## RÉSUMÉ

La présence de contaminants d'intérêt émergent (CIE) dans l'environnement aquatique et les impacts toxiques associés à leur présence alarment de plus en plus les chercheurs. Le rejet d'eaux usées dans les eaux de surface a été identifié comme la source principale du relâchement de ces CIE dans l'environnement. Malgré les données disponibles dans la littérature relativement à l'enlèvement des CIE dans les stations d'épuration des eaux usées (STEP), plusieurs lacunes de ces études doivent être résolues. Ce projet de doctorat visait à évaluer le devenir des CIE dans les différentes étapes de traitement, en portant une attention particulière à l'hydrodynamique des unités de traitement. Le projet visait également à développer et calibrer un modèle de prédiction du devenir des CIE cibles en cours de traitement par boues activées, la technologie de traitement secondaire la plus répandue. Parmi les différentes classes de CIE, cette thèse se concentre sur les produits pharmaceutiques de grande consommation, les produits de soins personnels, les drogues, les hormones, les stimulants et les édulcorants artificiels. La sélection des CIE cibles s'est basée sur leur présence démontrée dans les eaux usées traitées impliquant leur élimination inefficace pendant le traitement.

Récemment, il a été démontré que les caractéristiques hydrauliques des STEP influencent les calculs d'enlèvement des CIE s'ils ne sont pas pris en compte. Pour résoudre ce problème, l'approche fractionnée qui intègre une modélisation hydraulique et des stratégies d'échantillonnage améliorées a été récemment proposée. La conductivité électrique et la température ont été utilisées comme traceurs pour modéliser le comportement hydraulique de deux stations d'épuration, permettant ainsi de vérifier l'efficacité de l'approche fractionnée à capter les différences hydrauliques. Les résultats ont démontré qu'un modèle distinct est nécessaire pour décrire l'hydraulique dans chaque station d'épuration, imposant donc un nombre de jours différent pour l'échantillonnage ainsi que des calculs différents d'élimination des CIE.

Afin d'explorer la contribution des différentes voies d'élimination des CIE au cours du traitement des eaux usées, une campagne d'échantillonnage a été effectuée dans une station d'épuration en utilisant une stratégie d'échantillonnage optimisée basée sur l'approche fractionnée. Les échantillons d'eau et de boue recueillis et analysés au cours de cette campagne ont permis d'effectuer un bilan de matière sur la charge entrante de CIE, ceci étant réalisé pour la première

fois en tenant compte des caractéristiques hydrauliques. Les résultats indiquent que pour 21 des 24 CIE, la dégradation a été le processus principal d'élimination, avec une sorption représentant <10% de l'élimination des charges entrantes de CIE au clarificateur primaire et <5% au procédé de boues activées. La plupart des CIE cibles (22 sur 25) étaient relativement persistants dans les contacteurs biologiques rotatifs et la filtration sur sable par rapport au traitement par boues activées.

Afin de prédire le devenir de CIE au cours du traitement des eaux usées, un modèle basé sur le modèle connu de boues activées No.2d (ASM2d) a été développé afin de mieux décrire les processus qui affectent les CIE dans les bassins d'aération. Les processus d'élimination des CIE ont été ajoutés au modèle Bürger-Diehl de décantation pour la première fois. Les mesures de concentration des CIE ont été utilisées pour calibrer le modèle de traitement secondaire afin de prédire le devenir de quatre CIE cibles qui appartiennent à des classes différentes de CIE et subissent différents processus d'élimination. Les résultats de l'analyse globale de sensibilité ont indiqué qu'un ensemble de paramètres différents méritent une attention particulière selon les propriétés des CIE. L'analyse de sensibilité dynamique pourrait être mis à profit dans des campagnes futures de mesure visant la calibration de modèles.