



**HAL**  
open science

## Émissions de protoxyde d'azote des unités de biofiltration de la station de Seine Aval

Ahlem Filali, J. Bollon, Y. Fayolle, S. Guerin, V. Rocher, Sylvie Gillot

► **To cite this version:**

Ahlem Filali, J. Bollon, Y. Fayolle, S. Guerin, V. Rocher, et al.. Émissions de protoxyde d'azote des unités de biofiltration de la station de Seine Aval. Innover dans les pratiques de monitoring et d'exploitation des stations d'épuration. Enseignements scientifiques et techniques tirés de la phase I du programme (2014-2017).Mocopée, Astee, pp.181-187, 2018. hal-02609238

**HAL Id: hal-02609238**

**<https://hal.inrae.fr/hal-02609238>**

Submitted on 16 May 2020

**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.



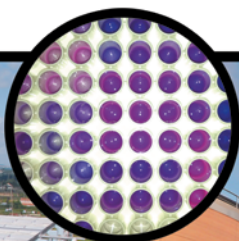
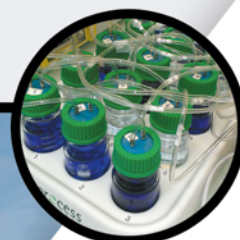
Soutenu par le Service Public de l'Assainissement Francilien (SIAAP)

MODÉLISATION, CONTRÔLE ET OPTIMISATION DES PROCÉDÉS D'ÉPURATION DES EAUX



## INNOVER DANS LES PRATIQUES DE MONITORING ET D'EXPLOITATION DES STATIONS D'ÉPURATION

Enseignements scientifiques et techniques tirés de la phase I du programme (2014-2017)



Organismes de coordination du programme



Service public de l'assainissement francilien



ISBN 978-2-490604-01-2 9782490604012

### Crédits photos


REPORTAGE LCDEA/DÉCEMBRE 2012

Le bar Floréal photographie  
contact@bar-floreal.com  
01 43 49 55 22

LT : © Laetitia Tura/le bar Floréal.photographie  
AL : © André Lejarre/le bar Floréal.photographie

### Création graphique, mise en page et impression

*(Couverture d'après la charte graphique du programme Mocopée)*

 id bleue - Sablé (72) - [www.idbleue.com](http://www.idbleue.com)

# INNOVER DANS LES PRATIQUES DE MONITORING ET D'EXPLOITATION DES STATIONS D'ÉPURATION

Enseignements scientifiques et techniques  
tirés de la phase I du programme (2014-2017)

Ouvrage coordonné par Anne Guillon et Vincent Rocher  
Secrétariat éditorial par Muriel Auriol et Géraldine Izambart

Ouvrage introductif à la journée de restitution du programme de recherche Mocopée organisée  
le 4 décembre 2018 à la Cité de l'eau et de l'assainissement du SIAAP à Colombes.

Organisée par



Île-de-France

En partenariat avec



*Les propos et les avis exprimés dans les articles qui suivent n'engagent que leurs auteurs  
et ne reflètent pas nécessairement l'opinion de l'Astee.*

## AVANT-PROPOS DU

# SIAAP

Service public de l'assainissement francilien



### Jacques Olivier

*Directeur Général du Syndicat interdépartemental pour l'assainissement de l'agglomération parisienne (Siaap)*

« Le Siaap est riche d'une capacité de recherche et développement et d'une expertise technique de qualité. Leur combinaison lui permet à la fois d'être en appui au développement de la performance de son exploitation, de maîtriser la transformation de son outil industriel et d'anticiper les évolutions réglementaires, technologiques et scientifiques. Sa démarche est fondée, d'une part sur la recherche d'une compréhension approfondie du système d'assainissement et de son environnement, et, d'autre part, sur le développement d'outils méthodologiques et technologiques répondant à ses problématiques.

Le Siaap construit sa démarche sur le long terme, tel qu'en témoigne le lancement en 2016 du projet d'entreprise Siaap 2030 qui vise notamment à maintenir une innovation dynamique et en phase avec les grands enjeux industriels et environnementaux de demain. Cette démarche s'appuie sur un réseau de partenaires scientifiques et universitaires, ainsi que des industriels de premier plan, et s'organise autour de la coordination de programmes de recherche pluridisciplinaires centrés sur les problématiques industrielles actuelles et à venir.

Construit il y a maintenant cinq ans, le programme Mocopée constitue une pierre centrale de l'édifice. Ce programme est un terrain propice à l'émergence de concepts, connaissances et solutions innovantes indispensables pour répondre aux défis de demain, mais constitue également une véritable plateforme de déploiement de l'innovation. Car mettre l'innovation au service des enjeux de l'assainissement suppose que l'on construise les solutions innovantes mais aussi que l'on raccourcisse le délai entre l'émergence de la solution et son application concrète sur le terrain. Il est essentiel que l'innovation scientifique, catalysée au sein de ces programmes R&D, percole au sein du Siaap et plus globalement au sein des organismes en charge de l'assainissement des grandes agglomérations urbaines. »

## AVANT-PROPOS DE



« Dans le contexte de changement global, Irstea répond aux enjeux économiques et socio-environnementaux majeurs, en particulier sur la gestion des ressources naturelles - eau, biodiversité, bioressources, bioéconomie et économie circulaire, la maîtrise des risques naturels et environnementaux, l'adaptation des écosystèmes forestiers et aquatiques... Cette recherche finalisée, reconnue par le label Carnot depuis 2006, est conduite en partenariat avec les services de l'État, les collectivités territoriales et les acteurs économiques, et permet l'émergence de solutions concrètes et adaptées car au plus proche des enjeux sociétaux et des préoccupations des entreprises.

Référent technique et scientifique dans le domaine du traitement et de la valorisation des eaux usées, Irstea contribue à répondre aux enjeux qui s'imposent aujourd'hui avec l'introduction de la circularité dans le traitement des déchets et effluents : améliorer la qualité de l'eau épurée, réduire les impacts environnementaux des activités d'épuration et valoriser les ressources des eaux usées. Pour les scientifiques d'Irstea, l'objectif est double : améliorer les connaissances sur les procédés et accompagner les acteurs publics et privés dans la conception, l'exploitation et l'optimisation des installations de traitement et de valorisation des eaux usées.

Né de la volonté d'Irstea, du Siaap et de l'UTC de définir un programme commun de recherche en phase avec les grands enjeux industriels actuels et futurs du traitement et de la valorisation des eaux usées, le programme Mocopée (Modélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux) a relevé le défi pour faire émerger des solutions concrètes et fédérer l'ensemble des acteurs du domaine. Vous trouverez ci-après un bilan complet de cette première phase et des résultats dégagés. L'entrée du programme dans sa deuxième phase permettra de poursuivre cette démarche tout en la renforçant par l'intégration de nouveaux acteurs et l'élargissement des thématiques abordées. »

**Marc Michel**

*Président de l'Institut national de recherche en sciences et technologies pour l'environnement et l'agriculture (Irstea)*



## AVANT-PROPOS DE



### Philippe Courtier

*Directeur Général de l'Université de Technologie de Compiègne (UTC)*

« Construite sur une pédagogie de l'autonomie et une recherche technologique interdisciplinaire orientée vers l'innovation, l'UTC forme des ingénieurs, masters et docteurs aptes à appréhender les interactions de la technologie avec l'homme et la société. L'UTC propose des formations où les sciences de l'ingénierie, les sciences humaines et sociales, les sciences économiques et politiques sont intégrées harmonieusement au service de l'éducation de l'ingénieur, du scientifique, du manager du futur, innovant, humaniste.

La stratégie de recherche et d'innovation de l'UTC est le reflet de la valeur ajoutée collective et des apports spécifiques de ses laboratoires, qui incarnent son cœur scientifique. Une recherche technologique, partenariale, pluridisciplinaire, interculturelle et avant tout propice à l'innovation, à la création de valeurs et de connaissances, une recherche également en connexion avec les problèmes réels du monde socio-économique. La recherche à l'UTC est ainsi interdisciplinaire et interculturelle.

Dans un contexte technique et réglementaire évolutif très rapide et très important dans le domaine du traitement des eaux, il était naturel que l'UTC s'associe avec le Siaap et l'Irstea pour construire le programme de recherche appliquée Mocopée en phase avec les enjeux industriels du domaine de l'assainissement. L'objectif est de faire évoluer les pratiques d'exploitation et de proposer des outils de suivi et de pilotage innovants (capteurs, méthodes de caractérisation de matrices, modèles d'aide à la décision), dans le but d'accroître le niveau d'optimisation des filières de traitement. Les thématiques de recherche de l'Unité TIMR, relatives à la Chimie et au Génie des Procédés s'adressent naturellement entre autres à la métrologie et aux procédés de traitement et de valorisation des eaux et de la matière.

Le programme Mocopée constitue un remarquable exemple réussi de la volonté de l'UTC de dynamisation de la connaissance scientifique, en partenariat avec des acteurs publics et industriels dans le domaine de traitement des eaux et de la valorisation de la matière. »



# SOMMAIRE

## AVANT-PROPOS

Jacques Olivier, *Directeur Général du Siaap*  
 Marc Michel, *Président de l'Irstea*  
 Philippe Courtier, *Directeur Général de l'UTC*

page 4  
 page 5  
 page 6

## VISIONS D'ACTEURS EXTÉRIEURS

Vues de l'international  
 Vues de collectivités françaises  
 Vues d'exploitants de stations d'épuration urbaines  
 Vues de chercheurs  
 Vue d'une agence de l'eau  
 Vue d'un éditeur scientifique et technique

page 10  
 page 14  
 page 19  
 page 28  
 page 34  
 page 36

## DOSSIER SCIENTIFIQUE

Partie introductive  
 Métrologie innovante appliquée à la file de traitement des eaux  
 Métrologie innovante appliquée à la file de traitement des boues  
 Espèces intermédiaires du cycle de l'azote en station d'épuration  
 Modélisation des procédés de traitement en station d'épuration

page 41  
 page 49  
 page 129  
 page 159  
 page 199

## CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Mocopée demain : les grandes orientations de la phase II (2018-2022)  
 Le mot de la fin par la Présidente du comité de la recherche de l'Astee

page 253  
 page 264

## UN MOT SUR LE COMITÉ DE PILOTAGE ET DE COORDINATION DU PROGRAMME

page 265

## TABLE DES MATIÈRES DÉTAILLÉE

page 268





# Émissions de protoxyde d'azote des unités de biofiltration de la station de Seine Aval

## Nitrous oxide emissions from BAF reactors of Seine Aval WWTP

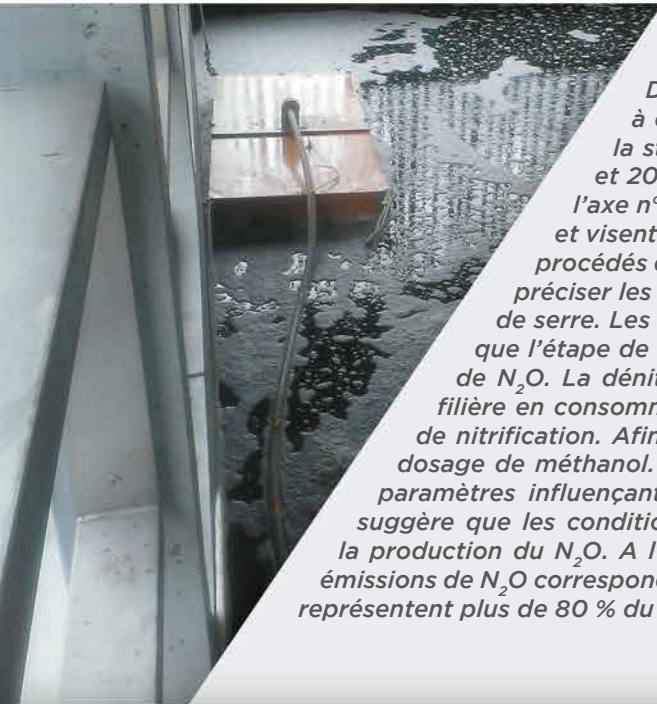
Ahlem Filali<sup>[1]\*</sup>, Julien Bollon<sup>[1]</sup>, Yannick Fayolle<sup>[1]</sup>, Sabrina Guérin<sup>[2]</sup>, Vincent Rocher<sup>[2]</sup>, Sylvie Gillot<sup>[3]</sup>

<sup>[1]</sup> Irstea, UR HBAN, Antony

<sup>[2]</sup> Siaap, Direction Innovation Environnement, Colombes

<sup>[3]</sup> Irstea, UR REVERSAAL, Villeurbanne

\* Auteur de correspondance : ahlem.filali@irstea.fr



*Des mesures d'émission de protoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O, puissant gaz à effet de serre) ont été réalisées sur les unités de biofiltration de la station de Seine Aval au cours de l'année 2014 (période estivale) et 2015 (période hivernale). Ces travaux s'inscrivent dans le cadre de l'axe n°1 du programme Mocopée « Métrologie et traitement du signal » et visent à apporter une estimation du facteur d'émission de N<sub>2</sub>O pour les procédés de biofiltration en nitrification tertiaire et post-dénitrification et à préciser les conditions opératoires favorisant la production de ce gaz à effet de serre. Les résultats obtenus à l'échelle des unités de biofiltration indiquent que l'étape de nitrification est la source principale de production et d'émission de N<sub>2</sub>O. La dénitrification permet, quant à elle, de réduire les émissions de la filière en consommant une partie du flux de N<sub>2</sub>O dissous issu de l'étape amont de nitrification. Afin de maximiser ce taux de réduction, il convient d'optimiser le dosage de méthanol. Une analyse statistique a été réalisée afin d'identifier les paramètres influençant la production de N<sub>2</sub>O lors de la nitrification. Celle-ci suggère que les conditions conduisant à l'expansion du biofilm favoriseraient la production du N<sub>2</sub>O. A l'échelle de cette filière de traitement de l'azote, les émissions de N<sub>2</sub>O correspondent à environ 2,1 % de la charge d'azote entrante et représentent plus de 80 % du bilan carbone.*

Biofiltre - Dénitrification - Gaz à effet de serre - Nitrification - Protoxyde d'azote

## Introduction

Le protoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O) est un puissant gaz à effet de serre (GES) dont le potentiel de réchauffement global est équivalent à 300 fois celui du dioxyde de carbone. Il joue également un rôle important dans la destruction de la couche d'ozone (RAVISHANKARA *et al.*, 2009). Principalement d'origine naturelle (sol et hydrosphère), il est également émis par les activités anthropiques, en particulier l'agriculture, l'industrie, le transport et le traitement des eaux résiduaires, dans lequel il est émis lors de la transformation biologique de l'azote par nitrification et dénitrification.

La contribution du secteur de traitement des eaux résiduaires aux émissions anthropiques mondiales de N<sub>2</sub>O a été estimée à une valeur de 3,5 % (GIEC<sup>1</sup>, 2014). Bien que ces émissions paraissent négligeables comparées à l'ensemble des quantités émises, le contexte réglementaire et sociétal actuel de lutte contre les émissions de GES oblige à considérer et limiter l'ensemble de leurs flux, quelles qu'en soient les sources. En France, l'article 75 de la loi Grenelle II du 12 Juillet 2010 et le décret d'application n° 2011-829 du 11 juillet 2011, rendent obligatoires pour les collectivités territoriales de plus de 50 000 habitants, le rendu de bilans d'émission des GES et la mise en place de démarches visant à leur réduction. Lors de l'élaboration de ces bilans, l'estimation des émissions de GES repose principalement sur l'utilisation de facteurs d'émission fixes connus.

<sup>1</sup> Le Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du Climat (GIEC) est un organisme qui a pour but d'évaluer l'information scientifique, technique et socio-économique pour comprendre le risque du changement climatique d'origine humaine. Il produit principalement des rapports d'évaluation, et des directives sur les méthodes et les pratiques en matière d'inventaire des émissions nationales de gaz à effet de serre.

Actuellement, le facteur d'émission directe ( $3,2 \text{ g N}_2\text{O/EH/an}$ , équivalent à  $0,037 \%$  de l'azote entrant), utilisé pour quantifier les émissions directes du secteur de traitement biologique des eaux résiduaires urbaines et recommandé par le GIEC, provient de données acquises sur une seule station d'épuration à boues activées d'Amérique du Nord (CZEPIEL *et al.*, 1995). Si les données d'émission de  $\text{N}_2\text{O}$  par les procédés conventionnels à boues activées se sont multipliées ces dernières années, celles des procédés à biomasse fixée, tels que les biofiltres, sont encore très rares. Or, ce procédé est aujourd'hui très répandu en particulier dans les zones urbaines denses. C'est le cas de l'Île-de-France puisque quatre des six usines du Siaap intègrent dans leur filière de traitement des eaux des unités de biofiltration (Seine Aval, Seine Grésillon, Seine Centre et Marne Aval).

Dans le but d'apporter des informations sur les conditions de formation de protoxyde d'azote et son taux d'émission, deux campagnes de mesure intensives ont été réalisées sur les unités de biofiltration de Seine Aval au cours de l'année 2014 et 2015. Le présent chapitre présente les résultats et conclusions majeurs de ces travaux.

## 1. Matériels et méthodes

### 1.1. STATION DE SEINE AVAL

La station de Seine Aval, exploitée par le Siaap, est la plus grande station d'épuration francilienne. Elle est dimensionnée pour recevoir un débit de  $1,700,000 \text{ m}^3/\text{j}$  correspondant à environ 5 millions d'équivalent habitants. Au moment des campagnes de mesures (2014-2015), le traitement secondaire y était réalisé dans des bassins à boues activées associés à des clarificateurs ( $C_m = 0,4 - 0,6 \text{ kgDBO}_5/\text{kgMVS/j}$ ). S'en suit une étape de décantation physico-chimique visant à abattre les matières en suspension et le phosphore particulaire. L'étage de traitement biologique de l'azote est constitué de 84 Biostyr® en nitrification tertiaire et de 18 Biostyr® et 12 Biofor® en post-dénitrification (seuls les biostyrs® dénitrifiants qui traitent la majeure partie du flux de nitrate ont été suivis dans le cadre de cette étude). L'intensité de l'aération est régulée en fonction de la concentration en ammonium en sortie des biofiltres nitrifiants. Le méthanol est dosé en entrée des biofiltres dénitrifiants sur la base d'un ratio  $\text{DBO}/\text{NO}_3\text{-N}$  appliqué de 3,5 et d'une mesure en ligne de la concentration en nitrate.

### 1.2. PROTOCOLE D'ÉCHANTILLONNAGE ET DE MESURE

Afin d'évaluer la variabilité saisonnière des émissions, deux campagnes de mesure d'une durée de 15 jours chacune, ont été réalisées. La première (en période estivale) a eu lieu au cours du mois de septembre 2014 et la seconde (en période hivernale) a été réalisée fin janvier - début février 2015. L'objectif de la campagne estivale était d'évaluer indépendamment les émissions de  $\text{N}_2\text{O}$  de deux biofiltres spécifiques en nitrification tertiaire et post-dénitrification. Ainsi, chacun de ces deux biofiltres a été suivi en continu durant une semaine (7 jours). La campagne de mesure en période hivernale visait à évaluer les émissions de  $\text{N}_2\text{O}$  de la filière de traitement de l'azote. Un suivi en parallèle des biofiltres nitrifiants et dénitrifiants a été réalisé au cours de deux semaines.

Les émissions gazeuses ont été quantifiées en continu grâce à un système automatique combiné de collecte et de mesure. Le gaz issu du bassin est collecté à la surface par un collecteur flottant placé au centre du biofiltre étudié. Une fois le débit gazeux mesuré (avec des débitmètres massiques ayant des gammes de mesure différentes en nitrification et en dénitrification), la composition du gaz et notamment sa teneur en  $\text{N}_2\text{O}$  est déterminée à l'aide d'un analyseur fonctionnant sur le principe de la spectroscopie dans le domaine de l'infra-rouge (AP2E, ProCeas). Les flux émis sont alors déterminés en multipliant la composition du gaz par son débit. Les performances et les conditions de traitement des biofiltres ont été caractérisées à l'aide de bilans moyens 24 h et de l'instrumentation des biofiltres avec divers capteurs :  $\text{N}_2\text{O}$  dissous (Unisense A/S,  $\text{N}_2\text{O-R}$ ),  $\text{NH}_4^+/\text{NO}_3^-$  (WTW, Varion), oxygène dissous (HACH, LDO), pH et température (WTW, 1971). Par ailleurs, des prélèvements ponctuels ont régulièrement été effectués afin de caractériser la concentration en nitrites en sortie des biofiltres.

### 1.3. LIEN ENTRE LE FLUX DE $\text{N}_2\text{O}$ ET LES PARAMÈTRES OPÉRATOIRES

Le lien entre le flux de  $\text{N}_2\text{O}$  et les paramètres opératoires des biofiltres nitrifiants a fait l'objet d'une analyse statistique sous R. Seules les données mesurées en continu ont été considérées pour l'analyse. Aussi, les données ponctuelles de nitrites, dont le nombre ne permettait pas de calculer une moyenne représentative de certaines

périodes de suivi (en particulier pour les nuits et les week-ends), n'ont pas été considérées. Les paramètres explicatifs dont le choix a été réalisé selon le critère statistique AIC « critère d'information d'Akaike » ont été employés pour réaliser une régression linéaire multiple selon la procédure décrite par CORNILLON (2012).

## 1.4. COMPARAISON DES ÉMISSIONS DE N<sub>2</sub>O AUX ÉMISSIONS INDIRECTES DE CO<sub>2</sub>

Sur la base des données de la campagne hivernale, un bilan des émissions indirectes de CO<sub>2</sub> de la filière de traitement de l'azote a été établi. Celui-ci comprend les émissions relatives à la consommation d'électricité (114 gCO<sub>2</sub>/kWh) et de méthanol (0,759 kgCO<sub>2</sub>/kg méthanol) auquel ont été comparées les émissions directes de CO<sub>2</sub> équivalentes au N<sub>2</sub>O émis (265 kgCO<sub>2</sub>/kgN<sub>2</sub>O).

## 2. Résultats et discussion

### 2.1. RÉPARTITION LIQUIDE/GAZ DU N<sub>2</sub>O

En **nitrification**, la répartition liquide/gaz du flux de N<sub>2</sub>O était contrastée entre les deux campagnes de mesure et très variable lors de la campagne hivernale. En été, la répartition était stable autour d'une valeur moyenne de 22 % liquide - 78 % gaz. Lors de la campagne hivernale elle a évolué de 30 % liquide - 70 % gaz en début de campagne vers 45 % liquide - 55 % gaz en fin de campagne. La variation de la répartition liquide/gaz est corrélée à la variation du coefficient de transfert volumique du N<sub>2</sub>O ( $k_{L,N_2O}$ , estimé à partir de celui de l'oxygène) en lien avec le changement de température (impactant la solubilité du gaz dans l'eau et le coefficient de transfert) et le débit d'air injecté. Ces résultats montrent que le flux de N<sub>2</sub>O dissous en nitrification est loin d'être négligeable et qu'il convient de le comptabiliser lors de la réalisation des bilans.

En **dénitrification**, le suivi simultané des flux de N<sub>2</sub>O gazeux et dissous indique que moins de 1 % du flux total (gaz + liquide) est émis vers l'atmosphère, ce qui signifie que plus de 99 % du flux de N<sub>2</sub>O est rejeté dans le milieu récepteur avec l'effluent. D'un point de vue méthodologique, ce résultat a permis de s'affranchir de la mesure du flux de N<sub>2</sub>O gazeux en dénitrification lors de la campagne hivernale.

### 2.2. VARIABILITÉ DES ÉMISSIONS ET FACTEURS D'ÉMISSION

#### En nitrification

Lors des deux campagnes de mesure, les biofiltres nitrifiants ont été identifiés comme étant la source principale de production et d'émission de N<sub>2</sub>O. Le flux total de N<sub>2</sub>O (gaz + liquide) représentait en moyenne 2,26 % de la charge ammoniacale traitée en été et plus du double (4,86 %) en hiver (Tableau 1). L'analyse statistique révèle que le flux total de N<sub>2</sub>O est corrélé à six paramètres : (1) température, (2) concentration en ammonium en entrée, (3) débit liquide, (4) concentration en nitrate en entrée, (5) temps de filtration et (6) débit d'air (Tableau 2).

		Campagne estivale (n=7)		Campagne hivernale (n=15)	
		Moyenne	Ecart-type	Moyenne	Ecart-type
<b>Nitrification</b>	Gaz	0,49	0,09	1,73	0,32
	Liquide	1,77	0,38	3,13	0,49
	Total	2,26	0,46	4,86	0,54
<b>Dénitrification</b>	Gaz	1,28	1,99	0,22	0,31
	Liquide	~ 0	~ 0	~ 0	~ 0
	Total	1,28	1,99	0,22	0,31
(%)	Abattement N <sub>2</sub> O <sub>dissous</sub>	-	-	86	19

Tableau 1 : Facteurs de production et d'émission en nitrification et dénitrification

Variable	Valeur estimée	Erreur standard	Pr (>  t  )
Température	-0,83553	0,04701	< 2,00e-16
[NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> ] en entrée	0,46390	0,04824	< 2,00e-16
Débit liquide	0,30154	0,05727	5,42e-7
[NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> ] en entrée	0,19510	0,04434	2,19e-5
Temps de filtration	0,16610	0,02651	4,69e-9
Débit d'air	0,15699	0,05579	5,63e-3

Tableau 2 : Coefficients estimés pour la régression linéaire multiple

L'augmentation des émissions de N<sub>2</sub>O avec la charge ammoniacale reçue ou traitée (indiquée par un effet positif de la concentration ammoniacale entrante, débit liquide et débit d'air) est en accord avec les résultats de la littérature (CHANDRAN *et al.*, 2011 ; LAW *et al.*, 2012).

L'augmentation de la production de N<sub>2</sub>O en hiver, indiquée par un effet négatif de la température, traduit une possible augmentation de la production de N<sub>2</sub>O avec l'épaisseur du biofilm. L'hypothèse d'un biofilm plus épais et/ou plus dense en hiver est fortement suspectée car sont observés : (i) le maintien de la charge volumique nitrifiée avec une réduction de la température de l'eau d'environ 8 °C, (ii) l'augmentation de la perte de charge initiale en hiver traduisant un état d'ensemencement du massif plus important (2,6 cm H<sub>2</sub>O/m<sub>media</sub>/m h<sup>-1</sup> en hiver contre 1,4 cm H<sub>2</sub>O/m<sub>media</sub>/m h<sup>-1</sup> en été) et (iii) la présence de concentrations en nitrites dans l'effluent plus élevées en hiver; signe de la présence de limitations plus importantes de diffusion de l'oxygène dans le biofilm. Il apparaît donc que les conditions opératoires entraînant une expansion du biofilm, comme par exemple l'augmentation du temps de filtration, s'accompagnent d'émissions plus importantes. Une récente étude numérique a été réalisée afin d'analyser les mécanismes de production de N<sub>2</sub>O dans un réacteur biofilm (SABBA *et al.*, 2015). Les résultats de cette étude confirment l'augmentation de la production de N<sub>2</sub>O avec l'épaisseur du biofilm et l'expliquent par l'activation de la voie de réduction des nitrites en NO et N<sub>2</sub>O (dénitrification nitrifiante) dans les couches internes du biofilm en conditions d'absence d'oxygène et de présence d'hydroxylamine (intermédiaire de l'oxydation de l'ammonium).

### En dénitrification

Le comparatif des flux de N<sub>2</sub>O dissous en entrée et en sortie des biofiltres dénitrifiants indique que, la majeure partie du temps, le flux sortant est inférieur au flux entrant. Les émissions gazeuses étant négligeables (§ 2.1 Répartition liquide/gaz), ce résultat indique donc que la dénitrification hétérotrophe consomme une partie du flux de N<sub>2</sub>O issu de l'étage de nitrification. L'abattement du N<sub>2</sub>O dissous était en moyenne de 86 % lors de la campagne hivernale (les données obtenues lors de la campagne estivale ne permettent pas d'établir une moyenne). Néanmoins des pics de production ont ponctuellement été observés en lien avec des dysfonctionnements des pompes de dosage de méthanol entraînant une réduction du ratio DBO/N en dessous de 3. En dehors de ces dysfonctionnements, l'abattement du N<sub>2</sub>O dissous par les biofiltres nitrifiants était en moyenne de 95 %. Il apparaît donc qu'il convient de contrôler l'apport de carbone pour limiter la production de N<sub>2</sub>O et maximiser sa consommation lors de la dénitrification hétérotrophe.

## 2.3. BILAN AZOTE ET CARBONE DE LA FILIÈRE

Sur la base des résultats de la campagne hivernale, un bilan sur l'azote a été réalisé afin d'estimer le facteur d'émission de la filière (Figure 1). Notons que la perte d'azote particulière lors des phases de lavage n'a pas été considérée dans le bilan. Nous avons également fait l'hypothèse que les performances épuratoires de l'ensemble des biofiltres dénitrifiants de la station (Biostyr et Biofor) étaient similaires sur les paramètres nitrate et N<sub>2</sub>O dissous.

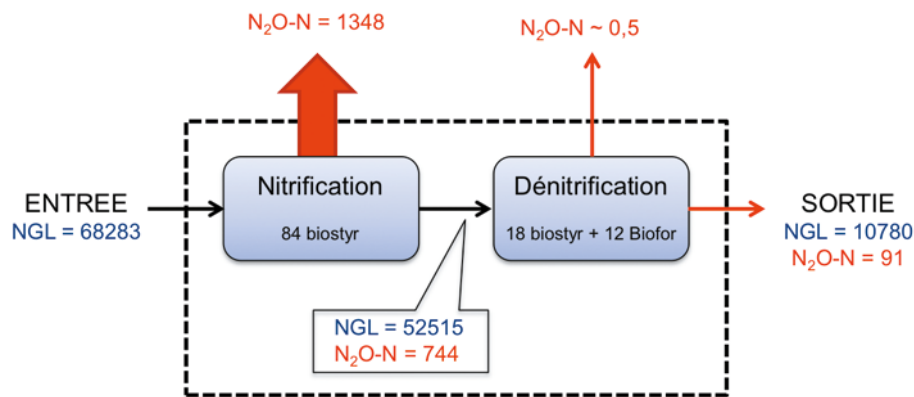


Figure 1 : Schéma représentant les flux d'azote moyens à l'échelle de la filière en période hivernale (kgN/j)

Le flux total de N<sub>2</sub>O de la filière est estimé à 1440 kg N<sub>2</sub>O-N/j correspondant à environ 2,1 % de la charge d'azote entrante. Ce facteur est environ 60 fois supérieur au facteur préconisé par le GIEC (0,037 %). Il est également largement supérieur aux facteurs mesurés sur les procédés conventionnels à boues activées en aération prolongée : 0,004 % - 0,2 % (BOLLON *et al.*, 2016).

Ce flux représente plus de 80 % des émissions de CO<sub>2</sub> de la filière, soit quasiment 5 fois les émissions indirectes liées à la consommation de méthanol et d'électricité. Ces chiffres montrent donc l'importance de la prise en compte de valeurs appropriées du facteur d'émission de N<sub>2</sub>O pour la réalisation de bilans carbone des installations de traitement. A titre d'exemple, si le facteur préconisé par le GIEC était utilisé pour ce même bilan carbone, la tendance serait opposée avec la consommation de méthanol dominant le bilan CO<sub>2</sub> et les émissions de N<sub>2</sub>O ne contribueraient alors qu'à hauteur de 20 %.

## Conclusion

Les principales conclusions de cette étude sont les suivantes :

- Les émissions de N<sub>2</sub>O en nitrification tertiaire et en post dénitrification sont très variables aussi bien à l'échelle de la journée qu'au cours des campagnes de mesure. Un suivi continu des flux de N<sub>2</sub>O sur une période minimale correspondant à un cycle de filtration est nécessaire pour une bonne estimation des émissions.
- En post-dénitrification, plus de 99 % du flux total de N<sub>2</sub>O (gaz + liquide) est rejeté dans le milieu récepteur avec l'effluent. En nitrification, la répartition liquide/gaz du N<sub>2</sub>O varie en fonction de la température et du débit de gaz appliqué. Que ce soit en nitrification ou en dénitrification, le flux de N<sub>2</sub>O dissous représente une part importante du flux total. Il convient donc de le considérer dans les bilans.
- Alors que les biofiltres nitrifiants constituent la principale source de production et d'émission de N<sub>2</sub>O à l'échelle de la filière, les biofiltres dénitrifiants réduisent une grande partie du flux de N<sub>2</sub>O dissous issu de l'étage amont de nitrification. Afin de maximiser cette consommation, il convient d'optimiser et de contrôler avec précision le dosage de méthanol.
- L'augmentation de la production de N<sub>2</sub>O par les biofiltres nitrifiants en hiver pourrait être liée à l'augmentation de l'épaisseur du biofilm et à des limitations plus importantes de diffusion de l'oxygène.
- A l'échelle de la filière de traitement de l'azote, le flux de N<sub>2</sub>O correspondait - lors de la campagne hivernale - à environ 2,1 % de la charge d'azote entrante et représentait plus de 80 % du bilan carbone. Ce résultat souligne l'importance de la prise en compte de valeurs appropriées des facteurs d'émission de N<sub>2</sub>O pour la réalisation de bilans carbone des installations.

Dans le cadre projet ANR-N<sub>2</sub>OTrack (<http://n2otrack.insa-toulouse.fr/>), des campagnes de mesure complémentaires sur d'autres installations exploitées par le Siaap sont en cours de réalisation, et ce afin de caractériser la variabilité des émissions sur un échantillon plus large et ainsi de préciser l'ordre de grandeur du facteur d'émission des procédés de biofiltration. De plus, les données récoltées servent au développement de modèles afin d'affiner l'estimation des émissions et d'identifier des stratégies de réduction compatibles avec les objectifs opérationnels de fiabilisation des performances de traitement et réduction des coûts d'exploitation. Pour plus d'information sur les travaux de modélisation des émissions de N<sub>2</sub>O en biofiltration, le lecteur intéressé pourra se référer à l'article en section IV.5.3 de cet ouvrage.

## Remerciements

Cette étude a été financée par Office National de l'Eau et des Milieux Aquatiques (action 39) et par le programme de recherche Mocopée. Les auteurs tiennent à remercier chaleureusement C. Briand, A. Thevenin et A. Auge (Siaap) pour leur aide précieuse à la réalisation des mesures sur site. Merci également à S. Pageot, D. Delage et P. Mauricrace (Irstea) pour leur participation aux campagnes de mesure.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- › BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GUERIN S., ROCHER V., GILLOT S. (2016a) : « Full-scale post denitrifying biofilters: sinks of dissolved N<sub>2</sub>O? » *Science of The Total Environment* ; 563-564 : 320-328.
- › BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GUERIN S., ROCHER V., GILLOT S. (2016b) : « N<sub>2</sub>O emissions from full-scale nitrifying biofilters ». *Water Research* ; 102 : 41-51.
- › FILALI A., BOLLON J., FAYOLLE Y., GUERIN S., ROCHER V., GILLOT S. (2017) : « Nitrous oxide emissions from full-scale nitrifying and denitrifying BAF reactors. » *Proceedings of 10<sup>th</sup> IWA conference on Biofilm Reactors*, Dublin, Ireland, 9-12 Mai 2017.

## Bibliographie

- BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GILLOT S. (2016) : *Mesure in situ des émissions de N<sub>2</sub>O dans les procédés de traitement des ERUs (synthèse des résultats des campagnes de mesure)*. Rapport final de la sous action 2 - action 39, 14 p.
- CHANDRAN K., STEIN L.Y., KLOTZ M.G., VAN LOOSDRECHT M.C.M. (2011): « Nitrous oxide production by lithotrophic ammonia-oxidizing bacteria and implications for engineered nitrogen-removal systems. » *Biochemical Society Transactions* ; 39 : 1832-1837.
- CORNILLON P.P., GUYADER A., HUSSON F., JÉGOU N., JOSSE J., KLOAREG M., MATZNER-LØBER E., ROUVIÈRE L. (2012) : *R FOR STATISTICS*. CRC/CHAPMAN & HALL. LONDON.
- CZEPIEL P., CRILL P., HARRISS R. (1995) : « Nitrous-Oxide Emissions from Municipal Waste-Water Treatment. » *Environmental Science & Technology* ; 29 : 2352-2356.
- GIEC. Industry. In: *Climate Change 2014: Mitigation of Climate Change*. Contribution of Working Group III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- LAW Y., NI, B.-J., LANT P., YUAN Z. (2012) : « N<sub>2</sub>O production rate of an enriched ammonia-oxidising bacteria culture exponentially correlates to its ammonia oxidation rate. » *Water Research* ; 46 : 3409-3419.
- RAVISHANKARA A.R., DANIEL J.S., PORTMANN R.W. (2009) : « Nitrous Oxide (N<sub>2</sub>O) : The Dominant Ozone-Depleting Substance Emitted in the 21<sup>st</sup> Century. » *Science* ; 326(5949) : 123-125.
- SABBA F., PICIOREANU C., PEREZ J., NERENBERG R. (2015) : « Hydroxylamine Diffusion Can Enhance N<sub>2</sub>O Emissions in Nitrifying Biofilms: A Modeling Study. » *Environmental Science & Technology* ; 49 : 1486-1494.