



HAL
open science

Modélisation des émissions de protoxyde d'azote par biofiltration nitrifiante : importance des hypothèses liées au transfert gaz/liquide

Justine Fiat, Ahlem Filali, Y. Fayolle, M. Spérandio, Jean Bernier, V. Rocher, Sylvie Gillot

► To cite this version:

Justine Fiat, Ahlem Filali, Y. Fayolle, M. Spérandio, Jean Bernier, et al.. Modélisation des émissions de protoxyde d'azote par biofiltration nitrifiante : importance des hypothèses liées au transfert gaz/liquide. 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, pp.221-229, 2018. hal-02609239

HAL Id: hal-02609239

<https://hal.inrae.fr/hal-02609239>

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.

MOCOPÉE

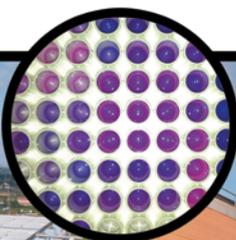
Soutenu par le Service Public de l'Assainissement Francilien (SIAAP)

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

SIAAP
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

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'Astée.*

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, <i>Directeur Général du Siaap</i>	page 4
Marc Michel, <i>Président de l'Irstea</i>	page 5
Philippe Courtier, <i>Directeur Général de l'UTC</i>	page 6

VISIONS D'ACTEURS EXTÉRIEURS

Vues de l'international	page 10
Vues de collectivités françaises	page 14
Vues d'exploitants de stations d'épuration urbaines	page 19
Vues de chercheurs	page 28
Vue d'une agence de l'eau	page 34
Vue d'un éditeur scientifique et technique	page 36

DOSSIER SCIENTIFIQUE

Partie introductive	page 41
Métérologie innovante appliquée à la file de traitement des eaux	page 49
Métérologie innovante appliquée à la file de traitement des boues	page 129
Espèces intermédiaires du cycle de l'azote en station d'épuration	page 159
Modélisation des procédés de traitement en station d'épuration	page 199

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Mocopée demain : les grandes orientations de la phase II (2018-2022)	page 253
Le mot de la fin par la Présidente du comité de la recherche de l'Astee	page 264

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

page 265

TABLE DES MATIÈRES DÉTAILLÉE

page 268

Modélisation des émissions de protoxyde d'azote par biofiltration nitrifiante : importance des hypothèses liées au transfert gaz/liquide

Modeling nitrous oxide emissions from nitrifying BAFs: importance of gas/liquid transfer hypotheses

Justine Fiat^[1], Ahlem Filali^{[1]*}, Yannick Fayolle^[1], Mathieu Spérandio^[2], Jean Bernier^[3], Vincent Rocher^[3], Sylvie Gillot^[4]

^[1] Irstea, UR HBAN, Antony

^[2] LISBP, Université de Toulouse, CNRS, INRA, INSA, Toulouse

^[3] Siaap, Direction Innovation Environnement, Colombes

^[4] Irstea, UR REVERSAAL, Villeurbanne

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



Le contrôle des émissions de gaz à effet de serre, en particulier celles du protoxyde d'azote (N_2O), constitue un enjeu émergent du secteur du traitement des eaux usées. Aujourd'hui, la compréhension des mécanismes de production de N_2O dans les procédés à biomasse fixée, potentiellement très émetteurs, est moins avancée que pour les procédés conventionnels à boues activées. Dans le projet $N_2OTRACK$ (2016-2019), financé par l'Agence Nationale de la Recherche et s'inscrivant dans l'axe 2 du programme Mocopée, un modèle décrivant les performances de traitement d'un biofiltre nitrifiant a été étendu pour inclure les processus biologiques de production de N_2O , puis confronté à un jeu de données collectées à l'échelle réelle. Une étude de sensibilité a été menée pour évaluer l'impact de la représentation du transfert gaz/liquide sur les prédictions du modèle. Les résultats soulignent l'importance de bien caractériser la composition des deux phases, gazeuse et liquide, pour permettre la description des émissions de N_2O . En particulier, la prise en compte de l'enrichissement du gaz en N_2O sur la hauteur du biofiltre s'avère essentielle à la bonne représentation de la répartition du flux de N_2O entre les phases gazeuse et liquide.

Biofiltration - Échelle réelle - Modélisation - Nitrification - Protoxyde d'azote - Transfert gaz/liquide

Introduction

Les biofiltres sont des procédés de traitement intensifs dans lesquels la biomasse épuratoire se développe sur un support granulaire immergé. Le passage de l'eau à travers ce support permet une filtration des matières en suspension combinée à une élimination de la pollution carbonée et/ou azotée. Développés depuis la fin des années 80, ces procédés sont aujourd'hui couramment employés en Europe, et en particulier dans les zones urbaines aux fortes contraintes foncières (ROCHER *et al.*, 2012).

De récentes études (BOLLON *et al.*, 2016b; WANG *et al.*, 2016) montrent que les biofiltres sont d'importantes sources de protoxyde d'azote (N_2O), un puissant gaz à effet de serre qui contribue au réchauffement climatique et à la destruction de la couche d'ozone (RAVISHANKARA *et al.*, 2009). Au sein des installations de traitement des eaux, le N_2O est principalement produit lors de la transformation biologique de l'azote par nitrification et dénitrification. Les mesures réalisées sur les biofiltres nitrifiants de la station Seine Aval (~ 5 millions d'équivalent-habitants) indiquent des taux d'émission du N_2O élevés, bien supérieurs à ceux des procédés conventionnels à boues activées en aération prolongée (BOLLON *et al.*, 2015). De plus, il apparaît que ces émissions, si elles étaient

comptabilisées, multiplieraient par 4 le bilan carbone de la file biologique de traitement de l'azote de l'installation. Il semble donc nécessaire de préciser les conditions favorables à la production de N_2O afin de réduire l'empreinte environnementale de ces procédés.

Le développement et la validation de modèles dynamiques constituent une perspective essentielle pour affiner l'estimation des émissions de N_2O et les extrapoler pour différentes conditions opératoires des procédés et ainsi proposer des stratégies de réduction. Dans le cas du protoxyde d'azote, des modèles biocinétiques représentant une ou plusieurs voies de production ont été proposés ces dernières années, dont des revues bibliographiques ont été proposées par Ni & Yuan (2015) et MASSARA *et al.* (2017). Cependant, ces modèles ont principalement été appliqués aux procédés conventionnels à boues activées et n'ont encore jamais été employés pour évaluer les émissions de N_2O de procédés de biofiltration en grandeur réelle.

Dans le cadre d'un projet collaboratif mené entre le Siaap et l'université Laval, un modèle représentant le fonctionnement des biofiltres nitrifiants de la station Seine Aval a été développé et validé (BERNIER *et al.*, 2014). Afin que cet outil permette, à terme, d'orienter les choix et modes d'exploitation des procédés sur des critères environnementaux incluant l'impact climatique, des travaux ont été entrepris pour y intégrer les processus de production de N_2O . Dans ce contexte, une première action a été menée pour évaluer l'impact de la représentation du transfert gaz/liquide sur les prédictions du modèle. En effet, celui-ci considère un bilan matière sur l'oxygène dans la phase liquide mais le néglige dans la phase gazeuse, ce qui revient à considérer une teneur en oxygène constante dans le gaz sur l'ensemble du réacteur. Si cette hypothèse est peu critiquable pour l'oxygène, elle ne l'est peut-être pas pour d'autres gaz comme le monoxyde d'azote (NO) ou le protoxyde d'azote. Ce chapitre vise donc à présenter, pas à pas, les différentes hypothèses de transfert gaz/liquide implémentées et leur impact sur la prédiction des performances de traitement de l'azote et des émissions de N_2O .

1. Matériels et méthodes

1.1. DONNÉES EXPÉRIMENTALES

Le jeu de données employé provient d'une campagne de mesure de 14 jours réalisée, en janvier 2015, sur un biofiltre nitrifiant de la station Seine Aval. Il inclut principalement : la concentration de l'azote (NH_4^+ , NO_3^- et N_2O dissous) en entrée et en sortie du biofiltre, la concentration en oxygène dissous (O_2) et nitrites (NO_2^-) ainsi que le pH et la température en sortie du biofiltre, les flux gazeux de N_2O et les données de supervision (débits d'eau et d'air). Les principales caractéristiques de fonctionnement du biofiltre étudié à cette période sont reportées dans le Tableau 1. Pour plus de détails, se référer à BOLLON *et al.* (2016b).

N = 14	Charge appliquée	Charge traitée	Aération	Charge hydraulique	Flux de N_2O dissous	Flux de N_2O gazeux	N_2O émis / N_2O total
	kgN- NH_4/m^3	matériau/j	$Nm^3/kgN-NH_4$	$m^3/m^2/h$	kgN- N_2O/j		%
Moyenne	1,1	0,9	74,4	4,9	10,0	20,0	65
Ecart-type	0,2	0,2	5,6	0,8	1,6	3,2	6

Tableau 1 : Caractéristiques de l'unité de biofiltration étudiée

1.2. MODÈLE BIOCINÉTIQUE ET DE FILTRATION

L'hydraulique du biofiltre est représentée par sept réacteurs en série, chacun composé d'un compartiment liquide et de deux couches de biofilm, tous considérés comme parfaitement mélangés. Un réacteur additionnel représente la surverse (sortie du biofiltre) qui est également supposée homogène. Cette zone est dite « passive » car elle contient peu de biomasse (seulement celle issue du détachement) et n'est donc pas le siège principal des conversions biologiques. La zone dite « active » désignera donc le volume des sept réacteurs en série qui contiennent le biofilm. Le modèle de biofiltration décrit de nombreux processus tels que : l'advection, la diffusion de solubles, la filtration de particules et le détachement de particules. Pour plus de détails, se référer à BERNIER *et al.* (2014).

Les processus de production de N_2O par les bactéries hétérotrophes et autotrophes ont été intégrés au modèle initial. La dénitrification hétérotrophe est décrite en quatre étapes ($NO_3^- \rightarrow NO_2^- \rightarrow NO \rightarrow N_2O \rightarrow N_2$) selon le

modèle de Hiatt & Grady (2008) et ses valeurs de paramètres par défaut. La nitrification est décrite en deux étapes : nitrification (oxydation du NH_4^+ en NO_2^- par les bactéries nitrifiantes) puis nitrification (oxydation du NO_2^- en NO_3^- par les bactéries nitrifiantes). La production de N_2O par les bactéries nitrifiantes est décrite selon le modèle de POCQUET *et al.* (2016) qui considère deux voies principales : (1) l'oxydation incomplète de l'hydroxylamine pendant l'oxydation de l'ammonium en nitrite et (2) la dénitrification autotrophe qui correspond à la réduction des nitrites en NO et N_2O . Les paramètres biocinétiques employés sont issus des travaux de LANG *et al.* (2016) – cas n°2, qui a réalisé le calage du modèle dans des gammes de concentrations en substrat azoté proches de celles mesurées sur le site étudié ici.

Les paramètres des autres processus biologiques inchangés (lyse cellulaire, hydrolyse...) sont issus des travaux de BERNIER *et al.* (2014).

1.3. MODÈLE DE TRANSFERT GAZ/LIQUIDE

Dans cette partie, le modèle de transfert proposé par BERNIER *et al.* (2014) est décrit brièvement, puis les différentes modifications qui lui ont été apportées, résumées dans le Tableau 2, sont précisées.

Dans chaque réacteur (n), le flux d'oxygène transféré de la bulle de gaz vers le liquide est décrit comme égal au produit d'un coefficient volumique de transfert par une force motrice (Eq. 1). Cette dernière représente la différence entre la concentration maximale de l'oxygène en solution et la concentration dissoute effective en sortie du réacteur. Selon la loi de Henry, la concentration maximale en solution est proportionnelle à la pression partielle de l'oxygène dans le gaz, laquelle est estimée à partir de sa fraction molaire et la pression totale dans le réacteur considéré (Eq. 2). Le transfert gaz/liquide dans la zone passive (surverse) étant plus faible que celui de la zone active (KIES *et al.* 2005), celui-ci est exprimé de manière analogue mais en considérant un facteur de réduction F_R égal à 0,032, comme cela est fait par BERNIER *et al.* (2014).

$$[\text{Eq. 1}] \quad F_{i,G \rightarrow L,n} = \alpha \cdot F \cdot V_{L,n} \cdot k_{L,i} a_i \cdot (\beta \cdot C_{i,L,n}^* - C_{i,L,n})$$

$$[\text{Eq. 2}] \quad C_{i,L,n}^* = K_{H,i} \cdot Y_{i,n} \cdot P_{\text{total},n}$$

avec $F_{i,G \rightarrow L,n}$ le flux de i transféré de la phase gazeuse à la phase liquide d'un réacteur n (g/j), α le facteur de réduction du transfert dans l'eau usée, F le facteur de réduction lié à l'encrassement des diffuseurs, $V_{L,n}$ le volume liquide d'un réacteur n (m^3), $k_{L,i} a_i$ le coefficient volumique de transfert du soluté i (j^{-1}), β le facteur de réduction de la concentration à saturation due à la salinité, $C_{i,L,n}^*$ la concentration à saturation du soluté i côté liquide dans le réacteur n (g/m^3), $C_{i,L,n}$ la concentration du soluté i dans la phase liquide du réacteur n (g/m^3), $K_{H,i}$ le coefficient de Henry du soluté i ($\text{g}/\text{m}^3/\text{atm}$), $y_{i,n}$ la fraction molaire dans le gaz du soluté i dans le réacteur n , et $P_{\text{total},n}$ la pression dans un réacteur n (atm). Ces relations s'appliquent à chaque soluté i décrits dans le gaz (O_2 , N_2 , N_2O , NO).

Le modèle d'origine fait l'hypothèse que la fraction molaire de l'oxygène dans la phase gazeuse, sur l'ensemble du réacteur, est constante et égale à la fraction atmosphérique ($\sim 0,21$). Afin d'évaluer l'impact de cette hypothèse sur les résultats de simulation, un bilan matière sur la phase gazeuse a été considéré (cf. section 1.3.4 – simulations #4 et #5).

Le coefficient de transfert volumique de l'oxygène est décrit en fonction de la vitesse superficielle de gaz et de la température (Eq.3). Les paramètres de ce modèle ont été calés pour représenter la concentration en NH_4^+ en sortie de biofiltre (BERNIER *et al.* 2014).

$$[\text{Eq. 3}] \quad k_{L,i} a_{\text{O}_2} = A \cdot U_G^B \cdot \theta^{T-20^\circ\text{C}}$$

avec A , B et θ des constantes empiriques, U_G la vitesse superficielle de gaz ($\text{Nm}^3/\text{m}^2/\text{i}$) et T la température ($^\circ\text{C}$). Dans cette étude, les échanges gaz-liquide ont aussi été implémentés pour le N_2O , le NO et le N_2 . Ces gaz étant peu solubles dans l'eau, il est possible d'estimer le coefficient volumique de transfert de ces gaz à partir de celui de l'oxygène et du ratio des diffusivités en application du modèle de pénétration de Higbie (1935) (Eq.4).

$$[\text{Eq. 4}] \quad k_{L,i} a_i = k_{L,i} a_{\text{O}_2} \cdot \sqrt{\frac{D_i}{D_{\text{O}_2}}}$$

avec D_i le coefficient de transfert du soluté i dans l'eau (m^2/j).

1.3.1. Evolution du coefficient de transfert avec la vitesse superficielle de gaz (simulation #1)

Comme indiqué précédemment, le coefficient volumique de transfert de l'oxygène est corrélé à la vitesse superficielle de gaz selon une loi exponentielle faisant intervenir deux paramètres A et B (Eq. 3). Initialement, les valeurs issues des travaux de GILLOT *et al.* (2005), menés à l'échelle d'un pilote Biostyr non ensemencé et dans des conditions de débit d'air et d'eau similaires à celles simulées, ont été employées. L'emploi de ces paramètres (A=43 et B=0,63) conduisait à une sous-estimation importante de la nitrification, ce qui a conduit à leur calage (A=17 et B=0,85).

Cependant, l'intégration d'un bilan matière dans la phase gazeuse (cf. section 1.3.4), a nécessité d'intégrer dans le modèle une rétention gazeuse (ϵ_G), laquelle varie également en fonction de la vitesse superficielle de gaz. L'étude de GILLOT *et al.* (2005) ayant caractérisé l'évolution conjointe du $k_L a_{O_2}$ et ϵ_G en fonction de U_G , il a été décidé de reprendre, dans un premier temps, les valeurs de référence de cette étude.

1.3.2. Prise en compte de la présence de média et d'une rétention gazeuse variable pour l'estimation de la pression (simulation #2)

Dans le modèle d'origine, la pression dans un réacteur donné (n) est estimée en considérant que la colonne d'eau au-dessus du réacteur n'est constituée que de gaz (5 %) et d'eau (95 %). Or, dans un Biostyr, ce volume est en réalité occupé par le support granulaire (billes de polystyrène) dont la densité est plus faible que celle de l'eau (rapport 1 : 20). Ce support est ici considéré dans le calcul de la pression (Eq. 5). La fraction de média est constante et considérée homogène dans le biofiltre, tandis que la fraction de biofilm évolue en fonction de la croissance nette du biofilm et de son taux de détachement (Eq. 6). L'évolution de la rétention gazeuse en fonction d' U_G est issue des travaux de GILLOT *et al.* (2005) – Eq.7. Il est à noter que l'hypothèse simplificatrice que cette rétention est homogène sur la hauteur du biofiltre est faite. Enfin, la fraction liquide est déduite des précédentes fractions (Eq.8).

$$[\text{Eq. 5}] \quad P_{\text{total},n} = g \cdot h_n (\epsilon_G \cdot \rho_G + \epsilon_{L,n} \cdot \rho_L + \epsilon_{S,n} \cdot \rho_S + \epsilon_{B,n} \cdot \rho_B)$$

$$[\text{Eq. 6}] \quad \epsilon_{B,n} = Z_n a_a$$

$$[\text{Eq. 7}] \quad \epsilon_G = 2,86 \cdot 10^{-2} - 4,10 \cdot 10^{-4} \cdot U_G + 6,76 \cdot 10^{-5} U_G^2$$

$$[\text{Eq. 8}] \quad \epsilon_{L,n} = 1 - (\epsilon_G + \epsilon_{S,n} + \epsilon_{B,n})$$

avec g la constante gravitationnelle (m/s^2), h_n la hauteur d'un réacteur (m), $\rho_G, \rho_L, \rho_S, \rho_B$, les masses volumiques du gaz, de l'eau, du média et du biofilm respectivement (g/m^3), $\epsilon_G, \epsilon_L, \epsilon_S, \epsilon_B$, les fractions de gaz, d'eau, de média et de biofilm respectivement (-), Z_n l'épaisseur de biofilm dans un réacteur (m), et a_a la surface spécifique du média (m^2/m^3).

1.3.3. Prise en compte du volume de gaz pour le calcul du volume utile (simulation #3)

Initialement, le volume utile dans un réacteur donné était déduit du volume total de ce réacteur ($V_{R,n}$) auquel était soustrait le volume solide ($V_{S,n}$) et le volume de biofilm ($V_{B,n}$). En réalité, ce volume « interstitiel » inclut également un volume de gaz (Eq.9). Celui-ci est estimé à partir de la rétention gazeuse (Eq. 10).

$$[\text{Eq. 9}] \quad V_{L,n} = V_{R,n} - V_{S,n} - V_{B,n} - V_{G,n}$$

$$[\text{Eq. 10}] \quad V_{G,n} = \epsilon_G \cdot V_{R,n}$$

avec $V_{R,n}, V_{S,n}, V_{B,n}, V_{G,n}$, les volumes total, de solide, colonisé par le biofilm et occupé par le gaz, respectivement d'un réacteur n (m^3).

1.3.4. Prise en compte d'un bilan matière sur la phase gazeuse (simulations #4 et #5)

Afin d'apprécier l'impact de la variation de la composition du gaz au sein du réacteur sur les résultats de simulation, un bilan matière a été implémenté sur la phase gazeuse (Eq. 11). Celui-ci a d'abord été réalisé sur l'oxygène seul (simulation #4 pour apprécier l'impact spécifique sur la nitrification), puis sur l'ensemble des gaz considérés (O_2, NO, N_2O, N_2 - simulation #5).

$$[\text{Eq. 11}] \quad V_{G,n} \frac{\partial C_{i,G,n}}{\partial t} = (Q_{a,ir,n-1} C_{i,G,n-1} - Q_{a,ir,n} C_{i,G,n}) - \alpha \cdot F \cdot V_{L,n} \cdot k_{Lai} \cdot (\beta \cdot C_{i,L,n} - C_{i,L,n})$$

Avec $C_{i,G,n}$ la concentration du soluté i dans la phase gazeuse du réacteur n (g/m^3), et $Q_{a,ir}$ le débit d'air injecté (Nm^3/j).

1.3.5. Synthèse des modifications apportées au modèle d'origine (BERNIER *et al.*, 2014)

L'ensemble des modifications apportées au modèle d'origine et des simulations réalisées est présenté dans le Tableau 2.

N°	$k_L a_{O_2}$	Pression	Fraction gazeuse	Volume liquide	Bilan matière	Remarque
#0	$17 \cdot U_G^{0,85}$	Gaz /liquide	/	$V_R - V_B - V_S$	/	Modèle d'origine
#1	$43 \cdot U_G^{0,63}$	Gaz /liquide	/	$V_R - V_B - V_S$	/	Modification des paramètres A et B
#2	$43 \cdot U_G^{0,63}$	Gaz/liquide/solide	$f(U_G)^a$	$V_R - V_B - V_S$	/	Prise en compte du média et d'une rétention gazeuse variable pour le calcul de la pression
#3	$43 \cdot U_G^{0,63}$	Gaz/liquide/solide	$f(U_G)^a$	$V_R - V_B - V_S - V_G$	/	Prise en compte du volume de gaz pour le calcul du volume utile
#4	$43 \cdot U_G^{0,63}$	Gaz/liquide/solide	$f(U_G)^a$	$V_R - V_B - V_S - V_G$	O ₂ seulement	Intégration d'un bilan matière en phase gazeuse sur l'O ₂
#5	$43 \cdot U_G^{0,63}$	Gaz/liquide/solide	$f(U_G)^a$	$V_R - V_B - V_S - V_G$	Tous les gaz	Intégration d'un bilan matière en phase gazeuse sur tous les gaz
#6	$91 \cdot U_G^{0,63}$	Gaz/liquide/solide	$f(U_G)^a$	$V_R - V_B - V_S - V_G$	Tous les gaz	Calage des paramètres A et B

$$a \ \varepsilon_G = 2,86 \cdot 10^{-2} - 4,10 \cdot 10^{-4} \cdot U_G + 6,76 \cdot 10^{-5} \cdot U_G^2 \text{ (GILLOT *et al.* 2005)}$$

Tableau 2. Synthèse des simulations effectuées

Pour chaque hypothèse, une simulation en régime quasi-stationnaire a été réalisée (sur 100 jours) suivie d'une seconde en régime dynamique (sur 14 jours). Les résultats issus de la simulation en régime dynamique sont présentés sous forme de moyenne journalière sur la période étudiée ou, pour plus de détails, sous forme de moyenne horaire. Une simulation supplémentaire (simulation #6) a été réalisée afin de caler les paramètres du nouveau modèle de transfert gaz/liquide.

2. Résultats et discussion

2.1. PRÉDICTIONS DU MODÈLE D'ORIGINE (SIMULATION #0)

Avant modification de la représentation du transfert gaz/liquide (simulation #0, Tableau 2), le modèle est capable de reproduire très correctement les valeurs de concentrations en azote (NH_4^+ , NO_3^- et NO_2^-) et oxygène dissous dans l'effluent ainsi que leur dynamique. L'écart moyen entre les résultats de simulation et les mesures est de -1 % pour NH_4^+ , -3 % pour NO_3^- et +10 % pour NO_2^- . La charge ammoniacale traitée estimée par le modèle est en moyenne de 572 kgN/j contre 571 kgN/j selon les mesures. Sans calage préalable des paramètres des processus N_2O , le modèle surestime la production nette de N_2O d'environ 25 %, mais surtout échoue dans la description de la répartition du flux de N_2O entre les phases liquide et gazeuse. En effet, celui-ci surestime la proportion de N_2O dans la phase gazeuse. Le ratio entre les émissions gazeuses et le flux total (gaz + liquide) estimé est de 96 %, alors qu'un ratio moyen de 67 % a été mesuré sur site. Ces résultats soulignent donc les limites de la représentation initiale du transfert gaz/liquide, et justifient l'intégration d'un bilan massique sur la phase gazeuse.

2.2. IMPACT DES HYPOTHÈSES DE TRANSFERT SUR LES PRÉDICTIONS DU MODÈLE

2.2.1. Evolution du coefficient de transfert avec la vitesse superficielle de gaz (simulation #1)

Pour une vitesse superficielle de gaz en moyenne de $12 \text{ Nm}^3/\text{m}^2/\text{h}$, le coefficient volumique de transfert de l'oxygène est de 91 h^{-1} pour le modèle initial contre 64 h^{-1} pour le modèle modifié. Cette baisse du $k_{L,a_{O_2}}$ entraîne logiquement une baisse du flux d'oxygène transféré et se traduit par une baisse importante de la nitrification. La charge ammoniacale traitée passe de 572 à 449 kgN/j (baisse de 22 %).

Ce résultat confirme que les paramètres issus de l'étude expérimentale en pilote de GILLOT *et al.* (2005), bien que réalisée dans des conditions expérimentales proches de celles simulées, ne permettent pas de représenter le transfert d'oxygène d'une unité de biofiltration à taille réelle. En l'absence de données expérimentales *in situ*, les paramètres du modèle seront ajustés.

2.2.2. Prise en compte de la présence de média pour l'estimation de la pression (simulation #2)

Les résultats de simulation suggèrent que la prise en compte de la présence de support (billes de polystyrène) pour l'estimation de la pression impacte la prédiction de la nitrification. Selon le modèle initial, la pression en bas et haut (surverse) du biofiltre est respectivement de 1,44 et 1,07 atm (hauteur totale de 3,75 m). Lorsque la présence de support est considérée, la pente de l'évolution de la pression simulée est plus douce car la pression en entrée du biofiltre (premier réacteur) est plus faible (1,24 atm au lieu de 1,44 dans la précédente simulation) alors que la pression dans la surverse reste la même (zone sans support). On observe donc une baisse de la pression moyenne à l'échelle du réacteur (9 %) concomitante à celle de la nitrification. La charge ammoniacale traitée passe de 449 à 405 kgN/j.

Ce résultat peut s'expliquer par le fait qu'une diminution de la pression au sein du réacteur conduit à une concentration en oxygène dissous en équilibre avec la phase gaz ($C_{i,L,n}^*$) plus faible (Eq.2), ce qui a pour effet de réduire le gradient de concentration ($C_{i,L,n}^* - C_{i,L,n}$), assimilable à une force motrice, et donc le transfert gaz/liquide (Eq.1). C'est pourquoi, la baisse de nitrification est plus importante en bas de réacteur, où l'écart de pression entre les deux simulations est le plus grand. On voit donc que la manière de représenter le biofiltre (comme un système bi-phasique ou tri-phasique) induit des différences notables sur les résultats de simulations, aussi bien sur les profils que sur les valeurs moyennes du transfert gaz/liquide et de nitrification.

2.2.3. Prise en compte du volume de gaz pour le calcul du volume utile (simulation #3)

La rétention gazeuse estimée par simulation est en moyenne de 3,5 %, variant de 2,9 à 5,1 % en fonction du débit de gaz appliqué. Dans la zone active, cela représente un volume de gaz de 21 m^3 . Sa prise en compte réduit le volume liquide et la nitrification d'environ 12 %. Le volume liquide passe de 161 m^3 à 140 m^3 ; et la nitrification qui était lors de la simulation précédente estimée à 405 kgN/j est réduite à 356 kgN/j. Cette baisse de la nitrification peut s'expliquer par la réduction du temps de séjour hydraulique (réduction de l'ordre de 2 minutes). Elle est, selon le modèle, plus importante en bas de colonne car le biofilm y est plus épais (zone recevant les charges de pollution carbonée, azotée et particulaire les plus importantes).

Le volume de gaz étant relativement faible, celui-ci est généralement négligé lors de la modélisation des procédés de traitement des eaux, d'autant que les bilans matière sur la phase gazeuse ne sont que très rarement considérés. Si cette hypothèse simplificatrice est valide dans les procédés à biomasse en suspension pour lesquels le volume utile s'apparente au volume du réacteur, cela n'est pas le cas dans les procédés à biomasse fixée. Dans les procédés de biofiltration, le volume de solide (support + biofilm) qui représente la majeure partie du volume de réacteur (estimé selon le modèle à 444 m^3 et représentant 73 % du volume total) laisse peu d'espace au passage de l'eau. Il est donc cohérent que la réduction de ce volume par la prise en compte de la fraction gazeuse ait un impact significatif sur les performances de nitrification.

2.2.4. Prise en compte d'un bilan matière sur la phase gazeuse (simulations #4 et #5)

Le bilan matière en phase gazeuse a été implémenté dans un premier temps pour l'oxygène seul (simulation #4), puis dans un second temps, pour l'ensemble des gaz (simulation #5). La Figure 1 présente l'évolution de la fraction molaire gazeuse de l' O_2 , NO et N_2O sur la hauteur du biofiltre. Du fait du transfert de l'oxygène de la phase gazeuse vers la phase liquide et de sa consommation par les microorganismes, on observe une légère diminution de la fraction molaire de l'oxygène sur la hauteur du biofiltre, qui passe de 0,208 à 0,185. Cet appauvrissement du gaz en oxygène a pour effet de diminuer le gradient de concentration à l'interface gaz/liquide de 6 % en

moyenne. Cette baisse de transfert s'accompagne logiquement d'une réduction de la nitrification, la charge ammoniacale traitée passant de 356 à 329 kgN/j.

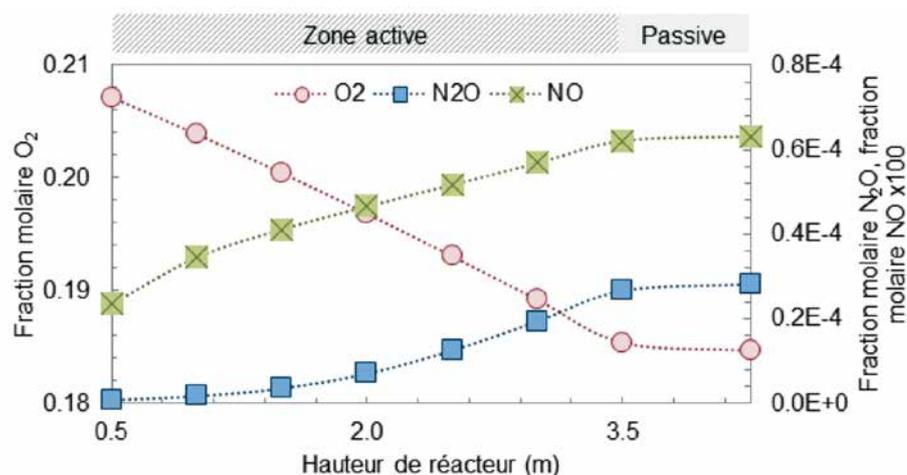


Figure 1. Evolution des fractions molaires de l'oxygène, monoxyde d'azote et protoxyde d'azote dans le gaz sur la hauteur de biofiltre. Chaque point représente la valeur moyenne sur la période étudiée.

Les résultats de la simulation #5 indiquent que la variation de la composition du gaz est plus significative pour le monoxyde et protoxyde d'azote que pour l'oxygène. Le rapport de concentration entre le bas et le haut du réacteur est de 2,7 pour le NO et de 33,5 pour le N₂O. De plus, à l'inverse de l'oxygène, on observe un enrichissement du gaz en NO et N₂O sur la hauteur du biofiltre. La concentration moyenne en N₂O dans le gaz émis est de 273 ppm, ce qui représente presque 1000 fois sa concentration atmosphérique. Dans une moindre mesure, la même observation est faite pour le NO, dont la concentration en sortie est de 6 ppm en moyenne. La production de N₂O prédite est plus faible que dans la simulation précédente #4 (25,0 contre 26,4 kgN-N₂O/j), mais la différence majeure porte sur la répartition gaz/liquide du flux de NO et N₂O. Initialement, et jusqu'à implémentation du bilan matière sur la phase gazeuse, le modèle ne parvenait pas à décrire cette répartition. Il surestimait fortement le flux gazeux (ou émis) au détriment du flux liquide. Avec l'implémentation du bilan matière, le modèle tient en compte l'enrichissement graduel du gaz en N₂O (et NO), ce qui a pour effet de diminuer son gradient de concentration à l'interface le long du massif du biofiltre et limite donc son transfert vers la phase liquide. En conséquence, le modèle prédit un ratio N₂O émis/N₂O total (gaz + liquide) de 70 %, proche donc des 65 % mesurés sur site. Pour rappel le ratio prédit avant l'implémentation du bilan matière était de plus de 90 %.

L'intégration du bilan matière sur l'oxygène pour la seule prédiction des performances de traitement de l'azote ne semble pas nécessaire (réduction de la nitrification de seulement 6 %). En revanche, celui-ci s'avère indispensable pour prédire correctement les émissions de N₂O. Une prédiction correcte du résiduel de N₂O dissous est également importante si l'on souhaite évaluer par simulation des stratégies de réduction puisque ce dernier peut être consommé par la dénitrification hétérotrophe (BOLLON *et al.*, 2016a).

2.3. PRÉDICTION SIMULTANÉE DE LA NITRIFICATION ET DES ÉMISSIONS DE N₂O (SIMULATION #6)

Dans sa forme actuelle, le modèle sous-estime la nitrification de 42 % en raison des modifications successives apportées à la représentation du transfert gaz/liquide. Un calage de ce nouveau modèle est donc nécessaire. A l'instar de BERNIER *et al.* (2014), les paramètres de la relation empirique décrivant l'évolution du $k_L a_{O_2}$ en fonction de U_G (Eq. 3) ont été ajustés afin d'augmenter le transfert d'oxygène. Nous avons fait le choix, en première approximation, de ne pas modifier la valeur de l'indice exponentiel (B) et d'augmenter celle du paramètre A. Ceci a pour effet de garder une même courbure de l'exponentielle que celle des travaux de GILLOT *et al.* (2005) tout en augmentant la valeur du coefficient volumique de transfert.

Au cours de la période étudiée, le $k_L a_{O_2}$ calé est en moyenne de 134 h⁻¹ contre 64 h⁻¹ avant calage. Sa valeur ajustée était d'environ 91 h⁻¹ dans le modèle d'origine. Le modèle décrit à nouveau correctement l'abattement du NH₄⁺ (-4 %) et la production de NO₃⁻ (-1 %) et NO₂⁻ (+16 %). Sans calage préalable des paramètres des processus de N₂O, celui-ci la surestime la production de N₂O de 20 % seulement. Les dynamiques de production du N₂O

en fonction des conditions opératoires (charge entrante, débit d'air, température de l'eau...) sont également globalement bien représentées.

L'augmentation du coefficient volumique de transfert de l'oxygène induit une légère augmentation du ratio N_2O émis/ N_2O produit (75 % au lieu de 70 % en moyenne), mais celui-ci reste bien inférieur au ratio prédit par le modèle d'origine, et ce grâce à la prise en compte de l'évolution de la composition du gaz. La dynamique de ce ratio au cours de la période d'étude, est elle aussi bien représentée comme l'indique la Figure 2, notamment pendant la chute de température et de charge ammoniacale reçue par l'installation à partir du jour 3.

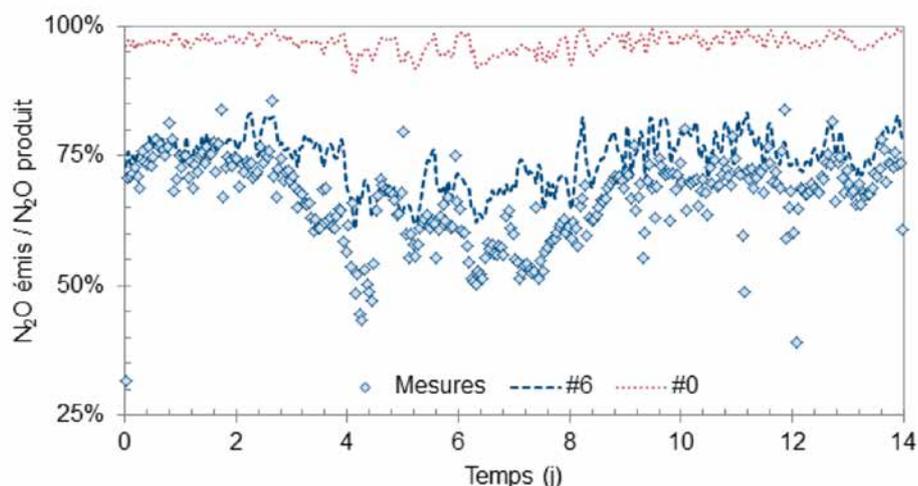


Figure 2 : Évolution du ratio N_2O émis/total pendant la période étudiée (moyennes horaires). Les pointillés représentent les résultats de simulation, les mesures étant représentées par des cercles.

Conclusion

Un premier modèle représentant le fonctionnement de biofiltres nitrifiants de la station Seine Aval a été étendu pour décrire la production associée de protoxyde d'azote (N_2O). Si ce premier modèle prédit correctement les performances de traitement de l'azote ainsi que l'ordre de grandeur du flux de N_2O produit, il ne parvient cependant pas à décrire sa répartition gaz/liquide. Il surestime fortement les émissions gazeuses de N_2O au détriment des flux dissous. Afin d'améliorer la description de cette répartition, le modèle de transfert gaz/liquide a été modifié en une série de simulations. Les résultats obtenus indiquent que la prise en compte d'un bilan matière sur la phase gazeuse a un impact relativement faible sur le transfert de matière de l'oxygène. A contrario, celle-ci s'avère indispensable à la bonne représentation des échanges gaz/liquide du NO et N_2O . Les hypothèses de transfert nouvellement implémentées ont indirectement réduit les performances de nitrification. Après calage du modèle, celui-ci permet de décrire aussi bien les performances de nitrification que les émissions de N_2O . Il pourra être utilisé pour mieux comprendre les processus de production de N_2O dans ces systèmes et identifier des stratégies opérationnelles de réduction.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier l'Agence Nationale de la Recherche pour le financement du projet N_2O Track, ainsi que le programme de recherche Mocopée.

POUR EN SAVOIR PLUS

- › FIAT *et al.* (2018) : *Modélisation des émissions de protoxyde d'azote par les biofiltres nitrifiants*. Acte de conférence, JIE de Poitiers, 2018.
- › FILALI *et al.* (2018) : *Emissions de protoxyde d'azote des unités de biofiltration de la station Seine Aval*. Chapitre 4.3 de l'ouvrage.

Bibliographie

- BERNIER J., ROCHER V., GUERIN S., LESSARD P. (2014) : « Modelling the nitrification in a full-scale tertiary biological aerated filter unit. » *Bioprocess and Biosystems Engineering* ; 37(2) : 289-300.
- BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GILLOT S. (2015) : *Emissions de N₂O des procédés de traitement des ERUs*. Synthèse des campagnes de mesure *in situ*. Onema, Irstea, 16 p.
- BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GUERIN S., ROCHER V., GILLOT S. (2016a) : « Full-scale post denitrifying biofilters: Sinks of dissolved N₂O? » *Science of the Total Environment* ; 563-564 : 320-328.
- BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GUERIN S., ROCHER V., GILLOT S. (2016b) : « N₂O emissions from full-scale nitrifying biofilters. » *Water Research* ; 102 : 41-51.
- GILLOT S., KIES F., AMIEL C., ROUSTAN M., HEDUIT A. (2005) : « Application of the off-gas method to the measurement of oxygen transfer in biofilters. » *Chemical Engineering Science* ; 60(22) : 6336-6345.
- HIATT W. C., GRADY C.P.L. (2008) : « An Updated Process Model for Carbon Oxidation, Nitrification, and Denitrification. » *Water Environment Research* ; 80(11) : 2145-2156.
- HIGBIE R. (1935) : « The rate of absorption of a pure gas into still liquid during short periods of exposure. » *Transaction of the American Institute of Chemical Engineers* ; 31 : 365-377.
- KIES F., GILLOT S., HEDUIT A. (2005) : « Paramètres influençant le transfert d'oxygène en biofiltres. » *Récents progrès en génie des procédés* ; 921 : 8p.
- LANG L., POCQUET M., NI B. J., YUAN Z., SPERANDIO M. (2016) : « Comparison of different 2-pathway models for describing the combined effect of DO and nitrite on the nitrous oxide production by ammonia-oxidizing bacteria. » *Water Science & Technology*.
- MASSARA T. M., MALAMIS S., GUIASOLA A., BAEZA J.A., NOUTSOPOULOS C., KATSOU E. (2017) : « A review on nitrous oxide (N₂O) emissions during biological nutrient removal from municipal wastewater and sludge reject water. » *Science of the Total Environment* ; 596-597 : 106-123.
- NI B.J., YUAN Z. G. (2015) : « Recent advances in mathematical modeling of nitrous oxides emissions from wastewater treatment processes. » *Water Research* ; 87 : 336-346.
- POCQUET M., WU Z., QUEINNEC I. SPERANDIO M. (2016) : « A two pathway model for N₂O emissions by ammonium oxidizing bacteria supported by the NO/N₂O variation. » *Water Research* ; 88 : 948-959.
- RAVISHANKARA A.R., DANIEL J.S., PORTMANN R.W. (2009) : Nitrous Oxide (N₂O) : « The Dominant Ozone-Depleting Substance Emitted in the 21st Century. » *Science* ; 326(5949) : 123-125.
- ROCHER V., PAFFONI V., GONCALVES A., AZIMI S., PAUSS A. (2012) : « Municipal wastewater treatment by biofiltration: comparisons of various treatment layouts. Part 2: assessment of the operating costs in optimal conditions. » *Water Science and Technology* ; 65(9) : 1713-1719.
- WANG Y., FANG H., ZHOU D., HAN H., CHEN J. (2016) : « Characterization of nitrous oxide and nitric oxide emissions from a full-scale biological aerated filter for secondary nitrification. » *Chemical Engineering Journal* ; 299 : 304-313.