

# MOCOPÉE

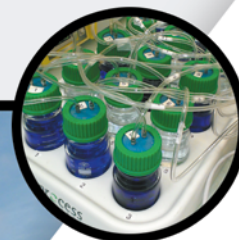
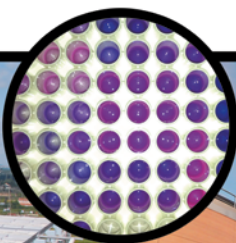
Soutenu par le Service Public de l'Assainissement Francilien (SIAAP)

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](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'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

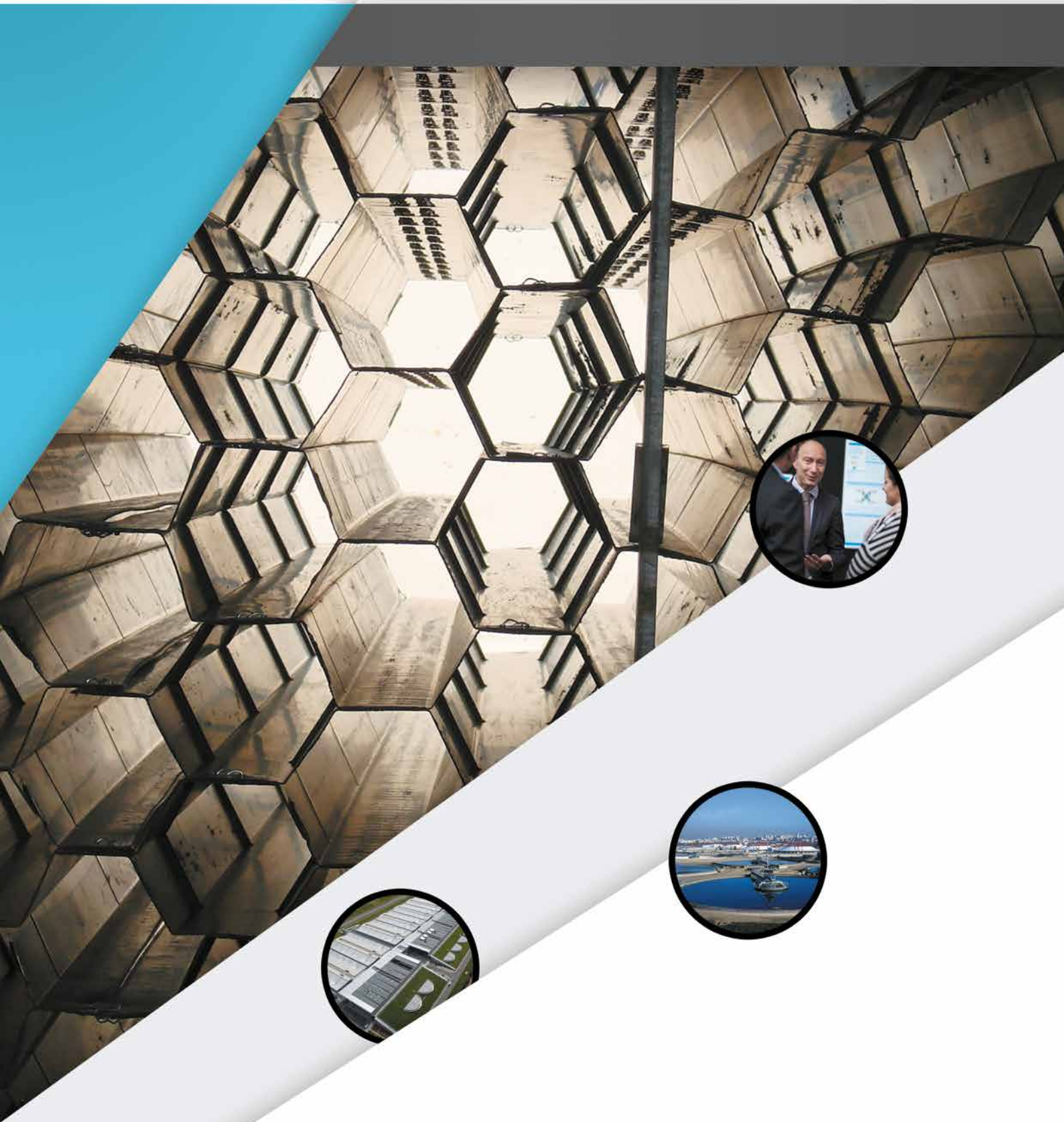
page 265

## TABLE DES MATIÈRES DÉTAILLÉE

page 268







# VISION D'ACTEURS EXTÉRIEURS

## La vue de...



### Diane d'ARRAS

*Présidente de l'International Water Association (IWA)*

« Mocopée est dans sa forme l'exemple type de ce que l'IWA cherche à faciliter, provoquer et encourager : la création d'équipes qui travaillent ensemble pour développer les connaissances, les pratiques, les savoir-faire. »

Présidente (non exécutive) de l'IWA depuis 2016, mon mandat vient d'être renouvelé jusqu'en octobre 2020 au Congrès de Copenhague. Cette élection couronne une carrière de 40 ans passée dans le domaine de l'eau en France tout d'abord, puis à l'international et sur l'ensemble de la chaîne de valeur : ressources (Agence de l'eau de 1977 à 1980), exploitation (SUEZ de 1981 à 1997), R&D et Assistance Technique (Degrémont puis SUEZ de 1998 à 2010), enfin développement commercial (SUEZ de 2011 à 2017). Mais peut-être est-il utile de rappeler pour certains ce qu'est l'IWA !

L'IWA est à l'international ce que l'Astee est pour l'eau en France : une association à but non lucratif (Charity anglaise) qui a pour vocation la mutualisation des connaissances, des pratiques et des savoir-faire, et d'en faciliter l'accès au bénéfice de chacun. Comme l'Astee, sa force vient de la diversité des professionnels qui la composent avec un degré de complexité et de richesse supplémentaire dû à la plus grande diversité culturelle et économique de ses membres. L'IWA est constituée de près de 10 000 membres, personnes morales et physiques, professionnels de l'eau (eau potable, assainissement, gestion écologique des ressources en eaux et des milieux aquatiques) venant d'univers de travail différents : universités, centres de recherche, administrations, distributeurs publics ou privés, sociétés d'ingénierie ou consultants. Avec 52 groupes de spécialistes (chaque membre peut appartenir à un ou plusieurs groupes), c'est un

formidable lieu d'échanges, de progrès, de synthèses. L'IWA, comme l'Astee, a vocation à produire et à diffuser de l'information technique de référence. Elle utilise deux grands bras armés pour cela :

- les conférences internationales générales (congrès mondial et congrès Développement) ou plus spécialisées sur la thématique de ses groupes de spécialistes,
- des publications de revues et de livres, à travers sa maison d'édition IWA Publishing.

La gouvernance de l'IWA est assurée à travers son « Board » et son Assemblée Générale où chaque pays, adhérant à travers son association nationale, s'exprime. L'Astee est par essence « l'association française » ; elle vote en Assemblée générale. Du fait d'un ADN très similaire entre les deux associations, une grande et longue tradition d'échanges et de partage existe entre l'Astee, l'IWA et leurs membres respectifs, avec bien entendu un noyau dur de membres communs engagés au niveau international et local. L'équipe d'animation de ce grand réseau international est bi-localisée entre Londres et La Haye, avec quelques représentations régionales (Chine, Afrique, Inde).

Mocopée est dans sa forme l'exemple type de ce que l'IWA cherche à faciliter, provoquer et encourager : la création d'équipes qui travaillent ensemble pour développer les connaissances, les pratiques, les savoir-faire. Pour combler le gap qui existe entre les

nouvelles connaissances (souvent fruit de la R&D) et les pratiques et le savoir-faire, il faut des équipes multidisciplinaires mais aussi d'horizons professionnels différents ! En tant que Présidente de l'IWA (et membre de l'Astee) mais aussi avec ma double expérience d'« exploitant de terrain » et de R&D, je crois beaucoup à la collaboration de ces différentes cultures, pour aboutir à de vraies innovations industrielles, c'est-à-dire applicables et appliquées.

Voir ainsi collaborer des organisations comme le Siaap, d'une part, et des équipes de chercheurs telles que par exemple celles de l'UTC, l'INSA, et l'Irstea ou l'Université de Laval, est pour moi un grand plaisir ! En effet, le Siaap a montré pendant longtemps son sens de l'innovation et de l'expérimentation sur le terrain avec des pilotes grandeur nature qui ont permis de faire avancer la technologie en France. Et on ne peut pas avoir dirigé des équipes de recherche sur l'eau en France sans mettre dans son panthéon les équipes de chercheurs qui contribuent activement à la progression de la connaissance sur l'eau ! Enfin, la présence de partenaires étrangers, bien connus sur la scène internationale, est aussi un facteur de réussite car ils apportent cette ouverture indispensable sur le reste du monde.

L'équipe de France de football a su nous séduire et nous épater car, au-delà des joueurs doués qui la composaient, c'est l'esprit d'équipe collectif qui l'a fait gagner. De même, Mocopée a en son sein des professionnels et des organisations de grandes compétences. Mais c'est l'esprit de coopération et de travail en commun qui peut faire de ce projet une vraie réussite d'innovation industrielle ! J'ai plaisir à les voir jouer, et à les voir jouer ensemble !

L'initiative Mocopée est intéressante aussi dans le fond, parce qu'elle mêle les défis d'aujourd'hui avec une volonté de pouvoir rebondir encore mieux demain. Les défis d'aujourd'hui, c'est évidemment de savoir gérer au mieux les installations d'assainissement disponibles sur le terrain. Et sans métrologie pas moyen de vraiment comprendre, optimiser, réagir, piloter ! Le contrôle-commande, essentiel à ces installations qui doivent fonctionner 24h/24h par tout temps et toutes situations, passe par deux composantes : la modélisation fine (quels qu'en soient les algorithmes) et les mesures analytiques, avant et après, qui permettent la correction, la vérification. Le milieu des eaux usées est un milieu très hostile aux analyses de précision, au point que, par le passé, il valait mieux parfois se passer de mesures : peu fiables, elles risquaient d'introduire plus de mauvaises réactions que de bonnes ! Cela reste un défi de pouvoir développer des outils qui reflètent bien la réalité sans nécessiter la maintenance outrancière des capteurs.

La volonté de rebondir encore mieux demain est dans la partie 4 du programme qui traite des concepts innovants. Il reste à travers le monde beaucoup d'investissements à faire pour équiper les hommes de solutions d'assainissement adaptées et performantes. Ces solutions seront centralisées ou décentralisées, collectives ou individuelles, mais elles feront toutes une plus grande part à la valorisation, valorisation de l'eau, valorisation des matières, valorisation de l'énergie contenue dans les « eaux usées ». Le changement climatique nous impose de nous adapter, d'une part en diminuant notre impact, mais aussi et surtout en nous permettant de délivrer un vrai service d'eau et d'assainissement avec moins de ressources et dans des situations extrêmes plus fréquentes. Il faut donc revisiter nos technologies, les repenser et laisser à nouveau l'innovation les redessiner.

Il n'y aura pas une et une seule solution mais des solutions adaptées à la taille, au contexte économique, au contexte climatique.

La France quand elle sait mobiliser et faire travailler ses acteurs ensemble est souvent très brillante ! Je ne peux que me réjouir de voir cette équipe Mocopée au travail, participant à sa façon au « *France is back again* » ! Nous, les membres français de l'IWA, nous y croyons mais savons que c'est fragile si ce n'est pas entretenu régulièrement par les acteurs d'aujourd'hui et surtout de demain, en collaboration avec des équipes internationales performantes. Bonne chance à toute cette formidable équipe !





La vue de...



## Regina GNIRSS

*Head of Research & Development of Berliner Wasserbetriebe  
CEO of Competence Centre Water of Berlin*

« It is the spirit of collaboration of multidisciplinary teams and learning from each other that can make this project a real success of inventive projects in water management! It is certain that the methodological and technological advances obtained by the Mocopée program are sustainable. Climate change requires us to find new solutions to reduce our impact, but also and above all by allowing us to deliver a real water and sanitation service in more extreme situations. »

I am Ms. Regina Gnirss an engineer in Environmental Science and since 1991. I have been working as Project Engineer in the utility Berliner Wasserbetriebe. As Head of the Department of Research and Development I'm responsible for research and innovation strategy and manage research projects on water management. I was a visiting research assistant at PennState University, USA. I have more than 150 papers about water and wastewater treatment in national and international journals. As an expert in integrated water resource management I present on conferences and I am a member in several working group of IWA.

Berliner Wasserbetriebe is the biggest water utility in Germany, provides drinking water to 3.7 Mio. Inhabitants and treats the wastewater of Berlin. The major goal in Strategy identified for the Future is Sustainability and Digitalisation. To optimise processes research always played an important role within the utility. Therefore, Competence Centre Water of Berlin was founded in 2000 to bring together different leaders of Water competence in Germany.

Berliner Wasserbetriebe starts to collaborate with Siaap as operators. Both utilities have a long tradition in innovation and field experimentation in water sector.

Water 2.0 requires digitalization of the water sector, but the targeted system must be reliable, secure and accurate with low-cost and low maintenance equipment. Different disciplines have designed thinking to find digital solutions. The Mocopée programme aims to build a broader network with scientists such as for example UTC, INSA or Irstea and operational actors in the field of urban wastewater, process simulation, physics and informatics. Created to progress towards Digitalisation and Modelling the Mocopée is built around four Main Pillars of Research and speeds up Paradigm shift in water management. The Mocopée program, which aims to transfer innovation in urban water management faster into the market, will establish a dialog between scientists and process engineers. The goal is to set up the discussion about new approaches of study and development before the research work starts. Therefore it is ensured that sanitary engineering is more practical oriented. Mocopée laid a foundation for much-needed collaboration on research work penetrating the market, lowers the risk for silo thinking and speeds up the water sector , e.g. for machine learning, remote control and autonomous operation.



I am not actively involved in the Mocopee program but attended network meetings. My contact with Mocopee program is the application and evolution of the digital fluid mechanics and online sensors for detection of pollution in rivers. Both approaches are necessary tools to simulate the combined sewer overflow and to define the negative impacts on the ecosystem. Because bathing water is a goal of our customers it also tackles the goal of our stakeholders, e.g. Olympic Games.

Focusing on the demand to avoid pollution in river systems, scientist and engineers both focussed and developed powerful tools for such an application. The holistic approach required different disciplines and integrated the methodological toolbox of the scientist: modelling, simulation, automation. According to the prosperous results one value chain had been created for the operation of treatment facilities, the automatic control of the pumping stations and the measurement and monitoring in the river. The modelling and data mining developed by the Mocopée scientist and the new online sensor developed by a company are commonly used to simulate successfully the whole process. Deliver on robust water services by increasing multidisciplinary cooperation of scientist and engineers and minimize the risk of failure from start up.

But to achieve acceptance we have to apply and demonstrate the tools and explain the usability to our stakeholder, e.g. bathing water quality. Coupling societal, environmental and operational issues is a fundamental issue in the new conceptual approaches of our water management of the future. Foster the dialog with our stakeholders is an essential need to the changes, particularly digital, society and the environment and to attract for engineering science for industrial renewal meeting the technological, energy and environmental challenges of tomorrow and disruptive innovation needs. The Mocopée platform can share information about technology reality available through phases of tests, pilots and demonstration. The Mocopée program, with its three objectives and four areas of research, are excellent suited to address different stakeholders.

SDG require new goals and a new mindset in water management, e.g. energy self-sufficient wastewater treatment, circular economy, green-blue cities and supervision with machine learning. The Mocopée program defines needs in water sector and proposes possible options and methodology. The proposals for research are agreed on and the required resources provided. Within the Mocopée program multidisciplinary teams are constituted to achieve and demonstrate solutions for the future.

Usually, it takes 20 years to translate academic research into viable technology. It is hard to achieve required permits, time and budget for demonstration plants. On one hand the contribution for research department with 4% in water business is low compared with 15% in other businesses. On the other hand to

apply successfully for research programs and to get grants is tough and time consuming.

Mocopée can provide a platform that can shorten this time by sharing ideas and initiative cooperation between those working on next generation of technology, and devoting to improve water services and transfer in full-scale operation. Innovators experiment with new ideas outside the strict time Interval of funding programs and are running the test quicker. They are supervised by operational and users as a sounding board. The risk to failure or disappointment is tackled from the beginning on.

Second important aspect is to mention the slow adoption of institutional processes that are heavily regulated by governments. Mocopée is a method with which we assess ideas and innovations based on feedback from early adopters and can cross the chasm before researchers start a project. First, it helps to conduct informal meetings with the decision makers on the value of the technology. The participatory approach foster solutions and include - in the early phase - the practical prototypes with low expenses. Mocopée program can motivate our engineers to provide feedback on the soundness of the science and finally to change their attitude when they have influence to adopt the product. Therefore, water professionals and researcher have to collaborate from the beginning on to discuss alternatives to "Business as usual practices". Mocopée program will develop a guidance tools to build strong campaigns that are reliable and garner support for adoption of a new technology. The most outreach strategies to bridge the chasm is by identifying and gaining support from influential innovators. These early adopters can help to convince the majorities of water professionals to support innovative technologies, e.g. digital water solution. Finally, engineers focus how best to persuade decision makers.



## La vue de...



### Nicolas GENDREAU

*Directeur de l'eau à Bordeaux-Métropole, Président de la section territoriale Astee Sud-Ouest*

« Tous les résultats opérationnels apportés par un programme de recherche comme Mocopée enrichissent la connaissance des collectivités et leur permettent de faire les meilleurs choix possibles au bénéfice des usagers et du milieu naturel. »

#### Qui êtes-vous ?

Je suis Directeur de l'eau à Bordeaux-Métropole et Président de la section territoriale Astee Sud-Ouest. J'ai précédemment travaillé en service extérieur de l'Etat, en établissement de recherche puis dans différentes collectivités territoriales.

Bordeaux-Métropole dispose de six stations d'épuration pour traiter les effluents de la métropole, dont la plus importante, Louis Fargue avec une capacité de 480 000 équivalents-habitants.

Située lors de sa mise en service au début des années 1970 en périphérie de la zone urbaine, la station d'épuration Louis Fargue à Bordeaux a progressivement été rattrapée par le développement urbain et se situe maintenant au cœur de l'agglomération bordelaise, dans un quartier (les bassins à flots) en plein développement.

Après deux étapes de modernisation, en 1994 et en 2003, la station a fait l'objet, entre 2010 et 2014, dans le cadre la Directive Cadre Européenne sur les Eaux Résiduaires Urbaines, d'une mise aux normes complète notamment de la filière de traitement de l'eau.

#### Concilier objet industriel et cadre de vie

Lors de la réflexion en 2007 autour de la définition du programme de mise aux normes de la station d'épuration Louis Fargue, son déplacement a été évoqué mais très vite écarté pour des raisons techniques et économiques.

Se posait alors la question de l'évolution d'un objet industriel comme une station d'épuration dans une

forme d'anabolisme urbain, marqué en particulier par la perspective de la construction d'un nouveau quartier (les bassins à flots) jouxtant la station d'épuration, et de l'arrivée d'ici 2030 de 10 000 nouveaux habitants, d'activités économiques et d'équipements collectifs ad hoc.

Très vite s'est dessinée la nécessité de tendre vers une station « zéro nuisance » (en particulier pour le couple bruit-odeur) et la volonté de recourir au maximum à des sources d'énergies renouvelables.

L'ensemble des ouvrages de l'installation ont donc été couverts et désodorisés avec une attention toute particulière attachée à la conception du local de séchage des boues et du bâtiment des décanteurs lamellaires (couverts au plan d'eau).

L'intégration paysagère et urbanistique a aussi guidé très fortement la conception de l'ouvrage. Louis Fargue se situe aujourd'hui dans les 1 810 hectares du plus vaste ensemble urbain inscrit au Patrimoine mondial de l'Unesco depuis 2007. Le parti pris architectural est de donner un caractère de parc urbain aux importantes marges laissées autour des bâtiments, avec la plantation de plus d'un millier d'arbres et d'arbustes concourant à adoucir l'empreinte industrielle du site.

Enfin, des solutions techniques intégrant des objectifs d'efficacité énergétique ont été mises en œuvre dans le cadre du plan climat de Bordeaux-Métropole.

#### Difficultés d'exploitation rencontrées

Lors de la mise en route des nouveaux équipements, et en particulier des sècheurs de boues ou encore de la désodorisation, de nombreuses difficultés

d'exploitation sont apparues. En effet, autant la filière eau est bien maîtrisée, autant les filières boue et air le sont beaucoup moins. La gestion d'un sécheur de boues s'apparente à un vrai équipement industriel et nécessite un réglage très fin ; l'exploitant a besoin d'une grande expertise. Un phénomène d'auto-échauffement dans un silo de boues séchées a conduit au bouclage de tout le quartier par les pompiers et la police pour prévenir d'un risque d'explosion...

De plus, malgré la présence d'une désodorisation, il est impossible de supprimer toutes les odeurs d'autant plus que certains composés malodorants passent à travers le système de traitement de l'air. Il a donc fallu gérer la présence d'un voisinage très dense et très proche, très sensible aux odeurs, en particulier l'été...

Pour faire face à ces deux phénomènes, auto-échauffements et odeurs, des adaptations et des équipements complémentaires ont été mis en place.

De ce point de vue, au-delà des difficultés de réglage des installations, la métrologie est primordiale. En effet, une connaissance à tout instant de l'état exact de la station d'épuration, de dépassements de seuils ou de défauts de fonctionnement est indispensable pour générer une intervention avant l'apparition de nuisances. En particulier, la fiabilité des mesures, leur traitement en temps réel, leur transmission instantanée ou encore leur intégration dans un modèle prédictif sont aujourd'hui nécessaires pour une gestion d'un équipement comme la station d'épuration Louis Fargue en plein centre-ville.

Au regard de ces éléments, les travaux de recherche du programme Mocopée semblent pertinents, notamment si les collectivités arrivent à s'approprier certains résultats et les valoriser sur leurs territoires pour une amélioration de la conception et du fonctionnement des stations d'épuration.

## Et demain ?

Maintenir des installations comme la station d'épuration Louis Fargue en ville est un challenge permanent pour répondre à des objectifs parfois contradictoires : mettre en œuvre des process peu consommateurs d'espace, donc intensifs et plus énergivores, des process faiblement émissifs et sûrs pour les rendre acceptables, des process évolutifs malgré leur compacité... donc au final plus coûteux.

Faut-il pour autant déplacer la station d'épuration en périphérie de la ville, pour qu'elle soit à nouveau rattrapée un jour ? Pour exister, la ville doit accepter en son cœur ses équipements servants : stations d'épuration, déchetterie, centre de traitement des déchets, dépôts de voirie, cimetières, dépôts de bus, de tram...

Dans ce contexte, comment définir une gestion patrimoniale pertinente des équipements ?

En effet, une station d'épuration comme Louis Fargue a déjà subi en 50 ans trois étapes de modernisation structurelle très fortes pour faire face à l'évolution réglementaire, à l'augmentation de la charge entrante par la densification de la ville, au besoin d'équipements complémentaires ou encore au développement de technologies de traitement plus performantes. Et à l'avenir, nous serons amenés à être de plus en plus vigilants sur les nuisances, et probablement à compléter les process ou à les faire évoluer pour que l'exploitation de la station d'épuration soit compatible avec le voisinage.

Construire en ville alors que les habitants aspirent à une haute qualité de vie réinterroge ainsi la localisation des installations industrielles et exige leur nécessaire capacité de résilience et d'adaptabilité.

## L'initiative Mocopée

Tous les résultats opérationnels qu'un programme de recherche comme Mocopée peut nous apporter pour aider à la gestion patrimoniale ou encore pour une meilleure gestion opérationnelle des équipements, et en particulier des stations d'épuration, enrichissent la connaissance des collectivités et leur permettent de faire les meilleurs choix possibles au bénéfice des usagers et du milieu naturel.

## La vue de...



### Denis GUILBERT

*Directeur du cycle de l'eau à Nantes Métropole, Vice-président de l'Astee chargé des collectivités territoriales*

### Philippe MAREST

*Directeur général adjoint à la transition énergétique et écologique et aux services urbains de Nantes Métropole et de la Ville de Nantes, Vice-président de l'Astee chargé des collectivités territoriales (jusqu'en juin 2018)*

« L'initiative Mocopée permet la création d'un collectif d'intelligence, force de propositions d'innovations applicables directement dans le quotidien de demain de la gestion des eaux usées. »

#### Orientation scientifique et technique du programme

Dérèglement climatique, épuisement des ressources, atteinte à la biodiversité, ... l'urgence est aux transitions écologique et énergétique afin de passer à un nouveau modèle qui préserve notre planète. Dans ce contexte, l'ensemble des services urbains subit des bouleversements et une mutation accélérée sous l'effet conjugué de ces transitions et des évolutions technologiques notamment de la transformation numérique. C'est particulièrement vrai pour l'énergie mais c'est aussi vrai pour l'ensemble des flux qui font vivre la cité, en particulier la gestion de l'eau.

Au cœur de ces changements, l'usager attend des collectivités territoriales, autorités organisatrices de la gestion de l'eau, non seulement efficacité mais aussi efficacité afin d'obtenir à la fois le service le plus performant au meilleur coût mais également une gestion pérenne du patrimoine. Aussi, les solutions numériques et technologiques sont essentielles pour accompagner et faciliter la mise en place de ces transitions tout en recherchant l'optimisation économique.

Le programme Mocopée répond donc à cette attente avec l'apport important d'une démarche portée par des acteurs à la fois scientifiques, techniques, associatifs et

opérationnels. Il délivre donc une approche orientée vers le besoin des acteurs opérationnels, en particulier les collectivités.

Les stations d'épuration font partie de ces grands équipements urbains, souvent méconnus mais essentiels à la vie de la cité. Mocopée doit permettre aux grandes métropoles, telles Nantes Métropole, d'apporter des solutions d'efficacité et innovantes pour mieux gérer leurs outils industriels de dépollution mais également le patrimoine important constitué par les réseaux.

Le programme Mocopée contribue à accompagner et à guider le changement en faisant avancer la connaissance scientifique et technique dans le domaine de l'assainissement et de l'épuration.

En particulier, Nantes Métropole est attentive aux avancées du programme sur les évolutions technologiques des usines d'épuration et particulièrement au regard de son projet structurant à venir de restructuration de la plus grande station d'épuration de la métropole : Tougas.

Une station d'épuration des eaux usées n'est pas seulement une usine de dépollution qui consomme de l'énergie et des produits chimiques. C'est aussi une installation qui peut, en produisant de la chaleur et de



l'énergie, notamment du biogaz par méthanisation ou en récupérant et en valorisant des sous-produits (azote, phosphore), participer à la lutte contre le changement climatique et être une vraie alternative à l'épuisement des ressources.

Aussi, Nantes Métropole souhaite que la future station Tougas s'inscrive dans cette démarche. Les apports du programme Mocopée, notamment sur l'axe 1 et l'axe 4, permettront à la collectivité d'engranger davantage de connaissances opérationnelles et de retours d'expérience pour mieux cibler le cahier des charges futur sur des sujets tels l'optimisation énergétique du cycle de l'azote, les choix de matériaux de la STeP ou les modes de régulation de la station.

### Intérêt opérationnel du programme tourné vers l'innovation industrielle

Le programme Mocopée facilite l'innovation industrielle et participe concrètement au déploiement de solutions et d'outils innovants en associant un grand nombre d'acteurs, scientifiques, industriels et associatifs.

En effet, en rassemblant les acteurs de secteurs différents, de la recherche spécialisée en champs disciplinaires pointus à celui des services urbains souvent éclatés dans les organisations, il réussit à mettre autour de la table chercheurs et praticiens et à créer du lien en jouant collectif et en valorisant les complémentarités des métiers et des expertises à partir de leur diversité, pour co-construire un projet et créer la valeur ajoutée.

Une des voies explorées par la métropole de Nantes pour innover a été de développer des synergies avec le monde de la recherche en rassemblant des potentiels, c'est-à-dire la capacité de recherche des chercheurs, l'expérience du terrain des praticiens et la capacité logistique de la collectivité, sur des projets coproduits. Le but est de favoriser l'émergence de connaissances et leur transfert vers la collectivité. Elle a ainsi engagé depuis près de 15 ans des projets de recherche-action en partenariat avec des multiples acteurs. Dans le domaine de l'eau, elle travaille aujourd'hui notamment à améliorer la gestion à long terme (durable) du patrimoine réseaux (7 000 kilomètres) et des équipements, en particulier, la station d'épuration de demain notamment optimisée sur l'énergie. Le programme Mocopée l'intéresse donc pour pouvoir mobiliser sur un circuit court l'apport de la recherche à l'amélioration opérationnelle des services de gestion des eaux usées.

L'évaluation conjointe de cette initiative de recherche-action avec les organismes de recherche partenaires a montré l'intérêt réciproque à coopérer et à acquérir de nouvelles connaissances et expertises qui contribuent à apporter de la valeur ajoutée à l'organisation et au territoire, tout en stimulant la recherche locale et nationale. C'est une démonstration par l'exemple de l'intérêt de ce type de programme.



## La vue de...



### Laurence LUPIN

*Responsable exploitation et services à la Direction Adjointe de l'eau de la Métropole de Lyon*

« Mocopée, un projet global ambitieux au service des process industriels du traitement de l'eau et permettant aux grandes collectivités de répondre aux enjeux environnementaux, énergétiques et économiques de leurs territoires. »

#### Qui êtes-vous ?

Docteur Ingénieur INSA, j'ai travaillé au sein de la Métropole de Lyon sur les métiers de l'environnement, eau, assainissement, déchets et ceux de l'énergie. Notre métier évolue et les transitions à venir sont sources d'innovation et de motivation.

#### Orientation scientifique et technique du programme

Les ambitions du programme Mocopée traduisent les enjeux actuels et futurs de l'assainissement des grandes agglomérations : accompagner de façon pragmatique, en lien avec les exploitants, la transition énergétique et transformer les usines de traitement en centre de valorisation multi-filières.

Les grandes agglomérations doivent faire face à des obligations de valorisation de l'ensemble de leurs déchets publics et privés (FFOM, graisses, déchets industriels...). La Métropole de Lyon a choisi d'organiser et de planifier cette valorisation en établissant un schéma directeur de l'énergie sur son territoire.

Soucieuses de maîtriser leurs consommations d'énergies fossiles et d'être exemplaires auprès des usagers, les collectivités doivent optimiser leurs usines de traitement pour ajuster au mieux, en temps réel et prédictives le pilotage des process. Dans cette démarche, le développement de nouvelles méthodes d'analyses et de modélisation est nécessaire aux exploitants pour fiabiliser les niveaux de traitement au juste coût énergétique. Les deux premiers axes du programme concourent parfaitement à ce premier objectif.

Par ailleurs, les usines de traitement des eaux usées jouent un rôle majeur sur le volet méthanisation et

permettent de participer au respect des objectifs de la loi de transition énergétique et au plan climat des agglomérations. Les usines constituent un socle permettant l'émergence de projets de méthanisation d'autres déchets. Néanmoins, la réglementation doit évoluer pour libérer l'innovation et la performance.

L'orientation du programme Mocopée est équilibrée et doit permettre de répondre aux enjeux scientifiques et industriels et de mettre à profit les résultats de la recherche au service de l'exploitation. La structuration selon les 4 axes, la qualité et la pertinence des partenaires et du pilotage du programme, sont des atouts à la réussite de ces ambitions.

#### Intérêt opérationnel du programme tourné vers l'innovation industrielle

Pour les collectivités, l'intérêt du projet réside dans sa capacité à proposer des outils et des méthodes reproductibles et efficaces pour les services d'exploitation. Dans un contexte réglementaire et budgétaire toujours plus contraignant, l'innovation technique est une des solutions pour résoudre la difficile équation qui s'impose aux collectivités.

Plus généralement, les collectivités développent des outils innovants dans la gestion des villes. La notion de ville intelligente s'impose à nous dans l'ensemble des domaines pour répondre au développement croissant des centres urbains. La réussite des *smarts city* est liée au caractère opérationnel et innovant permettant d'apporter un service public performant. Dans ce cadre, l'approche opérationnelle du programme Mocopée est une source d'intérêt pour les collectivités.

## La vue de...



### Jean-François BULTEAU

*Directeur Exploitation et Travaux OTV Grand Paris*

« Mocopée est une initiative pertinente visant à agréger les savoirs et à faire converger les solutions. Elle favorise la recherche, ce qui est primordial et offre un lieu d'échanges scientifiques pour les acteurs du monde de l'eau, portée par la recherche du mieux technique et environnemental. »

#### Qui êtes-vous ?

Ingénieur de formation, j'ai d'abord travaillé dans le domaine exigeant du traitement des eaux industrielles (eaux de procédé et eaux résiduaires). Depuis 10 ans, j'ai en charge avec mon équipe l'exploitation d'importantes usines de dépollution en milieu urbain.

#### Orientation scientifique et technique du programme

Nous sommes entrés dans la période post-Directive sur les Eaux Résiduaires Urbaines et post-Directive Cadre sur l'Eau. Le chemin accompli est important mais pour autant beaucoup de problématiques liées aux eaux usées restent à traiter et se font jour. Améliorer sur le long terme l'exploitation et la maintenance des stations d'épuration n'est pas la moindre d'entre elles. Pour ce faire, je suis persuadé qu'il faut prêter une grande attention aux nouvelles offres technologiques en imaginant l'apport qu'elles pourraient nous procurer. Des structures adaptées de recherche et d'évaluation doivent être mises en place ; c'est, à mon sens, la feuille de route que s'est donnée l'initiative Mocopée.

Cette initiative, en réunissant autour d'un programme industriel et scientifique structuré des acteurs français de référence dans le domaine du traitement des eaux et de la recherche, offre un cadre très intéressant et propice pour faire advenir de nouvelles technologies et savoir-faire. C'est indispensable à l'heure où le changement climatique et la pression anthropique sur les milieux naturels se font sans cesse plus forts.

En effet, nos métiers qui interagissent en permanence avec la société, ont besoin d'un changement de

paradigme et je suis convaincu que Mocopée, par son approche fédératrice, est en mesure de faire sauter des verrous scientifiques et techniques et d'accélérer ainsi les nécessaires transitions.

Enfin, les relations de Mocopée avec l'Astee et Arceau Ile-de-France, que nous connaissons bien, accroissent son potentiel d'actions et nourrissent sa dynamique.

Les solutions industrielles permettant de conjuguer performances épuratoires et maîtrise des coûts sont disponibles et efficaces à l'aune de l'échelle actuelle de mesure mais elles relèvent fréquemment d'une vision en silo. Rompre l'isolement de nos usines par rapport aux territoires sur lesquels elles sont implantées est précisément un des objectifs du programme Mocopée. Il faut augmenter « l'utilité » des usines et cela passe nécessairement par de la recherche appliquée et transverse. C'est pourquoi, le partenariat Siaap-UTC-Irstea a tout son sens, chacun apportant ses moyens, ses compétences et son savoir sur des problématiques concrètes qui se rejoignent. Le Siaap ayant en propre un patrimoine industriel inégalé, cela offre le cadre et le temps long (programme quinquennal) pour valider des applications techniques, qui ensuite pourront bénéficier à l'ensemble du secteur.

Mocopée adresse 4 axes qui sont complémentaires et qui doivent avancer de concert. En effet, une métrologie plus discriminante agissant au travers de boucles de régulation innovantes, permettra un pilotage plus fin des procédés, en ajustant les consommations de réactifs et d'énergie au juste bien.

Cela passe par de nouveaux instruments et méthodes d'analyse (exemple Enverdi-DBO) en lien avec des

systèmes experts prédictifs et robustes, car enrichis de données terrain. Mocopée s'inscrit pleinement dans cette voie et j'ai pu constater l'intérêt et la puissance de leur modèle SIMBIO.

De même, identifier les facteurs de vieillissement des ouvrages et des équipements de traitement des eaux usées est essentiel pour la maîtrise des coûts du service. C'est crucial, par exemple pour les systèmes membranaires aujourd'hui de plus en plus utilisés, et qui requièrent pour offrir un service long, de l'expertise process adossée à des outils de suivi et de caractérisation ; c'est un des domaines d'action de Mocopée.

Enfin, il s'agit de répondre aux grands enjeux industriels de traitement et de valorisation des eaux usées que sont par exemple le traitement des polluants émergents et les perturbateurs endocriniens, l'extraction de matières premières secondaires des eaux usées (PHA, phosphore..) ou encore la production quantitative de biométhane en vue de son injection dans le réseau public de gaz. Cette diversité d'enjeux impose de bien poser les problématiques afin de choisir les meilleures voies à emprunter ; la complémentarité disciplinaire des partenaires du programme Mocopée offre la garantie d'une vision systémique.

### **Intérêt opérationnel du programme tourné vers l'innovation industrielle**

Nous avons concrètement participé à ce programme au travers par exemple d'un essai industriel de longue durée visant à étudier un post traitement des polluants émergents et des perturbateurs endocriniens encore présents dans les eaux traitées au sortir de l'usine d'Achères du Siaap. Au-delà du traitement à proprement parler, cet essai a permis d'étudier la réponse biologique de têtards exposés à ces substances au travers d'un partenariat avec la société Watchfrog. En effet, les analyses, aussi poussées soient-elles, ne permettent pas d'évaluer la bio toxicité des micropolluants et notamment leur effet cocktail. Il est donc primordial d'innover et de développer des outils biologiques d'évaluation. Mocopée offre ce champ d'expérimentations préalables qui font partie intégrante du processus de maturation des innovations industrielles.

De même, nous avons participé à un essai de conversion d'un Biostyr® de l'unité NIT de Seine Aval en Biostyr® Duo. Dans ce cas, les outils de modélisation développés par Mocopée (SIMBIO) ont permis de tirer le maximum d'enseignements de cet essai, malgré des limitations terrain découlant de l'exploitation du reste des unités.

Le programme Mocopée joue donc un rôle important dans la promotion de nouvelles techniques en permettant leur évaluation dans un cadre scientifique rigoureux. A ce titre, il constitue un accélérateur pour faire émerger des solutions nouvelles.

---



## La vue de...



### Alexandre Gonçalves

*Responsable production de l'usine de traitement des eaux urbaines d'Achères (site Seine Aval du Siaap)*

« Mocopée, un programme de recherche ambitieux, moderne et innovant, qui affiche et assume sa volonté d'être conçu, orienté et animé pour répondre aux objectifs opérationnels actuels et futurs du traitement des eaux résiduares urbaines. »

#### Qui êtes-vous ?

Microbiologiste de formation, j'intègre la Direction Recherche et du Développement du Siaap en 2001. Après 14 années de « recherche appliquée et expertise », je rejoins le site Seine Aval pour animer l'activité de production des eaux et boues d'épuration.

#### Orientation scientifique et technique du programme

Mocopée est un programme de recherche original qui affiche et assume sa volonté d'être à l'interface entre « le monde de la recherche » et le « monde opérationnel ». En ce sens, les orientations du programme sont en « connexion directe » avec nos problématiques industrielles et environnementales d'exploitant. Ainsi, les besoins des exploitants ont été exprimés en amont et intégrés dans les phases de programmation Mocopée.

Le métier d'exploitant a fortement évolué durant les vingt dernières années. En effet, nos pratiques industrielles doivent être consolidées et doivent évoluer pour répondre à des exigences et ambitions réglementaires, environnementales et sociétales toujours plus fortes. La réponse à ces exigences passe aussi par l'intégration dans nos filières de traitement de procédés intensifs plus complexes et plus technologiques. Pour l'exploitant, le défi à relever est de taille. La réussite de la transformation des pratiques doit activer différents leviers.

Tout d'abord, nous devons accroître notre niveau de connaissance sur les process et procédés présents au sein de nos usines. Ce besoin est encore plus affirmé

sur les procédés innovants d'un point de vue industriel, procédés pour lesquels nous ne disposons pas de retour d'expérience solide. C'est par exemple le cas pour le procédé SHARON® déployé sur le site Seine Grésillons pour le traitement des jus de digestion. C'est aussi les cas du traitement de jus de digestion et conditionnement thermique du site Seine Aval par bioréacteur à membranes. Intégrer l'étude de ces procédés dans le programme Mocopée pour constituer un retour d'expérience riche et solide (cas du procédé SHARON®) ou en modéliser le fonctionnement (cas du BRM de Seine Aval) est été une aide à l'appropriation de ces technologies par l'exploitant.

Ensuite, nous devons faire évoluer nos pratiques de suivi de nos matrices (eaux et boues) et de nos systèmes d'assainissement. Cela en passe par le développement et la mise à disposition pour l'exploitant d'outils de contrôle et de pilotage plus fins et adaptés. A titre d'illustration, la mise en œuvre d'une méthode de mesure rapide de la DBO par kit est en cours de déploiement au sein du laboratoire de l'usine Seine Aval. Cette mesure dont la fiabilité est confirmée permet notamment d'accroître la puissance du suivi en augmentant notre capacité d'analyse par le raccourcissement des délais d'analyses. Sur les matrices « boues », le travail mené au sein du programme Mocopée sur la caractérisation du potentiel méthanogène et sur le développement d'un outil de suivi permet d'envisager maintenant l'appropriation et le déploiement pour l'exploitant de la mesure rapide des BMP. Cela permettra à la fois d'augmenter le suivi de la qualité du processus de digestion sur l'usine mais aussi d'orienter certains choix de conduite concernant

l'orientation et la répartition des flux des différents types de boues au sein de la filière pour en optimiser le fonctionnement.

Aussi, l'objectif d'accroissement de la performance du système de traitement pour tendre vers le bon état du milieu récepteur des rejets de STEP porté par la Directive Cadre sur l'Eau (DCE) nécessite de disposer et d'intégrer des outils fiables de mesure en continu de la qualité des eaux transitant dans les filières de traitement. En effet, les objectifs réglementaires de qualité de traitement sont exprimés par des normes de qualité journalières ou annuelles. Or les temps de séjour dans les ouvrages se raccourcissent avec la mise en œuvre de procédés toujours plus intensifs et la qualité de l'eau varie à une échelle de temps courte. L'amélioration de la performance de traitement nécessite de tendre vers une exploitation « en temps réel », beaucoup plus fine et adaptée aux variations horaires de qualité d'eau. Cet enjeu a été ancré dans le programme Mocopée.

La nécessité de mieux évaluer et de limiter l'impact environnemental de notre activité est aussi de plus en plus prégnante. L'impact environnemental est un critère de plus en plus marqué dans les choix d'évolution de nos filières mais le déficit de connaissance peut être un élément limitant. L'évaluation de l'impact environnemental est souvent difficile, vu la complexité des processus opérant au sein des procédés mis en œuvre. L'acquisition de la connaissance manquante doit alors se faire par des partenariats entre exploitants, pour la mise à disposition des matrices et l'analyse des conditions opératoires, et scientifiques, pour la détermination des mécanismes en jeu. Les travaux menés au sein du programme Mocopée sur les émissions de protoxydes d'azote ( $N_2O$ ) illustrent parfaitement cette symbiose en ayant permis d'accroître de manière efficace notre niveau de connaissance de l'impact environnemental du traitement biologique des effluents.

Enfin, l'utilisation d'outils de modélisation comme aide à l'exploitation est un levier puissant de réponse aux enjeux et objectifs industriels actuels et futurs. Des outils de modélisation, développés au sein de l'axe 2 du programme Mocopée, sont d'ores et déjà utilisés pour valider certains choix d'exploitation, notamment dans le cadre des phases transitoires de travaux pour lesquelles nous n'avons qu'un recul limité. Ces phases impliquent fréquemment l'arrêt d'ouvrages conduisant à la modification de la filière de traitement. Ces modèles, calibrés sur nos installations (décantation, traitement biologique, digestion, etc.), nous permettent alors d'anticiper le comportement de nos ouvrages de traitement dans le cas de la modification des conditions d'exploitation. Ces outils ont concrètement été utilisés sur l'usine Seine Aval lors de la mise en route de nouvelles installations de traitement biologique (biofiltration et membranes). Au-delà de l'outil d'aide à la décision pour tester des scénarios définis, le besoin futur de l'exploitant se tourne vers l'utilisation de ces modèles pour alimenter le développement d'outils de pilotage en temps réel de l'exploitation. Ce besoin

formule notamment la nécessité de mettre au point un « modèle filière » global capable de faire le lien entre la qualité des effluents admis sur les usines et la qualité du milieu naturel récepteur des rejets du système d'assainissement.

### **Intérêt opérationnel du programme tourné vers l'innovation industrielle**

Pour l'exploitant d'usine de traitement des eaux, l'intérêt opérationnel du programme Mocopée s'exprime à trois niveaux.

D'abord, les besoins de l'exploitant ont été bien compris et intégrés dans la programmation scientifique. Le besoin d'outils plus performants, le besoin d'accroître la connaissance de nos matrices, des processus en jeu dans le traitement, et des procédés innovants mis en œuvre, et le besoin d'anticiper les enjeux et exigences futures sont largement relayés par les thématiques d'étude composant les quatre axes du programme.

Ensuite, l'ouverture du programme, notamment dans l'axe 4 (concepts innovants) vers les problématiques émergentes auxquelles sont confrontés les concepteurs et exploitants de stations d'épuration est un atout. Le métier évolue pour devenir plus exigeant en terme de pilotage et de performance de l'exploitation mais aussi en terme de diversification des métiers et disciplines en lien avec l'activité d'exploitation. Parmi ces thématiques « émergentes » de ce point de vue, l'étude de récupération et valorisation matière au sein des STEP est intégrée au programme.

Enfin, le programme Mocopée est résolument au service de l'exploitation. Et il le prouve à travers son mode d'animation et par une volonté forte d'appliquer et de transférer les connaissances acquises et les outils adaptés. Le travail synergique entre exploitants et acteurs scientifiques du programme permet ce transfert efficace. Les méthodes diffusent vers les sites de traitement. Et les processus d'appropriation par les exploitants opèrent. Cela alimente un processus itératif positif pour les milieux scientifiques et opérationnels, comme cela a pu et pourra être illustré par l'application et l'utilisation du modèle SimBio en temps réel par l'exploitant de Seine aval.

## La vue de...



### Baptiste JULIEN

*Responsable de la station d'épuration de Pierre-Bénite à la Métropole de Lyon*

---

« Mocopée permet à un exploitant de s'approprier sa filière de traitement en vue de définir de nouvelles stratégies de traitement et les évolutions nécessaires pour répondre notamment aux enjeux de demain : la valorisation et l'optimisation de l'énergie et de la matière. »

---

#### Qui êtes-vous ?

D'abord concepteur et metteur en route de grandes installations de traitement des eaux usées, j'ai poursuivi dans la programmation des investissements et la gestion patrimoniale d'un grand service public d'eau potable. Actuellement, je supervise la gestion en régie de l'exploitation de la station d'épuration de Pierre-Bénite qui traite les effluents de près de 500 000 habitants de la Métropole de Lyon.

#### Orientation scientifique et technique du programme

Les grandes usines de traitement des eaux usées des métropoles font face à de nouveaux enjeux dans la gestion et le traitement de leurs eaux usées. Quel que soit le type de gestion du service, le suivi de l'exploitation de ces installations nécessite un accompagnement scientifique et technique pour s'approprier et suivre les évolutions process du traitement.

L'initiative Mocopée permet à un plus large panel d'intervenants dans le traitement des eaux usées de grandes collectivités de s'approprier et se préparer aux enjeux à venir : les évolutions des normes de traitement, tout en optimisant et en valorisant la matière et l'énergie, pour un service de l'eau plus performant et innovant.

#### Intérêt opérationnel du programme tourné vers l'innovation industrielle

En tant qu'exploitant d'une usine de traitement, les outils développés à travers ce programme doivent nous permettre d'optimiser la gestion de nos installations. La modélisation sera un outil pour nous accompagner à faire évoluer nos stratégies de traitement selon les fluctuations saisonnières et nos incidences opérationnelles, mais aussi comme une aide à la décision pour se préparer à intégrer de nouvelles étapes de traitement. Enfin, l'enjeu énergétique nous incite de plus en plus à fiabiliser et à innover vers un pilotage qui allie garantie de bons résultats avec une gestion optimisée.

---



## La vue de...



### Thierry LEBRUN

*Référent Grandes Usines de traitement des eaux usées de SUEZ Eau France*

« Le programme Mocopée est un véritable catalyseur de l'innovation, essentiel au processus engagé de transformation des stations d'épuration en usine de production de valeur, économe et respectueuse de nos ressources. »

#### Qui êtes-vous ?

Docteur en génie des procédés de l'Institut National Polytechnique de Toulouse, j'ai été responsable d'un pôle de recherche et développement en assainissement chez SUEZ durant six ans puis directeur de la production de la station d'épuration de Seine amont du Siaap pendant dix ans et en charge aujourd'hui des grandes usines de SUEZ Eau France.

#### Orientation scientifique et technique du programme

En s'intéressant aux principales thématiques liées à l'exploitation des réseaux et des stations d'épuration, le programme Mocopée est à la fois unique et original. L'approche multipartenaires et pluridisciplinaire en font un des programmes de recherche et de développement les plus ambitieux de ces dernières années dans le domaine. Ce programme intervient en plein changement de paradigme ; la station d'épuration ne traite plus seulement les eaux, elle devient une usine de production de valeur qui alimente l'économie circulaire locale en énergie, en eau, en nutriments.... Ces nouveaux enjeux modifient notre manière de construire et d'exploiter les usines, lesquelles deviennent de plus en plus complexes à piloter. Au travers de ses quatre axes de recherche, le programme Mocopée se propose de développer de nouveaux outils pour répondre aux nouvelles exigences en termes de fiabilité, de performances et de valorisation.

Parmi les quatre axes de recherche explorés, l'axe 2 relatif à la modélisation et à la commande des procédés est particulièrement pertinent dans ce contexte. En effet, ce volet du programme

s'appuie sur la compréhension des mécanismes biologiques, physiques et chimiques mis en œuvre. Le développement de modèles mathématiques, basés sur une approche systémique et associé à des phases de validation sur des installations grandes échelles, permet de développer des outils de diagnostic et d'aide à la décision robustes et adaptés. En considérant la filière de traitement dans sa globalité, la démarche proposée dans cet axe de recherche offre la possibilité d'étudier les interactions entre les différents procédés, d'identifier les facteurs limitants à l'échelle de la filière et les axes d'optimisation.

Les nouveaux enjeux liés à la valorisation de la matière (carbone, azote, phosphore), à la production d'énergie (co-digestion, biométhane) mais également à la réduction des consommations, nécessitent de revoir nos filières de traitement en y intégrant de nouvelles technologies. En étudiant des voies alternatives de traitement et de valorisation de l'étape laboratoire au stade industriel, l'axe 4 du programme Mocopée répond complètement à ces enjeux.

#### Intérêt opérationnel du programme tourné vers l'innovation industrielle

La conduite des usines devient de plus en plus complexe. L'exploitant doit piloter son installation en fonction d'exigences de plus en plus nombreuses : réglementaires, environnementales, économiques et sécuritaires.

L'intégration de modèles mathématiques dans la conduite des process permet de rationaliser les procédés. Il ne s'agit pas seulement de les contrôler à partir d'informations issues de capteurs mais d'optimiser leur exploitation en temps réel pour limiter leurs consommations en énergie et en réactifs.



La gestion énergétique en est un bon exemple. En effet, les grands sites produisent pour la plupart plusieurs types d'énergie thermique sous forme de biogaz ou de fluides de différents niveaux de température. A partir de modèles mathématiques, un système expert est en mesure de proposer un arbitrage sur la gestion du gisement énergétique en tenant compte des caractéristiques des flux produits, des besoins des consommateurs et des objectifs à atteindre (autosuffisance, carboneutralité, économique).

La modélisation des réseaux de collecte et des installations de traitement offre, à partir de données météorologiques et des performances épuratoires des usines, une vision globale simulée du fonctionnement de l'ensemble du système d'assainissement. Les stations d'épuration sont aujourd'hui conduites en fonction des flux entrants mais demain le pilotage par l'aval permettra, grâce à ces nouveaux outils, d'ajuster les performances de traitement en tenant compte de la qualité du milieu récepteur.

La simulation du fonctionnement de l'intégralité des filières de traitement (eau et boue) telle que proposée par le programme Mocopée peut se révéler très utile pour anticiper les événements d'exploitation ou les risques de défaillances. Ce mode prédictif ouvre de nombreuses applications comme par exemple l'anticipation des besoins en air au niveau des bassins biologiques ou les quantités de réactifs à injecter pour éliminer le phosphore et compléter la dénitrification. Intégrés dans le contrôle commande, ces modules prédictifs donnent de la souplesse à l'exploitation tout en permettant de maîtriser les procédés et les rendre plus économes. L'utilisation de jumeaux numériques s'avère également prometteuse pour simuler le fonctionnement des installations et prendre en considération l'ensemble des enjeux cités précédemment. Avec un tel outil, il est possible rapidement et à coût réduit de définir les stratégies patrimoniales lors des grands arrêts de maintenance, de chercher les conditions de fonctionnement les plus optimisées ou de déterminer des configurations d'exploitation dites « dégradées » pour faire face à des aléas notamment en situation de crise.

La valorisation des ressources issues des eaux usées est également un enjeu fort. Les eaux brutes sont riches en carbone et en nutriments lesquels peuvent être valorisés en énergie, en tant que fertilisants ou vers d'autres usages qui restent à découvrir. Néanmoins, les procédés de traitement en place sur les stations d'épuration ne sont pas forcément adaptés pour répondre à cet enjeu. En cela, le programme Mocopée, au travers de son axe 4, répond à ce besoin en proposant de prospecter et d'évaluer de nouveaux procédés et voies de valorisation.

A titre d'exemple, la production de biogaz à partir des boues de station d'épuration est la principale voie de valorisation du carbone, laquelle est largement répandue sur le territoire. Utilisé en l'état sur site ou transformé en électricité ou en biométhane, ce gisement énergétique à forte valeur peut être augmenté en favorisant la production de boues primaires et en augmentant la proportion de méthane

dans le biogaz. Par ailleurs, la purification du biogaz en biométhane s'accompagne d'une production de CO<sub>2</sub>, dont les voies de valorisation, encore peu nombreuses, restent à développer (ex-méthanation).

La récupération et la valorisation des nutriments tels que l'azote et le phosphore représentent également de véritables objectifs pour les années à venir, pour des raisons environnementales et économiques. En effet, le traitement de l'azote requiert des consommations électriques importantes et est très souvent le paramètre limitant sur les stations d'épuration. Le phosphore est principalement piégé dans la filière sans aucune valorisation en ajoutant des sels métalliques. Il y a à ce niveau un réel besoin en termes d'innovation, pour compléter les procédés de traitement actuels afin de capter et valoriser la fraction azotée et le phosphore présents dans les matrices les plus concentrées.



## La vue de...



### Fabrice NAULEAU

*Directeur Technique/R&D, SAUR*

« Traduire les besoins des exploitants en programmes de recherche puis en applications pratiques pour faciliter le travail de l'exploitant en cycle court est un défi relevé par Mocopée qui fonctionne comme un projet global de recherche avec ses livrables et ses évaluations. »

#### Qui êtes-vous ?

Dans le groupe Saur depuis 1986, j'ai d'abord été en charge de l'assistance technique puis de la partie process de STEREAU et ensuite de la recherche et développement. La nouvelle direction technique R&D Saur regroupe les 3 activités.

On peut aborder Mocopée à travers deux concepts clefs : l'innovation collaborative et l'usine intelligente. Mettre dans un même groupement de la recherche de haut niveau, des exploitants impliqués dans des objectifs de production et de qualité sur des installations mettant en œuvre des procédés variés de taille importante et des start-up est la première innovation de Mocopée. Une innovation complexe car elle fait coexister des mondes avec des objectifs, des modes de fonctionnement et des langages différents. L'exploitant doit produire une eau de qualité en tout temps, météorologique comme chronologique en respectant des budgets, la sécurité de tous les collaborateurs et la pérennité de son outil.

Les chercheurs doivent décortiquer les processus, les tester en laboratoire ou sur pilote, développer des plans de manipulations pour mieux les modéliser et publier le tout dans les revues à plus fort impact factor. Les start-ups doivent mettre à l'épreuve de la réalité leurs idées et produits mais aussi vivre de leur activité. Quels sont les besoins des exploitants sinon qu'on les laisse faire leur travail et en cas de besoin de pouvoir répondre au plus vite à la problématique du moment.

La première étape va donc être de déterminer ce qui va les aider de manière durable et à long terme et les convaincre du bienfondé des programmes mis en place.

Traduire ces besoins en programmes de recherche puis en applications pratiques pour faciliter le travail de l'exploitant en cycle court est un défi relevé par Mocopée qui fonctionne comme un projet global de recherche avec ses livrables et ses évaluations.

Les thèmes abordés dans ces programmes de recherche sont dans la ligne de l'amélioration des procédés :

- Mieux piloter pour économiser l'énergie : la meilleure gestion de l'énergie consommée dans le process d'épuration est bien sûr un des premiers objectifs puisqu'il permet des économies souvent substantielles tout en assurant la qualité du traitement. Un pilotage plus fin impose l'utilisation de capteurs adaptés et fiables.
- Gérer le patrimoine : les installations représentent un investissement colossal pour une collectivité qu'il convient de gérer au mieux tout en produisant une eau de qualité. C'est le cas des membranes où les méthodes d'investigation utilisées sont très supérieures aux méthodes utilisées en routine. Cela va permettre de suivre de manière fine et presque en temps réel l'évolution du parc membranaire et de dégager les stratégies d'exploitation les plus efficaces.

Connaître la matrice des eaux usées qui est la « matière première » de la station d'épuration est un moyen de mieux suivre l'efficacité des procédés et de rentrer plus dans le détail des process biologiques ou physico-chimiques. C'est également le passage obligé pour aborder les stratégies de valorisation de la ressource « eaux usées ». Cela nécessite notamment la mise en œuvre de nouvelles méthodes d'analyse issues de la recherche académique ou de start-up.

Avant de parler de ville intelligente (*smart city*), rendons les usines intelligentes en consommant moins d'énergie, de réactifs et en produisant moins de déchets tout en protégeant « l'outil de production ». La station source d'énergie ou de matière, considérée comme une « ressource » pour la collectivité, est un objectif plus lointain qu'il faut aborder dès maintenant et Mocopée va jeter les premières bases de ce travail. L'exemple de Mocopée permet au Siaap et à la recherche française de rayonner au niveau international et ce rayonnement profite à toute l'industrie de l'eau. Les procédés installés sur les sites Siaap ont été conçus par les entreprises d'ingénierie françaises et le travail du Siaap qui en bonifie l'exploitation est un élément important dans leur développement international.

---

## La vue de...



### Christophe DAGOT

*Responsable du Département Génie de L'Eau et de L'Environnement de  
ENSIL-ENSCI - Université de Limoges  
Chercheur à l'UMR INSERM 1092 de l'Université de Limoges*

« Mocopée se veut un catalyseur de réalisations inventives dans les traitements des eaux pour développer une recherche fonctionnelle, scientifiquement soutenue, directement opérationnelle, nécessairement pluridisciplinaire et intégrative, tournée vers l'innovation et s'inscrivant dans la durée. »

#### Qui êtes-vous ?

Je suis professeur à l'Université de Limoges à l'École Nationale Supérieure d'Ingénieur ENSIL-ENSCI depuis 1994. J'ai été directeur adjoint de cette composante et suis actuellement en charge des relations industrielles et responsable du département Génie de l'Eau et de l'Environnement. J'ai été chercheur au laboratoire du Groupe de Recherche Eau Sol Environnement de l'Université de Limoges pendant 20 ans, étudiant les interactions entre les biomasses épuratrices et les micropolluants et, plus spécifiquement, sur l'optimisation des procédés extensifs et intensifs, la réduction de la production de boue ou le traitement des micropolluants notamment pharmaceutiques. J'ai intégré depuis un an l'équipe UMR INSERM 1092 de l'Université de Limoges pour y développer des recherches sur la problématique de la dissémination de l'antibiorésistance dans l'environnement et des moyens d'y pallier. A ce titre je coordonne différents programmes scientifiques et suis membre de différentes commissions d'expertise.

#### Orientation scientifique et technique du programme

L'augmentation des exigences en matière de minimisation des risques sanitaires et environnementaux liés aux eaux usées urbaines est allée de pair avec la mise en place et l'exploitation de systèmes de traitement de plus en plus performants. Si les indicateurs d'efficacité

globale de traitement se traduisaient par « *une eau de qualité, élément important de la vie de qualité à laquelle aspire l'homme moderne* » (Les eaux résiduaires urbaines. Document Degrémont, vers 1978), ceux-ci ont évolués au cours du temps. Il s'y est ajouté au fil des années des critères de traitement des nutriments, de minimisation des volumes de boues, de traitement des micropolluants, de performances énergétiques, de récupération matière tout en développant des méthodes performantes de contrôle et de gestion. Ainsi, la prise de conscience de la nécessité de la maîtrise de la qualité des rejets et de la fiabilité des installations de traitement n'a eu de cesse d'améliorer les opérations unitaires de traitement, d'optimiser les fonctionnements des filières de rentabiliser les modes de contrôle et d'exploitations. Pour cela il a fallu utiliser une méthodologie pluridisciplinaire permettant d'intégrer une approche scientifique et technique à la résolution de problématiques industrielles complexes. C'est l'objet du Génie des Procédés (GP).

Le programme Mocopée qui s'inscrit dans la dynamique de l'innovation industrielle du traitement des eaux usées urbaines, s'intègre parfaitement dans les évolutions des approches et de méthodes du génie des procédés, faisant du génie sanitaire un objet d'étude et d'application des méthodes développées. Les évolutions des installations de traitement ont pu bénéficier de l'amélioration des connaissances scientifiques en mathématique, chimie, biologie,



physique, informatique, mécanique, et de la boîte à outil méthodologique du GP : bilans matière et énergie, modélisation, simulation, automatisation, ... On citera par exemple les modèles ASM (*Activated Sludge Model*) développés dès 1980 par les chercheurs de IAWPRC et permettant la représentation dynamique de l'élimination du carbone, de l'azote puis du phosphore. Ces modèles sont largement utilisés dans les logiciels commerciaux. Autre exemple, la mécanique des fluides numérique, utilisée dans de nombreux domaines industriels, est un outil puissant de connaissance des procédés comme la compréhension du fonctionnement des clarificateurs, ou l'optimisation du transfert d'oxygène dans les bassins biologiques. Fin 2017 sortait le Livre blanc du Génie des Procédés : « *Le génie des procédés en France : Quelles réponses du génie des Procédés pour un renouveau industriel ?* » démontrant que ce dernier est une science de l'Ingénieur essentielle pour le renouveau industriel répondant aux enjeux technologiques, énergétiques et environnementaux de demain et aux besoins d'innovation de rupture, en considérant les mutations, notamment numériques, de la société et de l'industrie. Le programme Mocopée aux travers de ses trois objectifs et ses quatre axes de recherche est en parfaite adéquation avec les différentes propositions de développement du GP, et les usines d'assainissement sont des objets d'études parfaitement adaptés pour appliquer les nouveaux paradigmes du GP.

Si le programme Mocopée insiste sur la nécessité de la caractérisation des matrices complexes, sièges des réactions, le développement des capteurs en ligne est essentiel pour la maîtrise et le contrôle des procédés. Mais bien plus que le capteur en lui-même, la donnée (data) est maintenant l'objet de mode d'exploitation poussée (capteur logiciel, traitement des données, traitement statistique, modélisation algorithmique,) aboutissant à de nouveaux modes de représentation, de compréhension, de contrôle et d'exploitation.

La modélisation développée par les équipes de Mocopée est une clé du GP, utilisée pour rationaliser l'appréhension des mécanismes chimiques, physiques, biologiques, mais également pour optimiser, simuler, automatiser les procédés. Les approches plébiscitées sont le couplage des processus, les approches multicritères, le développement des mathématiques appliqués et des outils numériques. Coupler les enjeux économiques, environnementaux et énergétiques est un enjeu fondamental dans les nouvelles approches conceptuelles de nos usines de traitement des eaux du futur.

### **Intérêt opérationnel du programme tourné vers l'innovation industrielle**

L'innovation est consubstantielle au Génie des Procédés et une résolution du programme Mocopée. Son enjeu à terme est la conception de l'usine du futur intégrant production, rationalisation des utilités, ingénierie de la fonctionnalité, minimisation des impacts, réponses aux enjeux sociétaux et environnementaux. Si la station

d'épuration, ensemble d'opérations unitaires variées, avec une obligation de qualité de produit et de coût minimaux, a été un objet d'étude de rationalisation industrielle idéale, elle opère actuellement sa mutation en transformant son approche de la production : nouveaux procédés, nouvelles performances, nouveaux concepts, nouvelle exploitation.

Ainsi la minimisation des dépenses énergétiques, la récupération matière et la réutilisation des eaux usées traitées va transformer le traitement des effluents actuellement encore trop linéaire en un véritable système de production intégré dans les concepts d'économie circulaire. L'application des nouveaux outils du GP, modélisation multicritère, analyse de cycle de vie, économie de la fonctionnalité, traitement des données, etc. doit répondre aux enjeux scientifiques et fonctionnels tels que le programme Mocopée les conçoit, associant autour de la station de traitement les compétences multisectorielles des domaines impliqués.



## La vue de...



### Jean-Marie MOUCHEL

*Professeur à Sorbonne Université, Directeur de l'UMR 7619 Metis et Directeur de la Zone Atelier Seine (CNRS/INEE)*

« La transition écologique qui démarre et les promesses de l'écologie territoriale plaident pour une forte synergie entre les programmes de recherche, tels que Mocopée, PIREN-Seine et OPUR. »

#### Qui êtes-vous ?

J'ai commencé mes travaux de chercheur à l'Ecole des Ponts. Je suis aujourd'hui professeur à l'Université de la Sorbonne et Directeur de l'UMR 7619 Metis. Je suis également Directeur de la Zone Atelier Seine (CNRS/INEE) et j'ai dirigé durant 9 ans le programme PIREN-Seine. Mes travaux portent sur la qualité des eaux et les flux de contaminants dans les écosystèmes très anthropisés, en particulier la Seine et l'agglomération parisienne.

L'enjeu premier des systèmes d'assainissement était l'évacuation des eaux puis la maîtrise des rejets en milieu aquatique. Aujourd'hui ils sont devenus une partie très importante et inter-connectée du socio-écosystème complexe que constituent la société et son environnement. Situés à l'aval du système urbain, ils redistribuent les matières, ils interagissent avec le milieu récepteur (aquatique), mais aussi avec les sols (épandages, recyclage de nutriments) et donc le système agro-alimentaire, et encore avec l'atmosphère (émissions de gaz à effet de serre) et ils se doivent de limiter leur consommation d'énergie à l'heure où la transition écologique est une nécessité.

#### Des développements métrologiques et conceptuels pour piloter et comprendre un écosystème particulier

L'épuration des eaux et le traitement des boues sont des processus industriels en grande partie fondés sur les processus physiques et microbiologiques qui s'expriment naturellement dans le milieu. Pour piloter au mieux cet écosystème en concentré que constitue

l'usine d'épuration, les participants au programme Mocopée développent des techniques de mesure avancées avec des PME spécialisées dans la métrologie. Les capteurs qui en résultent (mesure rapide de la DBO, mesure des nitrites et des nitrates, caractérisation de la matière organique par fluorescence) sont pertinents pour caractériser le matériel à traiter et le degré d'avancement des procédés. Bien entendu, ces capteurs peuvent être transposés à d'autres milieux, à la rivière qui constitue le milieu récepteur notamment. Si leurs plages de mesures ne sont pas directement compatibles, ils sont au moins très inspirants pour de nouveaux développements qui pourront trouver leur place dans un futur proche dans le réseau MeSeine également porté par la Direction de l'innovation du Siaap et dans d'autres réseaux de mesure comme le projet PHRESQUES du GIP Seine-Aval auquel est également associée cette même direction.

#### Une exigence renouvelée vis-à-vis de la qualité du milieu aquatique qui va vers une gestion plus intégrée

Nous sommes aujourd'hui dans le temps où la responsabilité de l'assainisseur n'est plus seulement de veiller au meilleur développement et fonctionnement du système qu'il gère, mais de veiller également sur le milieu récepteur. Le Siaap a intégré cette exigence depuis de nombreuses années, elle s'est traduite par le développement de réseaux de mesure (ODES puis MeSeine) depuis plus de 20 ans. La voie est ouverte pour qu'elle se traduise aussi par une gestion des ouvrages d'épuration qui prenne en compte en temps réel la vulnérabilité du milieu, et permette de

le préserver de manière optimale. C'est un des axes forts du programme Mocopée, un des objectifs que permettra à terme le couplage de la métrologie et des modèles développés pour les usines et pour le milieu récepteur.

### **Une coopération/des interactions à capitaliser avec les autres programmes de recherche sur le bassin de la Seine**

Comme point nodal essentiel pour la redistribution de la matière et de l'énergie, l'usine d'épuration est un maillon central de l'écologie territoriale, une science en développement qui se consacre à la circulation de la matière et de l'énergie dans les territoires. Elle

interagit avec son amont (réseau d'assainissement) et ses multiples avals (eau, sol, atmosphère). C'est ainsi que des interactions nombreuses ont été nouées entre le programme Mocopée et d'autres programmes de recherche qui œuvrent à l'amont dans le réseau (programme OPUR) et à l'aval dans le milieu naturel (programme PIREN-Seine). Elles portent sur les échanges de données indispensables à la compréhension du fonctionnement de chacun des systèmes. Elles portent aussi sur la stratégie scientifique de chacun des programmes, la progression des connaissances dans chacun des systèmes étudiés, apportant de nouveaux défis pour la compréhension des autres. Il faut se réjouir de ces synergies.

---

## La vue de...



### Bruno TASSIN

*Professeur d'hydrologie urbaine à l'École des ponts ParisTech*

« Mocopée, tel que je le comprends, c'est le rassemblement des compétences scientifiques et techniques pour permettre l'optimisation du fonctionnement des stations d'épuration de demain, dans une vision de long terme. »

#### **Qui êtes-vous ?**

Je suis professeur d'hydrologie urbaine à l'École des ponts ParisTech et effectue mes recherches au Laboratoire Eau, Environnement et Systèmes Urbains (Leesu).

Mon activité a porté d'abord sur la modélisation de la restauration des systèmes lacustres puis aujourd'hui sur l'analyse du fonctionnement des hydrosystèmes urbains.

#### **Orientation scientifique et technique du programme**

Mocopée, tel que je le comprends, c'est le rassemblement des compétences scientifiques et techniques pour permettre l'optimisation du fonctionnement des stations d'épuration de demain, dans une vision de long terme. Cette recherche de l'optimisation s'inscrit dans une vision très high-tech, très présente en ce début du XXI<sup>e</sup> siècle, reposant sur l'acquisition de données : le *pervasive sensing* dans la station d'épuration et la modélisation, pour la représentation phénoménologique des paramètres et l'optimisation de la gestion du fonctionnement de l'épuration.

On pourrait se demander s'il est prioritaire de chercher à optimiser le fonctionnement des stations d'épuration quand les actions sur le dérèglement climatique ou la perte de biodiversité se limitent à quelques gesticulations et larmes de crocodile, que le « jour du dépassement » a encore avancé, que les tendances exponentielles de consommation se poursuivent à un rythme plus intense que la seule croissance

démographique mondiale, bref que l'on fonce dans le mur, en espérant qu'il aura la bonne idée de bouger si l'on klaxonne assez fort.

Mais les enjeux mondiaux liés à l'eau sont graves et connus. Une forte proportion de la population mondiale n'a pas accès à un assainissement de qualité (1 milliard d'êtres humains environ pratiquent encore la défécation à l'air libre). L'accroissement de l'urbanisation se poursuit (55% de la population mondiale aujourd'hui, 68 % en 2050, soit 6.7 milliards de personnes). Les risques sur la ressource en eau en liaison avec ces pressions urbaines et le changement climatiques croissent en parallèle. Les risques pour le système terre (*planetary boundaries*) liés aux rejets dans l'environnement d'azote et de phosphore sont parmi les plus graves identifiés. Dans ce contexte et également vis-à-vis des risques sanitaires, il est nécessaire de mettre en place des approches de gestion des flux d'eaux usées s'inscrivant dans la poursuite de la tendance initiée au début du XX<sup>e</sup> siècle. Il est également fondamental de réfléchir à de nouvelles approches reposant sur de nouveaux paradigmes.

Mocopée s'inscrit dans cette double approche d'optimisation de l'existant et d'innovations disruptives. Indubitablement, les systèmes d'assainissement sont devenus des systèmes complexes. Sur mes trente cinq années de vie professionnelle, et ayant visité de temps en temps des stations d'épuration, j'ai l'impression d'être passé de l'époque de la Ford T à celle de la dernière Toyota hybride. Sans doute l'évolution de



la réglementation, une certaine prise de conscience environnementale, tant du côté de l'industriel du traitement que du côté du citoyen, entre autres, y sont pour quelque chose. Il est évident alors que Mocopée prépare les générations futures des stations d'épuration. Permettre un fonctionnement plus sûr, plus efficace, minimisant son empreinte écologique et énergétique sera possible par l'amélioration de la mesure de ce fonctionnement par des capteurs plus adaptés, plus proches de la réalité des processus, permettant de rentrer dans la perception de la réalité intime de ces mélanges multiphasiques, et donc par la suite de mieux la faire évoluer dans le sens d'une amélioration du traitement de l'eau.

Mocopée traduit cette vision et permet l'introduction des dernières avancées scientifiques dans le monde des capteurs et du génie des procédés dans le monde de l'épuration. Il serait inexact de dire qu'il s'agit de l'arrivée de la science, car les scientifiques se sont toujours intéressés à l'épuration, depuis qu'elle a été mise en œuvre à une échelle industrielle à la fin du XIX<sup>e</sup> siècle. Les ingénieurs-savants du XIX<sup>e</sup> siècle cherchaient déjà à optimiser leurs essais d'épuration par le sol dans les années 1870 et tout au long du XX<sup>e</sup> siècle la recherche a contribué à développer et à améliorer le fonctionnement des stations d'épuration, secteur d'activité pourtant peu considéré par l'académie.

Dans un contexte de segmentation et d'hyperspécialisation, alors que la multidisciplinarité est souvent prônée, mais plus rarement mise en pratique de manière efficace, le Siaap a réussi à constituer autour de Mocopée et à financer autour de l'innovation en épuration un écosystème comprenant :

- › des scientifiques, dans des spécialités allant des mathématiques pas forcément appliquées, aux sciences des matériaux (matériaux cimentaires mais aussi matière organique), en passant, c'était plus évident par le génie des procédés ou la microbiologie ;
- › des entreprises, et particulièrement des start-up, couvrant là aussi un spectre large allant de la modélisation tri-dimensionnelle à la microfluidique, en passant par la mesure des effets des perturbateurs endocriniens ;
- › des acteurs opérationnels impliqués, proches des innovations et des avancées scientifiques qui

mettent à disposition leurs installations mais aussi peuvent tester, proposer, suggérer, réfléchir.

Cet ensemble permet non seulement des avancées scientifiques pointues dans différents secteurs de l'épuration mais également des innovations technologiques et une fertilisation croisée entre les deux.

Mocopée marque aussi une ouverture beaucoup plus prospective sur l'assainissement et l'épuration d'après-demain. Finalement, cela ne fait même pas deux cents ans que le réseau d'assainissement et l'épuration se sont développés pendant la phase de croissance urbaine dans les régions où s'imposait la première révolution industrielle. Peut-être que les approches retenues à l'époque, parfois dans une urgence que la santé publique et les épidémies appelaient, n'étaient pas optimales.

Doit-on considérer comme incontournables nos toilettes et les réseaux d'assainissement qui les prolongent, qui évacuent les résidus du métabolisme humain en les diluant dans de grandes quantités d'eau et rendent difficiles d'aller y rechercher l'énergie présente et les éléments utiles ? La circularité des éléments nutritifs n'a fait pratiquement que décroître au cours du XX<sup>e</sup> siècle. Doit-on considérer aujourd'hui comme normal de dépenser de l'énergie pour produire de l'azote minéral et d'en dépenser encore pour l'éliminer ensuite des eaux usées en station d'épuration ? Doit-on au final, encore parler de déchets et d'eaux usées ? Ne faut-il pas les considérer comme des ressources.

Déjà aujourd'hui, les stations d'épuration produisent de l'énergie. Sans doute beaucoup reste à faire pour proposer et tester des modèles d'assainissement urbain permettant de les exploiter complètement et efficacement, tout en assurant le confort et la sécurité des usagers.

Cela nécessitera sans doute que Mocopée élargisse encore son cercle de scientifiques et y inclut des spécialistes des sciences humaines et sociales (anthropologues et sociologues en particulier), elles seront incontournables. Mocopée permettra alors sans doute l'émergence de petites entreprises innovantes qui pourront se développer sur des approches en rupture des systèmes actuels, pourquoi pas rustiques et *low-tech* ?





La vue de...



## L'agence de l'eau SEINE NORMANDIE

« L'initiative Mocopée est une référence potentielle pour les gestionnaires de l'épuration : la valorisation des programmes de recherche en solutions concrètes d'amélioration des performances environnementales, largement partagées, est un des attendus majeurs de ce programme. »

### Qui êtes-vous ?

L'agence de l'eau Seine Normandie, établissement public du Ministère de la transition écologique et solidaire, aide les actions et les ouvrages qui contribuent à protéger les ressources en eau et la biodiversité, dans une dynamique d'adaptation aux changements climatiques à l'échelle de son bassin hydrographique.

### Orientation scientifique et technique du programme

Pour plus de 11 millions d'habitants en région parisienne, les eaux usées après épuration se retrouvent *in fine* dans la Seine, le plus petit des grands fleuves français, qui lui-même se jette dans la Manche, espace marin particulièrement étroit et sensible aux pollutions telluriques : le défi d'atteindre et de maintenir un bon état écologique de l'eau des rivières et des fleuves et de l'eau marine est de taille.

Depuis plusieurs décennies, les ouvrages de collecte des eaux usées et pluviales et d'épuration de l'agglomération ont été conçus et construits dans le cadre de schémas d'assainissement successifs. Les unités de traitement sont en passe d'être équipées de technologies de pointe, mais la pression exercée par l'agglomération et la baisse prévisible des débits de la Seine en raison du changement climatique rendent indispensables les efforts soutenus pour le maintien de performances compatibles avec le bon état écologique de la Seine. Les résultats sont là : la Seine retrouve une bonne qualité et ses poissons. Mais tout ceci est fragile : par temps de pluie, les performances restent insuffisantes ; les exigences environnementales se renforcent avec l'émergence de nouvelles pollutions

(perturbateurs endocriniens, substances dangereuses pour l'eau, microplastiques, nanoparticules, etc.) ; la conception globale des dispositifs laisse des marges de manœuvre réduites pour ajuster voire réviser les choix passés à l'aune des besoins actuels et pressants de maîtrise des flux d'énergie et de matières ; et enfin les ouvrages vieillissent, demandent une maintenance accrue et la programmation de renouvellement. S'en suivent une vulnérabilité des performances environnementales et économiques et une charge financière difficile à gérer à la fois pour les habitants qui bénéficient du service et pour les financiers publics dont l'agence de l'eau.

Dans ce contexte, chacun des quatre axes du programme de recherche Mocopée s'avèrent effectivement pertinents : métrologie pour diagnostiquer, modélisation pour comprendre et décider, auscultation de l'intégrité des ouvrages pour une meilleure gestion patrimoniale, innovation pour stimuler, perfectionner, changer de point de vue et valoriser la recherche.

Toutefois, le programme ne saurait se suffire à lui seul. Afin de cibler les recherches en tenant compte du mieux possible des enjeux prioritaires pour les milieux aquatiques, il s'avère important également de veiller à le relier aux autres programmes de recherche structurants pour le bassin : avec le PIREN Seine (programme interdisciplinaire développant une vision globale des milieux aquatiques du bassin de la Seine et des sociétés humaines qui les influencent) et pour la réduction des pollutions entrantes dans le système OPUR (observatoire de terrain de la contamination

des eaux usées et pluviales en Ile-de-France).

Les interconnexions via les laboratoires de recherche permettent déjà de réelles synergies. Ce pourrait être renforcé par des rencontres, voire un pilotage global associant, à pas de temps régulier correspondant aux étapes de choix stratégiques, les pilotes et les financiers de chacun de ces programmes. Ainsi pourraient être solidement connectées : les composantes de connaissance « aval », des milieux aquatiques concernés et « amont », de la composition des flux polluants et de leur évolution. La lisibilité de cet ensemble cohérent bénéficierait ainsi d'une animation concertée permettant de communiquer de manière pédagogique les tenants et aboutissants et les résultats de ces recherches intégrées, à la fois pour les équipes et les élus du Siaap, pour les élus du Comité de bassin, pour les services de l'Etat, autorités environnementales et pour les équipes de l'agence de l'eau accompagnant les porteurs de projets.

En ce qui concerne la qualité scientifique, l'agence de l'eau ne dispose pas directement des capacités et des outils pour en juger. Il peut cependant être noté que le recours à des appels à projet de recherche et les publications par les équipes universitaires, hors intérêts commerciaux, sont de nature à crédibiliser la démarche. Le moment venu, un processus d'évaluation pourrait être envisagé.

### **Intérêt opérationnel du programme tourné vers l'innovation industrielle**

Le bassin Seine Normandie comprend plus de 2 700 systèmes de collecte d'épuration des eaux usées. Le territoire national en compte plus de 20 000. Bien évidemment, très peu peuvent mobiliser des moyens de recherche équivalents à ceux du Siaap, s'inscrivant dans la durée mais tous sont confrontés à des besoins de métrologie, de maîtrise des flux, de vieillissement des ouvrages et de pilotage stratégique.

Il est certain que les avancées méthodologiques et technologiques obtenues par le programme Mocopée pour les quatre axes présentent potentiellement un intérêt pour de nombreux dispositifs. Les premiers résultats obtenus partagés lors des séminaires annuels ouvrent quelques perspectives, par exemple l'évolution de la mesure de DBO, la mesure des perturbateurs endocriniens, les leviers d'optimisation énergétique, le contrôle de la dénitrification, les études sur la moussabilité des effluents, etc.

La dissémination des méthodes et des procédés éprouvés dans le cadre de ce programme, bénéficiant de fonds publics, est facilitée par les séminaires de restitution, par la normalisation et éventuellement par la commercialisation pour certains d'entre eux.

La publication d'un ouvrage capitalisant les avancées s'avère également un atout pour diffuser les résultats auprès de tous les services exerçant des missions d'assistance technique, ainsi que pour les établissements d'enseignements dans le domaine de l'épuration.

Au-delà de cette valorisation, pour stimuler l'innovation et déployer des outils auprès des acteurs du bassin, il serait intéressant de favoriser des rencontres très pragmatiques entre le Siaap, pilote du programme Mocopée et ses partenaires industriels, avec les gestionnaires et leurs appuis techniques et institutionnels, avec les services de l'Etat veillant au respect des objectifs environnementaux. Ceci afin de permettre une confrontation entre besoins et offres techniques, dans un contexte de plus grande exigence environnementale et d'économie de moyens.

Par ailleurs, l'expérience opérationnelle pourrait aussi être élargie, en procédant à un parangonnage avec d'autres entités, publiques ou privées, en France et à l'étranger, avec des dispositifs permettant un rapprochement en termes de méthodes ou de problématiques, même partiels. La récente étude du CGEDD (Conseil général de l'environnement et du développement durable) portant sur l'expertise du projet de refonte de la station d'épuration d'Achères et de son financement a montré tout l'intérêt de comparer les conceptions et les contraintes de différents dispositifs, dans leur globalité ou partiellement, en France et à l'étranger : ceci peut être étendu au fonctionnement et à la recherche appliquée à ces installations.

## La vue de...



### Muriel AURIOL

*Responsable de la parution et du développement de la revue Techniques Sciences Méthodes (TSM)*

« Le programme Mocopée reflète la ligne éditoriale de la revue *Techniques Sciences Méthodes (TSM)* : des projets basés sur des retours d'expériences, avec une vision opérationnelle, de la technicité et présentant une rigueur scientifique et pluridisciplinaire. »

#### Qui êtes-vous ?

Titulaire d'un *PhD* en sciences de l'eau, j'ai œuvré en tant que consultante en génie environnemental et gestion des ressources en eau dans les pays du Maghreb pendant sept ans, avant de rejoindre *TSM*. À travers des articles à portée technique et opérationnelle, cette revue permet aux spécialistes de l'environnement de s'informer, s'inspirer, et également de diffuser et valoriser leurs expériences. Un de mes objectifs, aux côtés du Comité de Lecture, est de conserver la qualité de la revue, tout en développant de nouvelles perspectives.

#### Orientation scientifique et technique du programme

Le programme Mocopée est un programme de recherche pluridisciplinaire qui s'efforce de réunir au cœur de ses projets les problématiques opérationnelles et les réalités de terrain. Pour cela, la philosophie Mocopée est de briser les frontières entre le monde académique et l'industrie afin de déployer, concrètement et rapidement les solutions innovantes de demain. C'est avant tout d'impliquer, tout au long de la mise en œuvre des projets, l'ensemble des acteurs, c'est-à-dire du chercheur au gestionnaire, en passant par l'acteur opérationnel. Les connaissances de chacun sont mobilisées et reconnues à leur juste valeur, afin de faire de la recherche pour améliorer concrètement la gestion au quotidien des acteurs de l'eau.

*TSM*, éditée par l'Association scientifique et technique pour l'eau et l'environnement (Astee) depuis 1906, s'adresse à tous les professionnels de l'eau et de

l'environnement. Mêlant compétences, sérieux et modernité, *TSM* propose des études scientifiques et techniques, révisées par des pairs. À la croisée d'une revue purement scientifique et d'une revue exclusivement opérationnelle, elle offre à son lectorat pluridisciplinaire la possibilité de parfaire sa connaissance des enjeux complexes liés, notamment, au domaine de l'eau et des nouvelles approches pour la conception de l'usine du futur.

Et c'est en ce sens que la revue *TSM* est un des relais légitime des programmes à l'image de Mocopée. Elle permet de diffuser, au sein de la communauté scientifique et technique, les résultats et les innovations développées par ce type de programmes.

#### Intérêt opérationnel du programme tourné vers l'innovation industrielle

Tout professionnel a besoin de se tenir informé, de savoir ce que font ses pairs afin de s'inspirer et s'enrichir par les expériences des autres, et en particulier dans le domaine de l'eau. En effet, les enjeux liés à la protection de l'environnement sont en continuelle évolution, due à une réglementation toujours plus exigeante, à laquelle doivent faire face les gestionnaires des systèmes d'assainissement. De plus, viennent s'ajouter les changements globaux (tels que le changement climatique, l'urbanisation généralisée, les risques sanitaires) et les aspirations des usagers (telles que la préservation de l'environnement, l'accès à une eau de qualité, le développement des énergies renouvelables, l'objectif du zéro déchet et de l'économie circulaire). Ainsi, des vecteurs de diffusion des connaissances sont nécessaires et la revue *TSM* assure parfaitement



ce rôle.

Par ailleurs, pour répondre aux différents enjeux, des programmes de l'envergure de Mocopée doivent exister. Il y a un réel besoin d'outils métrologiques efficaces et rapides et de technologies performantes et compactes, à moindre coût. Ces dernières doivent également prendre en considération la loi de transition énergétique pour la croissance verte (LTECV), notamment au niveau des consommations énergétiques, des énergies renouvelables et de la valorisation « matière ».

Ces défis conséquents demandent une mutualisation de toutes les expertises et la dynamique Mocopée s'efforce d'y répondre tout en limitant, tant que possible, les délais entre projet pilote et industrialisation. Par exemple, après 5 ans de recherche et de défis relevés, une jeune entreprise impliquée dans ce programme a réussi à mettre au point une nouvelle méthode d'estimation d'un indicateur clé de qualité de l'eau, la demande biochimique en oxygène à 5 jours ( $DBO_5$ ). Ainsi, l'accompagnement Mocopée a facilité le développement d'une méthode fiable, rapide

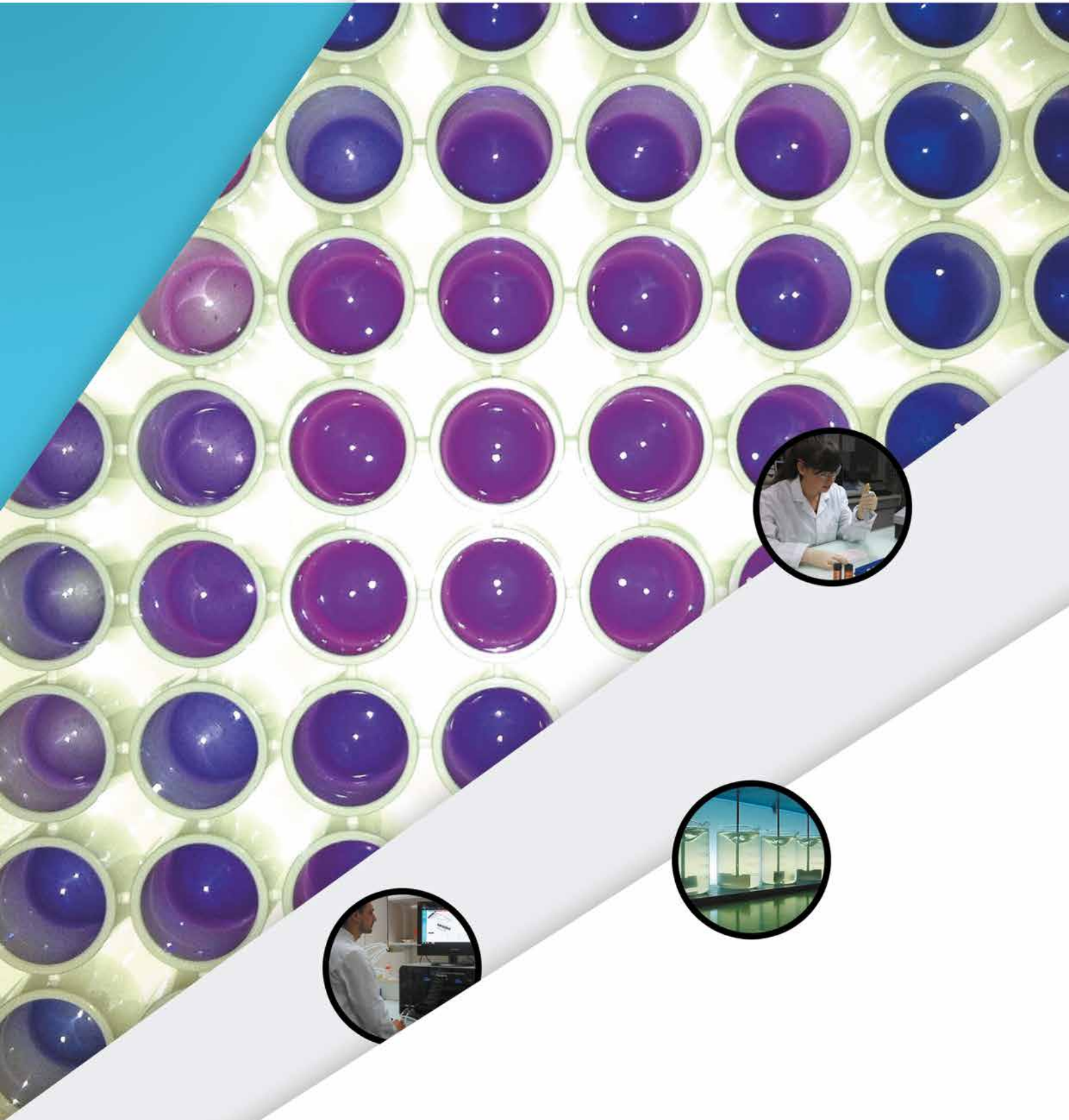
et simple d'utilisation et contribué à l'évolution de la réglementation sur les outils métrologiques des eaux résiduaires. *TSM*, quant à elle, a permis de faire connaître à son lectorat les résultats de ce projet et l'utilité d'une telle innovation<sup>1</sup>.

Mocopée, c'est également un programme tourné vers les défis de demain. En effet, un pôle du programme est consacré aux concepts innovants : évaluer, prospecter, inventer. La revue *TSM*, en plus d'être un vecteur de diffusion, constitue alors un moyen efficace pour les collectivités de s'approprier les connaissances produites par le programme et de rester en alerte sur les solutions innovantes qui pourraient être déployées demain sur le terrain.

---

<sup>1</sup> Voir l'article MULLER et al., 2018 : « L'innovation métrologique pour l'analyse réglementaire des eaux - Retour d'expérience sur la demande biochimique en oxygène à 5 jours ( $DBO_5$ ) ». Techniques Sciences Méthodes ; 3 : 65-75.





# DOSSIER SCIENTIFIQUE





## Partie introductive







# Le programme de recherche Mocopée à l'interface entre recherche et industrie - Contexte, périmètre et objectifs de la phase I du programme (2014-2017)

## *The research program Mocopée at the interface between research and industry - Context, perimeter and objectives of phase I of the programme (2014-2017)*

Vincent Rocher<sup>[1]\*</sup>, André Pauss<sup>[2]</sup>, Yannick Fayolle<sup>[3]</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[1]</sup>, Sam Azimi<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Siaap, Direction Innovation Environnement, Colombes

<sup>[2]</sup> Université de Technologie de Compiègne, TIMR (EA 4297), Compiègne

<sup>[3]</sup> Irstea, UR HBAN, Antony

\* Auteur de correspondance : [vincent.rocher@siaap.fr](mailto:vincent.rocher@siaap.fr)



*Dans un contexte technique et réglementaire évolutif, le Siaap (Service public de l'assainissement francilien), l'Irstea (Institut national de recherche en sciences et technologies pour l'environnement et l'agriculture) et l'UTC (Université de technologie de Compiègne) se sont rapprochés pour construire un programme de recherche appliquée en phase avec les enjeux industriels du domaine de l'assainissement : Mocopée (MOdélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux). 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. La première phase de ce programme (2014-2017), qui a rassemblé dix équipes de scientifiques et cinq entreprises innovantes, a conduit à des avancées significatives dans trois champs principaux : (1) la métrologie appliquée au suivi des matrices eau/boue dans les stations d'épuration, (2) la compréhension des mécanismes d'apparition, le suivi et le contrôle des espèces intermédiaires du cycle de l'azote (protoxyde d'azote, nitrite) et (3) la modélisation des procédés de traitement. Ce chapitre introductif à l'ouvrage « Innover dans les pratiques de monitoring et d'exploitation des stations d'épuration » présente l'initiative Mocopée et propose un panorama des sujets traités en phase I.*

## Mocopée - Contexte - Objectifs - Périmètres - Avancées scientifiques

### 1. Présentation générale du programme

La réglementation encadrant le traitement des eaux résiduaires urbaines a largement évolué ces deux dernières décennies. L'application de la Directive Européenne sur les Eaux Résiduaires Urbaines (1991), la Directive Cadre sur l'Eau (2000), le plan national d'action sur l'assainissement 2012-2018 et plus récemment l'arrêté du 21 juillet 2015 ont conduit à un accroissement significatif des exigences sur la qualité des eaux rendues au milieu naturel. Ainsi, les principales agglomérations françaises ont conduit une politique de construction et de modernisation des ouvrages d'assainissement. Des technologies performantes pour le traitement physico-chimique et biologique des eaux résiduaires et des sous-produits ont été intégrées dans les usines d'épuration des principales agglomérations françaises (décantation lamellaire physico-chimique, biofiltres, bioréacteurs à membranes, sécheurs thermiques, etc.). Si ces technologies intensives permettent de maintenir une haute qualité de traitement, leur pilotage nécessite en revanche un haut niveau d'expertise technico-scientifique. En particulier, les questions relatives à la métrologie, au contrôle et à la commande des procédés d'épuration sont aujourd'hui positionnées au cœur des problématiques industrielles.

Dans ce contexte, le Siaap (Service public de l'assainissement francilien), l'Irstea (Institut national de recherche en sciences et technologies pour l'environnement et l'agriculture) et l'UTC (Université de technologie de Compiègne) se sont rapprochés pour construire un programme de recherche appliquée en phase avec les grands enjeux industriels actuels. Il s'agit du programme Mocopée : MOdélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux. Le programme Mocopée se veut être un espace de travail et d'échange pérenne entre scientifiques et acteurs opérationnels exerçant dans le domaine du traitement des eaux urbaines.



Photo du consortium prise lors du séminaire annuel (2017, Siaap, Colombes)

Figure 1 : Consortium impliquant des acteurs du monde de l'eau appartenant aux sphères opérationnelles, industrielles et académiques

Au cours de la première phase du programme (2014-2017), le programme s'est appuyé sur les équipes listées ci-dessous :

**Partenaires scientifiques :** Siaap (Direction de l'innovation et de l'environnement, Colombes), Institut national de recherche en sciences et technologies pour l'environnement et l'agriculture (Unités de recherche hydrosystèmes et bioprocédés [Antony] et milieux aquatiques, écologie et pollutions [Lyon- Villeurbanne]), Université de technologie de Compiègne (Département transformations intégrées de la matière renouvelable [Compiègne]), Université Laval (Département de génie civil et de génie des eaux [Canada, Québec]), Ecole polytechnique de Louvain (Institute of information and communication technologies, electronics and applied mathematics [Belgique, Louvain-la-Neuve]), Université Paris-Est-Créteil (Laboratoire eau, environnement et systèmes urbains [Créteil]), Université Pierre et Marie Curie (Laboratoire milieux environnementaux, transferts et interactions dans les hydrosystèmes et les sols [Paris]), École supérieure d'ingénieurs en électrotechnique et électronique (Amiens), et l'Institut national des sciences appliquées (Département génie des procédés et environnement. Laboratoire d'ingénierie des systèmes biologiques et des procédés [Toulouse]).

**Partenaires industriels :** AMS-ENVOLURE (Solutions innovantes pour l'analyse des bioprocédés environnementaux [Montpellier]), FLUIDION (Développement de systèmes autonomes *in situ* d'échantillonnage et de mesure de la qualité des eaux [Créteil]), ALIENSAS (Algèbre pour identification et estimation numériques [Nancy]), SCANAE (Laboratoire expert en biodégradabilité [Montpellier]) et WATCHFROG (Laboratoire spécialiste des tests perturbateurs endocriniens [Evry]).



Figure 2 : Equipes de recherche (universités et centres de recherche), entreprises innovantes et associations impliquées dans la phase I du programme de recherche (2014-2017)

**Associations partenaires :** Le programme s'est également appuyé sur trois associations du monde de l'eau et de l'environnement à l'échelle régionale et nationale : ARCEAU (Association Recherche Collectivités dans le domaine de l'EAU), CLUSTER EAU-MILIEUX-SOL (association aux services des territoires pour construire une dynamique de l'innovation) et l'ASTEE (Association Scientifique et Technique pour l'Eau et l'Environnement).

## 2. Objectifs et périmètre de la phase I du programme (2014-2017)

Le programme de recherche se décompose en phases se décompose en phases pluriannuelles. Pour chacune de ces phases, un programme scientifique répondant à la fois aux enjeux scientifiques et aux problématiques industrielles émergentes est co-construit par le consortium d'équipes scientifiques et techniques. Ce mode de fonctionnement est équilibré puisqu'il présente l'avantage de pouvoir inscrire des actions sur le long terme et, par conséquent, de permettre d'avancer significativement sur des problématiques scientifiques pointues, tout en maintenant une souplesse et une capacité d'adaptation puisque les orientations scientifiques sont régulièrement discutées.

Le programme de recherche de la phase I (2014-2017) a été construit autour de quatre axes de recherche dédiés à la métrologie appliquée à l'épuration des eaux, à la modélisation du fonctionnement des procédés d'épuration, au contrôle commande des procédés de traitement et à l'innovation industrielle (Figure 3). Cette première phase visait notamment à construire les outils métrologiques (mesure en continu et méthode de caractérisation des matrices) et mathématiques (traitement des signaux, modélisation des procédés de traitement, contrôle-commande) nécessaires pour accroître la maîtrise et le niveau d'optimisation des filières de traitement des eaux et des boues des stations d'épuration. Cette phase visait également à accompagner l'innovation industrielle en s'intéressant aux concepts innovants, notamment par l'examen de nouveaux procédés de traitement.

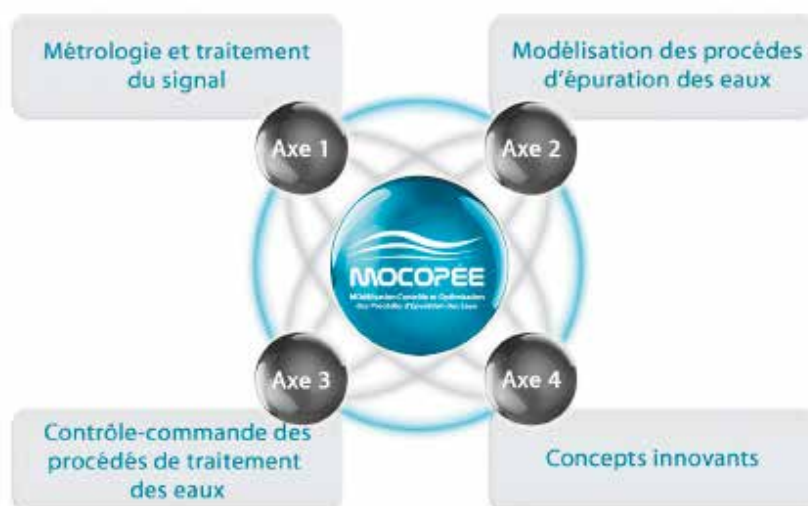


Figure 3 : Axes de recherche de la phase I du programme Mocopée

### 3. Avancées scientifiques et techniques de la phase I

Les avancées scientifiques permises par la phase I du programme concernent trois champs principaux : (1) l'innovation métrologique au service du suivi des matrices eau/boue dans les stations d'épuration (STEP), (2) la compréhension des mécanismes d'apparition, le suivi et le contrôle des espèces intermédiaires du cycle de l'azote au cours des traitements biologiques (protoxyde d'azote, nitrite) et (3) la modélisation des procédés de traitement intégrés dans les stations d'épuration.

#### 3.1. INNOVATION MÉTROLOGIQUE AU SERVICE DU SUIVI DES MATRICES EAU/BOUE EN STATION D'ÉPURATION

Les résultats obtenus lors de la phase I devront permettre de faire évoluer les pratiques de monitoring des files de traitement des eaux et des boues en privilégiant des méthodes permettant (1) de mesurer plus efficacement et plus rapidement les paramètres classiquement suivis dans le domaine de l'assainissement (DCO, DBO<sub>5</sub>, bactéries indicatrices de contamination fécale, potentiel méthanogène des boues) et (2) de caractériser plus finement nos effluents pour anticiper leurs comportements sur les filières et leur impact sur le milieu (anticipation des épisodes de moussage, estimation de la toxicité).

Les résultats obtenus lors de ces différents travaux ont été synthétisés dans les neuf chapitres ci-dessous :

- Développement et validation d'une méthode alternative pour la mesure rapide de la Demande Biochimique en oxygène des eaux résiduaires urbaines – Enverdi® DBO. MULLER *et al.*
- Caractérisation des eaux résiduaires urbaines par fractionnement biologique de la matière organique : inter-comparaison de différentes approches analytiques. BELLATON *et al.*
- Utilisation de la spectrométrie de fluorescence 3D pour une mesure rapide de la DBO<sub>5</sub> et de la DCO en station de traitement des eaux usées. GOFFIN *et al.*
- Utilisation des mesures interfaciales pour anticiper la formation de mousse lors du traitement des eaux usées et des jus de digestion. LARACHICHE *et al.*
- Mesure *in situ* et en semi continu de la qualité bactériologique d'effluents de stations d'épuration - retour sur les essais du système « ALERT » de Fluidion. GUÉRIN-RECHDAOUI *et al.*
- Evolution de la perturbation endocrinienne des eaux usées lors de leur traitement en STEP - Utilisation des modèles WATCHFROG. DU PASQUIER *et al.*
- Développement et validation d'une méthode alternative pour l'estimation rapide du potentiel méthane des boues d'épuration urbaine. BELLATON *et al.*
- Couplage « mesure en réacteur - modélisation » pour une estimation rapide du potentiel méthanogène des boues. MOTTELET *et al.*
- Potentiel méthanogène de déchets valorisables en STEP : focus sur les boues urbaines. GUÉRIN-RECHDAOUI *et al.*

#### 3.2. MÉCANISMES D'APPARITION, SUIVI ET CONTRÔLE DES ESPÈCES INTERMÉDIAIRES DU CYCLE DE L'AZOTE AU COURS DES TRAITEMENTS BIOLOGIQUES

Les résultats obtenus lors de la phase I ont permis de progresser sur les méthodes de mesure, la compréhension des mécanismes d'apparition et les solutions de contrôle envisageables des espèces intermédiaires du cycle de l'azote : le nitrite et le protoxyde d'azote. L'apport de ces connaissances est indispensable pour *in fine* définir et maintenir dans les systèmes de traitement des conditions limitant les émissions de ces espèces, impactantes d'un point de vue environnemental.



Les résultats obtenus lors de ces différents travaux ont été synthétisés dans les quatre chapitres ci-dessous :

- › Evaluation simultanée des concentrations résiduelles de nitrites et nitrates en sortie de dénitrification biologique. PAUSS *et al.*
- › La production de nitrites lors de la dénitrification des eaux usées par biofiltration – Stratégie de contrôle des concentrations résiduelles. ROCHER *et al.*
- › Emissions de protoxyde d'azote des unités de biofiltration de la station de Seine Aval. FILALI *et al.*
- › Traitement des jus de digestion par le procédé SHARON® : shunt des nitrates et dénitrification. PERRET *et al.*

### 3.3. MODÉLISATION DES PROCÉDÉS DE TRAITEMENT EN STATION D'ÉPURATION

Les résultats obtenus lors de la phase I ont permis de faire évoluer les modèles phénoménologiques capables de simuler le fonctionnement des procédés de traitement des eaux et, en particulier, les procédés de décantation physico-chimique et les procédés biologiques intensifs (biofiltration et bioréacteurs à membranes). La question de la modélisation statistique du fonctionnement d'un bioréacteur à membranes et d'un incinérateur de boues urbaines a également été abordée.

Les résultats obtenus lors de ces différents travaux ont été synthétisés dans les cinq chapitres ci-dessous :

- › Calibration et validation d'un modèle de décantation physico-chimique à l'échelle industrielle, le modèle SimDec. BERNIER *et al.*
- › Impact des stratégies d'aération sur les performances de filtration et caractérisation hydrodynamique d'un pilote de BaM semi-industriel : apport de la modélisation à la mesure par tomographie de résistivité électrique. SUARD *et al.*
- › Modélisation des émissions de protoxyde d'azote par biofiltration nitrifiante : importance des hypothèses liées au transfert gaz/liquide. FIAT *et al.*
- › Calibration et validation d'un modèle de biofiltration de la station Seine Aval (Siaap). ZHU *et al.*
- › Modélisation et régulation multi-variables d'un four d'incinération des boues à lit fluidisé. RABAH *et al.*

## 4. Invitation au voyage...

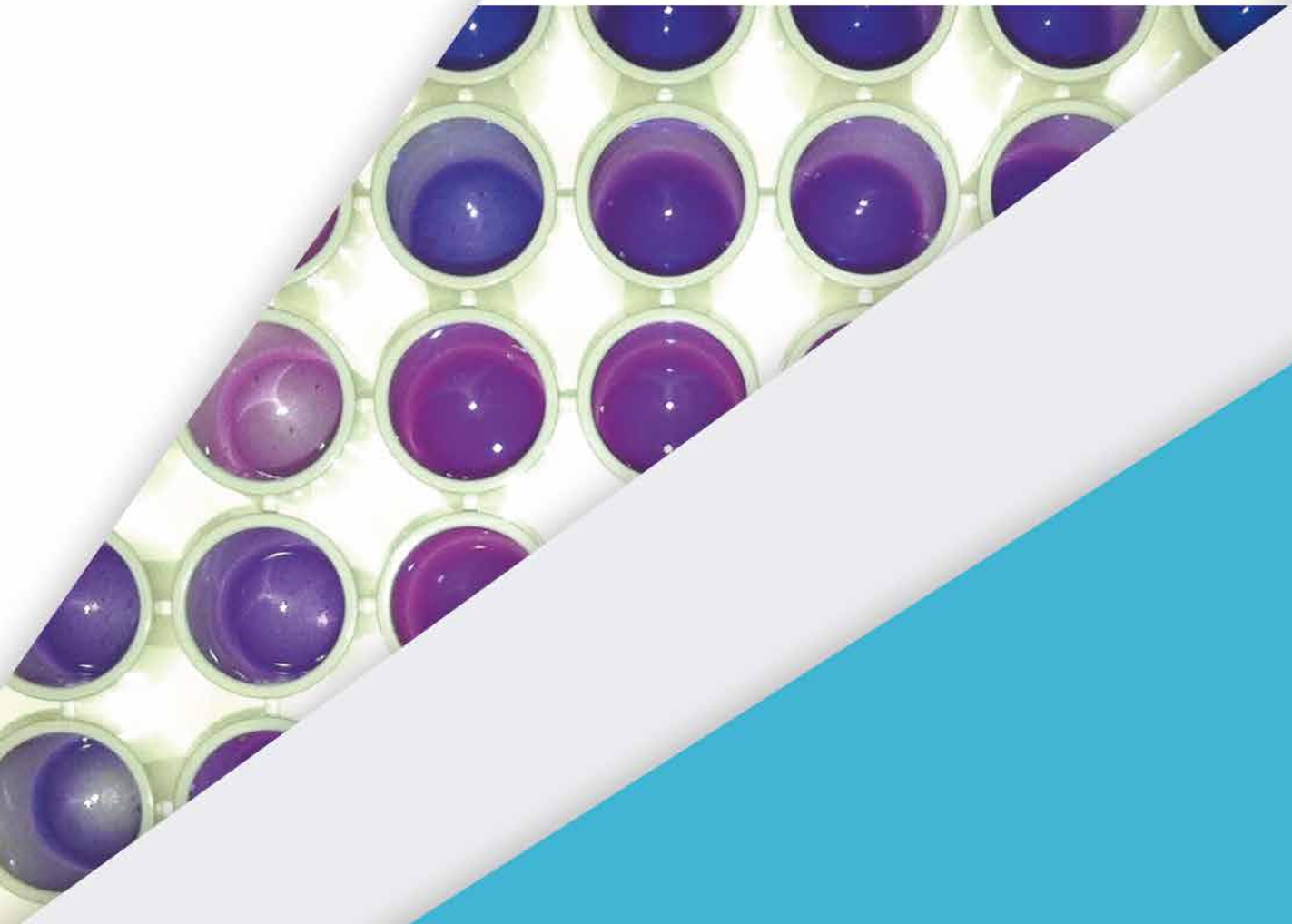
Nous concluons ce court chapitre introductif en vous invitant à parcourir le dossier scientifique composé de l'ensemble des chapitres cités ci-avant et structuré en quatre sous-parties respectivement intitulées : (1) métrologie innovante appliquée à la file de traitement des eaux, (2) métrologie innovante appliquée à la file de traitement des boues, (3) espèces intermédiaires du cycle de l'azote et (4) modélisation des procédés de traitement en station d'épuration.

Nous espérons que vous prendrez autant de plaisir à lire ces chapitres que nous en avons eu à faire vivre cette première phase du programme.

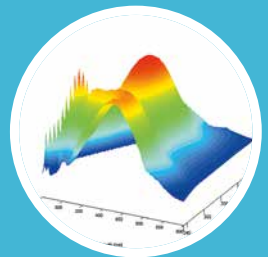
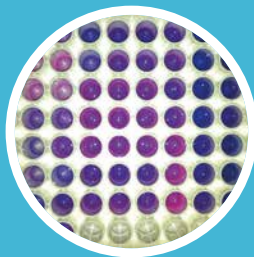
### POUR EN SAVOIR PLUS

- › Site web : [www.mocopee.com](http://www.mocopee.com)
- › Messagerie électronique du comité de pilotage et de coordination : [cpc@mocopee.com](mailto:cpc@mocopee.com)





## Métrieologie innovante appliquée à la file de traitement des eaux







# Développement et validation d'une méthode alternative pour la mesure rapide de la Demande Biochimique en oxygène des eaux résiduaires urbaines - Enverdi® DBO

## Development and validation of an alternative method for measurement of biochemical oxygen demand in municipal wastewater - Enverdi® BOD

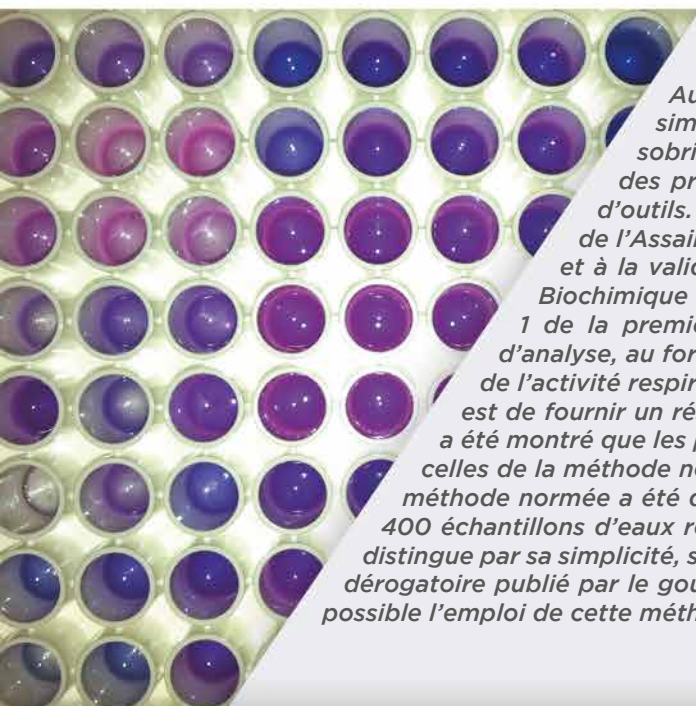
Mathieu Muller<sup>[1]\*</sup>, Yoris Alison<sup>[1]</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[3]</sup>, Solenn Bellaton<sup>[2]</sup>, Vincent Rocher<sup>[3]</sup>

<sup>[1]</sup> AMS Envolution, Grabels

<sup>[2]</sup> AMS Envolution, Frépillon

<sup>[3]</sup> Siaap, Direction Innovation Environnement, Colombes

\* Auteur de correspondance : mathieu.muller@envolution.com



*Au XXI<sup>e</sup> siècle, l'assainissement urbain est confronté simultanément à des enjeux de performances épuratoires et de sobriétés environnementales. Face à ce double défi, le pilotage des procédés épuratoires requiert un changement de pratiques et d'outils. Dans ce contexte, la société AMS Envolution et le Service Public de l'Assainissement Francilien (Siaap) ont collaboré au développement et à la validation d'une méthode alternative de mesure de la Demande Biochimique en Oxygène (DBO). Ces travaux se sont inscrits dans l'axe 1 de la première phase du programme Mocopée. Le résultat est un kit d'analyse, au format microplaque, reposant sur une mesure par fluorescence de l'activité respiratoire bactérienne. L'avantage principal de cette méthode est de fournir un résultat en 48h, contre 5 jours avec la méthode normée. Il a été montré que les performances analytiques du kit étaient comparables à celles de la méthode normée. Par ailleurs, l'équivalence de résultats avec la méthode normée a été démontrée statiquement suite à l'analyse d'environ 400 échantillons d'eaux résiduaires urbaines. Cette méthode innovante se distingue par sa simplicité, sa compacité, sa fiabilité et sa rapidité. Un arrêté dérogatoire publié par le gouvernement français en 2017 rend désormais possible l'emploi de cette méthode par les acteurs de l'assainissement.*

Assainissement - Métrologie - Innovation - Matière organique -  
Minéralisation bactérienne - Demande Biochimique en Oxygène -  
Fluorimétrie - Expérimentation réglementaire

## Introduction

La Demande Biochimique en Oxygène (DBO) est un paramètre global permettant d'apprécier la qualité des eaux douces et résiduaires. A ce titre, elle est comparable à d'autres paramètres tels que la demande chimique en oxygène (DCO) ou les matières en suspension (HENZ, 2008 ; RODIER, 2009). Plus particulièrement, la DBO reflète le degré de pollution des eaux par les matières organiques biodégradables (MOB). Il s'agit d'un indice défini par sa méthode de mesure, elle-même fortement inspirée par les processus de minéralisation bactérienne de la MOB s'opérant naturellement dans les milieux aquatiques. Cet indice et sa méthode ont été suggérés au début du XX<sup>e</sup> siècle, au Royaume-Uni, par la Commission Royale sur l'Assainissement (ROYAL COMMISSION ON SEWAGE DISPOSAL, 1915). La MOB apportée aux milieux aquatiques naturels est rapidement minéralisée par les bactéries hétérotrophes aérobies présentes dans ces milieux. Il en résulte une baisse de la teneur en oxygène des eaux. Ce mécanisme naturel permet l'autoépuration des milieux aquatiques. Toutefois, si l'apport de MOB est excessif, l'oxygène dissous se maintient à des niveaux de concentration faibles. Cette asphyxie du milieu conduit à des modifications significatives de la biodiversité et du fonctionnement des écosystèmes aquatiques. La capacité d'autoépuration des milieux en est altérée rendant l'eau impropre à la consommation et aux activités humaines (HARRISON, 2001).

Ainsi, la méthode d'analyse qui fut proposée il y a un siècle reflétait l'impact de la MOB sur les milieux aquatiques naturels. Il s'agissait de mesurer la quantité d'oxygène dissous « absorbée » par l'eau analysée lorsque celle-ci était maintenue pendant 5 jours à 18,3 °C, en flacons fermés et à l'obscurité. Il fut compris plus tard que cet oxygène était consommé par les bactéries pour minéraliser la MOB présente dans l'échantillon (MARA et HORAN, 2003). Le choix des conditions de mesure (durée et température d'incubation) fut très tôt soumis à des critiques (CALVERT, 1913). Des périodes plus courtes (2 jours) ou plus longues (7 jours), de même que des températures plus faibles (15 °C) ou plus élevées (27 °C), furent proposées, soit pour plus de représentativité de l'analyse, soit pour des raisons pratiques de mise en œuvre de la méthode au sein des laboratoires. Toutefois, même si la température d'incubation a été standardisée à 20 °C depuis, la durée du test est restée de 5 jours ; il s'agit, dans ces conditions, du paramètre  $DBO_5$ .

Aujourd'hui, ce test est utilisé à l'échelle mondiale et le paramètre  $DBO_5$  est devenu la référence (JOUANNEAU *et al.*, 2014). Toutefois, en Europe, en Suède, Finlande et Lituanie, la température du test est de 20 °C mais sa durée a été portée à 7 jours (LIU et MATTIASSON, 2002). Le résultat d'une analyse  $DBO_7$  vaut environ 1,15 fois celui d'une analyse  $DBO_5$ . Les conditions standardisées de mesure de la  $DBO_5$  et de la  $DBO_7$  sont décrites par les normes EN 1899 (Europe) et SM 5210 B (Etats-Unis). La norme indienne IS 3025-44 décrit pour sa part une DBO en 3 jours à 27 °C ; dans ces conditions, le résultat de l'analyse est équivalent à celui d'une analyse  $DBO_5$ . Ceci se démontre tant expérimentalement que théoriquement en considérant le modèle biochimique décrit par l'équation 1, largement admis au sein de la communauté scientifique (DE MATOS *et al.*, 2014) :

$$DBO(t, T) = DBO_u \cdot (1 - e^{-k(T) \cdot t}) \quad (\text{Équation 1})$$

Avec :  $DBO(t, T)$  = DBO après incubation à la température  $T$ , pendant le temps  $t$  (en  $mgO_2/L$ )  
 $DBO_u$  = DBO ultime, caractéristique intrinsèque à l'échantillon analysé (en  $mgO_2/L$ )  
 $k(T)$  = constante réactionnelle de la minéralisation bactérienne à la température  $T$  ( $jour^{-1}$ )  
 $t$  = durée de l'incubation (en jour)

La constante réactionnelle dépend de la température  $T$ , selon l'équation 2 :

$$k(T) = k(20) \cdot \theta^{(T-20)} \quad (\text{Équation 2})$$

Avec :  $k(20)$  = constante réactionnelle de la minéralisation bactérienne à 20 °C (en  $jour^{-1}$ )  
 $\theta$  = coefficient de température (sans unité)  
 $T$  = température d'incubation (en °C)

Selon ce modèle, quand la température d'incubation augmente, jusqu'à un optimum d'environ 35 °C pour les bactéries hétérotrophes mésophiles, alors la constante de minéralisation augmente également (ZANONI, 1967 ; VAN HAANDEL et VAN DER LUBBE, 2012 ; DE MATOS *et al.*, 2014). Il en résulte que la valeur de DBO obtenue dans les conditions standards du test (5 jours, 20 °C) est atteinte plus rapidement (3 jours), à une température de 27 °C. Sur le plan expérimental, cet aspect est largement étayé par la littérature scientifique (figure 1). Toutefois, sauf quand les conditions climatiques locales le permettent, il est plutôt délicat et coûteux de maintenir des centaines de flacons de 100 à 300 mL de contenance à une température supérieure à 25 °C, et ce pendant plusieurs jours.

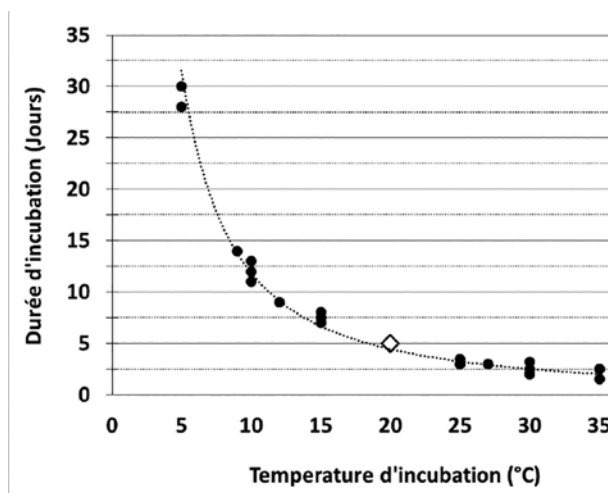


Figure 1 : Binômes « durée-température » aboutissant à un résultat DBO similaire au résultat de la méthode standard (5 jours, 20 °C). D'après des résultats précédemment publiés (THERIAULT, 1926, 1927 ; GOTAAS, 1948 ; ZANONI, 1967 ; DHAGE *et al.*, 2012 ; DE MATOS *et al.*, 2014).

Outre les conditions d'incubation, les différentes normes précisent également les méthodes autorisées pour mesurer l'oxygène dissous. Initialement mesuré par titrimétrie, l'oxygène dissous est aujourd'hui plus généralement mesuré via des sondes électrochimiques (JOUANNEAU *et al.*, 2014). D'autres normes, telles les normes NS 4758 (Norvège) ou SM 5210 D (Etats-Unis), proposent une méthode manométrique reposant sur la consommation bactérienne de l'oxygène dissous, mais aussi, par déplacement des équilibres physico-chimiques, de l'oxygène gazeux présent dans l'espace de tête du flacon de mesure (JOUANNEAU *et al.*, 2014). Cette approche analytique, qui ne limite plus l'apport d'oxygène à la phase dissoute, semble également permettre d'atteindre la valeur de la DBO<sub>5</sub> traditionnelle plus rapidement (en 2 à 3 jours à 20 °C selon la norme SM 5210 D).

Dans les années 2000, des chercheurs français (INRA, CNRS, Universités Aix-Marseille et Reims-Champagne-Ardenne) ont développé et breveté une méthode innovante pour mesurer la biodégradabilité de matières organiques par les bactéries d'un sol (DUDAL *et al.*, 2006, 2007). Cette méthode introduit l'utilisation à cette fin d'un bio-réactif dérivé de la résazurine, une molécule sensible à l'activité respiratoire des cellules, fréquemment utilisé dans le domaine du biomédical et de l'agroalimentaire (O'BRIEN *et al.*, 2000 ; RAMPERSAD, 2012). Lors du processus de minéralisation de la MOB, cette molécule est convertie, au niveau de la chaîne respiratoire des bactéries impliquées, en une forme hautement fluorescente (LARSON *et al.*, 1997 ; KARAKASHEV *et al.*, 2003). L'activité respiratoire des bactéries, et donc leur consommation d'oxygène, peut ainsi être mesurée par fluorimétrie (MCNICHOLL *et al.*, 2007 ; GONZALEZ-PINZON *et al.*, 2012, 2015). Plus la teneur en MOB de l'échantillon testé et donc la respiration bactérienne qui en résulte sont élevées, plus l'intensité de fluorescence mesurée est élevée. De ce résultat a émergé l'idée d'étendre cette méthode à la mesure de la DBO des eaux. Cette possibilité fut étudiée dans le cadre d'un projet de création d'entreprise ayant reçu des soutiens locaux (ville, région), nationaux et européens. La start-up Envolve, créée en 2010, a ainsi pu transformer l'idée initiale en un produit robuste et commercialisable. Le succès technique du projet réside notamment dans la mise en place de collaborations avec des utilisateurs finaux, en particulier, avec le Service Public de l'Assainissement Francilien (Siaap), dès 2011, puis dans le cadre de la première phase du programme Mocopée (2014-2017). Les premiers prototypes développés ont ainsi pu être testés, optimisés et validés en partenariat avec les équipes du Siaap. Au final, ces travaux de recherche et développement ont conduit à de nouvelles innovations et au dépôt de deux nouvelles demandes de brevet par la société Envolve, devenue depuis AMS Envolve (PAUTREMAT *et al.*, 2013 ; MULLER *et al.*, 2016). Le produit résultant (nommé Enverdi® DBO) prend la forme d'un kit d'analyse prêt-à-l'emploi couplé à un lecteur de fluorescence pour microplaque 96 puits, format analytique sous-lequel est mise en œuvre cette nouvelle méthode. Le principe biochimique exploité est le même que la méthode normée, à savoir la minéralisation bactérienne de la MOB, mais l'activité respiratoire résultant de cette minéralisation est ici mesurée via la méthode développée par le consortium public précité. Ce choix, qui permet de fortement miniaturiser l'analyse (volume réactionnel divisé par un facteur 1000), rend également possible d'incuber les échantillons à une température davantage optimale pour le métabolisme des bactéries mésophiles, soit 30 °C. Comme démontré précédemment, à cette température, le métabolisme bactérien est grandement accéléré et 2 jours seulement sont nécessaires pour déterminer une valeur de DBO<sub>5</sub>. Puisqu'il s'agit d'une mesure directe de l'activité respiratoire au niveau cellulaire, et non d'une mesure de l'oxygène dissous environnant, les puits de la microplaque ne sont pas hermétiquement clos et la réaction n'est pas limitée par l'oxygène dissous disponible. L'oxygène atmosphérique alimente continuellement le milieu réactionnel. Enfin, le résultat final est exprimé en mgO<sub>2</sub>/L, comme dans la méthode de référence, grâce à l'analyse simultanée de solutions étalons de DBO<sub>5</sub> connue, préalablement déterminée selon la méthode NF EN 1899-1. Ces solutions étalons, constituées de différents pools de matière organique plus ou moins facilement et rapidement biodégradables (MULLER *et al.*, 2016), visent à mimer la MOB d'échantillons réels, en particulier, celle des eaux résiduaires urbaines (ERU).

Ce chapitre présentera les performances analytiques de la méthode innovante en comparaison de la méthode classique et au regard des exigences réglementaires en vigueur. Seront mis en lumière également les avantages de la méthode innovante et ses limites actuelles. Enfin, les obstacles réglementaires limitant son adoption par les laboratoires seront abordés de même que les solutions adoptées à l'échelle nationale pour y remédier.

## 1. Matériels et méthodes

### 1.1. ECHANTILLONNAGE ET SITES D'ESSAIS

Les échantillons d'ERU utilisés pour la validation de la méthode innovante provenaient de six bassins de collecte différents. Cinq des bassins se trouvaient en France alors que le sixième bassin se trouvait aux Etats-Unis. Chacun

de ces bassins compte plusieurs stations d'épuration (STEP), majoritairement situées en zone urbaine ou semi-urbaine, avec pour certaines des apports industriels significatifs. Les tailles des STEP s'échelonnaient de quelques dizaines de milliers à plus d'un million d'équivalent-habitants. Dans chaque bassin de collecte, les mesures de  $\text{DBO}_5$ , selon la méthode classique et selon la méthode innovante, ont été réalisées en collaboration avec un laboratoire local accrédité sur la méthode normée. Au total, environ 400 échantillons d'ERU ont été collectés et analysés. Sur ce panel d'échantillons, 15 % ont été collectés et analysés aux Etats-Unis et 85 % en France, dont près d'un tiers par le Siaap, entre 2013 et 2014. Le nombre d'échantillons et la diversité des bassins de collecte ont permis d'assurer une représentativité accrue des ERU analysées. Par ailleurs, la multiplicité des sites d'analyse a permis de prendre en compte la transférabilité et reproductibilité de la méthode innovante au regard de la méthode classique, ainsi que la diversité des pratiques opératoires et la variabilité biologique des inocula bactériens utilisés.

## 1.2. MÉTHODE CLASSIQUE DE MESURE DE LA $\text{DBO}_5$

Les mesures classiques de  $\text{DBO}_5$  ont été réalisées selon la norme en vigueur dans le pays concerné, soit NF EN 1899-1 pour la France et Standard Method 5210 B pour les Etats-Unis. Selon les sites d'essais, l'inoculum bactérien utilisé était soit un inoculum naturel prélevé sur le bassin de collecte (entrée de STEP), soit un inoculum standardisé du commerce.

## 1.3. MÉTHODE INNOVANTE DE MESURE DE LA $\text{DBO}_5$

Le kit d'analyse Enverdi®  $\text{DBO}_5$  (AMS Alliance, France) contient le bio-réactif, un tampon pH nutritif, huit solutions d'étalonnage, des microplaques et du petit matériel nécessaire à la réalisation du test (seringues, filtres, films pour microplaque). Les lecteurs de fluorescence utilisés étaient des FLX 800 (Biotek, USA) équipés d'une lampe halogène, de filtres d'excitation/émission à 540/600 nm et d'un photomultiplicateur.

La procédure d'analyse comprend les étapes préliminaires suivantes : dilution éventuelle des échantillons en fonction de la DCO ; vérification et, si nécessaire, ajustement du pH entre 6 et 8. Les échantillons subissent ensuite un prétraitement en microplaque afin d'inhiber les bactéries endogènes : 10 min à 120 °C en étuve sèche puis 10 min à 4 °C en chambre froide. L'intérêt de ce prétraitement est de permettre, par la suite, une inoculation bactérienne homogène entre les différents échantillons et entre les échantillons et les solutions d'étalonnage (ou contrôles qualité). L'inoculum bactérien est préparé à partir d'une entrée de STEP urbaine filtrée à 1,2  $\mu\text{m}$  ; le filtrat ainsi produit est récupéré et éventuellement dilué. La microplaque est ensuite remplie avec 20  $\mu\text{L}$  de bio-réactif, 60  $\mu\text{L}$  de tampon, 170  $\mu\text{L}$  d'un échantillon prétraité, d'une solution d'étalonnage ou d'une solution de contrôle. Enfin, 20  $\mu\text{L}$  de filtrat sont ajoutés en tant qu'inoculum bactérien. La microplaque est immédiatement scellée avec un film, limitant l'évaporation mais permettant les échanges gazeux, puis introduite dans le lecteur de fluorescence. La fluorescence est mesurée toutes 30 min pendant 48h. Le lecteur assure aussi l'agitation et l'incubation à 30 °C de la microplaque.

La solution de contrôle qualité employée est identique à celle de la méthode de référence : acide glutamique et glucose à 150 mg/L chacun, présentant une  $\text{DBO}_5$  de 210  $\text{mgO}_2/\text{L}$  selon NF EN 1899-1 et de 198  $\text{mgO}_2/\text{L}$  selon SM 5210 B. L'ensemble du protocole analytique pour 40 échantillons et huit points d'étalonnage en duplicat (soit 96 puits) prend moins de 60 min. Le traitement des résultats obtenus est automatisé via un programme informatique et ne prend que quelques minutes.

## 1.4. PROCÉDURES DE VALIDATION

La validation de la méthode a respecté les normes suivantes : NF T90-210 pour tester le domaine d'étalonnage, la limite de quantification et l'exactitude des résultats ; NF ISO 11352 pour déterminer les incertitudes étendues de la méthode en fonction du niveau de  $\text{DBO}_5$  mesuré. Pour tester l'équivalence des résultats entre la méthode innovante et les méthodes normées, trois tests statistiques ont été utilisés : la régression linéaire des moindres carrés et le test Wilcoxon, très semblables aux tests suggérés par le guide ISO/TS 1648, ainsi que le test de Bland et Altman. Le risque  $\alpha$  concédé lors de ces tests fut de 5 %. Par ailleurs, la méthode innovante a été confrontée à la méthode normée dans le cadre de quatre essais interlaboratoires (EIL) basés sur des échantillons réels non dopés (trois cas) ou préalablement dopé (un cas). Ces EIL ont été pilotés par deux organismes accrédités différents (A et B).

## 2. Résultats et discussion

### 2.1. EQUIVALENCE DE RÉSULTATS

En 2014, les résultats de premiers travaux furent publiés concernant l'équivalence des résultats entre la méthode innovante et les méthodes normées de mesure de la DBO<sub>5</sub>, NF EN 1899-1 et SM 5210 B (MULLER *et al.*, 2014). Une centaine d'échantillons d'ERU furent collectés et analysés par le Siaap (France) et le Milwaukee Metropolitan Sewage District (MMSD, Etats-Unis). Les trois tests statistiques utilisés montraient qu'il n'existait pas de différences significatives entre les résultats obtenus par la méthode innovante et ceux obtenus par les méthodes normées. Cette conclusion fut confirmée en 2015 à travers une autre étude portant sur 261 échantillons d'ERU, collectés et analysés par quatre laboratoires (MAGNIN *et al.*, 2015).

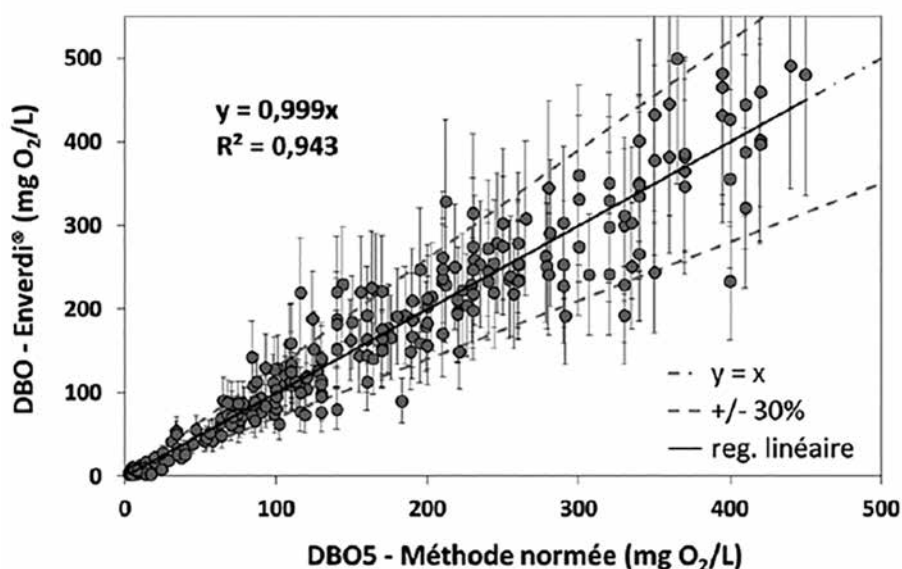


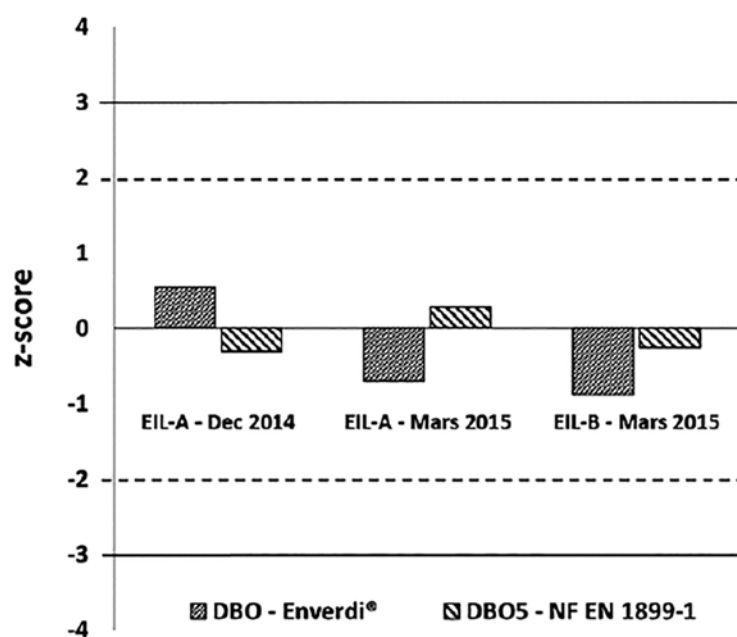
Figure 2 : Corrélation entre les résultats de la méthode innovante (Enverdi®) et les résultats de la méthode normée résultant de l'analyse de 393 eaux résiduaires urbaines (entrées et sorties de STEP). Les lignes en pointillés intitulées “+/- 30 %” illustrent l'incertitude étendue de la méthode normée ; les barres d'erreurs verticales illustrent l'incertitude étendue de la méthode innovante.

Les résultats obtenus pour 393 échantillons d'ERU collectés et analysés de 2013 à 2016 par six laboratoires (cinq en France et un aux Etats-Unis) sont présentés sur la Figure 2. En utilisant les mêmes tests statistiques que lors des précédents travaux, nous avons montré que l'ordonnée à l'origine de la droite de régression ( $r^2 > 0,94$ ) n'est pas significativement différente de 0, avec un intervalle de confiance de [-3 ; 5]. De même, le coefficient directeur de la droite n'est pas significativement différent de 1, avec un intervalle de confiance de [0,98 ; 1,02]. Ce résultat prouve l'absence de biais systématique ou proportionnelle entre les résultats DBO<sub>5</sub> issus des deux approches analytiques. Le test de Bland et Altman a conduit à des conclusions similaires. La droite de régression entre les erreurs normalisées de la méthode innovante et les valeurs moyennes de DBO<sub>5</sub> ( $r^2 < 0,01$ ; non illustrée) présente un coefficient directeur non significativement différent de 0, avec un intervalle de confiance de [-0,0002 ; 0,0424]. Par ailleurs, l'erreur normalisée médiane est égale à 0 et l'erreur normalisée moyenne n'est pas significativement différente de 0 (intervalle de confiance = [-5,0 ; 0,3]). En conséquence, cela indique qu'en utilisant la méthode innovante, la valeur de DBO<sub>5</sub> obtenue n'est ni sous-estimée, ni surestimée. Enfin, avec une valeur-p de 0,8, le test de Wilcoxon renforce la conclusion que les différences entre les résultats issus des deux approches analytiques peuvent être considérées comme négligeables. Il en ressort que pour 98 % des échantillons analysés, le résultat obtenu avec la méthode innovante tombe dans le domaine d'incertitude de la méthode de référence (généralement, +/- 30 %, voire plus pour des DBO<sub>5</sub> inférieurs à 10 mg O<sub>2</sub>/L).

Cette démonstration est basée sur des analyses effectuées sur de longues périodes (de quelques mois à un an selon les sites), sur différents sites en France et aux Etats-Unis, et avec des échantillons dont les valeurs de DBO<sub>5</sub> s'échelonnent de 3 à 500 mg O<sub>2</sub>/L. Par conséquent, cette comparaison intègre les éventuelles variabilités géographiques et temporelles des caractéristiques des ERU, incluant les capacités métaboliques du consortium bactérien utilisé comme inoculum, de même que la diversité des pratiques et compétences au sein des laboratoires



impliqués. La mise en évidence d'une équivalence des résultats entre la méthode innovante, dont les conditions d'incubation sont de 2 j à 30 °C, et les méthodes normées, dont les conditions d'incubation sont de 5 j à 20 °C, est en adéquation avec les travaux effectués par d'autres chercheurs sur le couple « durée-température » dans le cadre de la méthode classique (Figure 1). Cette équivalence de résultats est également en adéquation avec des travaux récents démontrant que la fluorescence résultant de la réduction de ce type de bio-réactif par des bactéries est bien corrélée à la consommation d'oxygène de ces mêmes bactéries pour la minéralisation de la MOB (MCNICHOLL *et al.*, 2007 ; GONZALEZ-PINZON *et al.*, 2012, 2015).



**Figure 3 : Résultats d'essais interlaboratoires portant sur l'analyse d'échantillons réels, non dopées, selon la méthode innovante (Enverdi®) et selon la méthode normée (NF EN 1899-1). Les résultats sont jugés satisfaisants lorsque le z-score obtenu est compris entre -2 et +2.**

En complément de cette vaste étude comparative, quatre analyses ont été réalisées dans le cadre d'EIL conduits par deux organismes accrédités (A et B). Les analyses DBO<sub>5</sub> des échantillons tests ont été effectuées par le Siaap, selon la méthode innovante et selon la norme NF EN 1899-1. Trois de ces échantillons tests étaient non dopées et présentaient des DBO<sub>5</sub> de 6, 67 et 168 mgO<sub>2</sub>/L. Dans ces conditions, des z-scores hautement satisfaisants (compris entre -1 et +1) ont été obtenus par les deux méthodes d'analyse (Figure 3). Pour une raison inconnue, l'analyse du quatrième échantillon test, préalablement dopée pour atteindre une DBO<sub>5</sub> finale de 40 mgO<sub>2</sub>/L, a conduit à un z-score incorrect pour la méthode innovante alors que le résultat obtenu par la méthode normée était cohérent avec la moyenne résultant de l'ensemble des laboratoires (non illustré). Toutefois, des études ultérieures, impliquant quatre inocula bactériens collectés sur différents sites en France et à différentes saisons (été et hiver), ont démontré l'efficacité de la méthode innovante pour quantifier de manière exacte de tels échantillons dopées, et ce pour des DBO<sub>5</sub> finales de 25 et 50 mgO<sub>2</sub>/L (non illustré).

## 2.2. PERFORMANCES ANALYTIQUES

Outre l'équivalence de résultat avec les principales méthodes normées, les performances analytiques de la méthode innovante ont été évaluées. Ce travail a été mené par deux laboratoires en France selon les normes en vigueur pour ce domaine analytique (NF T90-210 et NF ISO 11352). Les résultats de cette évaluation sont résumés dans le Tableau I.

Paramètre testé	Méthode innovante	NF EN 1899-1 / Réglementation
Limite de quantification selon NF T90-210	3 mg O <sub>2</sub> /L	3 mg O <sub>2</sub> /L (exigence réglementaire)
Domaine d'étalonnage selon NF T90-210	<i>Jusqu'à :</i> 90 mg O <sub>2</sub> /L	<i>Jusqu'à :</i> 9 mg O <sub>2</sub> /L
Exactitude selon NF T90-210	<i>Satisfaisante à :</i> 3, 9, 15, 37, 50, 160 mg O <sub>2</sub> /L	<i>Réputée satisfaisante jusqu'à :</i> 6 000 mg O <sub>2</sub> /L
Incertitude étendue selon ISO 11352	<i>De 3 à 6 mg O<sub>2</sub>/L :</i> inférieure à ± 1,8 mg O <sub>2</sub> /L au-delà de 6 mg O <sub>2</sub> /L : inférieure à ± 30 %	<i>De 3 à 6 mg O<sub>2</sub>/L :</i> ± 1,2 à ± 1,8 mg O <sub>2</sub> /L au-delà de 6 mg O <sub>2</sub> /L : ± 20 à ± 30 %

**Tableau I : Performances analytiques de la méthode innovante déterminées selon les normes en vigueur. Les exigences réglementaires et performances de la méthode normée sont données à titre comparatif.**

Ces résultats, notamment la limite de quantification à 3 mgO<sub>2</sub>/L, répondent aux exigences réglementaires françaises pour l'analyse de la DBO<sub>5</sub> des ERU. Les performances de la méthode innovante sont par ailleurs comparables à celles de la méthode normée NF EN 1899-1 opérée en routine, sous accréditation, par les laboratoires partenaires. L'attention doit toutefois être attirée sur le domaine d'étalonnage de la méthode innovante, jusqu'à 90 mgO<sub>2</sub>/L, soit dix fois plus étendu que le domaine de linéarité de la méthode normée qui lui se trouve limitée par la solubilité de l'oxygène dissous (environ 9 mgO<sub>2</sub>/L à 20 °C). Ainsi, avec la méthode innovante, les analyses peuvent être effectuées sans dilution jusqu'à 90 mgO<sub>2</sub>/L alors que pour une telle DBO<sub>5</sub>, une dilution au 1/20ème est recommandée dans le cadre de la méthode normée. La non-limitation par l'oxygène dissous dans le cadre de la méthode innovante, caractéristique intrinsèque au mode de détection utilisé, limite le recours aux dilutions d'échantillon et réduit par un facteur 20 les taux de dilution appliqués. Cet avantage pourrait permettre de réduire significativement les erreurs de dilution susceptibles de subvenir avec la méthode normée.

## 2.3. PÉRIMÈTRE D'APPLICATION

Habituellement, la DBO<sub>5</sub> mesurée est la DBO<sub>5</sub> carbonée puisqu'un inhibiteur de nitrification (N-allyl-thiourée ou ATU) est ajouté pour supprimer cette activité bactérienne et la consommation d'oxygène qui en résulte. Dans le cas de la méthode innovante, des essais comparatifs avec ou sans ATU furent menés sur des échantillons réels (entrée et sortie de STEP) et sur des solutions standards. Aucune différence significative n'a été constatée entre les résultats issus de ces deux protocoles (non illustré). Ainsi, les bactéries nitrifiantes semblent montrer une activité négligeable avant 48h à 30 °C, dans les conditions de la méthode Enverdi®. Cette conclusion est cohérente avec des données de la littérature indiquant que, même si 30 °C est une température optimale pour les bactéries nitrifiantes, la nitrification ne débute par avant le septième jour, lors d'une incubation à 30 °C selon la méthode classique (ZANONI, 1967).

Par ailleurs, aucune interférence chimique significative avec le bio-réactif n'a été constatée suite à l'analyse d'un large panel de substances chimiques aux concentrations attendues dans les ERU (entrée et sortie de STEP). Ce panel incluait des métaux, des sels et des surfactants organiques (non illustré). Toutefois, dans des eaux résiduaires industrielles, on ne peut exclure la présence de certaines de ces substances à des concentrations suffisantes pour interférer avec le bio-réactif. Pour ce type d'échantillons, des études préliminaires devraient être menées avant d'utiliser la méthode innovante en routine. Néanmoins, des résultats satisfaisants ont été obtenus suite à l'analyse d'effluents papetiers, d'effluents agro-industriels et de lixiviats de décharge. De même, la méthode innovante a été utilisée avec succès pour mesurer la DBO<sub>5</sub> de lisiers porcin (NEHMTOW *et al.*, 2016).

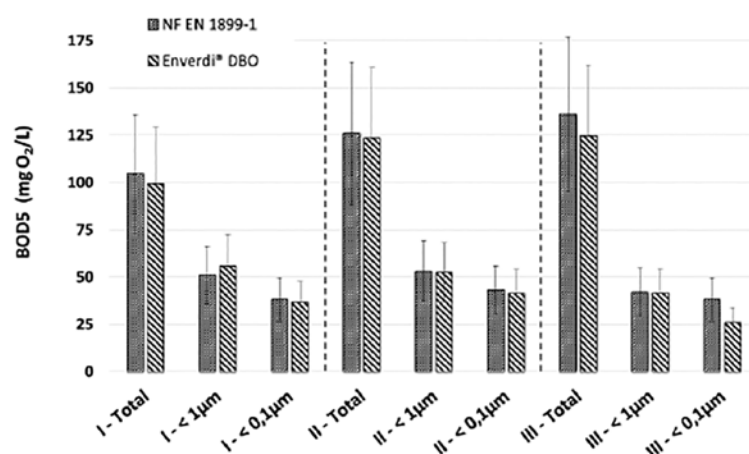


Figure 4 : Résultats DBO<sub>5</sub> obtenus par la méthode normée et la méthode innovante sur différentes fractions granulométriques (< 0,1 µm, < 1 µm et totale) de la même eau résiduaire urbaine prélevée à trois dates différentes (I, II et III). Les barres d'erreurs verticales illustrent l'incertitude étendue des méthodes (± 30 %).

Les échantillons présentant de très fortes teneurs en particules, comme les lisiers porcins, doivent être préalablement homogénéisés par broyage avant analyse selon la méthode innovante (tel que recommandé également par la norme NF EN 1899-1). Toutefois, un tel prétraitement s'est révélé inutile pour les ERU. En effet, étant donné les microvolumes utilisés avec la méthode Enverdi®, la question de la représentativité de la prise d'essai était pertinente. Cependant, les résultats obtenus avec la méthode innovante sur différentes fractions granulométriques (< 0,1 µm, < 1 µm et totale) d'une ERU collectée par le Siaap à trois dates différentes (I = février, II = mars et III = avril) sont tout à fait comparables à ceux obtenus par la méthode normée sur ces mêmes fractions (Figure 4). Ce résultat indique que la méthode innovante est parfaitement sensible aux MOB particulières qui contribuent à la DBO<sub>5</sub>. Les microvolumes employés pour la méthode Enverdi® semblent donc suffisamment représentatifs pour l'analyse des ERU, sans broyage préalable.

A ce jour, la méthode innovante n'est pas suffisamment sensible pour l'analyse des eaux douces. Pour de tels échantillons, la limite de quantification devrait être de 0,5 mgO<sub>2</sub>/L (contre 3 mgO<sub>2</sub>/L actuellement). Cependant, une version plus sensible du kit, spécialement conçue pour les eaux douces, est en cours de développement. Une autre évolution récente de la méthode concerne l'inoculation bactérienne. Jusque fin 2017, seules des entrées de STEP, filtrées à 1,2 µm, pouvaient être utilisées en tant qu'inoculum bactérien. En effet, les inocula lyophilisés alors disponibles sur le marché pour l'analyse de la DBO<sub>5</sub> n'étaient pas suffisamment performants pour être utilisés avec la méthode Enverdi®. Même si ces produits fonctionnent correctement sous la méthode normée, les bactéries contenues dans ces produits ne sont probablement pas adaptées aux conditions analytiques de la méthode innovante (durée, température d'incubation). En conséquence, un inoculum standardisé performant sous la méthode Enverdi® a été développé par la société AMS Envolution et est désormais proposé aux utilisateurs.

## 2.4. LIMITES RÉGLEMENTAIRES ET SOLUTION ADOPTÉE

En dépit de ces résultats scientifiques obtenus, et malgré les atouts majeurs que présente la méthode innovante, son adoption et utilisation en routine par les laboratoires demeuraient contraintes par le contexte réglementaire en vigueur. En effet, en France, les arrêtés ministériels mentionnent explicitement que la DBO doit-être mesurée sur 5 jours à 20 °C selon la norme NF EN 1899, notamment pour le contrôle des eaux d'entrée et sortie de STEP urbaines (ARRÊTÉ du 21 juillet 2015). A l'échelle européenne, les directives mentionnent également une incubation de 5 jours à 20 °C sans pour autant imposer l'utilisation de normes particulières (DIRECTIVE DU CONSEIL EUROPÉEN, 1991). Par ailleurs, aucune procédure officielle n'existait pour faire évaluer et reconnaître par les pouvoirs publics une méthode d'analyse innovante pour le contrôle réglementaire des eaux. Cet obstacle réglementaire à l'innovation dans ce domaine induit deux risques majeurs : une fragilisation économique des PME innovantes et un ralentissement des progrès analytiques pour le contrôle réglementaire des eaux.

Conscients de ces enjeux, à la fois environnementaux et économiques, les pouvoirs publics français cherchent aujourd'hui à définir une procédure officielle d'acceptation réglementaire des méthodes d'analyse de l'eau innovantes. Parallèlement, un programme novateur a été lancé en 2016 par la France dans le but précis de lever les obstacles réglementaires à l'innovation dans divers domaines. Ce programme, dénommé « France

Expérimentation », est piloté par le Ministère de l'Economie et des Finances. C'est dans ce cadre qu'a été publié, en septembre 2017, un arrêté expérimental permettant, pendant une durée de 2 ans, de substituer la méthode innovante Enverdi® (code Sandre 991) à la méthode normée (NF EN 1899-1) pour le contrôle réglementaire des eaux en entrée et sortie de STEP urbaine (ARRÊTÉ du 10 août 2017). Cette possibilité de substitution est autorisée sous réserve que les laboratoires et STEP impliqués répondent à certaines exigences décrites par l'arrêté. L'expérimentation est supervisée par un comité spécial qui se réunit semestriellement. A l'issue de l'expérimentation, les performances de la nouvelle méthode et l'impact de son utilisation seront évalués conjointement par les ministères de l'Environnement, de la Santé et de l'Economie. Si l'expérimentation est concluante, la mesure dérogatoire a vocation à être pérennisée et généralisée à l'ensemble du territoire national. Parmi d'autres acteurs, le Siaap a décidé de prendre part à cette expérimentation réglementaire.

## Conclusion

Les travaux présentés dans ce chapitre montrent que la méthode innovante de mesure de la DBO<sub>5</sub> constitue une alternative sérieuse à la méthode classique. Les résultats obtenus sur un large panel d'échantillons de type ERU sont statistiquement similaires à ceux obtenus par la méthode classique. De plus, les performances du kit sont comparables à celles de la méthode normée et en accord avec les exigences réglementaires en vigueur. Même si des améliorations sont possibles et prévues, la méthode est d'ores et déjà suffisamment robuste pour envisager son utilisation en routine pour le contrôle des STEP urbaines. Cette méthode présente l'avantage d'être plus rapide que la méthode classique (2 jours contre 5 jours), offrant par conséquent plus de réactivité aux opérateurs en vue du pilotage et de l'optimisation des procédés épuratoires. Par ailleurs, comparativement à la méthode classique, la méthode innovante est moins couteuse en équipement, plus compacte et plus simple d'utilisation. L'expérimentation réglementaire, rendue possible par le programme « France Expérimentation », semble être une perspective encourageante pour lever les blocages réglementaires à l'innovation dans le domaine. Ce programme pourrait clairement favoriser le développement économique lié à l'innovation et contribuer à dynamiser les progrès analytiques relatifs au suivi de la qualité des eaux.

## Remerciements

Les auteurs sont reconnaissants à Laure Menjou, Jean-Francois Moisan, Perrine Mèche et Audrey Janot, du Siaap, pour leur contribution scientifique et technique majeure à ce travail. Nous remercions aussi Yves Dudal, Romy-Alice Goy, Nathalie Pautremat, Jeanne Berlin et Audrey Magnin qui furent des collaborateurs précieux et indispensables à ce projet. Enfin, nous adressons notre gratitude au programme de recherche Mocopée (MOdélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux) pour son soutien financier.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- ROCHER V., MECHE P., RECHDAOUI S., PAFFONI C., GONCALVES A., PICHON S. (2011) : « De nouveaux outils de dosage du PO4<sup>3-</sup> et de la DBO dans les eaux résiduaires urbaines ? ». *L'Eau, l'Industrie, les Nuisances* ; 346 : 143-149.
- MULLER M., BOUGUELIA S., GOY R.A., YORIS A., BERLIN J., MECHE P., ROCHER V., MERTENS S., DUDAL Y. (2014) : « International cross-validation of a BOD<sub>5</sub> surrogate ». *Environmental Science and Pollution Research* ; 21(23) : 13642-5.
- MAGNIN A., MULLER M., YORIS A., GUERIN S., ROCHER V., DUDAL Y. (2015) : *Validation of a BOD<sub>5</sub> alternative method*. In: 17<sup>th</sup> International Congress of Metrology. Les Ulis : EDP Sciences.
- MULLER M., BELLATON S., YORIS A., GUERIN-RECHDAOUI S., CLOUSIER L., ROCHER V. (2017) : *New outlook in BOD measurement and bioprocess management: the Enverdi® kit*. In: 18<sup>th</sup> International Congress of Metrology. Les Ulis : EDP Sciences.
- MULLER M., BELLATON S., YORIS A., GUERIN-RECHDAOUI S., CLOUSIER L., ROCHER V. (2018) : « L'innovation métrologique pour l'analyse réglementaire des eaux : retour d'expérience sur la demande biochimique en oxygène à 5 jours (DBO<sub>5</sub>) ». *Techniques Sciences Méthodes* ; 3 : 65-75.

## Bibliographie

- ARRÊTÉ du 21 juillet 2015 (DEVL1429608A) relatif aux systèmes d'assainissement collectif et aux installations d'assainissement non collectif, à l'exception des installations d'assainissement non collectif recevant une charge brute de pollution organique inférieure ou égale à 1,2 kg/j de DBO<sub>5</sub>. *JORF* 0190, p. 14457.
- ARRÊTÉ du 10 août 2017 (TREL1703795A) relatif à l'expérimentation d'une méthode de détermination de la demande biochimique en oxygène par mesure fluorimétrique de la respiration bactérienne dans les stations de traitement des eaux usées urbaines. *JORF* 0223.
- CALVERT H.T. (1913) : « The eighth report of the Royal Commission on sewage disposal ». *Journal of the Society of Chemical Industry* ; 32(6) : 265-74.
- DE MATOS M.P., BORGES A.C., DE MATOS A.T., DA SILVA E.F., MARTINEZ M.A. (2014) : « Effect of time-temperature binomial in obtaining biochemical oxygen demand of different wastewaters ». *Engenharia Agrícola* ; 34 : 332-40.
- DIRECTIVE DU CONSEIL EUROPÉEN 91/271/EEC (1991) : *Urban wastewater treatment*. JO L135 ; 40-52.
- DHAGE S.S., DALVI A.A., PRABHU D.V. (2012) : « Reaction kinetics and validity of BOD test for domestic wastewater released in marine ecosystems ». *Environmental Monitoring and Assessment* ; 184(9) : 5301-10.
- DUDAL Y., HOLGADO R., KNOTH K., DEBROUX M. (2006) : « A fluorescence-based microplate assay to quantify DOM-induced catabolic activity ». *Analytical and Bioanalytical Chemistry* ; 384(1) : 175-9.
- DUDAL Y., GUILLON E., DUPONT L., QUIQUANPOIX H., BOUDENNE J.L. (2007) : European Patent n° 1844330.
- GONZALEZ-PINZON R., HAGGERTY R., MYROLD D.D. (2012) : « Measuring aerobic respiration in stream ecosystems using the resazurin-resorufin system ». *Journal of Geophysical Research* ; 117(G3) : 1-10.
- GONZALEZ-PINZON R., PEIPOCH M., HAGGERTY R., MARTI E., FLECKENSTEIN J.H. (2016) : « Nighttime and daytime respiration in a headwater stream ». *Ecohydrology* ; 9(1) : 93-100.
- GOTAAS H.B. (1948) : « Effect of temperature on biochemical oxidation of sewage ». *Sewage Works Journal* ; 20 : 441-77.
- HARRISON R.M. (2001) : *Pollution: Causes, Effects and Control*. Cambridge: Royal Society of Chemistry.
- HENZ M. (2008) : *Biological wastewater treatment: Principles modelling and design*. Londres: IWA Publishing.
- JOUANNEAU S., RECOULES L., DURAND M.J., BOUKABACHE A., PICOT V., PRIMAULT Y., LAKEL A., SENDELIN M., BARILLON B., THOUAND G. (2014) : « Methods for assessing biochemical oxygen demand (BOD): A review ». *Water Research* ; 49 : 62-82.
- KARAKASHEV D., GALABOVA D., SIMEONOV I. (2003) : « A simple and rapid test for differentiation of aerobic from anaerobic bacteria ». *World Journal of Microbiology & Biotechnology* ; 19 : 233-8.
- LARSON E.M., DOUGHMAN D.J., GREGERSON D.S., OBRITSCH W.F. (1997) : « A new, simple, nonradioactive, nontoxic In Vitro assay to monitor corneal endothelial cell viability ». *Investigative Ophthalmology & Visual Science* ; 38(10) : 1929-33.
- LIU J., MATTIASSON B. (2002) : « Microbial BOD sensors for wastewater analysis ». *Water Research* ; 36 : 3786-802.
- MAGNIN A., MULLER M., YORIS A., GUERIN S., ROCHER V., DUDAL Y. (2015) : *Validation of a BOD<sub>5</sub> alternative method*. In: *17th International Congress of Metrology*. Les Ulis: EDP Sciences.
- MARA D., HORAN N.J. (2003) : *Handbook of water and wastewater microbiology*. Londres: Academic Press/Elsevier.
- MCNICHOLL B.P., MCGRATH J.W., QUINN J.P. (2007) : « Development and application of a resazurin-based biomass activity test for activated sludge plant management ». *Water Research* ; 41 : 127-33.



- MULLER M., BOUGUELIA S., GOY R.A., YORIS A., BERLIN J., MECHE P., ROCHER V., MERTENS S., DUDAL Y. (2014) : « International cross-validation of a BOD5 surrogate ». *Environmental Science and Pollution Research* ; 21(23) : 13642-5.
- MULLER M., GOY R.A., YORIS A., MAGNIN A., DUDAL Y. (2016): International Patent application n° 2016184848.
- NEHMTOW J., RABIER J., GIGUEL R., COULOMB B., FARNET A.M., PERISSOL C., ALARY A., LAFFONT-SCHWOB I. (2016) : « Evaluation of an integrated constructed wetland to manage pig manure under Mediterranean climate ». *Environmental Science and Pollution Research* ; 23(16) : 16383-95.
- O'BRIEN J., WILSON I., ORTON T., POGNAN F. (2000) : « Investigation of the Alamar Blue (resazurin) fluorescent dye for the assessment of mammalian cell cytotoxicity ». *European Journal of Biochemistry* ; 267(17) : 5421-6.
- PAUTREMAT N., GOY R.A., EL AMRAOUI Z., DUDAL Y. (2013) : European Patent Application n° 2597461.
- RAMPERSAD S.N. (2012) : « Multiple applications of Alamar Blue as an indicator of metabolic function and cellular health in cell viability bioassays ». *Sensors* ; 12(9) : 12347-60.
- RODIER J. (2009) : *L'analyse de l'eau* ; 9<sup>e</sup> édition. Paris: Dunod.
- ROYAL COMMISSION ON SEWAGE DISPOSAL (1915) : *Treating and disposing of sewage: Final report* (Her Majesty's Stationery Office, London, 1915).
- THERIAULT E.J. (1926) : « The rate of deoxygenation of polluted waters ». *US Public Health Reports* ; 41 : 207-17.
- THERIAULT E.J. (1927) : « The dissolved oxygen demand of polluted waters ». *US Public Health Bulletin* ; 173.
- VAN HAANDEL A., VAN DER LUBBE J. (2012) : *Handbook of biological wastewater treatment: Design and optimisation of activated sludge systems*. Londres: IWA Publishing.
- ZANONI A.E. (1967) : « Waste water deoxygenation at different temperatures ». *Water Research* ; 1 : 543-66.



# Caractérisation des eaux résiduaires urbaines par fractionnement biologique de la matière organique : inter-comparaison de différentes approches analytiques

## *Characterisation of municipal wastewater through biological fractionation of organic matter: inter-comparison of different analytical approaches*

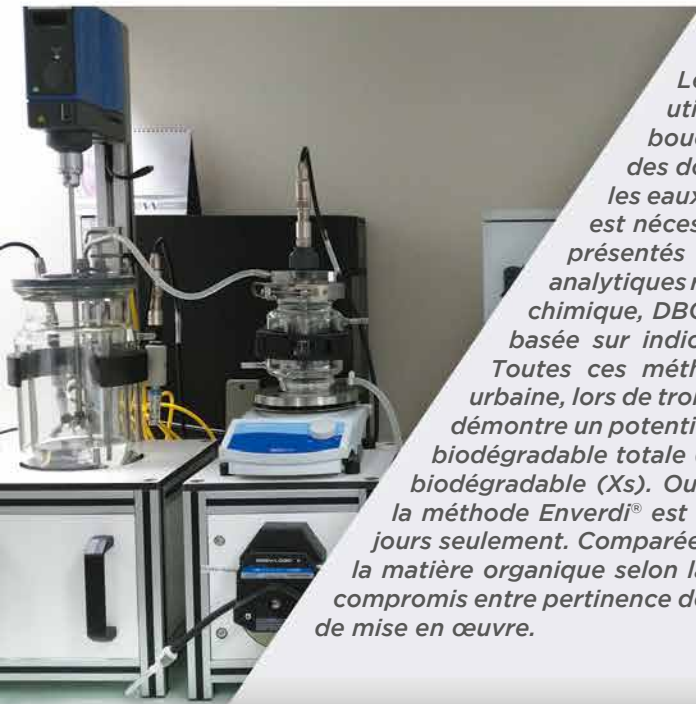
Solenn Bellaton<sup>[1]</sup>, Jialu Zhu<sup>[2]</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[2]</sup>, Jean Bernier<sup>[2]</sup>, Vincent Rocher<sup>[2]\*</sup>, Mathieu Muller<sup>[3]</sup>

<sup>[1]</sup> AMS Envolution, Frépillon

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

<sup>[3]</sup> AMS Envolution, Grabels

\* Auteur de correspondance : [vincent.rocher@siaap.fr](mailto:vincent.rocher@siaap.fr)



*Le modèle ASM1 (Activated Sludge Model n°1) est couramment utilisé en assainissement pour la modélisation des procédés à boue activée. Cependant, ce modèle est fortement dépendant des données de caractérisation de la matière organique constituant les eaux à traiter. Ainsi, un fractionnement fin de la matière organique est nécessaire pour une calibration pertinente du modèle. Les travaux présentés dans ce chapitre portent sur la comparaison d'approches analytiques reconnues de fractionnement de la matière organique (physico-chimique, DBO manométrique, respirométrie) et d'une approche innovante basée sur indicateur fluorescent de la respiration bactérienne (Enverdi®). Toutes ces méthodes ont été appliquées sur une même eau résiduaire urbaine, lors de trois campagnes de collecte différentes. La méthode Enverdi® démontre un potentiel intéressant pour l'estimation des fractions organiques biodégradable totale (bCOD), rapidement biodégradable (S<sub>s</sub>) et lentement biodégradable (X<sub>s</sub>). Outre l'estimation rapide de ces différentes fractions, la méthode Enverdi® est aussi capable de fournir une valeur de DBO<sub>5</sub> en 2 jours seulement. Comparée aux méthodes habituelles, le fractionnement de la matière organique selon la méthode Enverdi® semble constituer un bon compromis entre pertinence des résultats, rapidité de l'analyse et simplicité de mise en œuvre.*

Eaux résiduaires urbaines - Matière organique - Biodégradabilité - Fractionnement biologique - Boue activée - Modélisation - Métrologie - Innovation

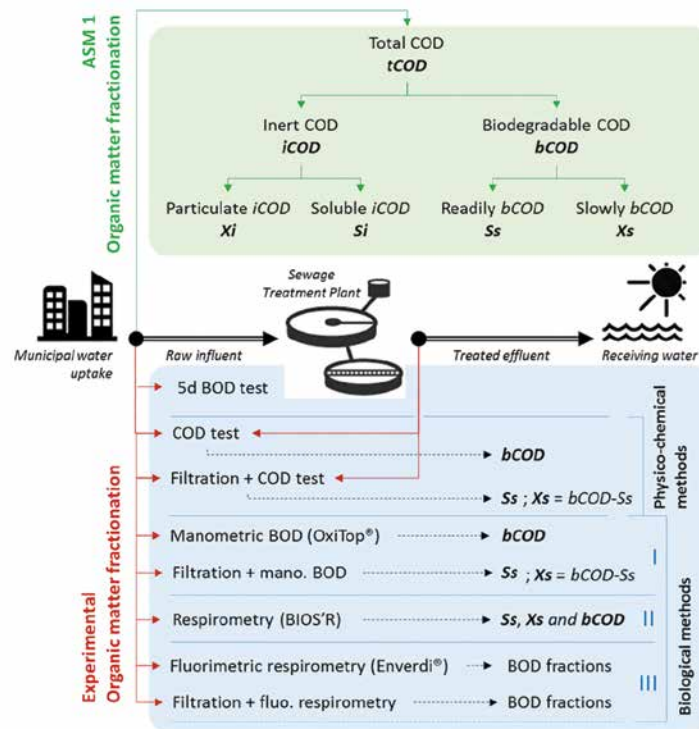
## Introduction

La modélisation des procédés épuratoires est un enjeu majeur de l'assainissement au 21<sup>ème</sup> siècle. Les modèles contribueront en effet à une meilleure connaissance et maîtrise des procédés intensifs d'épuration biologique construits ces dernières décennies. Ces procédés intensifs (biofiltres, bioréacteurs à membranes) permettent d'atteindre les performances épuratoires élevées, tel qu'exigé par la réglementation, mais ils se révèlent aussi gourmands en ressources (énergie, matières premières). De plus, leur pilotage requiert un haut niveau d'expertise. La modélisation des procédés épuratoires modernes est donc essentielle afin de concilier tout à la fois des performances épuratoires élevées et une certaine sobriété environnementale du secteur de l'assainissement.

Dans les années 1980, sous l'initiative de l'IWA (International Water Association), un groupe d'expert dans le traitement des eaux a développé un modèle unifié du fonctionnement d'un procédé à boue activée : l'*Activated Sludge Model n°1* (HENZE *et al.* 2000). L'*Activated Sludge Model n°1* (ASM1) se base sur des cinétiques de type Monod pour simuler les réactions biochimiques d'oxydation du carbone, de nitrification et de dénitrification assurées par les différents groupes bactériens présents dans une boue activée. Ce modèle a permis une meilleure

compréhension des procédés à boue activée et constitue une base solide pour la modélisation des biofiltres et bioréacteurs à membranes. Cependant, l'utilisation du modèle ASM1 nécessite au préalable une calibration robuste, basée sur les données de caractérisation de la matière organique (MO) des eaux à traiter (ROELEVELD et VAN LOODRECHT, 2002 ; SIN, 2005).

En routine, la caractérisation de la MO des eaux résiduaires urbaines (ERU) est généralement obtenue par la mesure de la Demande Chimique en Oxygène (DCO) et de la Demande Biochimique en Oxygène à 5 jours (DBO5). La DCO est un indicateur de la MO totale tandis que la DBO5 renseigne sur la fraction organique biodégradable. Toutefois, ces deux paramètres ne sont pas suffisamment informatifs pour alimenter un modèle simulant des réactions biochimiques complexes. Un fractionnement plus fin de la MO est indispensable. En particulier, une connaissance plus approfondie de la fraction organique biodégradable est requise (HENZE *et al.*, 2000). Différentes méthodes de calibration du modèle ASM1 existent, telle que STOWA, BIOMATH, HSG et WERF (ROELEVELD et VAN LOODRECHT, 2002 ; SIN, 2005 ; VAN LOODRECHT, 2015). Ces méthodes nécessitent généralement une caractérisation de la MO des eaux à traiter. Selon le modèle ASM1, la DCO totale (*tCOD*) est divisée en 4 fractions (Figure 1). Premièrement, on distingue la DCO totale biodégradable (*bCOD*) de la DCO inerte, non biodégradable (*iCOD*). En outre, dans la fraction de DCO inerte, on distingue deux sous-fractions : la fraction particulaire (*X<sub>i</sub>*) et la fraction soluble (*S<sub>i</sub>*). Enfin, la fraction de DCO biodégradable se divise également en deux sous-fractions : la fraction rapidement biodégradable (*S<sub>s</sub>*) et la fraction lentement biodégradable (*X<sub>s</sub>*). La connaissance de *S<sub>s</sub>* et *X<sub>s</sub>* est considérée comme indispensable à une bonne conception, modélisation et au pilotage optimisé des procédés biologiques de traitement des eaux usées. Différentes approches analytiques pour le fractionnement de la MO ont été proposées ; celles-ci se basent sur des analyses physico-chimiques et/ou biologiques (SPERANDIO *et al.*, 2000 ; ROELEVELD et VAN LOODRECHT, 2002 ; CARSTEA *et al.*, 2016). TRAN *et al.* (2015) recommande de combiner des analyses biologiques et des analyses physico-chimiques pour une caractérisation pertinente et fiable de la fraction organique des ERU.



**Figure 1 : Schéma de fractionnement de la matière organique d'une eau résiduaire urbaine selon le modèle ASM1 (haut) et synthèse des différentes approches analytiques employées dans cette étude pour la détermination expérimentale de ce fractionnement (bas)**

L'analyse de la DCO est une méthode assez fiable et opérationnelle pour estimer la MO totale d'un échantillon en mesurant la quantité d'oxygène nécessaire à son oxydation physico-chimique. Toutefois, cette analyse, seule, ne procure aucune information sur *bCOD* et *iCOD*. La combinaison d'une analyse DCO avec une filtration préalable de l'échantillon a été suggérée pour estimer la fraction *S<sub>s</sub>* (HENZE *et al.*, 2000 ; ROELEVELD et VAN LOODRECHT, 2002).

$S_s$  est alors obtenu par différence entre la DCO soluble entrant sur la station d'épuration (STEP) et la DCO de l'effluent traité ; l'eau traitée étant censée n'être constituée que de  $S_i$ . Cette approche est cependant confrontée au problème du choix du seuil de filtration utilisé (ROELEVELD et VAN LOODRECHT, 2002 ; TRAN *et al.*, 2015). En effet, la fraction  $S_s$  est supposée être composée de MO soluble mais potentiellement, aussi, de fines particules (MAMAIS *et al.*, 1993 ; DULEKGURGEN *et al.*, 2006). Enfin, l'estimation de la fraction  $bCOD$  peut également être obtenue par différence entre la DCO entrant sur la STEP et la DCO sortant de certaines étapes du traitement, pour lesquels il est considéré que l'effluent intermédiaire n'est constitué que de  $iCOD$ . Cette approche suppose une bonne connaissance des procédés exploités et que le fonctionnement global de la STEP soit optimal et stable dans le temps. Néanmoins, en réalisant uniquement des analyses physico-chimiques en entrée, en sortie de STEP et en sortie de certaines étapes intermédiaires, il est possible d'estimer  $tCOD$ ,  $bCOD$ ,  $S_s$  et  $X_s$  ( $X_s = bCOD - S_s$ ).

Pour déterminer la fraction  $bCOD$  indépendamment du procédé industriel étudié il est possible de mettre en œuvre des essais biologiques, tels qu'une analyse de la DBO. La DBO représente la quantité d'oxygène nécessaire aux bactéries hétérotrophes pour oxyder la MO biodégradable (JOUANNEAU *et al.*, 2014). La mesure de la DBO<sub>5</sub> est généralement réalisée par mesure électrochimique ou optique de l'oxygène dissous, au temps initial et après 5 jours d'incubation de l'échantillon, à 20 °C, dans des flacons hermétiquement clos et dénué d'atmosphère gazeux (ISO 5815, 2003). Cependant, la valeur de DBO<sub>5</sub> obtenue par cette méthode, assez complexe et longue à mettre en œuvre, ne peut suffire à représenter l'ensemble de la MO biodégradable (BOURGEOIS *et al.*, 2001). En effet, il est admis que la MO biodégradable n'est totalement minéralisée par les bactéries qu'après une période d'incubation de 15 à 20 jours à 20 °C, permettant alors d'accéder à la DBO ultime (DBOu) de l'échantillon. De plus, l'approche analytique employée pour mesurer la DBO<sub>5</sub> n'est pas applicable pour mesurer la DBOu. En effet, l'oxygène disponible pour les bactéries est limité à la phase dissoute (9 mgO<sub>2</sub>/L à 20 °C) ce qui ne permet pas de mesurer la DBO d'échantillons chargés en MO biodégradable sur des périodes dépassant 5 à 7 jours.

La DBO manométrique permet d'effectuer des mesure de DBO sur des périodes d'incubation jusqu'à 30 jours (JOUANNEAU *et al.*, 2014). Cette méthode est basée sur la mesure manométrique de la dépression gazeuse résultant de la consommation d'oxygène par les bactéries, alors que le dioxyde de carbone émis par celles-ci est capté par des pastilles de soude placés dans le bouchon de chaque flacon (ISO 9408, 1999). Dans ce cas, les flacons hermétiquement clos sont dotés d'un espace gazeux offrant davantage d'oxygène disponible aux bactéries. Par ce biais, il est possible d'analyser des échantillons chargés en MO biodégradable (DBO jusqu'à 700 mgO<sub>2</sub>/L) sur des périodes d'incubation longues (15 jours et plus à 20 °C). Ainsi, la DBO manométrique représente une meilleure alternative que la DBO classique pour mesurer la DBOu et, par conséquent, pour estimer la fraction  $bCOD$  d'une eau usée. La DBOu obtenu après une filtration appropriée de l'échantillon peut aussi permettre d'accéder à la fraction  $S_s$ . Cependant, comme pour l'approche purement physico-chimique, cette façon de déterminer  $S_s$  est dépendante de la porosité du filtre utilisé. De plus, même si plus simple et rapide à mettre en œuvre que la DBO classique et indépendante du procédé industriel étudié, la DBO manométrique n'apporte des résultats qu'après une période de 15 jours minimum à 20 °C. Cette durée d'analyse se révèle limitante lors que l'on cherche à calibrer un modèle pour optimiser la conduite de procédés épuratoires pour lesquelles les temps de séjours hydrauliques ne sont que quelques heures. Néanmoins, la fraction  $tCOD$  peut être déterminée par méthode physico-chimique,  $bCOD$  et  $S_s$  via la DBO manométrique, et  $X_s$  par calcul ( $X_s = bCOD - S_s$ ).

La respirométrie a été décrite comme la méthode biologique la plus rapide pour fractionner la MO biodégradable d'une ERU (SPERANDIO *et al.*, 2000 ; FALL *et al.*, 2011). Cette méthode est basée sur la détermination au cours du temps de la vitesse de consommation d'oxygène par une boue activée (*Oxygen Uptake Rate* ou OUR, en mgO<sub>2</sub>/L/h). Le réacteur est alimenté en oxygène via un système d'aération actif et l'OUR est déterminé dans une cellule de mesure séparée, à intervalles de temps réguliers et fréquents, par mesure électrochimique de l'oxygène dissous présent dans cette cellule. Cette méthode peut être utilisée pour déterminé en 48h, à 20 °C, les fractions  $S_s$ ,  $X_s$  et  $bCOD$ . Cette détermination nécessite l'utilisation d'un modèle mathématique approprié pour le traitement des résultats. Ici, la détermination de  $S_s$  découle directement de l'analyse du profil de l'OUR au cours du temps et ne requiert donc pas de filtration préalable. La combinaison de l'analyse DCO à la respirométrie peut donc permettre de déterminer rapidement, sans filtration préalable de l'échantillon et indépendamment du procédé industriel étudié,  $tCOD$ ,  $S_s$ ,  $X_s$  et  $bCOD$ . Toutefois, la limitation majeure de cette technique est le coût de l'équipement, le faible débit analytique possible, ainsi que la complexité de mise œuvre de l'analyse et du traitement des données. De plus, les résultats de cette méthode sont très sensibles au ratio substrat (échantillon) sur biomasse (boue activée) appliqué (SPERANDIO *et al.*, 2000 ; LAGARDE *et al.*, 2005 ; GATTI *et al.*, 2010 ; FALL *et al.*, 2012).

Récemment, une méthode innovante, basée la mesure par fluorescence de la respiration bactérienne, a été proposée pour caractériser la MO biodégradable des sols (DUDAL *et al.*, 2006), mesurer la DBO<sub>5</sub> d'ERU et lisiers porcins (MULLER *et al.*, 2014 ; NEHMTOW *et al.* 2016) et pour estimer le potentiel méthanogène de boue



d'épuration urbaine (BELLATON *et al.*, 2016). Cette méthode brevetée (FR 2881524, 2006 ; EP 1844330, 2007 ; FR 2982953, 2013 ; FR 3036405, 2016 ; WO 2016184848, 2016) est commercialisée sous la marque Enverdi®. Cette méthode emploie un réactif dérivé de la résazurine dont la réduction par les bactéries au cours de leur respiration conduit à la formation d'un produit fluorescent. La réduction de ce réactif et, par conséquent, la fluorescence produite, est proportionnelle à la quantité d'oxygène consommée par les bactéries (McNICHOLL *et al.*, 2007 ; GONZALEZ-PINZON *et al.*, 2012 et 2015). La résazurine est largement utilisée dans le domaine biomédical et agroalimentaire sur différents modèles cellulaires (animal, végétal, fongique et bactérien) pour mesurer des activités métaboliques liés à la respiration (LARSON *et al.*, 1997 ; O'BRIEN *et al.*, 2000 ; BYTH *et al.*, 2001 ; KARAKASHEV *et al.*, 2003 ; CHADHA et KALE, 2005 ; ZHANG *et al.*, 2004 ; ABU-AMERO et BOSLEY, 2005). Avec un potentiel redox EO de +380 mV, la résazurine peut partiellement se substituer à l'oxygène (EO = +820 mV) comme accepteur d'électron, au niveau de la chaîne respiratoire des cellules (< +80 mV), mais sans perturber le métabolisme naturel de celles-ci (RAMPERSAD, 2012). Cette méthode est mise en œuvre au format microplaque 96 puits, offrant un débit analytique élevé (caractérisation de plusieurs échantillons simultanément), sans limitation liée à la disponibilité de l'oxygène (puits non hermétiquement clos). De plus, ce format miniature permet de mener aisément une incubation à 30 °C, induisant des vitesses de réaction plus élevées et conduisant donc à des résultats plus rapidement que les essais biologiques conduits à 20 °C (THERIAULT 1927 ; DHAGE *et al.*, 2012 ; DE MATOS *et al.*, 2014). Selon les résultats de comparaisons inter-méthodes menées sur près de 400 échantillons d'ERU et impliquant six laboratoires différents, les valeurs DBO obtenues avec Enverdi® à partir de la fluorescence produite sur 2 jours à 30 °C sont statistiquement équivalents aux valeurs obtenues en méthode normée après 5 jours à 20 °C (MULLER *et al.*, 2014 ; MAGNIN *et al.*, 2015 ; MULLER *et al.*, 2017).

L'objectif des travaux présentés dans ce chapitre est de comparer les différentes approches analytiques existantes pour caractériser la MO des ERU selon le fractionnement de la DCO proposé par le modèle ASM1 (analyse physico-chimique, DBO manométrique et respirométrie) ainsi que d'évaluer le potentiel de la technologie Enverdi® pour aboutir à ce fractionnement.

## 1. Matériels et méthodes

### 1.1. ECHANTILLONNAGE ET CARACTÉRISATION PHYSICO-CHIMIQUES DES ÉCHANTILLONS

Des échantillons moyens sur 24 h d'ERU brute (EB), d'effluent post-nitrification (EpN) et d'effluent traité final (ET) ont été collectés sur une STEP d'Ile-de-France exploitée par le Siaap (Service Public de l'Assainissement Francilien). Ces échantillons, stockés à 4 °C, ont été analysés dans les 48h suivant leur prélèvement. Trois campagnes de prélèvement ont été réalisées en février, mars et avril 2016. Les propriétés physico-chimiques de EB, tels que matières en suspension (MES), matières minérales (MM), DCO, DBO5, carbone organique total et dissous (COT et COD), azote Kjeldahl (NTK), ammonium (NH<sub>4</sub>), nitrate (NO<sub>3</sub>), nitrite (NO<sub>2</sub>), phosphore total (Ptot), pH, conductivité ( $\sigma$ ) et titre alcalimétrique complet (TAC), ont systématiquement été mesurées selon les normes en vigueur en France. De plus, la DCO, la DBO5 et le COT ont également été déterminés après filtration de EB à 1 et 0,1  $\mu$ m (respectivement, EB f1 et EB f0.1). Les résultats sont présentés au Tableau I. La DCO des échantillons EpN et ET a également été déterminée ; les valeurs obtenues sont de, respectivement, 20 et 15 mgO<sub>2</sub>/L.

Date de prélèvement	Code échantillon	MES	MM	DCO	DBO5	COT	COD	NTK	NH <sub>4</sub>	NO <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	Ptot	pH	$\sigma$	TAC
		mg/L		mg O <sub>2</sub> /L		mg C/L			mg N/L			mg P/L		mS/m	mg CaCO <sub>3</sub> /L
24/02/2016	EB	106	22	296	116	87	31	36	26	0,03	<0,4	3,7	7,9	106	358
	EB f1			153	51	36									
	EB f0.1			81	38	28									
16/03/2016	EB	121	12	315	139	91	31	38	29	<0,02	<0,4	3,6	7,8	102	368
	EB f1			142	53	36									
	EB f0.1			100	43	33									
	EB			331	136	92	23	42	27	<0,02	<0,4	4,2	7,8	101	356
	EB f1	159	20	100	42	28									
	EB f0.1			84	38	25									

EB : eau brute ; EB f1 : eau brute filtrée à 1  $\mu$ m ; EB f0.1 : eau brute filtrée à 0,1  $\mu$ m ; MES : matières en suspension ; MM : matières minérales ; DCO : demande chimique en oxygène ; DBO5 : demande biochimique en oxygène à 5 jours ; COT : carbone organique total ; COD : carbone organique dissous (< 0,45  $\mu$ m) ; NTK : azote Kjeldahl ; NH<sub>4</sub> : ammonium ; NO<sub>3</sub> : nitrate ; NO<sub>2</sub> : nitrite ; Ptot : phosphore total ; pH : potentiel hydrogène ;  $\sigma$  : conductivité ; TAC : titre alcalimétrique complet

Tableau I : Caractéristiques physico-chimiques des échantillons d'ERU prélevés

En plus des analyses listées ci-avant, une caractérisation de la MO des ERU selon le fractionnement de la DCO proposé par le modèle ASM1 a été réalisée sur la base d'analyses biologiques (DBO manométrique, respirométrie et méthode Enverdi®). Lorsque la détermination de  $S_s$  nécessitait une filtration préalable de l'échantillon, deux seuils de filtration différents ont été testés : 1 et 0,1  $\mu\text{m}$ . La boue activée utilisée pour le test respirométrique a été collectée sur une autre STEP d'Ile-de-France, également exploitée par le Siaap. Pour la DBO manométrique et la méthode Enverdi®, les bactéries endogènes à l'échantillon d'ERU caractérisé ont directement été exploitées pour minéraliser la MO.

## 1.2. FRACTIONNEMENT PHYSICO-CHIMIQUE DE LA DCO

Les analyses DCO effectuées aux différents points de prélèvement de la STEP : EB, EB f1, EB f0.1, EpN et ET ont été utilisées pour le fractionnement physico-chimique (Figure 1). EB contient toutes les fractions ( $tCOD$ ) ; EB f1 ou EB f0.1 est supposé contenir les fractions  $S_s$  et  $S_i$  ; EpN est supposé contenir que les fractions  $S_i$  et  $X_i$  (soit  $iCOD$ ) ; ET est supposé contenir uniquement la fraction  $S_i$ . Ainsi, les fractions  $bCOD$ ,  $S_s$  et  $X_s$  ont été déterminées de la manière suivante :

$$bCOD = tCOD - iCOD = DCO\ EB - DCO\ EpN \quad (1)$$

$$S_s = (S_s + S_i) - S_i = DCO\ EB\ f1\ (\text{ou}\ DCO\ EB\ f0.1) - DCO\ ET \quad (2)$$

$$X_s = bCOD - S_s \quad (3)$$

## 1.3. FRACTIONNEMENT BIOLOGIQUE DE LA DCO

### 1.3.1. DBO manométrique (OxiTop®)

La DBO manométrique a permis de déterminer la DBOu de EB et la DBOu soluble après filtration de EB (Figure 1). Le système IS12 OxiTop® développée par WTW (Weilhem, Allemagne) a été utilisé pour cette étude. Ce système comporte 15 flacons. La dépression mesurée par le détecteur situé dans le bouchon de chaque flacon est convertie en équivalent DBO grâce au logiciel fourni par WTW. Chaque flacon dispose d'une agitation magnétique pour homogénéiser l'échantillon durant le test. Cinq gouttes d'une solution de N-Allylthiouree à 5 mg/L sont ajoutées au début de l'analyse pour inhiber les bactéries nitrifiantes qui consomment aussi de l'oxygène. L'incubation a été menée à 20 °C pendant 15 jours et les mesures de pression ont été effectuées après 1, 2, 3, 5, 7, 10 et 15 jours. Le logiciel XLSTATS (Addinsoft, Paris, France) a été utilisé pour estimer la DBOu à partir de l'équation 4 avec :  $DBO(t,T)$ , la DBO après une période d'incubation  $t$  à la température  $T$  (en  $\text{mgO}_2/\text{L}$ ) ;  $k(T)$ , la vitesse de réaction à la température  $T$  (en  $\text{j}^{-1}$ ), généralement autour de 0,23  $\text{j}^{-1}$  à 20 °C (DHAGE *et al.*, 2012 ; DE MATOS *et al.*, 2014) ;  $t$ , la durée de l'incubation (en  $\text{j}$ ).

$$DBOu = DBO(t,T) / (1 - e^{-k(T)t}) \quad (4)$$

La combinaison de la croissance et de la lyse bactérienne durant le test induit la conversion d'une partie de la MO biodégradable ( $bCOD$ ) en MO non biodégradable ( $iCOD$ ). Pour prendre en compte ce phénomène, un facteur correctif ( $fDBO$ ) est appliqué pour le calcul de  $bCOD$  selon l'équation 5. La valeur de  $fDBO$  utilisée pour cette étude fut 0,15.

$$bCOD = DBOu / (1 - fDBO) \quad (5)$$

Les mêmes équations ont été appliquées pour déterminer  $S_s$  à partir de l'analyse en DBO manométrique de EB f1 ou EB f0.1.  $X_s$  a été calculé à partir des valeurs de  $bCOD$  et  $S_s$  déterminées par DBO manométrique en utilisant l'équation 3. Il est également possible de déterminer  $iCOD$  en réutilisant des données issues de la caractérisation physico-chimique :  $iCOD = DCO\ EB - bCOD$ .

### 1.3.2. Respirométrie (BIOS'R)

La respirométrie a été utilisée pour estimer les fractions  $S_s$ ,  $X_s$  et  $bCOD$  de EB (Figure 1). Le respiromètre utilisé est le système BIOS'R développé par CRITT Bio-Industries (Toulouse, France). Ce respiromètre possède un réacteur de 3 L aéré ainsi qu'une cellule de mesure, non aérée, permettant de déterminer l'OUR via une sonde

électrochimique de mesure de l'oxygène dissous. Une boue activée est d'abord aérée pendant 2 à 3 h jusqu'à atteindre le niveau de respiration endogène. L'échantillon est ensuite introduit dans le réacteur en respectant un ratio substrat/biomasse initial ( $S_0/X_0$ ) de l'ordre de 0,2-0,3 g de DCO/g de matières volatiles en suspension (MVS), tel que proposé dans la littérature (SPERANDIO *et al.*, 2000). Du N-Allylthiourée est également ajouté, à raison de 20 mg/L, pour inhiber la nitrification. L'expérience est menée durant 17 à 22 h, à 20 °C, sous agitation mécanique, jusqu'à ce que l'OUR mesuré revienne au niveau initial de la respiration endogène. Le logiciel LAC développée par CRITT Bio-Industries permet de construire la courbe  $OUR = f(\text{temps})$ . La fraction  $bCOD$  est déterminée par intégration de l'aire sous cette courbe, selon l'équation 6, après soustraction de l'aire résultant de la respiration endogène et prise en compte du facteur de dilution induit par l'introduction de l'échantillon dans le réacteur. Le terme  $Y_h$  de l'équation 6 correspond au rendement hétérotrophe de la biomasse ; la valeur utilisée pour cette étude fut 0,66.

$$bCOD = \text{Aire sous courbe} / (1 - Y_h) \quad (6)$$

La courbe  $OUR = f(\text{temps})$  présente généralement deux phases : une phase de consommation rapide de l'oxygène dissous qui correspond à la minéralisation de la fraction  $S_s$  et une phase de consommation plus lente qui correspond à la minéralisation de la fraction  $X_s$ . Si l'on considère l'aire sous courbe de chacune de ces phases, indépendamment, il est alors possible de déterminer  $S_s$  et  $X_s$ . En réalité, il est admis que la fraction lentement biodégradable minéralisée en respirométrie est inférieure à la fraction lentement biodégradable du modèle ASM1. La fraction de MO lentement biodégradable déterminée par respirométrie est donc souvent notée  $X_r$ . Comme pour la DBO manométrique, il est possible d'accéder à  $iCOD$  en réutilisant des données issues de la caractérisation physico-chimique :  $iCOD = DCO_{EB} - bCOD$ .

### 1.3.3. Méthode Enverdi®

Le kit Enverdi® (AMS Alliance, Frépillon, France) a été utilisé selon la procédure recommandée par le fabricant, soit, les volumes réactionnels suivants par puits : 20  $\mu\text{L}$  de réactif A (indicateur fluorescent), 60  $\mu\text{L}$  de réactif B (tampon), 170  $\mu\text{L}$  d'échantillon ou de standard de calibration et 20  $\mu\text{L}$  d'inoculum bactérien. Les réactifs A, B et standards de calibration sont fournis dans le kit. Afin d'avoir un taux d'inoculation comparable entre les standards de calibration et les échantillons analysés, les bactéries endogènes de ceux-ci sont inhibées par prétraitement thermique (120 °C pendant 10 min puis 4 °C pendant 10 min). Échantillons et standards de calibration sont par la suiteensemencés avec le même inoculum bactérien. L'inoculum bactérien est préparé par centrifugation (30 s, 5000 g) de l'échantillon EB. Le surnageant est alors utilisé pour l'ensemencement après dilution au demi de celui-ci dans de l'eau saline (réactif B dilué 50 fois dans de l'eau distillée). La fluorescence de chaque puits est mesurée toutes les 30 min pendant 72h, via un lecteur de fluorescence pour microplaque (FLx800, BioTek, USA), aux longueurs d'onde suivantes :  $\lambda_{\text{ex}} = 540 \text{ nm}$  et  $\lambda_{\text{em}} = 600 \text{ nm}$ . Le lecteur de fluorescence pour microplaque sert également d'incubateur (30 °C) et permet l'agitation de la microplaque durant 2 min avant chaque lecture.

La fluorescence mesurée est convertie en  $\text{mgO}_2/\text{L}$  grâce l'analyse simultanée de standards de calibration de DBO connue (0 et 100  $\text{mgO}_2/\text{L}$ ). La relation qui relie la fluorescence produite à la DBO d'un échantillon est de type linéaire. Ces standards de calibration sont composés de substrats organiques modèles, de biodégradabilité variable, pertinents dans le contexte des ERU : oligosaccharides et oligopeptides, induisant une production de fluorescence dans les premières 24h (période P1) ; polypeptides, induisant une production de fluorescence entre 24 et 48h (période P2) ; polysaccharides, induisant une production de fluorescence entre 48 et 72h (période P3). La part de DBO des standards de calibration induisant une production de fluorescence sur P1, P2 et P3 étant connue, il est possible de déterminer, pour tout échantillon, la DBO relative à chacune de ses périodes d'incubation (DBO P1, DBO P2 et DBO P3). La fluorescence produite sur P1 et P2 (0-48h) lors de l'incubation à 30 °C d'un échantillon permet de déterminer un résultat équivalent à la  $DBO_5$ , obtenue en 5 jours à 20 °C avec la méthode classique (MULLER *et al.*, 2017). Ainsi, la fluorescence produite sur P3 pourrait permettre d'accéder à une fraction de DBO supplémentaire, située au-delà de la  $DBO_5$ . De même, la fluorescence produite sur P1 pourrait permettre d'accéder à la fraction organique la plus rapidement biodégradable.

EB, EB f1 et EB f0.1 ont tout trois été analysés avec la méthode Enverdi® (Figure 1). Pour chacun de ces échantillons, les DBO P1, DBO P2 et DBO P3 ont été déterminées indépendamment, ainsi que la  $DBO_{\text{tot}}$  ( $DBO_{\text{P1}} + DBO_{\text{P2}} + DBO_{\text{P3}}$ ). La  $DBO_{\text{tot}}$  obtenue sur EB pourrait permettre d'approcher la fraction  $bCOD$ , la DBO P1 obtenue sur EB pourrait permettre d'accéder à la fraction  $S_s$ , la somme des DBO P2 et P3 obtenue sur EB pourrait permettre d'estimer la fraction  $X_s$ . Enfin, la  $DBO_{\text{tot}}$  obtenue sur EB f1 ou EB f0.1 pourrait aussi permettre d'évaluer la fraction  $S_s$ .

## 2. Résultats et discussion

L'évaluation de *bCOD* et *iCOD*, ainsi que leur sous-fractions, par méthode DCO ou biologique, aboutie à des résultats en  $\text{mgO}_2/\text{L}$ . Pour une comparaison plus aisée, les résultats ont été exprimés en pourcentage par rapport à *tCOD*. Etant donné l'incertitude sur les résultats des analyses physico-chimiques et biologiques utilisées, nous pouvons estimer que l'incertitude sur le résultat final est de l'ordre de 25 %.

### 2.1. DÉTERMINATION DE LA FRACTION *bCOD*

La valeur de la fraction *bCOD* de l'échantillon EB, pour chacune des campagnes de collecte et selon chacune des méthodes de fractionnement considérée, est présentée sur la figure 2. L'approche physico-chimique aboutie à une valeur de *bCOD* peu variable au fil des campagnes, de l'ordre de 93-94 %. La détermination par DBO manométrique aboutie à une valeur légèrement plus variable selon les campagnes mais malgré tout assez proche de celle obtenue par analyses physico-chimiques (87-91 %). A l'inverse, les valeurs obtenues en respirométrie sont de 66 % en février, 40 % en mars et 91 % en avril. Cette moindre reproductibilité peut en partie s'expliquer par la grande sensibilité de la méthode au ratio  $\text{SO}/\text{XO}$  appliqué. En effet, celui était de l'ordre de 0,2-0,3  $\text{gCOD}/\text{gMVS}$  en février et avril contre 0,45  $\text{gCOD}/\text{gMVS}$  en mars. Néanmoins, la différence entre les valeurs obtenues en février et avril, à ratios  $\text{SO}/\text{XO}$  comparables, reste importante (66 % et 91 %). Ainsi, avec une moyenne de 79 % (si l'on n'exclut le résultat de la deuxième campagne), la valeur de *bCOD* obtenue en respirométrie est inférieure aux valeurs moyennes obtenues en DBO manométrique et par analyses physico-chimiques. Comme évoqué au paragraphe 1.3.2, ce constat pourrait résulter du fait, qu'en respirométrie, la fraction organique lentement biodégradable minéralisée est généralement  $X_r$ , cette dernière étant inférieure à  $X_s$ . Or comme  $bCOD = S_s + X_s$ , cette particularité du test respirométrique affecte également la détermination de *bCOD*. A l'inverse, la valeur de *bCOD* déterminée selon l'approche physico-chimique pourrait être légèrement surestimée sachant qu'elle est obtenue par différence entre les DCO de EB et EpN, en considérant que EpN contient  $S_i$  et  $X_i$ . Or l'estimation de  $S_i + X_i$  à travers la DCO de EpN pourrait être sous-estimée puisqu'une partie de  $X_i$  est probablement éliminée dès l'étape de traitement primaire de EB sur la STEP (décantation/floculation).

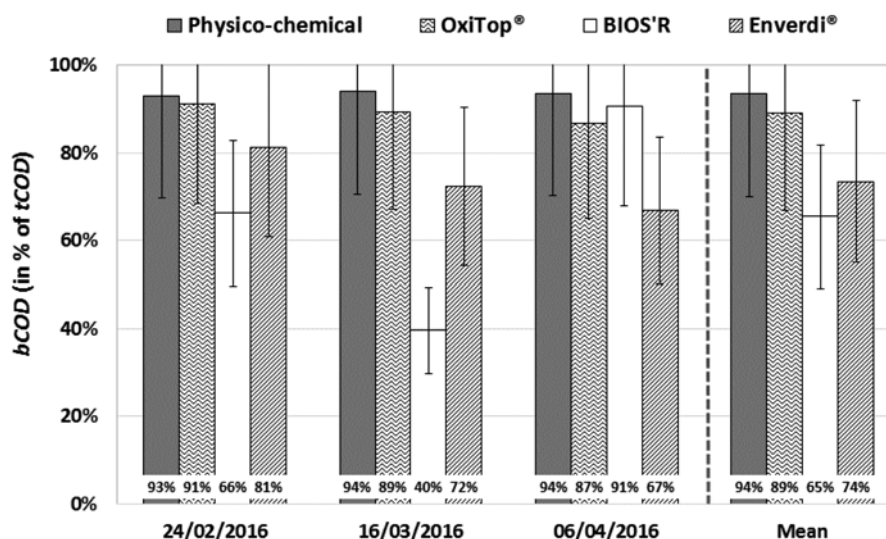


Figure 2 : Valeur de *bCOD* (en pourcentage de *tCOD*) pour chacune des méthodes de fractionnement et chacune des campagnes de prélèvement ; moyenne par méthode sur les trois campagnes de prélèvement

L'évaluation de *bCOD* via la méthode Enverdi® se base sur la  $\text{DBO}_{\text{tot}}$  déterminée sur 72h, en se servant de l'équation 5, déjà utilisée pour évaluer *bCOD* à partir de la  $\text{DBO}_u$ . Comme pour la DBO manométrique, il a été estimé que durant l'incubation de 72h à 30 °C de la méthode Enverdi®, une partie de *bCOD* pouvait être convertie en *iCOD*. La valeur du facteur correctif  $f\text{DBO}$  a été fixée à 0,15 également. En effet, même si la durée d'incubation est plus courte avec la méthode Enverdi® comparativement à la DBO manométrique (3 j contre 15j), l'augmentation de la température d'incubation (30 °C contre 20 °C) implique, en contrepartie, une accélération des réactions métabolique et donc une accélération de la croissance et de la lyse bactérienne.

Les valeurs de *bCOD* obtenues de cette manière à partir de l'analyse Enverdi® sont de 81 % en février, 72 % en mars et 67 % en avril. Si la détermination de *bCOD* avec la méthode Enverdi® est plus reproductible qu'avec le test respirométrique, les valeurs moyennes retrouvées sur les trois campagnes sont comparables (74 % contre 79 %, campagne 2 exclue pour la respirométrie). Tout comme la respirométrie, la détermination de *bCOD* par la méthode Enverdi® conduit à des valeurs plus faibles que celle obtenues via des analyses physico-chimique ou par DBO manométrique. Toutefois, le ratio entre la valeur de *bCOD* déterminée par DBO manométrique et celle déterminée par Enverdi® est relativement constant au fil des campagnes ( $1,2 \pm 0,1$  en moyenne). A l'inverse, si l'on compare DBO manométrique et respirométrie, ce ratio est plus élevé et très variable ( $1,4 \pm 0,6$  en moyenne, campagne 2 incluse). Si l'on regarde plus en détail les résultats Enverdi®, il s'avère que la part de *bCOD* résultant de la fluorescence produite sur P1 et P2 est relativement stable au fil des campagnes (respectivement, 19-22 % et 23-24 %). A l'inverse, la part de *bCOD* résultant de la fluorescence produite sur P3 est plus variable (39 % en février, 26 % en mars et 23% en avril). Cette observation montre que l'évaluation de *bCOD* avec Enverdi® est principalement influencée par les processus de minéralisation de la MO ayant lieu entre 48 et 72h d'incubation à 30 °C. L'amélioration de la calibration sur cette période d'incubation et/ou l'allongement de la durée totale d'incubation pourrait permettre d'améliorer l'estimation de *bCOD* par la méthode Enverdi.

## 2.2. DÉTERMINATION DE LA FRACTION S<sub>s</sub>

La valeur de la fraction S<sub>s</sub> de l'échantillon EB, pour chacune des campagnes de collecte et selon chacune des méthodes de fractionnement considérée, est présentée sur la Figure 2a et 2c. Selon l'approche-physico-chimique, en considérant une filtration de EB à 1 µm (Figure 2a), la valeur de S<sub>s</sub> obtenue oscille entre 26 % et 47 % (moyenne à 38 %). L'analyse en DBO manométrique de EB f1 aboutie à des résultats assez similaires (Figure 2a) avec une fraction S<sub>s</sub> comprise entre 21 % et 39 % (moyenne à 32 %). Il en est de même avec l'analyse Enverdi® sur EB f1 (Figure 2a) ; la valeur de S<sub>s</sub>, obtenue selon l'équation 5 à partir de la DBO<sub>tot</sub> déterminé sur 72h d'incubation à 30 °C, varie de 24 à 40 % (moyenne à 31 %). A l'inverse, pour le test respirométrique, qui ne requiert pas de filtration préalable de EB, la valeur de S<sub>s</sub> retrouvée est près de trois fois plus faible, avec une moyenne à 12 % (Figure 2a). Enfin, si S<sub>s</sub> est estimé selon l'équation 5 à partir de la DBO P1 mesurée via la méthode Enverdi® sur EB non filtré (0-24h d'incubation), la valeur retrouvée est intermédiaire, avec une moyenne à 21 % (Figure 2a).

La détermination de S<sub>s</sub> selon l'approche physico-chimique, la DBO manométrique ou la méthode Enverdi®, en considérant cette fois un seuil de filtration de 0,1 µm (EB f0.1), conduit à des valeurs moyennes de, respectivement, 23 %, 25 % et 21 % (Figure 2c). L'analyse de EB f0.1 par ces méthodes conduit donc à une valeur de S<sub>s</sub> correspondant à environ 2/3 de la valeur résultant de l'analyse de EB f1. Par contre, cette valeur de S<sub>s</sub> est comparable au 21 % retrouvés par la méthode Enverdi® sur la base de la DBO P1 résultant de l'analyse de EB non filtré, mais reste supérieure au 12 % retrouvés par respirométrie (Figure 2c).

Ainsi, l'analyse de EB f1 par méthode physico-chimique, DBO manométrique ou Enverdi® conduit à une valeur de S<sub>s</sub> de l'ordre de 34 %, celle de EB f0,1 par ces mêmes méthodes, à une valeur d'environ 23 %. Cette dernière valeur est comparable à celle résultant de l'analyse de EB par la méthode Enverdi® sur seulement 24h (21 %). L'analyse respirométrique de EB conduit à la valeur de S<sub>s</sub> la plus faible (12 %). A seuil de filtration équivalent, le résultat de la méthode Enverdi® est comparable aux résultats issus de l'analyse physico-chimique ou de la DBO manométrique. Par ailleurs, via la méthode Enverdi®, il est également possible d'estimer S<sub>s</sub> sans dilution préalable de l'échantillon, en exploitant la fluorescence mesurée pour EB après 24h d'incubation à 30 °C (résultat équivalent à la filtration 0,1 µm). La sous-estimation de S<sub>s</sub> par la méthode respirométrique pourrait s'expliquer par la complexité de mise en œuvre de cette méthode (conditions opératoires requises pour une bonne observation de la phase de minéralisation de la MO rapidement biodégradable) ou par l'utilisation d'une boue activée issue d'un autre site que celui recevant EB. A noter aussi que la détermination de S<sub>s</sub> à partir de EB f0.1 ou directement sur EB est plus reproductible entre campagne que celle reposant sur l'analyse de EB f1 (Figure 3a et 3c).



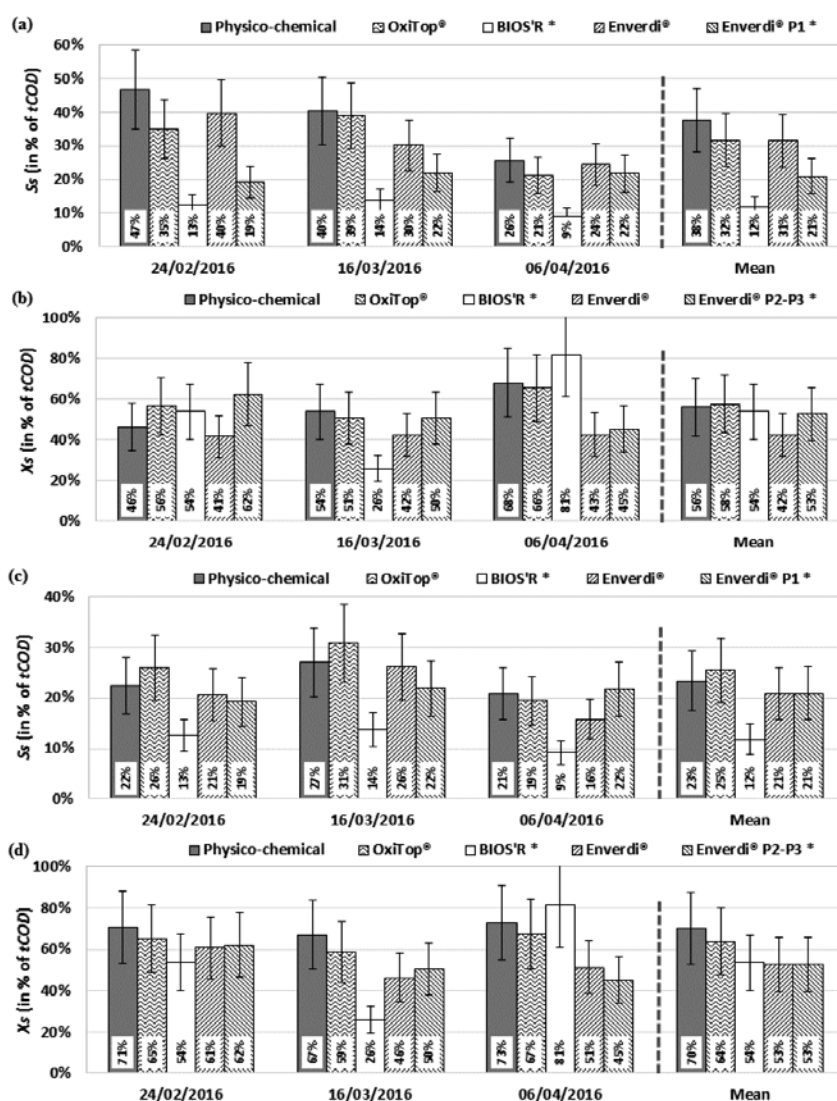


Figure 3 : Valeur de  $S_s$  (a, c) et  $X_s$  (b, d) sans filtration (\*) ou avec filtration à  $1 \mu m$  (a, b) ou à  $0,1 \mu m$  (c, d) de EB (en pourcentage de  $tCOD$ ) pour chacune des méthodes de fractionnement et chacune des campagnes de prélèvement ; moyenne par méthode sur les trois campagnes de prélèvement

### 2.3. DÉTERMINATION DE LA FRACTION $X_s$

Si le protocole de fractionnement ayant permis de déterminer  $S_s$  implique une étape de filtration, alors la valeur retrouvée pour  $X_s$  dépend également de ce seuil de filtration mais aussi de la valeur de  $bCOD$  déterminée via ce protocole ( $X_s = bCOD - S_s$ ). Ainsi, la valeur de  $X_s$  retrouvée via l'approche physico-chimique si EB f1 est considéré pour  $S_s$  est de 56 % en moyenne contre 70 % si c'est EB f0.1 qui est considéré (Figure 3b et 3d). Il en est de même pour la DBO manométrique et Enverdi® avec, respectivement, 58 % ( $1 \mu m$ )/64 % ( $0,1 \mu m$ ) et 42 % ( $1 \mu m$ )/53 % ( $0,1 \mu m$ ). Si les résultats entre approche physico-chimique et DBO manométrique sont comparables, à seuil de filtration égal, ce n'est pas le cas pour la méthode Enverdi® puisque la valeur de  $bCOD$  retrouvée par cette dernière méthode est plus faible que pour les deux premières (74 % en moyenne contre 89-94 %).

Pour la respirométrie et Enverdi®, la valeur de  $S_s$  et  $X_s$  peut-être déterminé sans avoir recours à la filtration, en découpant de manière pertinente la courbe  $OUR = f(\text{temps})$  ou fluorescence =  $f(\text{temps})$  sur la période d'analyse de EB. Ainsi, la valeur de  $X_s$  (ou  $X_r$ ) obtenue via le test respirométrique est de 54 % en moyenne mais varie énormément d'une campagne à l'autre (26 à 81 %, écart-type = 28 %). Le résultat obtenu via la méthode Enverdi®, en considérant la DBO de P2 et P3 pour le calcul de  $X_s$  selon l'équation 5, est comparable (53 % en moyenne) mais varie beaucoup moins d'une campagne à l'autre (45 à 62 %, écart-type = 9 %). Ainsi, comme pour la détermination de  $bCOD$  par la méthode Enverdi®, dont la variation inter-campagne des valeurs retrouvées dépend des processus de minéralisation ayant lieu entre 48 et 72h (voir paragraphe 2.1), il apparaît que la variation

inter-campagne des valeurs de *bCOD* déterminées par la méthode respirométrique est elle aussi principalement influencée par la phase de minéralisation de la MO lentement biodégradable (*Xs*) puisque la valeur de *Ss*, liée à la minéralisation de la MO rapidement biodégradable, est, elle, quasi-constante au fil des campagnes (9-14 %). Si l'on fait abstraction de l'analyse respirométrique relative à la campagne 2 (*S0/X0* élevé), la valeur moyenne de *Xs* s'établit autour de 68 %. Cette valeur est proche des valeurs moyennes obtenues via l'approche physico-chimique et la DBO manométrique à partir de EB f0.1 (64-70 %). A l'inverse, la valeur moyenne de *Xs* déterminée par Enverdi® via la DBO P1 et la DBO P2 mesurées sur EB (53 %) est plus proche des valeurs moyennes obtenues via l'approche physico-chimique et la DBO manométrique à partir de EB f1 (56-58 %).

## Conclusion

Le fractionnement expérimental de la DCO d'une ERU selon le modèle ASM1 dépend fortement de l'approche analytique choisie ainsi que des choix et hypothèses effectués. Dans ce cas d'étude, les fractionnements physico-chimique et par DBO manométrique conduisent sensiblement aux mêmes résultats : *bCOD* = 90 % ; *Ss* = 25-35 % ; *Xs* = 55-65 %. L'avantage du fractionnement physico-chimique est sa simplicité et rapidité mais il dépend du bon fonctionnement de la STEP étudiée au moment de l'évaluation et des hypothèses effectuées pour évaluer *iCOD* (ici, *iCOD* = DCO EpN). La DBO manométrique ne dépend pas du procédé étudié mais présente l'inconvénient d'être très longue (15 jours). En outre, la détermination de *Ss* et *Xs* par ces deux approches est influencée par le seuil de filtration choisi pour déterminer *Ss*.

L'approche analytique basée sur la respirométrie a conduit à un fractionnement sensiblement différent : *bCOD* = 80 % ; *Ss* = 10 % ; *Xs* = 70 %. Par rapport à l'approche physico-chimique et la DBO manométrique, *bCOD* et *Ss* semblent sous-estimés ; *Xs*, à l'inverse, pourrait-être légèrement surestimé. La méthode respirométrique, bien que rapide (20h), ne requérant pas de filtration préalable et indépendante du procédé étudié, apparaît plus complexe à mettre en œuvre. Il a été montré notamment que les paramètres opératoires appliqués, tel le ratio *S0/X0*, influaient énormément sur les valeurs de *bCOD*, *Ss* et *Xs* obtenues mais aussi sur la variabilité inter-campagne de celles-ci.

Pour la méthode Enverdi®, deux approches ont été proposées : avec ou sans filtration de EB. L'approche avec filtration a conduit au fractionnement suivant : *bCOD* = 75 % ; *Ss* = 20-30 % ; *Xs* = 45-55 %. Le choix du seuil de filtration influe sur la proportion des fractions *Ss* et *Xs* à hauteur d'environ 10% de *tCOD*. Sur ce point, le même constat peut être fait pour l'approche physico-chimique et la DBO manométrique. L'approche Enverdi® sans filtration a conduit au même fractionnement que si EB était préalablement filtré à 0,1 µm, soit : *bCOD* = 75 % ; *Ss* = 20 % ; *Xs* = 55 %. Ainsi, par rapport au trois autres méthodes, le fractionnement selon la méthode Enverdi® tend à sous-estimer *bCOD*. De plus, *Ss* étant plutôt correctement évaluée au regard des autres méthodes, cette sous-estimation de *bCOD* est plutôt due à une sous-estimation de la fraction *Xs*. En particulier, nous avons observé que les processus de minéralisation de la MO ayant lieu entre 48 et 72h d'incubation à 30 °C avaient une influence majeure sur les valeurs finales de *bCOD* et *Xs* retrouvées avec la méthode Enverdi®. Ainsi, pour améliorer la justesse du fractionnement selon cette méthode, il serait nécessaire d'optimiser la calibration sur cette période d'incubation (nature du substrat représentatif, valeur DBO de ce substrat selon la méthode de référence, choix de la méthode de référence, allongement de la période d'incubation, etc...). Néanmoins, la répartition *Ss/Xs* obtenue avec la méthode Enverdi® (20-30 %/45-55 %) est davantage en adéquation avec la répartition obtenue via les analyses physico-chimiques et la DBO manométrique (25-35 %/55-65 %) que ne l'est celle obtenue par respirométrie (10 %/70 %). Par ailleurs, au fil des campagnes, l'écart entre les valeurs de *bCOD* obtenus en méthode Enverdi® et par DBO manométrique s'est montré bien plus constant que l'écart des valeurs de *bCOD* obtenus en méthode respirométrique et par DBO manométrique.

En conclusion, même si une optimisation de la méthode Enverdi® est souhaitable afin d'améliorer sa justesse pour l'évaluation de *bCOD* et *Xs*, celle-ci se révèle d'ores et déjà pertinente pour fractionner expérimentalement la MO d'une eau résiduaire urbaine au regard du modèle ASM1. En outre, cette méthode présente des avantages opérationnels indéniables : indépendance vis-à-vis du procédé étudié, durée d'analyse raisonnable (24-72h), simplicité de mise en œuvre (format kit et automatisation du protocole), haut-débit analytique et faible encombrement (microplaque 96 puits), filtration non indispensable (possibilité de fractionner la fluorescence mesurée dans le temps). Ainsi, son utilisation en vue de calibrer le modèle ASM1 pourrait se révéler particulièrement judicieuse en comparaison des méthodes de référence actuellement employées.

## Remerciements

Les auteurs sont reconnaissants à Amandine Bavouzet et André Pauss pour leur contribution scientifique et technique à ce travail. Nous adressons aussi notre gratitude au programme de recherche Mocopée (MModelisation, Control et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux) pour son soutien financier.

### POUR EN SAVOIR PLUS

➤ MULLER M., BELLATON S., YORIS A., GUERIN-RECHDAOUI S., CLOUSIER L., ROCHER V. (2017): *New outlook in BOD measurement and bioprocess management: the Enverdi® kit*. In: 18<sup>th</sup> International Congress of Metrology. Les Ulis: EDP Sciences.

## Bibliographie

- ABU-AMERO K.K., BOSLEY T.M. (2005) : « Detection of Mitochondrial Respiratory Dysfunction in Circulating Lymphocytes Using Resazurin. » *Archives of Pathology & Laboratory Medicine* ; 129(10) : 1295-98.
- BELLATON S., GUERIN S., PAUTREMAT N., BERNIER J., MULLER M., MOTTELET S., AZIMI S., PAUSS A., ROCHER V. (2016) : « Early Assessment of a rapid alternative method for the estimation of the biomethane potential of sewage sludge. » *Bioresource Technology* ; 206 : 279-84.
- BOURGEOIS W., BURGESS J.E., STUETZ R.M. (2001) : « Online monitoring of wastewater quality: a review. » *Journal of chemical technology and biotechnology* ; 76(4) : 337-48.
- BYTH H.A., MCHUNU B.I., DUBERY I.A., BORNMAN L. (2001) : « Assessment of a Simple, Non-toxic Alamar Blue Cell Survival Assay to Monitor Tomato Cell Viability. » *Phytochemical Analysis* ; 12 : 340-46.
- CARSTEAN E.M., BRIDGEMAN J., BAKER A., Reynolds, D.M. (2016) : « Fluorescence spectroscopy for wastewater monitoring: A review. » *Water research* ; 95 : 205-19.
- CHADHA S., KALE S.P. (2015) : « Simple fluorescence-based high throughput cell viability assay for filamentous fungi. » *Letters in Applied Microbiology* ; 61 : 238-44.
- DE MATOS M.P., BORGES A.C., DE MATOS A.T., DA SILVA E.F., MARTINEZ M.A. (2014) : « Effect of time-temperature binomial in obtaining biochemical oxygen demand of different wastewaters. » *Engenharia Agrícola* ; 34 : 332-40.
- DHAGE S.S., DALVI A.A., PRABHU D.V. (2012) : « Reaction kinetics and validity of BOD test for domestic wastewater released in marine ecosystems. » *Environmental Monitoring and Assessment* ; 184(9) : 5301-10.
- DUDAL Y., HOLGADO R., KNOTH K., DEBROUX M. (2006) : « A fluorescence-based microplate assay to quantify DOM-induced catabolic activity. » *Analytical and Bioanalytical Chemistry* ; 384(1) : 175-9.
- DULEKGURGEN E., DOGRUEL S., KARAHAN O., ORHON D. (2006) : « Size distribution of wastewater COD fractions as an index for biodegradability. » *Water research* ; 40(2) : 273-82.
- FALL C., FLORES N., ESPINOZA M., VAZQUEZ G., LOAIZA-NAVIA J., VAN LOOSDRECHT M., HOOIJMANS C. (2011) : « Divergence between respirometry and physicochemical methods in the fractionation of the chemical oxygen demand in municipal wastewater. » *Water Environment Research* ; 83(2) : 162-72.
- FALL C., MILLAN-LAGUNAS E., BA, K., GALLEGU-ALARCON I., GARCIA-PULIDO D., DIAZ-DELGADO C., SOLIS-MORELOS C. (2012) : « COD fractionation and biological treatability of mixed industrial wastewaters. » *Journal of environmental management* ; 113 : 71-77.
- GATTI M.N., GARCIA-USACH F., SECO A., FERRER J. (2010) : « Wastewater COD characterization: analysis of respirometric and physical-chemical methods for determining biodegradable organic matter fractions. » *Journal of chemical technology and biotechnology* ; 85(4) : 536-44.
- GONZALEZ-PINZON R., HAGGERTY R., MYROLD D.D. (2012) : « Measuring aerobic respiration in stream ecosystems using the resazurin-resorufin system. » *Journal of Geophysical Research* ; 117(G3) : 1-10.
- GONZALEZ-PINZON R., PEIPOCH M., HAGGERTY R., MARTI E., FLECKENSTEIN J.H. (2016) : « Nighttime and daytime respiration in a headwater stream. » *Ecohydrology* ; 9(1) : 93-100.
- HENZE M. (2000): *Activated sludge models ASM1, ASM2, ASM2d and ASM3*. Londres: IWA publishing.
- JOUANNEAU S., RECOULES L., DURAND M.J., BOUKABACHE A., PICOT V., PRIMAULT Y., LAKEL A., SENGLIN M., BARILLON B., THOUAND G. (2014) : « Methods for assessing biochemical oxygen demand (BOD) : A review. » *Water Research* ; 49 : 62-82.
- KARAKASHEV D., GALABOVA D., SIMEONOV I. (2003) : « A simple and rapid test for differentiation of aerobic from anaerobic bacteria. » *World Journal of Microbiology & Biotechnology* ; 19 : 233-8.
- LAGARDE F., TUSSEAU-VUILLEMIN M.-H., LESSARD P., HEDUIT A., DUTROP F., MOUCHEL J.M. (2005) : « Variability estimation of urban wastewater biodegradable fractions by respirometry. » *Water research* ; 39(19) : 4768-78.

- LARSON E.M., DOUGHMAN D.J., GREGERSON D.S., OBRITSCH W.F. (1997) : « A new, simple, nonradioactive, nontoxic In Vitro assay to monitor corneal endothelial cell viability. » *Investigative Ophthalmology & Visual Science* ; 38(10) : 1929-33.
- MAGNIN A., MULLER M., YORIS A., GUERIN S., ROCHER V., DUDAL Y. (2015) : *Validation of a BOD<sub>5</sub> alternative method*. In: 17<sup>th</sup> International Congress of Metrology. Les Ulis: EDP Sciences.
- MAMAIS D., JENKINS D., PRRR P. (1993) : « A rapid physical-chemical method for the determination of readily biodegradable soluble COD in municipal wastewater. » *Water research* ; 27(1) : 195-97.
- SPERANDIO M., PAUL E. (2000) : « Estimation of wastewater biodegradable COD fractions by combining respirometric experiments in various So/Xo ratios. » *Water Research* ; 34(4) : 1233-46.
- MCNICHOLL B.P., MCGRATH J.W., QUINN J.P. (2007) : « Development and application of a resazurin-based biomass activity test for activated sludge plant management. » *Water Research* ; 41 : 127-33.
- MULLER M., BELLATON S., YORIS A., GUERIN-RECHDAOUI S., CLOUSIER L., ROCHER V. (2017) : *New outlook in BOD measurement and bioprocess management: the Enverdi<sup>®</sup> kit*. In: 18<sup>th</sup> International Congress of Metrology. Les Ulis: EDP Sciences.
- MULLER M., BOUGUELIA S., GOY R.A., YORIS A., BERLIN J., MECHE P., ROCHER V., MERTENS S., DUDAL Y. (2014) : « International cross-validation of a BOD<sub>5</sub> surrogate. » *Environmental Science and Pollution Research* ; 21(23) : 13642-5.
- NEHMTOW J., RABIER J., GIGUEL R., COULOMB B., FARNET A.M., PERISSOL C., ALARY A., LAFFONT-SCHWOB I. (2016) : « Evaluation of an integrated constructed wetland to manage pig manure under Mediterranean climate. » *Environmental Science and Pollution Research* ; 23(16) : 16383-95.
- O'BRIEN J., WILSON I., ORTON T., POGNAN F. (2000) : « Investigation of the Alamar Blue (resazurin) fluorescent dye for the assessment of mammalian cell cytotoxicity. » *European Journal of Biochemistry* ; 267(17) : 5421-6.
- RAMPERSAD S.N. (2012) : « Multiple applications of Alamar Blue as an indicator of metabolic function and cellular health in cell viability bioassays. » *Sensors* ; 12(9) : 12347-60.
- ROELEVELD P., VAN LOOSDRECHT M. (2002) : « Experience with guidelines for wastewater characterisation in The Netherlands. » *Water Science and Technology* ; 45(6) : 77-87.
- SIN G., VAN HULLE S.W., DE PAUW D.J., VAN GRIENSVEN A., VANROLLEGHEM P.A. (2005) : « A critical comparison of systematic calibration protocols for activated sludge models: A SWOT analysis. » *Water Research* ; 39(12) : 2459-74.
- THERIAULT E.J. (1927) : « The dissolved oxygen demand of polluted waters. » *US Public Health Bulletin* ; 173.
- TRAN N.H., NGO H.H., URASE T., GIN, K.Y. H. (2015) : « A critical review on characterization strategies of organic matter for wastewater and water treatment processes. » *Bioresource technology* ; 193 : 523-33.
- VAN LOODRECHT M., LOPEZ-VAZQUEZ C., MEIJER S., HOOIJMANS C., BRDJANOVIC, D. (2015) : « Twenty-five years of ASM1: past, present and future of wastewater treatment modelling. » *Journal of Hydroinformatics* ; 17(5) : 697-718.
- ZHANG H.X., DU G.H., ZHANG J.T. (2004) : « Assay of mitochondrial functions by resazurin in vitro. » *Acta Pharmacologica Sinica* ; 25(3) : 385-89.





# Utilisation de la spectrométrie de fluorescence 3D pour une mesure rapide de la $DBO_5$ et de la DCO en station de traitement des eaux usées

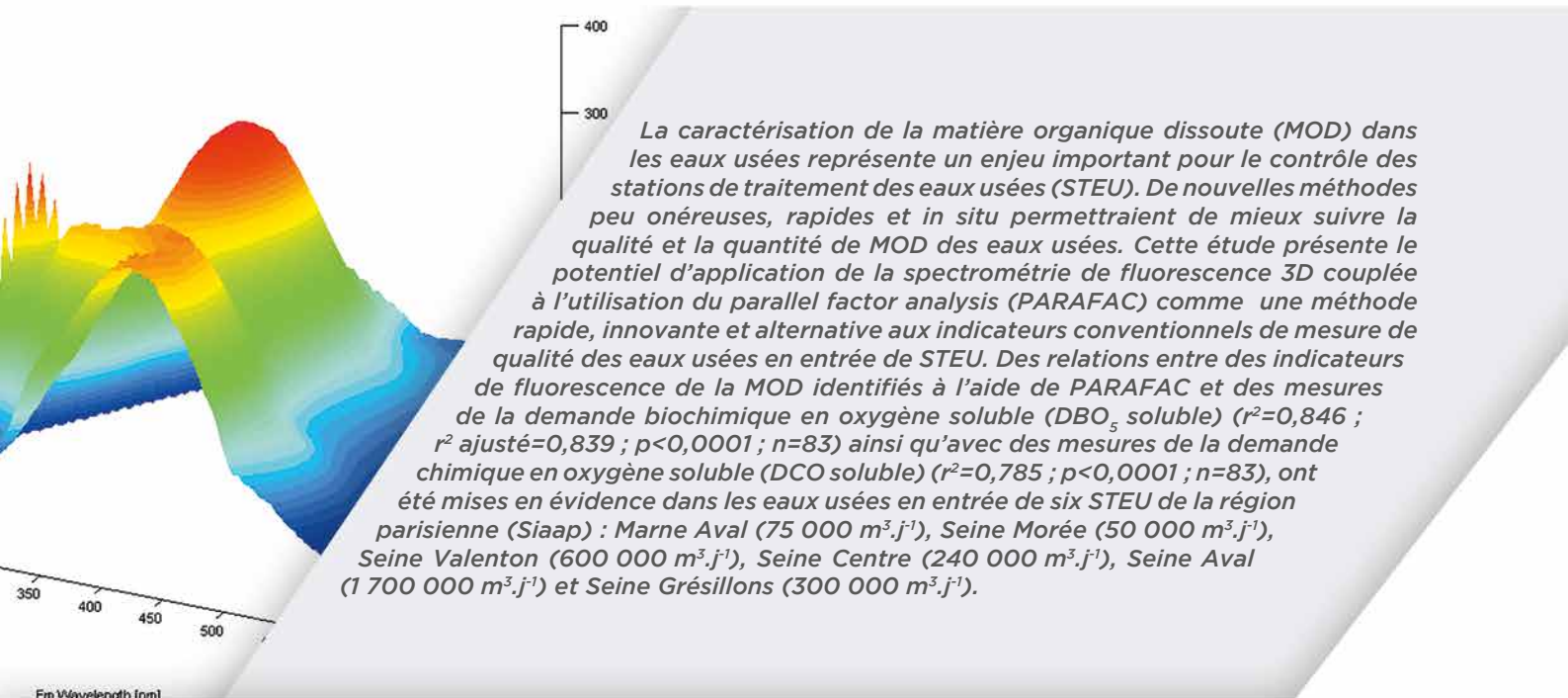
## Using 3D fluorescence spectroscopy for rapid measurement of $BOD_5$ and COD at wastewater treatment plant

Angélique Goffin<sup>[1, 2]\*</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[2]</sup>, Vincent Rocher<sup>[2]</sup>, Gilles Varrault<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Leesu, Université Paris-Est Créteil (UMR MA 102), Créteil

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

\* Auteur de correspondance : goffin.angel@gmail.com



Matière organique dissoute - Mesures innovantes - Eaux usées - Demande chimique en oxygène - Spectrométrie de fluorescence 3D PARAFAC - Mesures rapides - Demande biochimique en oxygène

### Introduction

Il est admis que les variations de qualité et quantité de matière organique (MO) influencent l'efficacité des procédés de traitement biologique. Par exemple, les eaux usées peuvent présenter de larges variations de concentrations en carbone biodégradable. Ces épisodes peuvent conduire à une détérioration de la qualité de l'effluent en sortie de station d'épuration des eaux usées (STEU), jusqu'à ce que la biomasse atteigne un nouvel état d'équilibre (GALLERT et WINTER, 2004). Dans le cas d'une configuration amont et/ou aval de l'étape de dénitrification, la biodégradabilité de la matière organique influence les taux de consommation des nitrates et des nitrites. En effet, en cas de concentrations insuffisantes en MO biodégradable, il est nécessaire d'ajouter des sources de carbones exogènes (ex : méthanol) afin de permettre une élimination des nitrates (ROCHER et al., 2015). Ainsi, connaître la quantité de matière organique biodégradable disponible en entrée de l'étape du traitement biologique permettrait de réaliser des économies conséquentes en termes de réactifs chimiques (ex : méthanol) ou encore d'énergie (ex : pompage, aération). Pour ce faire, une meilleure caractérisation des qualités et quantités de matière organique est nécessaire.

L'efficacité du traitement des eaux usées est traditionnellement définie par la mesure de paramètres globaux tels que la demande biochimique en oxygène (DBO<sub>5</sub>) et la demande chimique en oxygène (DCO) (REYNOLDS et AHMAD, 1997 ; BOURGEOIS *et al.*, 2001). La DBO<sub>5</sub> consiste en la mesure de la dégradation de la MO par les microorganismes, via la quantité d'oxygène consommée sur une période de 5 jours. La fraction biodégradable de la MO est identifiée comme la portion de la MO qui peut être éliminée par les microorganismes (SERVAIS *et al.*, 1989). La demande chimique en oxygène (DCO) est définie comme étant la mesure de la quantité d'oxygène nécessaire pour oxyder l'ensemble des composés oxydables (matière organique et inorganique, organismes vivants) sous l'action d'oxydants chimiques forts, tels que dichromate de potassium, en milieu acide, à chaud pendant deux heures (LI *et al.*, 2017).

Néanmoins, les mesures de ces deux paramètres sont chronophages (de 2h pour la DCO à 5 jours pour la DBO<sub>5</sub>), présentent d'importants coûts de mise en œuvre et sont difficilement applicables *in situ* pour suivre les quantités et qualités de la MO (CHONG *et al.*, 2013 ; CARSTEA *et al.*, 2016). De plus, ces deux mesures ne fournissent qu'une image ponctuelle de la qualité des eaux et ne permettent pas de suivre en temps réel et à haute fréquence les variations de qualité des eaux usées. L'ensemble de ces limites souligne la nécessité de proposer de nouvelles méthodes de suivi substituables aux méthodes préexistantes. De telles méthodes permettront d'optimiser l'efficacité de traitement des STEU, continuellement sujettes à des variations de qualité et quantité de matière organique dissoute (MOD) dans leurs influents.

En 1995, Ahmad et Reynolds ont démontré la possibilité d'utiliser la spectrométrie de fluorescence pour suivre en ligne et en temps réel la MOD présente dans les eaux usées. Les mesures optiques telles que la spectroscopie UV-Visible et la spectroscopie de fluorescence sont des techniques efficaces pour étudier la qualité de la MOD. Ces méthodes sont rapides, non destructives, à coûts réduits et requièrent une faible préparation d'échantillon (REYNOLDS 2003 ; HAMBLY *et al.*, 2010 ; MURPHY *et al.*, 2011 ; YANG *et al.*, 2015).

Le phénomène de fluorescence s'opère en deux étapes. Dans un premier temps, une molécule constitutive du composé cible (soluté) va absorber un photon provenant d'une excitation lumineuse (domaine de l'UV-Visible), entraînant une transition électronique de l'état fondamental S<sub>0</sub> vers un état énergétique supérieur S<sub>1</sub> que l'on nomme « état excité ». Ce phénomène de transition énergétique appelé « absorption moléculaire », survient lorsqu'une molécule est exposée à un photon d'énergie égale à la différence d'énergie entre l'état initial et l'état excité d'une molécule. Puis, dans un second temps, survient le phénomène de « désexcitation » par rémission spontanée d'énergie sous forme de fluorescence. Celui-ci se produit lorsque le niveau d'énergie S<sub>1</sub> présente une compatibilité avec le niveau fondamental S<sub>0</sub> initial, permettant à l'ensemble solvant-soluté d'y redescendre (10<sup>-11</sup> à 10<sup>-8</sup> s) en suivant la loi de Stokes via l'émission de photons moins énergétiques (à une longueur d'onde plus importante).

La spectrométrie de fluorescence en trois dimensions consiste au scan simultané de longueurs d'onde d'excitations et d'émissions, résultant en la production de carte de contours de fluorescence ou de « matrices d'excitation-émission » (EEM) (COBLE, 1996). Les changements dans la localisation des maximums d'intensités de fluorescence (paires d'excitations/émissions) et les variations des valeurs d'intensités peuvent servir à estimer les changements relatifs en qualité et quantité de la matière organique (COBLE, 1996 ; PARLANTI *et al.*, 2000).

De précédentes études ont démontré l'existence de relations entre les concentrations en MO oxydable (DCO et DBO) et les intensités de fluorescence des composés de type protéine à l'échelle de STEU (d'après les reviews : HENDERSON *et al.*, 2009 ; CARSTEA *et al.*, 2016). La majorité des études mesure la fluorescence à des couples de longueurs d'onde d'excitation/émission fixes issus de travaux généralement menés sur des matrices environnementales, telles que les eaux de surface. Sans étude préalable de la localisation exacte des pics de fluorescence, celles-ci prennent le risque d'omettre la présence de pics de fluorescence présents dans des solutions complexes (YANG *et al.*, 2015).

Aussi, afin de mieux identifier les fluorophores présents dans les eaux usées d'entrée de STEU une compréhension plus fine des matrices d'excitation-émission générées est nécessaire. En effet, les signaux de certains fluorophores peuvent être superposés ou noyés dans le signal de fluorescence total mesuré causant une perte d'information. Pour y remédier, une approche par décomposition spectrale du signal de fluorescence des eaux usées peut être adoptée telle que le *Parallel factor analysis* (PARAFAC) (STEDMON et BRO, 2008). Cette approche est capable de décomposer la matrice EEM en composantes de fluorescence indépendantes (MURPHY *et al.*, 2013).

Certaines études ont utilisé cette approche pour évaluer l'efficacité du traitement des eaux usées (YU *et al.*, 2013 ; COHEN *et al.*, 2014 ; YU *et al.*, 2014 ; OU *et al.*, 2014 ; YANG *et al.*, 2014) mais seules quelques études ont utilisé les sorties de modèle PARAFAC (score des composantes) afin d'évaluer les paramètres de qualité des eaux usées tels que la DCO ou la DBO<sub>5</sub>. YANG *et al.* (2014) ont identifié une forte corrélation entre une composante PARAFAC de type protéine ( $\lambda_{ex}/em = 275/359$  nm) et la mesure de DBO<sub>5</sub> ( $r^2=0,806$  ;  $p < 0,001$ ), mais aussi avec la mesure de DCO ( $r^2=0,803$  ;  $p < 0,001$ ) pour un jeu de données regroupant un échantillonnage unique de chaque étape de traitement de 22 STEU coréennes ( $n=71$ ). COHEN *et al.* (2014) ont aussi montré l'existence d'une corrélation entre une composante PARAFAC représentative des composés de type protéine ( $\lambda_{ex}/em = (<240) 275/346$  nm) et la DBO<sub>5</sub> ( $r^2=0,820$  ;  $p < 0,001$ ) pour un ensemble d'eaux usées issues de STEU israéliennes ( $n=25$ ) échantillonnées tous les 30-60 jours sur une durée de 20 mois. Dans la plupart de ces études, les modèles de prédiction sont construits en utilisant des échantillons présentant des compositions organiques très différentes avec des concentrations en matière oxydables très contrastées (par exemple, des effluents prélevés avant et après traitement biologique). Cette méthode de construction peut conduire à augmenter artificiellement le coefficient de corrélation obtenu. De plus, pour assurer une valeur de coefficient de corrélation linéaire fiable, les séries doivent suivre une distribution normale, ce qui n'est pas nécessairement le cas avec un ensemble d'échantillons provenant de différentes étapes de STEU.

Cette étude vise à mettre en évidence l'efficacité des indices dérivés des mesures de fluorescence pour prédire les valeurs de DBO<sub>5</sub> soluble et de la DCO soluble dans les eaux usées brutes. Ces résultats pourront être utilisés pour développer un dispositif de mesure en temps réel de ces paramètres, et ainsi permettre une meilleure gestion des étapes de traitement biologique. À notre connaissance, cette étude est la première à tenter d'utiliser la spectroscopie de fluorescence 3D couplée au traitement des spectres PARAFAC pour caractériser la qualité et la quantité de MOD dans les eaux brutes, avec un échantillonnage horaire sur une durée de 14 jours. Dans un premiers temps, l'algorithme de décomposition des spectres PARAFAC a été utilisé pour identifier les composantes de fluorescence des eaux usées en entrée d'une STEU (Seine Centre, Siaap, Colombes). Un ensemble de 62 échantillons d'eaux usées brutes a été utilisé pour construire les modèles de prédiction de la DBO<sub>5</sub> soluble et la DCO soluble avec des scores de composantes PARAFAC. Étant donné que l'approche PARAFAC ne peut être utilisée *in situ* pour le moment, une approche de type *peak-picking*, très facilement automatisable, basée sur la localisation des intensités maximales de fluorescence des composants PARAFAC a été appliquée à l'ensemble des 62 échantillons de la STEU « Seine Centre ». Enfin, afin de prendre en compte la variabilité des influents entre différentes STEU, la possibilité de transposition des premiers modèles de prédiction de la DCO soluble et DBO<sub>5</sub> soluble a été testée pour un second ensemble de 83 échantillons d'eaux usées brutes issus de six STEU parisiennes.

## 1. Matériels et méthodes

### 1.1. DESCRIPTION DES CAMPAGNES DE PRÉLÈVEMENTS

69 échantillons d'eaux brutes ont été prélevés en entrée de la station d'épuration « Seine Centre » (240 000 m<sup>3</sup>.j<sup>-1</sup>) située à Colombes (Siaap, France). L'échantillonnage a été effectué sur deux périodes à différents moments de la journée (de 8h à 18h) afin de tenir compte de la variabilité temporelle de la qualité et de la quantité de la MOD : 31 échantillons d'eaux usées brutes ont été prélevés entre le 22 et le 29 avril 2015, puis 38 autres échantillons d'eaux brutes ont été prélevés entre le 14 juin et le 12 juillet 2016. Les eaux usées brutes de cinq autres stations d'épuration parisiennes (Siaap, France), ont été échantillonnées en juin et juillet 2016 ( $n=21$ ) : trois échantillons de la station de « Marne Aval » (75 000 m<sup>3</sup>.j<sup>-1</sup>), deux échantillons de la station de « Seine Morée » (50 000 m<sup>3</sup>.j<sup>-1</sup>), six échantillons de la station d'épuration de « Seine Valenton » (600 000 m<sup>3</sup>.j<sup>-1</sup>), huit échantillons de la station d'épuration de « Seine Aval » (1 700 000 m<sup>3</sup>.j<sup>-1</sup>) et deux échantillons de la station d'épuration de « Seine Grésillons » (300 000 m<sup>3</sup>.j<sup>-1</sup>). Pour toutes les stations d'épuration étudiées, l'eau brute est dans sa grande majorité d'origine domestique. Dans le cas des stations d'épuration situées au nord-ouest de Paris (Seine Morée, Seine Centre, Seine Aval, Seine Grésillons), 85 % des eaux usées proviennent des réseaux d'égouts unitaires. Pour les stations d'épuration situées au sud-est de Paris (Seine Valenton, Marne Aval), les eaux usées proviennent dans une proportion assez similaire des réseaux d'égouts combinés et séparés. Chaque échantillon a été directement filtré à travers un filtre GF/F (0,7 Qm ; Whatman®, préalablement grillé à 500 °C pendant 12 heures) et recueilli dans des bouteilles en polypropylène propres. Les échantillons ont été stockés à 4 °C à l'obscurité totale. Les mesures de fluorescence et les analyses des paramètres globaux ont été effectuées le lendemain de l'échantillonnage.

## 1.2. DESCRIPTIF DES MÉTHODES D'ANALYSES ET MESURES OPTIQUES

**Analyses chimiques.** Les paramètres de qualité des eaux usées ont été mesurés par le laboratoire accrédité de la Direction de l'Innovation et de l'Environnement du Siaap (Comité français d'accréditation, accréditation n°1-1452, [www.cofrac.fr](http://www.cofrac.fr)). Les mesures de la demande chimique en oxygène soluble (DCO : NF T90-101) et de la demande biochimique en oxygène soluble (DBO<sub>5</sub> : NF EN 1899-1 and 2) ont été réalisées selon les méthodes normalisées françaises (AFNOR) ou internationales (ISO).

**Mesures optiques.** L'absorbance à 254 nm a été mesurée dans une cuvette de quartz standard de 1,0 cm à l'aide d'un spectrophotomètre UV-Vis (UviLine 9400, Seconam). Des mesures de spectroscopie de fluorescence ont été effectuées avec un spectrofluorimètre (Jasco FP-8300, Japon) équipé d'une lampe au xénon de 150 W comme source d'excitation. L'instrument était contrôlé par le logiciel Spectra Manager II. Des mesures ont été effectuées dans une cuve en quartz de 1 cm, à une température contrôlée de 20 °C, afin d'éviter les phénomènes d'extinction de fluorescence thermique (WATRAS *et al.*, 2011). Les spectres de fluorescence ont été mesurés pour des longueurs d'onde d'excitation (Ex) allant de 240 à 450 nm tous les 5 nm et pour une plage de longueur d'onde d'émission (Em) comprise entre 250 à 600 nm avec un pas de mesure de 2 nm. Les largeurs des fentes d'émission et d'excitation ont été réglées à 5 nm, avec une vitesse de balayage de 1000 nm/min. Pour éviter les effets de filtre internes dus aux espèces fortement absorbantes des eaux usées brutes, les échantillons ont été dilués avec de l'eau ultrapure pour obtenir une absorbance d'environ 0,05 cm<sup>-1</sup> à 254 nm (LAKOWICZ, 2006 ; ALBERTS et TAKÁCS, 2004). Les spectres de fluorescence mesurés (blanc et échantillon) sont normalisés par l'aire du pic du Raman de l'eau ultra-pure à 350 nm d'excitation (mesuré chaque jour d'analyse), permettant d'obtenir les données de fluorescence en unités Raman (R.U.) (DETERMANN *et al.*, 1998 ; LAWAETZ et STEDMON, 2009). Enfin, un spectre d'eau ultrapure (blanc) est soustrait aux spectres d'échantillons mesurés le même jour. Les spectres de fluorescences résultants sont tracés à l'aide du logiciel Matlab® R2013b (Mathworks, Natick MA, USA).

## 1.3. MÉTHODE DE DÉCOMPOSITION DES SPECTRES PARAFAC ET INDICES DE FLUORESCENCE

Le *Parallel Factor Analysis* (PARAFAC) est un algorithme trilineaire de décomposition de données applicable aux matrices de fluorescence 3D d'excitation-émission. Cette méthode utilise un algorithme d'alternance des moindres carrés qui minimise la somme des résidus aux carrés des modèles en trois dimensions (STEDMON et BRO, 2008). PARAFAC est capable d'estimer le nombre de fluorophores et leur concentration relative dans chacun des échantillons du jeu de données (BRO, 1998 ; BIEROZA *et al.*, 2011). Cet algorithme sépare les données du signal de façon trilineaire avec un membre résiduel selon l'équation 1.

$$x_{ijk} = \sum_{f=1}^F a_{if} b_{jf} c_{kf} + \varepsilon_{ijk} \quad (1)$$

Avec  $X_{ijk}$  qui représente l'intensité de fluorescence de l'échantillon  $i$  pour le couple de longueurs d'ondes d'excitation et d'émission  $(j,k)$ .  $F$  est le nombre de composantes dans le modèle.  $a_{if}$  est directement proportionnel à la concentration du fluorophore  $f$  dans l'échantillon  $i$ , défini par des « scores ».  $b_{if}$  et  $c_{kf}$  sont des estimations du spectre d'émission et d'excitation pour le composant  $f$ , définies comme des « loadings ».  $\varepsilon_{ijk}$  est la variance non prise en compte par le modèle.

La modélisation PARAFAC a été réalisée sous MATLAB® R2013b (Mathworks, Natick, MA, USA) en utilisant la toolbox DrEEM (MURPHY *et al.*, 2013), pour un nombre total de 69 échantillons d'eaux usées d'entrée de la STEU Seine Centre. Une contrainte de non négativité a été appliquée sur les loadings d'excitation et d'émission. Les longueurs d'ondes d'excitation inférieures à 250 nm et d'émission inférieures à 300 nm ont été éliminées afin de diminuer l'impact du bruit. Des modèles avec différents nombres de composantes ont été testés afin de mettre en évidence les échantillons aberrants via l'analyse de la forme et de l'influence des longueurs d'ondes excitation et d'émission de chaque modèle créé. Le nombre final de composantes est déterminé sur la base diagnostique du *core consistency* et de la *split half validation* (STEDMON et BRO, 2008). Les composantes de fluorescence déterminées via l'algorithme PARAFAC sont par la suite comparées avec les fluorophores issus de la littérature et les composantes de la base de données « OpenFluor » (<https://openfluor.lablicate.com>). Dans cette étude, il a été retenu que les scores issus du modèle de décomposition PARAFAC sont proportionnels aux concentrations des différentes composantes (STEDMON et BRO, 2008).



L'indice d'activité biologique (BIX) est un indicateur de la présence de MOD d'origine biologique dans un échantillon (HUGUET *et al.*, 2009). La valeur du BIX se calcule selon l'équation 2 :

$$\text{BIX} = \text{IF}_{\text{Ex 310 nm/Em 380 nm}} / \text{IF}_{\text{Ex 310 nm/Em 430 nm}} \quad (2)$$

Avec IF : intensité de fluorescence.

## 1.4. MÉTHODE DE CORRÉLATION ENTRE DONNÉES DE FLUORESCENCE ET CONCENTRATIONS EN MO OXYDABLE

Pour réaliser les analyses statistiques, 69 échantillons ont été utilisés. L'ensemble des matrices de corrélation font intervenir : les scores des composantes PARAFAC, les indices de fluorescence, l'absorbance mesurée à 254 nm et les paramètres de qualité de l'eau. Celles-ci ont été réalisées à l'aide du logiciel R-Studio (version 3.1.2). Les corrélations statistiques ont été évaluées à l'aide du coefficient de détermination de Pearson ( $r^2$ ) et des niveaux de signification ( $p$ ). Après avoir construit un modèle de régression linéaire simple, un modèle de régression linéaire multivarié a été testé avec tous les paramètres. La méthodologie était fondée sur l'analyse statistique de l'ajustement et sur le test du facteur d'inflation de variance pour quantifier la survenue de phénomènes de multicollinéarité. Le degré de précision des estimations des valeurs de  $x$  en fonction des valeurs de  $y$  sera défini via le calcul d'intervalles de confiances. Ceux-ci ont été calculés pour les droites de régression au niveau de confiance 95 %, d'après l'équation 3 (SAPORTA, 2006).

$$y \pm t\hat{\sigma} \sqrt{\frac{1}{n} + \frac{(x - \bar{x})^2}{\sum_i (x - \bar{x})^2}} \quad (3)$$

Avec

$y$  : variable réponse ;  $x$  : variable explicative ;  $n$  : nombre de valeurs ;  $t$  : valeur de la variable de Student telle que  $P(|T_{n-2}| > t) = 5\%$  ;  $\sigma$  : écart type.

L'intervalle de prédiction de chaque droite de régression est défini d'après l'équation 4 (SAPORTA, 2006).

$$y \pm t\hat{\sigma} \sqrt{1 + \frac{1}{n} + \frac{(x - \bar{x})^2}{\sum_i (x - \bar{x})^2}} \quad (4)$$

Les intervalles de prévision ont été définis selon  $\alpha = 5\%$ . On notera que l'intervalle de prédiction sera toujours plus grand que l'intervalle de confiance car celui-ci dépend de l'erreur associée aux futures observations.

## 2. Résultats et discussion

### 2.1 ANALYSE DES SPECTRES DE FLUORESCENCE 3D DES EAUX USÉES (STEU « SEINE CENTRE »)

Un modèle à six composantes (C1-C6) a été mis en évidence avec l'analyse PARAFAC basée sur 69 échantillons d'eaux usées brute provenant de la STEU « Seine Centre ». Cette approche a permis d'obtenir une caractérisation fine de la matière organique dissoute dans les eaux usées brutes sans manquer de pics fluorescents qui se chevaucheraient. Pour chaque composante PARAFAC, les matrices et loadings d'excitation-émission des six composantes identifiées sont présentés dans la Figure 1. Les positions des maximums de fluorescence des composantes et leurs similitudes avec d'autres études sont présentées dans le Tableau 1.

- **La composante 1 (C1)** affiche un seul pic à  $\lambda_{\text{ex/em}} = 275/304$  nm. Cette composante correspond exactement aux composés fluorescents de type tyrosine ( $\lambda_{\text{ex/em}} = 275/304$  nm), également définis comme le pic B dans la littérature (COBLE, 1996 ; PARLANTI *et al.*, 2000).

- › **La composante 2 (C2)** montre également un pic unique à  $\lambda_{ex/em} = 285/344$  nm. Cette composante est située entre la zone de fluorescence des composés de type tyrosine et la localisation de composés de type tryptophane. Une étude réalisée par MOENS *et al.* (2004) précise que la fluorescence des composés de type protéine peut être influencée par les transferts d'énergie induits par la présence simultanée de composés de type tyrosine et tryptophane liés à la même protéine. On pourrait présumer que C2 est attribuée à un mélange de tyrosine et/ou de tryptophane sous forme libre ou liée à des protéines. Ceci est conforme à une étude menée par RIOPEL *et al.* (2014) qui ont mis en évidence une composante PARAFAC similaire située à  $\lambda_{ex/em} = 280-290/305-350$  nm, associée à un mélange de composés de type protéine dans une STEU du Nord de l'Ontario (Canada).
- › **La composante 3 (C3)** est située à  $\lambda_{ex/em} = 275/378$  nm. Celle-ci est similaire au pic  $\delta$  ( $\lambda_{ex/em} = 270-280/320-380$  nm) lié aux composés de type tryptophane. C3 est également similaire au pic T ( $\lambda_{ex/em} = 280/350$  nm), identifié comme un composé de type protéine associé au tryptophane (COBLE, 1996). C3 est décalé de 30 nm pour l'émission vers les longueurs d'onde plus élevées par rapport à la localisation du pic T, ce qui signifie que ce composant est plus aromatique que le pic T.
- › **La composante 4 (C4)** présente deux pics à  $\lambda_{ex/em} = (<250) 295/404$  nm. Cette composante est localisée à proximité du pic  $\beta$  ( $\lambda_{ex/em} = 310-320/380-420$  nm) défini dans la littérature comme étant caractéristique des composés issus de l'activité biologique récente et de la production autochtone (PARLANTI *et al.*, 2000).
- › **La composante 5 (C5)** comporte deux pics à  $\lambda_{ex/em} = (270) 360/434$  nm et est similaire au pic C ( $\lambda_{ex/em} = 330-370/420-500$  nm) associé aux composés humiques (COBLE, 1996 ; PARLANTI *et al.*, 2000). Un composant semblable, de type humique, décalé de 10 nm ( $\lambda_{ex/em} = 350/428$  nm), a été observé dans les eaux usées et les eaux de surface altérées par les eaux usées (MURPHY *et al.*, 2011). Cette composante présente aussi des similitudes avec la fluorescence des agents blanchissants fluorescents (FWA) provenant des lessives à détergents, des produits sanitaires, du papier toilette et des mouchoirs en papier ( $\lambda_{ex/em} = 360-365/400-440$  nm) (TAKAHASHI et KAWAMURA, 2007).
- › **La composante 6 (C6)** est située à  $\lambda_{ex/em} = 275 (380)/464$  nm et peut être associée au pic de fluorescence humique  $\alpha'$  ( $\lambda_{ex/em} = 250-260/420-480$  nm) (PARLANTI *et al.*, 2000). Une composante similaire a été mise en évidence par GUO *et al.* (2010) dans l'influent et l'effluent d'une STEU : celle-ci a été associée à une composante hydrophobe de type substances humiques possédant un poids moléculaire important. Selon l'étude de MURPHY *et al.* (2011), C6 pourrait être caractéristique des composés humiques terrestres et peut être observée dans les zones riches en nutriments, affectées par les eaux usées.

Parmi les six composantes identifiées dans les eaux usées brutes, trois d'entre elles sont associées avec des composés de type protéine : C1 associée à des composés de type tyrosine, C3 caractéristique de composés de type tryptophane et C2 qui semble représenter un mélange d'acides aminés. La littérature décrit couramment les composés protéiniques comme des indicateurs de l'activité microbienne (BRIDGEMAN *et al.*, 2013) et des activités anthropiques (H. YU *et al.*, 2014). A la lumière de ces observations, on peut supposer que C1, C2 et C3 représentent des composés fluorescents de la matière organique fraîche et biodégradable. Les trois autres composantes sont liées à des composés de type humique d'origines et/ou de maturités différentes. La composante C4 semble être associée avec les composés humiques biologiques récemment produits (ISHII et BOYER, 2012). C6 est associée à des composés humiques plus matures à des niveaux d'aromaticité plus élevés. Comme la STEU « Seine Centre » reçoit les eaux usées brutes d'un réseau d'égout unitaire, C5 peut être un mélange de composés anthropiques fluorescents provenant des eaux grises. De même, les composantes C4, C5 et C6 révèlent un double pic d'excitation pour un pic d'émission : ce phénomène peut être présenté comme une réflexion de la transition d'énergie d'excitation entre deux états électroniques ( $S_0 \rightarrow S_1$  et  $S_0 \rightarrow S_2$ ), avec une seule émission de l'état d'excitation au niveau fondamental ( $S_1 \rightarrow S_0$ ) (LAKOWICS, 2006).

Le suivi des variations de l'intensité de fluorescence de ces composantes dans les eaux usées en entrée de la STEU « Seine Centre » au cours de la période étudiée a été décrit dans un article précédent (GOFFIN *et al.*, 2018).

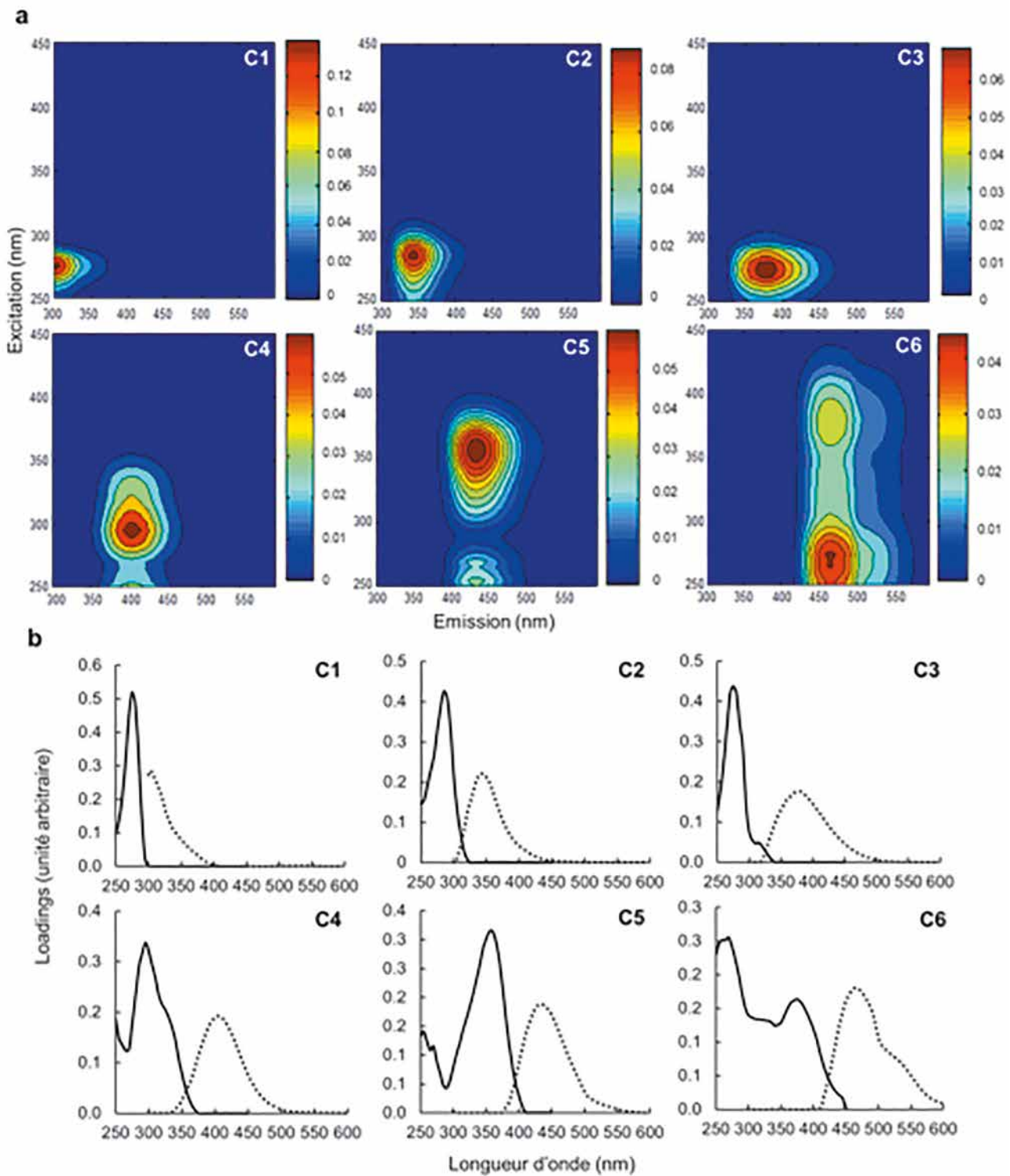


Figure 1 : a) Matrices d'excitation-émission, et b) loadings d'excitation (lignes pleines)/émission (lignes pointillées) des six composantes PARAFAC identifiées dans les eaux brutes de la STEU « Seine Centre »

CETTE ÉTUDE				ÉTUDES PRÉCÉDENTES	
Nom	Ex/Em (nm)	Origine	Ex/Em (nm)	Origine	Références
C1	275/304	Protéine, type tyrosine	270/304 275/304	Protéine, tyrosine Tyrosine pure	MURPHY <i>et al.</i> (2011) WÜNSCH <i>et al.</i> (2015)
C2	285/344	Mix d'acides (tyrosine/tryptophane)	280-290/305-350	C3 Combinaison de tryptophane et tyrosine	RIOPEL <i>et al.</i> (2014)
C3	275/378	Type tryptophane	280/350 270-280/320-380	Pic T Tryptophane Pic δ Tryptophane	COBLE (1996) PARLANTI (2000)
C4	(<250) 295/404	Issu d'une production biologique récente	310-320/380-420	Pic β Matériel récent, composante biologique	PARLANTI (2000)
C5	360 (270)/434	Type substances humiques	330-370/420-480 350/428  360-365/400-440	Pic α Substances humiques C3 Eaux usées /traceur d'enrichissement des eaux Agent azurants	PARLANTI (2000) MURPHY <i>et al.</i> (2011) TAKAHASHI et KAWAMURA (2007)
C6	275 (380)/464	Type substances humiques	250-260/420-480 <250 (370)/464  260 (380)/467	Pic α' Substances humiques C1 type substances humiques visible dans les milieux riches en nutriments et impactés par des rejets de station d'épuration C5 type substances humiques de large poids moléculaires et hydrophobes, observées dans les eaux usées en STEU	PARLANTI (2000) MURPHY <i>et al.</i> (2011)  GUO <i>et al.</i> (2010)

Tableau 1 : Caractéristiques des composantes obtenues par PARAFAC pour l'eau brute de la STEU « Seine Centre »

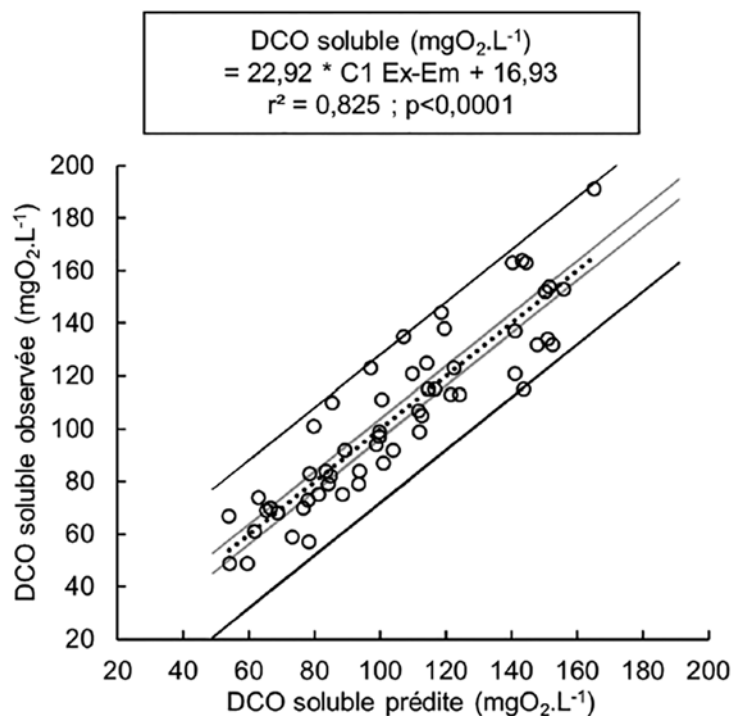
## 2.2 PRÉDICTION DES DCO ET DBO<sub>5</sub> SOLUBLES PAR SPECTROMÉTRIE DE FLUORESCENCE 3D

Dans l'objectif de concevoir un dispositif de mesure *in situ* de la DCO soluble et de la DBO<sub>5</sub> soluble, l'algorithme de décomposition PARAFAC a été utilisé pour identifier les couples de longueurs d'onde d'excitation-émission des maximums de fluorescence des fluorophores caractéristiques de la MOD des eaux brutes de la STEU « Seine Centre ». L'application d'une version automatique et en ligne de l'algorithme de décomposition des spectres PARAFAC est, à notre connaissance, encore en développement et non disponible à ce jour. Dans l'objectif de transférer cette méthode aux acteurs opérationnels du secteur du traitement des eaux usées, celle-ci doit être simplifiée et si possible, automatisée. Pour contourner cette limitation, nous avons introduit une approche de type *peak-picking* basée sur la localisation du couple de longueurs d'onde d'excitation-émission du maximum de fluorescence des composantes PARAFAC des eaux usées en entrée de la STEU « Seine Centre ». Seuls les meilleurs modèles de prédictions sont présentés ci-après. Une étude statistique plus approfondie est présentée dans la thèse de GOFFIN (2017).

## 2.2.1 Construction des modèles de prédiction dans les eaux usées du bassin versant ouest parisien (STEU « Seine Centre »)

### 2.2.1.1 Cas de la DCO soluble

De tous les indices de fluorescence testés, les scores PARAFAC de la composante C1 de type tyrosine, présentent le coefficient de corrélation le plus élevé avec la DCO soluble ( $r^2=0,829$  ;  $p<0,0001$  ;  $n=62$ ). Les intensités de fluorescence mesurées aux couples de longueurs d'onde de la composante C1 ( $\lambda_{\text{ex/em}} = 275/304$  nm) ont été extraites des spectres de fluorescence 3D d'eau brute de la STEU « Seine Centre » ( $n=62$ ), puis utilisées pour construire le modèle de prédiction de la DCO soluble suivant :  $\text{DCO soluble (mgO}_2\text{.L}^{-1}) = 22,92 * \text{C1 Ex-Em} + 16,93$ , avec  $r^2=0,825$  ;  $p<0,0001$  (Figure 2). Une bonne qualité de prédiction est obtenue signifiant que la localisation des longueurs d'onde d'Ex-Em de C1 peut être utilisée comme un indicateur pour contrôler l'abattement de la MO dégradables au long du traitement.



**Figure 2 : Corrélation entre la DCO soluble observée et les valeurs prédites (basée sur l'intensité de fluorescence aux couples d'Ex/Em de C1) par régression linéaire simple dans les eaux brutes de la STEU « Seine Centre » ( $n=62$ ) (lignes noires: intervalle de prédiction à 95 %; lignes grises : intervalle de confiance à 95 %)**

### 2.2.1.1 Cas de la DBO<sub>5</sub> soluble

A l'inverse du modèle de prédiction de la DCO soluble, le meilleur modèle de prédiction de la DBO<sub>5</sub> soluble fait intervenir plusieurs indices de fluorescence. Au score de la composante C1 ( $r^2=0,746$  ;  $p<0,001$ ) ont été ajoutés le ratio C3/C5 ( $r^2=0,001$  ;  $p<0,05$ ) et le BIX ( $r^2=0,182$  ;  $p<0,01$ ) permettant un bon potentiel de prédiction de la DBO<sub>5</sub> soluble (modèle basé sur les scores PARAFAC:  $r^2=0,863$  ;  $r^2$  ajusté= $0,857$  ;  $p<0,0001$  ;  $n=62$ ). L'ajout de ces deux indices relatifs à l'évaluation du type de MO en présence (BIX : indicateur de l'origine biologique ; C3/C5 : ratio de composés de type tryptophane sur composés de type substances humiques) permet d'incorporer dans le modèle des variations de qualité de la MO. De plus, comme l'intensité de fluorescence des eaux usées est principalement dominée par des composés fluorescents de type protéine, il semble cohérent que la qualité des eaux usées soit aussi contrôlée par ces composés.



Le modèle de régression linéaire multiple basé sur l'intensité de fluorescence mesurée aux couples de longueurs d'onde des composantes C1, C3 et C5 ainsi que le calcul du BIX, permet d'obtenir le modèle de prédiction suivant (Figure 3) :  $[\text{DBO}_5 \text{ soluble}] \text{ (mgO}_2\text{.L}^{-1}) = 10,71 * \text{C1 Ex-Em} - 8,21 * (\text{C3 Ex-Em}/\text{C5 Ex-Em}) - 94,36 * \text{BIX} + 111,60$  ; avec  $r^2=0,803$  ;  $r^2 \text{ ajusté}=0,792$  ;  $p<0,0001$ . Ces résultats valident le potentiel d'application *in situ* de ces modèles dans les eaux usées de la STEU « Seine Centre ».

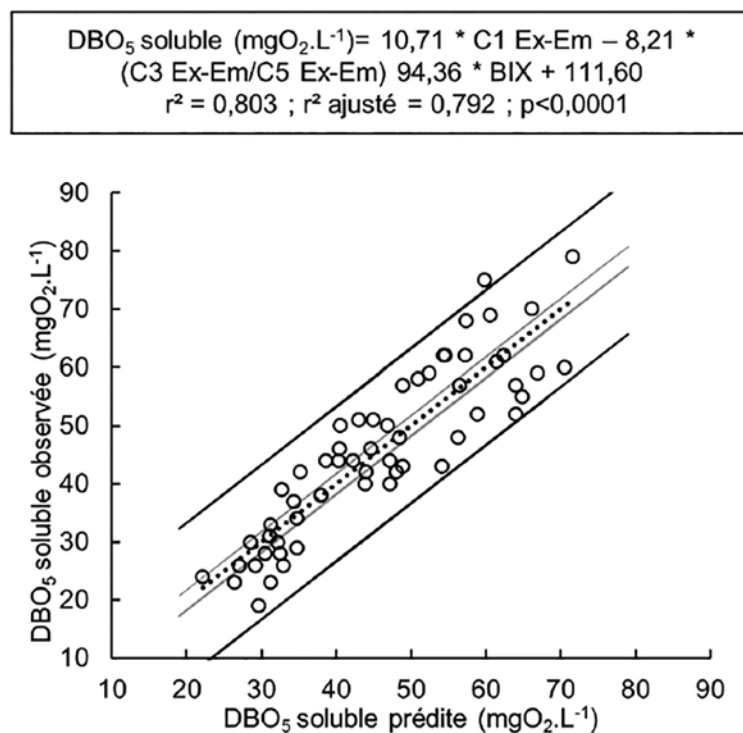


Figure 3 : Corrélation entre la  $\text{DBO}_5$  soluble observée et les valeurs prédites de  $\text{DBO}_5$  soluble (basée sur l'Ex/Em de C1, C3 et C5) par régression linéaire multiple dans les eaux usées de la STEU « Seine Centre » ( $n=62$ ) (lignes noires : intervalle de prédiction à 95 % ; lignes grises : intervalle de confiance à 95 %)

### 2.2.2 Validation des modèles de prédiction dans les eaux résiduaires urbaines à l'échelle du réseau d'assainissement parisien

Après identification des fluorophores caractéristiques des eaux brutes de la STEU « Seine Centre » ainsi que des modèles de prédictions de la DCO soluble et de la  $\text{DBO}_5$  soluble pour ces mêmes eaux, la généralisation de ces modèles à l'échelle du réseau d'assainissement parisien est abordée ici. Pour ce faire, l'approche *peak-picking* basée sur la localisation des composantes PARAFAC identifiées précédemment a été appliquée à des échantillons d'eau brute provenant de six STEU parisiennes ( $n=83$ ) : « Marne Aval », « Seine Morée », « Seine Centre », « Seine Valenton », « Seine Aval » et « Seine Grésillons ».

Dans le cas de la DCO soluble, l'équation de prédiction suivante est obtenue :  $\text{DCO soluble (mgO}_2\text{.L}^{-1}) = 21,47 * \text{C1 Ex-Em} + 24,77$  ; avec un coefficient de régression de Pearson  $r^2=0,785$  ( $p<0,001$ ). La Figure 4 illustre le potentiel de la spectrométrie de fluorescence pour prédire la DCO soluble grâce à un modèle de régression linéaire simple développé pour les eaux brutes des six STEU parisiennes. De la même façon, la  $\text{DBO}_5$  soluble peut être prédite en utilisant les intensités de fluorescences obtenues pour les longueurs d'onde de C1 ( $\lambda_{\text{Ex/Em}} = 275/304 \text{ nm}$ ), C3 ( $\lambda_{\text{Ex/Em}} = 275/378 \text{ nm}$ ) et C5 ( $\lambda_{\text{Ex/Em}} = 360/434 \text{ nm}$ ), ainsi qu'en utilisant les résultats de mesure du BIX. L'équation de prédiction suivante est alors obtenue :  $\text{DBO}_5 \text{ soluble (mgO}_2\text{.L}^{-1}) = 11,04 * \text{C1 Ex-Em} - 5,73 * \text{C3 Ex-Em}/\text{C5 Ex-Em} - 48,99 * \text{BIX} + 63,96$  ; avec un coefficient de régression de Pearson de  $r^2=0,846$  et un  $r^2 \text{ ajusté}=0,839$  ( $p<0,001$ ). La Figure 5 présente le modèle de prédiction de la  $\text{DBO}_5$  soluble basée sur une régression linéaire multiple développée pour les eaux usées des six STEU parisiennes.

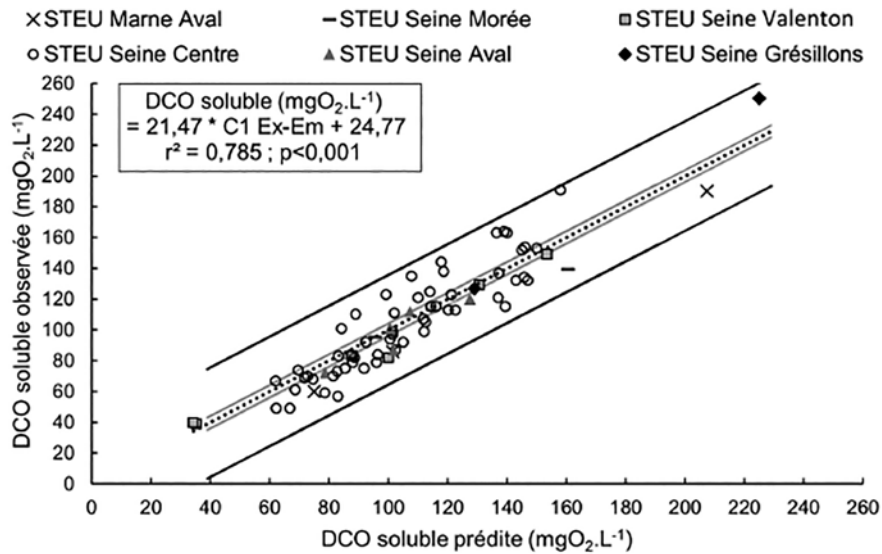


Figure 4 : Corrélation entre la DCO soluble mesurée et prédite (basée sur l'Ex/Em de C1) par régression linéaire simple dans les eaux usées de six STEU parisiennes (n=83) (lignes noires : intervalle de prédiction à 95 % ; lignes grises : intervalle de confiance à 95 %)

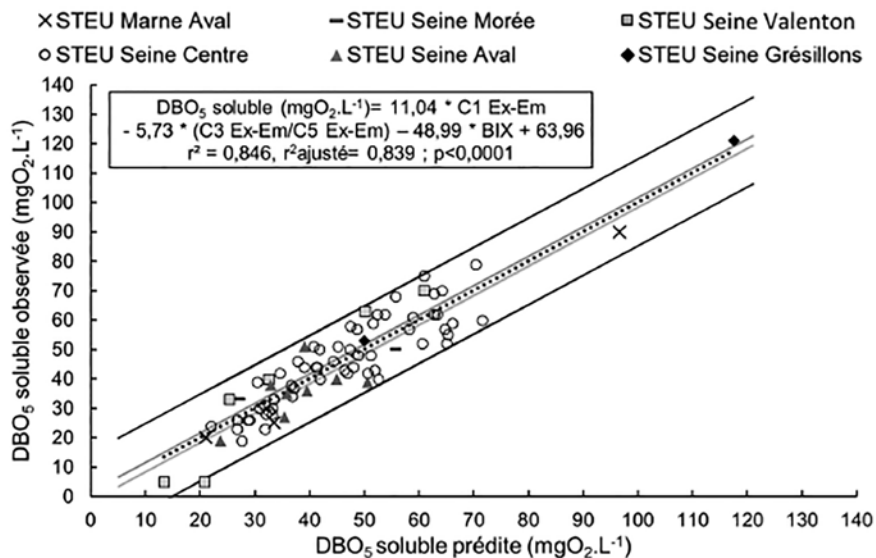


Figure 5 : Corrélation entre la DBO<sub>5</sub> soluble mesurée et prédite (basée sur l'Ex/Em de C1, C3 et C5) par régression linéaire multiple dans les eaux usées de six STEU parisiennes (n=83) (lignes noires : intervalle de prédiction à 95 % ; lignes grises : intervalle de confiance à 95 %)

Comme démontré ci-dessus, les modèles de prédiction de la DCO soluble et de la DBO<sub>5</sub> soluble ont été appliqués avec succès aux eaux usées issues de six STEU parisiennes. Employer l'approche PARAFAC a permis de définir une localisation plus précise (Ex/Em) des maximums d'intensités de fluorescence qui peuvent être utilisés pour construire des modèles de prédiction fiables. Ces modèles peuvent ainsi servir de base pour mettre en place un suivi en ligne de la DCO soluble et de la DBO<sub>5</sub> soluble dans les eaux usées.

## Conclusion

Six composantes de fluorescence PARAFAC ont été identifiées dans les eaux usées permettant une meilleure caractérisation de la MOD des eaux usées. Trois composantes (C4, C5 et C6) ont été attribuées aux composés fluorescents de type substances humiques de différentes maturités, alors que les trois autres composantes de fluorescences (C1, C2 et C3) sont associées aux composés de type protéine.

La DCO soluble des eaux usées peut être prédite via un modèle linéaire simple avec les scores de la composante C1 liée aux composés de type tyrosine (C1) ( $r^2=0,829$  ;  $p<0,0001$  ;  $n=62$ ). La DBO<sub>5</sub> soluble peut être prédite par un modèle linéaire multiple faisant intervenir les scores de la composante C1 ainsi que le ratio C3/C5 et le BIX ( $r^2=0,863$  ;  $r^2$  ajusté=0,857 ;  $p<0,0001$  ;  $n=62$ ). Étant donné que la méthode PARAFAC n'est pas automatisable à l'heure actuelle, des modèles de prédiction basés sur la localisation des maximums de fluorescence (Ex-Em) des composantes PARAFAC identifiées ont été développés. Le coefficient de détermination de Pearson obtenu pour la prédiction de la DCO soluble est de 0,825 ( $p<0,0001$  ;  $n=62$ ). Dans le cas de la DBO<sub>5</sub> soluble, celui-ci est de 0,803 ; avec un  $r^2$  ajusté de 0,792 ; ( $p<0,0001$  ;  $n=62$ ). Ainsi le potentiel d'application *in situ* de ces modèles de prédiction a été démontré avec succès pour les eaux usées du bassin ouest-parisien (entrée de la STEU « Seine Centre »). Ces modèles ont été généralisés aux eaux usées issues du bassin parisien (six STEU parisiennes,  $n=83$ ). Un coefficient de détermination de Pearson de 0,785 ( $p<0,0001$  ;  $n=83$ ) a été obtenu pour la DCO soluble. Pour la DBO<sub>5</sub> soluble, celui-ci est de 0,846 avec un  $r^2$  ajusté=0,839 ( $p<0,001$  ;  $n=83$ ). En outre, les modèles mis en évidence par cette étude peuvent également être utilisés pour une mesure en laboratoire rapide, simple et peu onéreuse.

Cette méthode de *peak-picking*, dérivée des composantes PARAFAC identifiées précédemment, est simple, facile à automatiser et applicable au domaine opérationnel du traitement des eaux usées pour une surveillance en ligne à haute fréquence (durée de la mesure de l'ordre de la minute) et écologique de la DCO soluble et de la DBO<sub>5</sub> soluble dans le but de réduire les coûts énergétiques des STEU (réactifs chimiques, pompage et aération) et de mieux contrôler les processus de traitement. La transposition de ces modèles de prédiction à d'autres bassins versants urbains doit cependant être traitée avec prudence, car la MOD des eaux usées brutes est fortement influencée par le type de réseau d'assainissement et l'origine des eaux usées (industrielles, pluviales, etc.). Une analyse PARAFAC des matrices Ex-Em doit être effectuée dans un premier temps sur quelques dizaines d'échantillons afin de mettre en évidence les composantes de fluorescence spécifiques des eaux usées étudiées. Les composantes de fluorescence sélectionnées peuvent ensuite être utilisées pour construire des modèles de prévisions de la DCO et de la DBO<sub>5</sub> soluble. En outre des applications développées dans cet article, d'autres utilisations de la spectrométrie de fluorescence 3D sont actuellement en développement, telles que la définition d'indicateurs de fluorescence permettant de définir des potentiels de moussage/colmatage des différents influents/effluents de STEU.

## Remerciements

Les auteurs remercient le ministère français de la Recherche et le programme de recherche Mocopée pour leurs supports. Les auteurs remercient également le personnel de la Direction Innovation Environnement du Siaap pour sa contribution à ce projet, et notamment Elise Alibert et les équipes du laboratoire d'analyses.

### POUR EN SAVOIR PLUS

› GOFFIN A. (2017) : *Potentiel d'utilisation de la spectrofluorimétrie 3D pour la caractérisation en ligne de la matière organique dissoute : de la station d'épuration au milieu récepteur* [thèse]. Université Paris-Est Créteil, 286 p.

› GOFFIN A., GUERIN-RECHDAOUI S., ROCHER V., VARRAULT G. (2018) : « Towards a better control of the wastewater treatment process : excitation-emission matrix fluorescence spectroscopy of dissolved organic matter as a predictive tool of soluble BOD5 in influents of six Parisian wastewater treatment plants ». *Environmental Science and Pollution Research* ; 25 : 8765.

## Bibliographie

- AHMAD S.R., REYNOLDS D.M. (1995) : « Synchronous fluorescence spectroscopy of wastewater and some potential constituents ». *Water Research* ; 29(6) : 1599-1602.
- ALBERTS J.J., TAKÁCS M. (2004) : « Comparison of the natural fluorescence distribution among size fractions of terrestrial fulvic and humic acids and aquatic natural organic matter ». *Organic Geochemistry* ; 35(10) : 1141-1149.
- BIEROZA M., BAKER A., BRIDGEMAN J. (2011) : « Classification and calibration of organic matter fluorescence data with multiway analysis methods and artificial neural networks: an operational tool for improved drinking water treatment. *Environmetrics* ; 22(3) : 256-270.
- BOURGEOIS W., BURGESS J.E., STUETZ R.M. (2001) : « On-line monitoring of wastewater quality: a review ». *Journal of chemical technology and biotechnology* ; 76(4) : 337-348.
- BRIDGEMAN J., BAKER A., CARLIELL-MARQUET C., CARSTEAN E. (2013) : « Determination of changes in wastewater quality through a treatment works using fluorescence spectroscopy ». *Environmental Technology* ; 34(23) : 3069-3077.
- BRO R. (1998) : « Multi-way analysis in the food industry ». *Models Algorithms and Applications*. [Thèse] Université d'Amsterdam.
- CARSTEAN E.M., BRIDGEMAN J., BAKER A., REYNOLDS D.M. (2016) : « Fluorescence spectroscopy for wastewater monitoring: A review ». *Water Research* ; 95 : 205-219.
- CHONG S., AZIZ A., HARUN S. (2013) : « Fibre Optic Sensors for Selected Wastewater Characteristics ». *Sensors* ; 13(7) : 8640-8668.
- COBLE P.G. (1996) : « Characterization of marine and terrestrial DOM in seawater using excitation-emission matrix spectroscopy ». *Marine Chemistry* ; 51(4) : 325-346.
- COHEN E., LEVY G.J., BORISOVER M. (2014) : « Fluorescent components of organic matter in wastewater: Efficacy and selectivity of the water treatment ». *Water Research* ; 55 : 323-334.
- DETERMANN S., LOBBESAB J.M., REUTERA R., RULLKÖTTERB J. (1998) : « Ultraviolet fluorescence excitation and emission spectroscopy of marine algae and bacteria ». *Marine Chemistry* ; 62(1-2) : 137-156.
- GALLERT C., WINTER J. (2004) : *Bacterial Metabolism in Wastewater Treatment Systems, in Environmental Biotechnology: Concepts and Applications*. Wiley-VCH, Weinheim.
- GOFFIN A. (2017) : *Potentiel d'utilisation de la spectrofluorimétrie 3D pour la caractérisation en ligne de la matière organique dissoute : de la station d'épuration au milieu récepteur* [thèse]. Créteil : Université Paris-Est, 286 p.
- GOFFIN A., GUERIN S., ROCHER V., VARRAULT G. (2018) : « Towards a better control of the wastewater treatment process: excitation-emission matrix fluorescence spectroscopy of dissolved organic matter as a predictive tool of soluble BOD5 in influents of six Parisian wastewater treatment plants ». *Environmental Science and Pollution Research* ; 25 : 8765-8776.
- GUO W., XU J., WANG J., WEN Y., ZHUO J., YAN Y. (2010) : « Characterization of dissolved organic matter in urban sewage using excitation emission matrix fluorescence spectroscopy and parallel factor analysis ». *Journal of Environmental Sciences* ; 22(11) : 1728-1734.
- HAMBLY A.C., HENDERSON R.K., STOREY M.V., BAKER A., STUETZ R.M., KHAN S.J. (2010) : « Fluorescence monitoring at a recycled water treatment plant and associated dual distribution system – Implications for cross-connection detection ». *Water Research* ; 44(18) : 5323-5333.
- HENDERSON R.K., BAKER A., MURPHY K.R., HAMBLY A., STUETZ R.M., KHAN S.J. (2009) : « Fluorescence as a potential monitoring tool for recycled water systems: A review ». *Water Research* ; 43(4) : 863-881.

- › HUGUET A., BALMANN H.R., PARLANTI E. (2009) : « Fluorescence spectroscopy applied to the optimisation of a desalting step by electrodialysis for the characterisation of marine organic matter ». *Journal of Membrane Science* ; 326 : 186-196.
- › ISHII S.K.L., BOYER T.H. (2012) : « Behavior of Reoccurring PARAFAC Components in Fluorescent Dissolved Organic Matter in Natural and Engineered Systems: A Critical Review ». *Environmental Science & Technology* ; 46(4) : 2006-2017.
- › LAKOWICZ J.R. (2006) : *Principles of fluorescence spectroscopy*. New York: Springer.
- › LAWAETZ A.J., STEDMON C.A. (2009) : « Fluorescence intensity calibration using the Raman scatter peak of water ». *Applied spectroscopy* ; 63(8) : 936-940.
- › LI J., LUO G., HE L., XU J., LYU J. (2017) : « Analytical approaches for determining chemical oxygen demand in water bodies: A review ». *Critical reviews in analytical chemistry*.
- › MOENS P.D.J., HELMS M.K., JAMESON D.M. (2004) : « Detection of Tryptophan to Tryptophan Energy Transfer in Proteins ». *The Protein Journal* ; 23(1) : 79-83.
- › MURPHY K.R., HAMBLY A., SINGH S., HENDERSON R.K., BAKER A., STUETZ R., KHAN S.J. (2011) : « Organic Matter Fluorescence in Municipal Water Recycling Schemes: Toward a Unified PARAFAC Model ». *Environmental Science & Technology* ; 45(7) : 2909-2916.
- › MURPHY K.R., STEDMON C.A., GRAEBER D., BRO R. (2013) : « Fluorescence spectroscopy and multi-way techniques: PARAFAC ». *Analytical Methods* ; 5(23) : 6557.
- › OU H.S., WEI C.H., MO C.H., WU H.Z., REN Y., FENG C.H. (2014) : « Novel insights into anoxic/aerobic1/aerobic2 biological fluidized-bed system for coke wastewater treatment by fluorescence excitation-emission matrix spectra coupled with parallel factor analysis ». *Chemosphere* ; 113 : 158-164.
- › PARLANTI E., WÖRZ K., GEOFFROY L., LAMOTTE M. (2000) : « Dissolved organic matter fluorescence spectroscopy as a tool to estimate biological activity in a coastal zone submitted to anthropogenic inputs ». *Organic Geochemistry* ; 31(12) , 1765-1781.
- › REYNOLDS D.M., AHMAD S.R. (1997) : « Rapid and direct determination of wastewater BOD values using a fluorescence technique ». *Water Research* ; 31(8) : 2012-2018.
- › REYNOLDS D. (2003) : « Shedding light on water quality: prospect for real-time control ». *Water Science and Technology: Water Supply* ; 3(1) : 247-253.
- › RIOPEL R., CARON F., SIEMANN S. (2014) : « Fluorescence Characterization of Natural Organic Matter at a Northern Ontario Wastewater Treatment Plant ». *Water, Air, & Soil Pollution* ; 225.
- › ROCHER V., LAVERMAN A.M., GASPERI J., AZIMI S., GUERIN S., MOTTELET S., VILLIERES T., PAUSS A. (2015) : « Nitrite accumulation during denitrification depends on the carbon quality and quantity in wastewater treatment with biofilters ». *Environmental Science and Pollution Research* ; 22(13) : 10179-10188.
- › SAPORTA G. (2006) : *Probabilités, analyse des données et statistique*. Ed.TECHNIP. 656 p.
- › SERVAIS P., ANZIL A., VENTRESQUE C. (1989) : « Simple method for determination of biodegradable dissolved organic carbon in water ». *Applied and Environmental Microbiology* ; 55 : 2732-2734.
- › STEDMON C.A., BRO R. (2008) : « Characterizing dissolved organic matter fluorescence with parallel factor analysis: a tutorial ». *Limnology and Oceanography: Methods* ; 6(11) : 572-579.
- › TAKAHASHI M., KAWAMURA K. (2007) : « Simple Measurement of 4,4'-bis(2-sulfostyryl)-biphenyl in River Water by Fluorescence Analysis and Its Application as an Indicator of Domestic Wastewater Contamination ». *Water, Air, and Soil Pollution* ; 180(1-4) : 39-49.
- › WATRAS C.J., HANSON P.C., STACY TL., MORRISON K.M., MATHER J., HU Y.H., MILEWSKI P. (2011) : « A temperature compensation method for CDOM fluorescence sensors in freshwater: CDOM temperature compensation ». *Limnology and Oceanography: Methods* ; 9(7) : 296-301.



- WÜNSCH U.J., MURPHY K.R., STEDMON C.A. (2015) : « Fluorescence Quantum Yields of Natural Organic Matter and Organic Compounds: Implication for the Fluorescence-based Interpretation of Organic Matter Composition ». *Frontiers in Marine Science* ; 2 : 98.
- YANG L., SHIN H.S., HUR J. (2014) : « Estimating the Concentration and Biodegradability of Organic Matter in 22 Wastewater Treatment Plants Using Fluorescence Excitation Emission Matrices and Parallel Factor Analysis ». *Sensors* ; 14(1) : 1771-1786.
- YANG L., HUR J., ZHUANG W. (2015) : « Occurrence and behaviors of fluorescence EEM-PARAFAC components in drinking water and wastewater treatment systems and their applications: a review ». *Environmental Science and Pollution Research* ; 22(9) : 6500-6510.
- YU H., SONG Y., TU X., DU E., LIU R., PENG J. (2013) : « Assessing removal efficiency of dissolved organic matter in wastewater treatment using fluorescence excitation emission matrices with parallel factor analysis and second derivative synchronous fluorescence ». *Bioresource Technology* ; 144 : 595-601.
- YU H., SONG Y., LIU R., PAN H., XIANG L., QIAN F. (2014) : « Identifying changes in dissolved organic matter content and characteristics by fluorescence spectroscopy coupled with self-organizing map and classification and regression tree analysis during wastewater treatment ». *Chemosphere* ; 113 : 79-86.



# Utilisation des mesures interfaciales pour anticiper la formation de mousse lors du traitement des eaux usées et des jus de digestion

## *Use of interfacial measurements to anticipate foam formation during wastewater and digestion juices treatment*

Manel Larachiche<sup>[1]\*</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[2]</sup>, Vincent Rocher<sup>[2]</sup>, Alla Nesterenko<sup>[1]</sup>, Isabelle Pezron<sup>[1]</sup>, André Pauss<sup>[1]</sup>, Audrey Drelich<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Sorbonne Universités, Université de Technologie de Compiègne (UTC), EA 4297 TIMR, Compiègne

<sup>[2]</sup> Siaap, Direction Développement Prospective, Colombes

\* Auteur de correspondance : manel.larachiche@utc.fr



*La formation intense de mousse dans les STEP est un problème imprévisible, récurrent et coûteux à traiter. Ce phénomène concerne principalement les premières étapes de traitement biologique et surtout les ouvrages de traitement biologique des jus de traitement des boues ; il est lié à la présence d'une diversité de molécules amphiphiles ou encore de particules hydrophobes, qui ont la capacité de s'adsorber aux interfaces des bulles de gaz de l'aération pour les stabiliser et créer la mousse.*

*Les travaux de recherche appliquée présentés dans ce chapitre et entrepris dans le cadre de l'axe 1 du programme Mocopée, illustrent une nouvelle stratégie d'exploitation qui vise à mesurer en temps réel et in situ les propriétés physico-chimiques des eaux usées afin de mieux comprendre et caractériser la moussabilité des effluents et pour pouvoir anticiper les épisodes de moussage. Cette prédiction assurera une meilleure gestion et adaptation du pilotage des STEP en cas de risque de moussage.*

*Les résultats montrent que la mesure de la tension de surface dynamique des effluents étudiés permet de détecter et anticiper leur aptitude à mousser et que la composition de l'effluent a un impact significatif sur sa moussabilité. Quant à la capacité moussante, elle semble être due à la présence de molécules amphiphiles capables de diffuser et de s'adsorber très lentement aux interfaces des bulles d'air.*

## Moussage - Interfaces - Traitement des eaux - Jus de digestion

### Introduction

Dans le but de moderniser et d'améliorer les ouvrages d'assainissement et de respecter la réglementation de plus en plus drastique, de nouvelles technologies performantes axées sur le traitement biologique des eaux résiduaires et des sous-produits ont été intégrées dans les stations d'épuration des principales agglomérations françaises. Il s'agit des biofiltres, des bioréacteurs à membranes, de traitement biologique des jus, etc. Si ces technologies intensives permettent de maintenir une haute qualité de traitement, leur pilotage nécessite en revanche un haut niveau d'expertise technico-scientifique et une métrologie adaptée.

Ces technologies peuvent être sujettes à un type de problème, consigné pour la première fois en 1969 dans le cadre des procédés à boues activées (FRYER *et al.*, 2012). Il s'agit de la formation imprévisible et intensive de mousse stable, qui réduit le transfert d'oxygène, diminue la qualité de l'effluent, ou encore augmente le risque de contamination potentielle des milieux voisins par des bactéries pathogènes, etc. Bien que les apparitions de mousses soient récurrentes au sein des stations de traitements des eaux usées, les travaux et connaissances sur ce phénomène restent très théoriques et les solutions privilégiées sont essentiellement curatives. Il est d'usage d'utiliser par exemple des anti-mousses de manière systématique et de façon continue au niveau des zones à

risque, et des arrêts complets de station sont envisagés en cas d'épisodes trop intensifs. Ces pratiques ont non seulement un impact significatif sur l'environnement, mais engendrent une augmentation considérable du coût d'entretien et de fonctionnement des installations touchées (HEARD *et al.*, 2008 ; SEVIOUR *et al.*, 2012). La problématique du moussage a fait l'objet de nombreuses études au cours des 40 dernières années (CHUDOBA *et al.*, 1974 ; JENKINS *et al.*, 2003), cependant, très peu de travaux ont été menés spécifiquement dans le domaine du traitement des eaux résiduaires urbaines. Une analyse bibliographique montre que le nombre de publications concernant les problèmes de moussage dans les stations d'épuration augmente régulièrement ces dernières années, ce qui témoigne de l'importance accordée à cette problématique dans le domaine du traitement des eaux résiduaires ainsi que de la difficulté de la résoudre. À l'heure actuelle, aucune conclusion ne permet d'anticiper le moussage dans les stations d'épuration.

Ce projet, intégré dans l'axe 1 du programme de recherche Mocopée, vise deux objectifs. D'une part, il vise à mieux cerner les mécanismes à l'origine de la formation de la mousse au sein des systèmes de traitement des eaux usées. D'autre part, il vise à proposer des systèmes métrologiques permettant d'anticiper le phénomène d'apparition de mousses et ainsi être capable d'adapter le pilotage des systèmes de traitement, et notamment l'aération et l'agitation, en prenant en compte le critère « risque de moussage ».

## 2. État de l'art

D'un point de vue théorique, la mousse est un ensemble de bulles de gaz séparées par des films liquides minces appelés aussi lamelles. La formation de la mousse implique donc la dispersion d'un gaz dans un liquide via une source de bulles de gaz, et est souvent associée à la présence dans la phase liquide de molécules amphiphiles (Figure 1) ou de matières en suspension capables de s'adsorber aux interfaces liquide/gaz et de stabiliser les bulles qui s'accumulent (CANTAT *et al.*, 2010 ; ROSEN *et al.*, 2012). Contrairement à la matière en suspension, les molécules amphiphiles ont la capacité de réduire la tension de surface lors de leur adsorption à l'interface liquide/gaz, ce qui permet en plus de stabiliser l'interface des bulles de gaz dans l'eau, de favoriser la formation de la mousse.

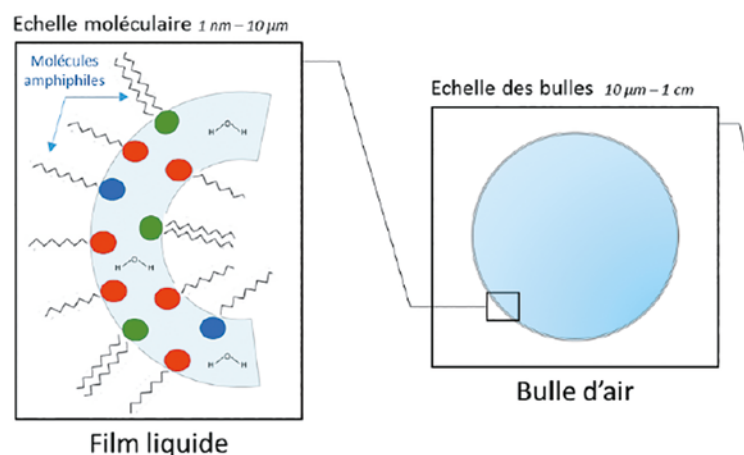


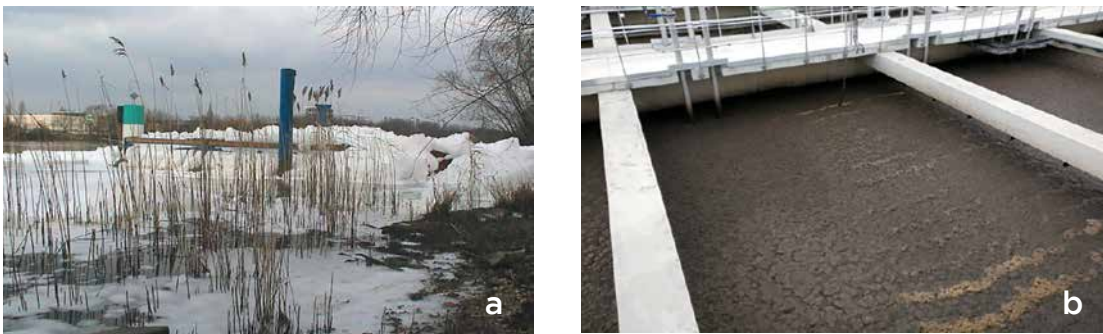
Figure 1 : Représentation d'une mousse aqueuse à différentes échelles

Les molécules amphiphiles peuvent être des détergents synthétiques (aussi appelés tensioactifs), des protéines, des acides gras, des phospholipides, des bio-surfactants, etc. Alors que la matière en suspension peut concerner des particules, des bactéries dont la paroi est hydrophobe, des floccs bactériens (aussi appelés polymères extracellulaires ou EPS), etc.

Les usines de traitement des eaux usées peuvent potentiellement fournir toutes les conditions requises pour la formation de ces mousses stables. En effet, les tensioactifs synthétiques tels que les détergents (DI BELLA *et al.*, 2011 ; HEARD, HARVEY, JOHNSON, WELLS et ANGOVE, 2008 ; MARA *et al.*, 2003) et les particules hydrophobes (BINDAL *et al.*, 2001 ; HEARD, HARVEY, JOHNSON, WELLS et ANGOVE, 2008 ; KAPTAY, 2003 ; MANEV *et*

*al.*, 2005 ; RALSTON *et al.*, 2001) peuvent entrer avec l'influent, tandis que les biosurfactants (PETROVSKI *et al.*, 2011), les polysaccharides extracellulaires (EPS) (Di BELLA, TORREGROSSA et VIVIANI, 2011) et les protéines (BURA *et al.*, 1998 ; WILÉN *et al.*, 2003) peuvent être produits directement in situ par des bactéries utilisées dans les bassins de traitement biologique, qui elles-mêmes peuvent être entraînées avec l'effluent et avoir une structure hydrophobe (DAVENPORT *et al.*, 2008) ou filamenteuse propice à la stabilisation des mousses (GOODFELLOW *et al.*, 2006 ; HEARD, HARVEY, JOHNSON, WELLS et ANGOVE, 2008 ; JENKINS, RICHARD et DAIGGER, 2003 ; SEVIOUR et BLACKALL, 2012 ; SODDELL *et al.*, 2006). Quant aux bulles de gaz, elles sont fournies par l'aération nécessairement mise en place pour la dégradation aérobie des bactéries dans les bassins de traitement biologique (HEARD, HARVEY, JOHNSON, WELLS et ANGOVE, 2008). Par ailleurs, les paramètres « procédés » tels que les carences en substrats (PUJOL, 1987) ou en oxygène (MAURINES-CARBONEILL *et al.*, 1998), la charge massique (PUJOL *et al.*, 1990) ou encore l'âge des boues (BROOKES *et al.*, 2003 ; LIAO *et al.*, 2001) peuvent également avoir une influence sur la production de ces molécules amphiphiles, et donc indirectement sur la formation de mousses stables.

D'après la littérature scientifique, trois types de mousses ont été observés dans les stations d'épuration : les mousses blanches et légères causées par l'excès de tensioactifs synthétiques dans l'effluent, les mousses transitoires associées à la mise en route de nouvelles unités ou marron formées lors des opérations de redémarrage des unités et enfin les mousses brunes visqueuses spontanées rencontrées à la surface des bassins biologiques lors du fonctionnement normal de la station (HEARD, HARVEY, JOHNSON, WELLS et ANGOVE, 2008).



**Figure 2 : Mousse (a) blanche observée en sortie de station d'épuration « Seine Centre » du Siaap (2000) et (b) brune visqueuse observée à la surface d'un bassin biologique d'une station d'épuration Seine Aval du Siaap (2017)**

### 3. Problématique, démarche et objectif

L'objectif des travaux entrepris dans le cadre du programme Mocopée est de comprendre et caractériser le phénomène de formation de mousse dans les eaux usées, afin de pouvoir anticiper la capacité à mousser des effluents réels. Pour cela il est nécessaire de développer des corrélations entre la capacité moussante et des propriétés physico-chimiques mesurables des effluents réels, valables quel que soit l'effluent. En effet, il est indispensable de s'affranchir de la composition des milieux, car les eaux usées et les jus de digestion sont des milieux complexes et vivants, dont la composition varie rapidement dans le temps et d'un site à l'autre.

La démarche scientifique envisagée consiste à étudier les propriétés interfaciales (tension de surface à l'équilibre et en dynamique) caractéristiques de la capacité d'adsorption des molécules amphiphiles, ainsi que les propriétés moussantes (capacité moussante et stabilité des mousses dans le temps) des effluents réels. Les résultats sont corrélés et comparés de façon systématique au comportement de solutions « modèles » de molécules amphiphiles dans le but de décomposer le système réel pour le simplifier et comprendre le rôle de chaque type de molécule sur le moussage.

Ce travail de recherche appliquée est de nature à catalyser l'innovation dans le secteur du traitement des eaux résiduaires urbaines et doit permettre de faire évoluer les pratiques de suivi du fonctionnement des STEP. En



effet, l'idée est de développer et d'intégrer à terme des outils, idéalement en ligne et rapides, de mesure de propriété interfaciale ou de la capacité moussante des effluents. Ces outils devraient permettre non seulement de mieux gérer l'utilisation des anti-mousses dans les procédés, mais également d'optimiser et d'adapter la conduite du procédé en vue et pendant les épisodes de moussage.

## 4. Mise en place expérimentale

Les effluents réels analysés pour cette étude ont été prélevés en différents points et sur différents sites industriels exploités par le Siaap, et sélectionnés afin de représenter un panel d'échantillons moussants et non moussants. Les molécules amphiphiles modèles ont été choisies afin de représenter des structures de tensioactifs synthétiques et de protéines rencontrées dans les effluents d'eaux usées. Le bromure de cétyltriméthylammonium, noté CTAB, est une molécule tensioactive cationique de petite taille (365 Da) très utilisée dans les produits ménagers et cosmétiques. L'albumine de sérum bovin, notée BSA, est une protéine commune de plus grande taille (66 kDa) et très stable. Ces solutions aqueuses modèles ont été préparées à leur concentration optimale de moussage d'après des tests préliminaires, soit à la Concentration Micellaire Critique, notée CMC, et à  $10 \times$  CMC.

Les mousses ont été formées et analysées en laboratoire via un générateur de mousse (DFA100, KRÜSS) qui reproduit la méthode de Bikerman modifiée (BIKERMAN, 1973). Cette méthode consiste à injecter de l'air ambiant avec un débit contrôlé, dans une colonne de liquide, via un fritté de porosité contrôlée (Figure 3). Cette méthode permet de mesurer la capacité moussante des effluents et de suivre la stabilité dans le temps de la mousse formée. Dans le cadre de cette étude, un débit de  $300 \text{ cm}^3/\text{min}$  d'air a été injecté pendant 30 secondes à travers un fritté d'une porosité P1 (100 à  $160 \mu\text{m}$ ) dans une colonne en verre contenant 50 mL de liquide. Ce protocole a été préalablement mis en place afin de reproduire le comportement des effluents réels observé sur site. Les propriétés interfaciales des milieux aqueux ont été mesurées en laboratoire à l'aide d'un tensiomètre (BP2, KRÜSS) par la méthode de la Pression Maximale de Bulle (DE GENNES *et al.*, 2015 ; KRÜSS). Cette méthode consiste à mesurer la tension de surface lors de la formation d'une bulle de gaz dans un milieu liquide (Figure 4), et permet d'avoir accès à la tension de surface dynamique (sur des temps très courts), corrélée à la diffusion des molécules amphiphiles dans le milieu liquide et donc indirectement à leur structure (taille).

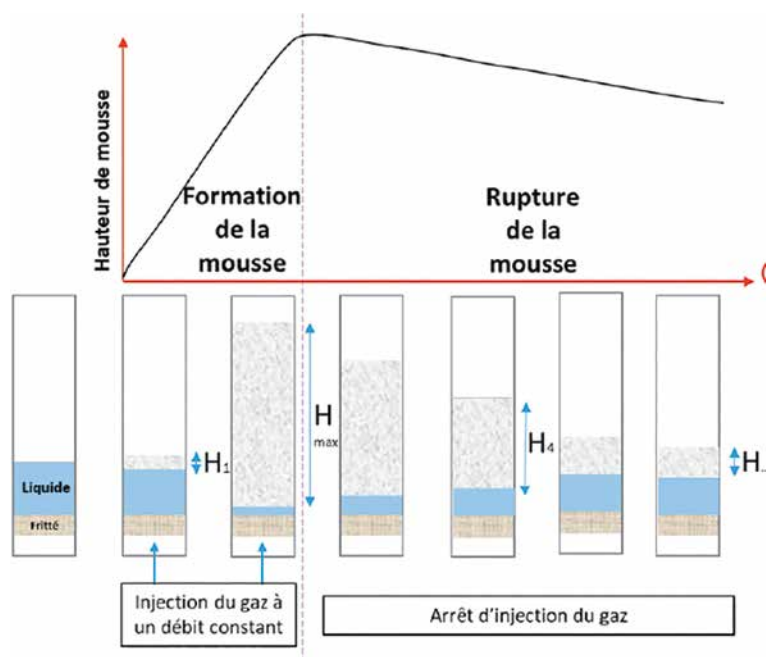


Figure 3 : Principe et dispositif de la méthode de Bikerman et du générateur de mousse DFA100 de KRÜSS

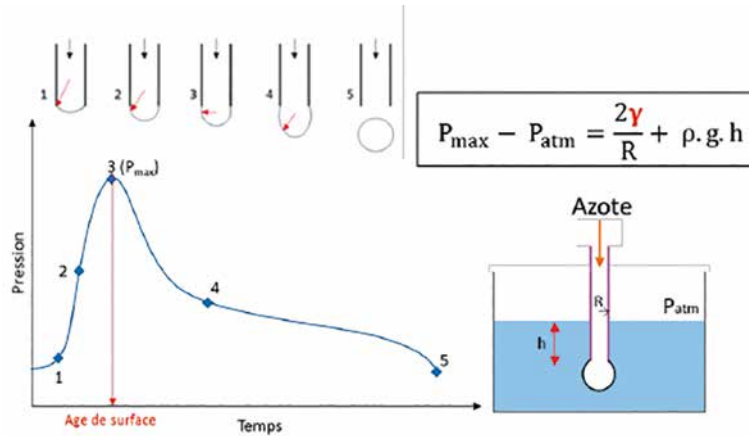


Figure 4 : Principe et dispositif de la méthode de la Pression maximale de bulle et du tensiomètre BP2 KRÜSS

Par ailleurs, un travail préliminaire concernant le vieillissement des effluents réels durant 3 mois a permis de montrer que les propriétés interfaciales et la capacité moussante des échantillons correctement conservés, soit réfrigérés à 4 °C, soit congelés à -22 °C, n'évoluent pas de façon significative dans le temps. Par conséquent, les échantillons prélevés sur site ont été systématiquement conservés par congélation avant d'être étudiés en laboratoire.

## 5. Résultats et discussion

L'étude présentée dans ce travail porte principalement sur deux types d'effluents présentant des problèmes de moussage dans les STEP gérées par le Siaap : un jus de digestion issu de la filière boues et une zone aérée du bassin de traitement biologique de la filière eaux. Dans le cadre de cet article, nous n'aborderons que le cas du jus de digestion.

L'effluent étudié, appelé Alimentation de Traitement Des Jus (noté Alim TDJ par la suite) est un jus de digestion spécifique à la station de Seine Aval (SAV). Il est issu principalement d'un conditionnement thermique extrême des boues de digestion à 200 °C et 21 bars pendant 45 minutes et d'une fraction de la partie liquide issue de l'épaisseur avant le traitement thermique (en 3. sur la Figure 5). Cet effluent, dont les caractéristiques sont reprises dans le Tableau 1, se caractérise par une température avoisinant 55 °C et un moussage permanent qui nécessite un refroidissement, un tamisage et l'utilisation d'anti-mousse en continu, avant d'être intégré dans le bassin biologique (en 6.4. sur la Figure 5). En sortie du traitement l'effluent est réinjecté en tête de station.

DBO <sub>5</sub> (mgO <sub>2</sub> /L)	DCO (mgO <sub>2</sub> /L)	MES (mg/L)	N NTK (mg N/L)	P total (mg P/L)	pH
1692	5265	982	1326	57,7	7 - 8

Tableau 1 : Caractéristiques de l'effluent Alim TDJ (données du Siaap)

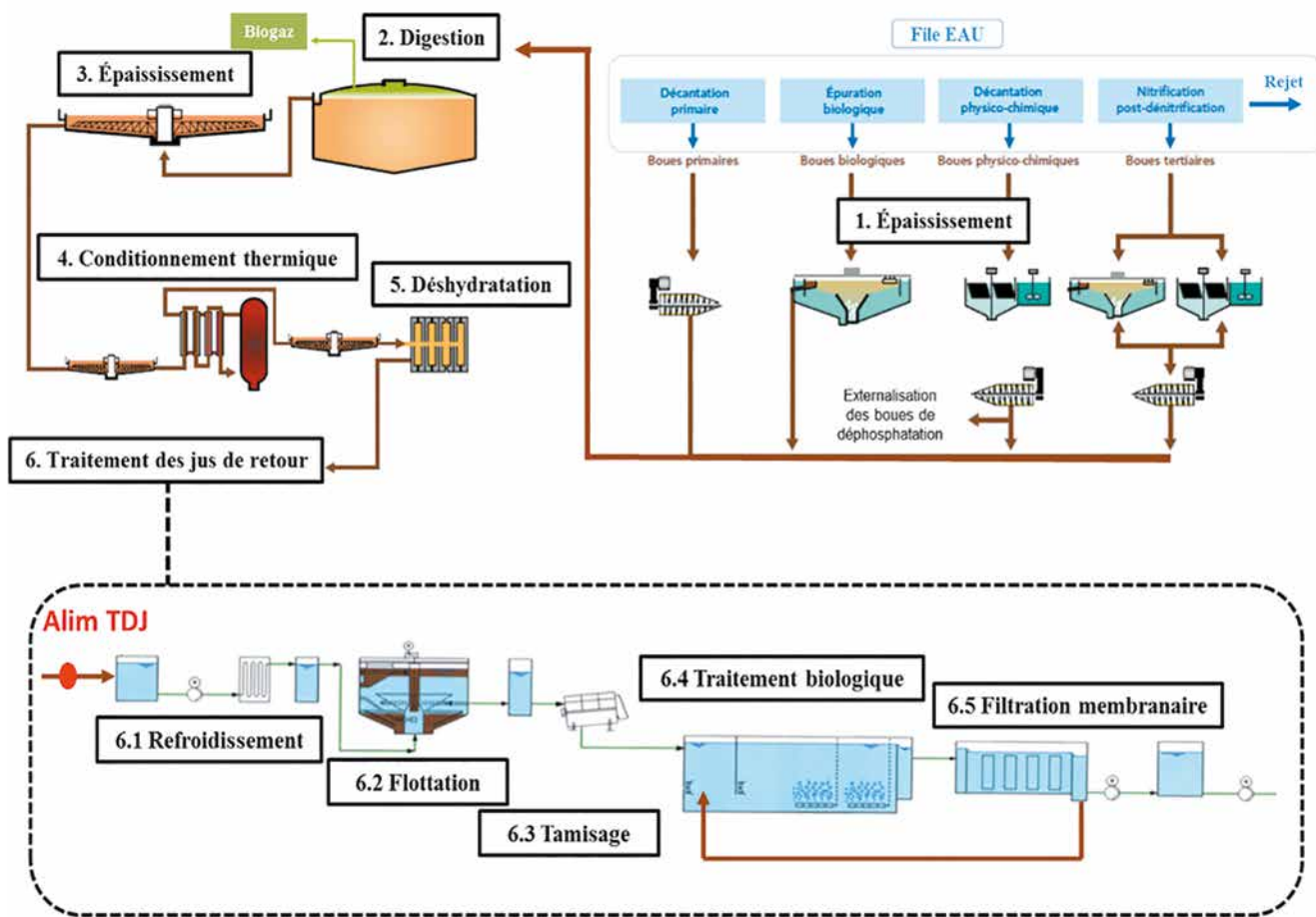


Figure 5 : Synopsis du traitement des boues et des jus de retour (Alimentation TDJ) dans la station de Seine Aval (Siaap)

Une première observation de cet effluent en microscopie optique (Figure 8) indique la présence de nombreuses particules (matières en suspension), mais très peu ou pas de bactéries filamenteuses et de matière vivante, ceci en raison du prétraitement thermique extrême.

Les propriétés interfaciales et la capacité moussante de cet effluent ont d'abord été comparées de façon systématique au comportement de solutions modèles de molécules amphiphiles, à l'eau déminéralisée, ainsi qu'à des effluents de la même STEP ne présentant pas de problématique de moussage sur site (Eau décantée et Eau de Rejet, voir Figure 6). Les résultats visibles sur la Figure 6 montrent que l'effluent problématique, noté Alim TDJ, présente une très bonne capacité moussante, équivalente à celle de la solution modèle de CTAB, mais une très faible stabilité de la mousse formée qui s'écroule rapidement à l'instar de la solution modèle de BSA. Notons également que les constatations faites en laboratoire reflètent bien le comportement des différents effluents sur site : l'effluent problématique moussant très bien tandis que l'Eau décantée et l'Eau de rejet ne présentent pas de potentiel moussant. De plus, la tension de surface de cet effluent semble être élevée au temps zéro puis diminuer progressivement mais lentement au court du temps, traduisant un comportement intermédiaire entre la protéine BSA et la molécule tensioactive CTAB. Tandis que les effluents non moussants, l'Eau décantée et l'Eau de rejet, sont caractérisés par une tension de surface très élevée identique à celle de l'eau pure ( $\approx 72$  mN/m), exempts de tout agent de surface. Ces résultats semblent indiquer que les molécules responsables de la formation de bulles (et de la mousse) dans l'effluent problématique diffusent très lentement à travers le milieu aqueux avant de venir se placer à l'interface des bulles d'air pour les stabiliser. Cette diffusion lente peut-être due à la taille élevée des molécules amphiphiles qui ralentirait leur mobilité ou à la présence de matière en suspension dans le milieu aqueux qui gênerait la progression des molécules amphiphiles, même de petites tailles.

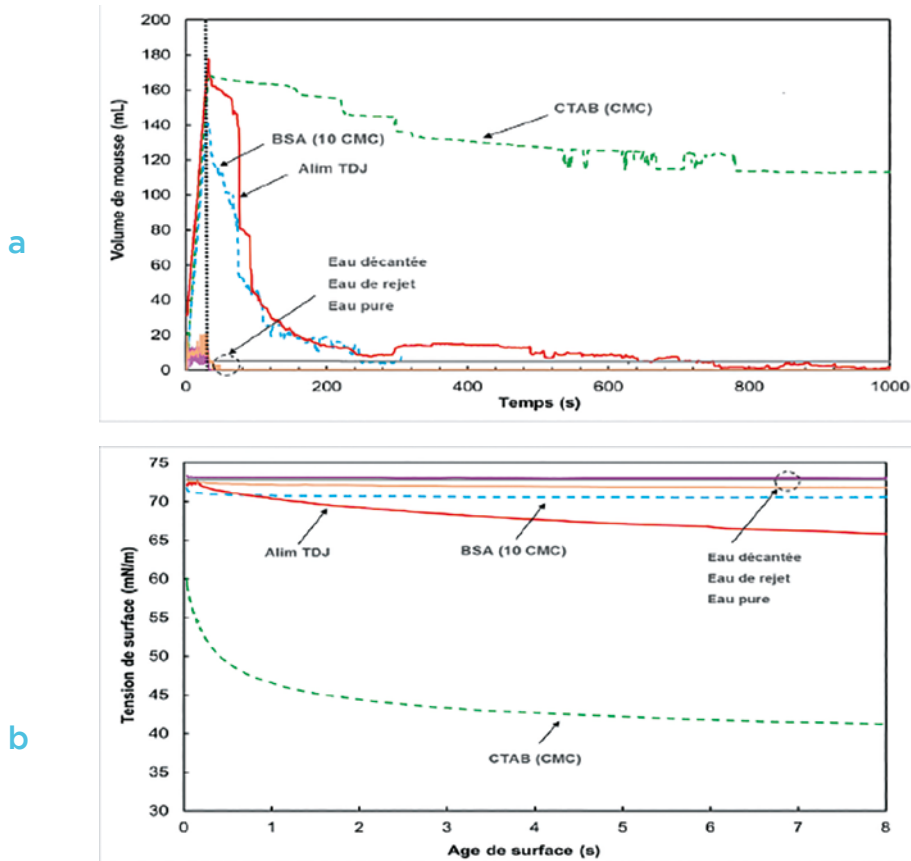


Figure 6 : Mesures représentatives de (a) la capacité moussante et (b) la tension superficielle dynamique de l'effluent de traitement des jus de Seine Aval (Alim TDJ) en comparaison avec des molécules amphiphiles et effluents modèles

Les propriétés interfaciales et la capacité moussante de cet effluent problématique ont ensuite été mesurées à différents taux de dilution (2, 5, 10 et 20), pour comprendre l'influence de la composition de l'effluent et vérifier l'effet de la concentration en molécules amphiphiles ou particules solides sur le moussage. Les résultats regroupés sur la Figure 7 indiquent d'abord que plus l'effluent est dilué, moins bonnes sont sa capacité moussante et la stabilité de sa mousse formée. Ces résultats indiquent également que plus l'effluent est dilué, plus la tension de surface reste proche de la tension de surface de l'eau pure et diminue plus lentement avec le temps. Ces résultats permettent de mettre en évidence que la capacité moussante de l'effluent est bien corrélée à une diminution de la tension de surface au temps court ; le suivi de la tension de surface dynamique est bien une grandeur physico-chimique qui permet de détecter l'aptitude à mousser de cet effluent. Ces résultats permettent également d'affirmer que la composition de l'effluent (concentration en molécules amphiphiles ou en particules solides) détermine son aptitude à mousser.

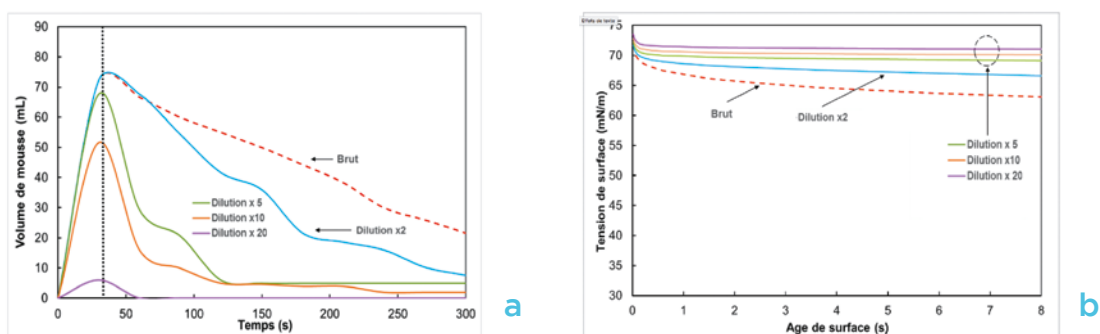


Figure 7 : Mesures représentatives de (a) la capacité moussante et (b) la tension superficielle dynamique de l'effluent de traitement des jus de Seine Aval (Alim TDJ) en fonction du taux de dilution

L'effluent de l'alimentation de traitement des jus étant très chargé en matière en suspension, il est également possible que les particules solides présentes dans la matière en suspension aient des propriétés hydrophobes permettant former à la surface des eaux usées des mousses stables appelées « mousses triphasiques ».

Par conséquent, l'effluent a été centrifugé à 10500 g pendant 15 min puis filtré ( $0,45 \mu\text{m}$ ) pour le débarrasser de la majorité des particules en suspension (Figure 8). Les propriétés interfaciales et la capacité de moussage de l'effluent brut et de l'effluent centrifugé/filtré ont ensuite été comparées. Les résultats présentés sur la Figure 9 montrent sans ambiguïté que la présence des particules de taille supérieure à  $0,45 \mu\text{m}$  ne semble pas influencer de manière significative la tension de surface au cours du temps ni la capacité moussante et la stabilité de la mousse formée par l'alimentation de traitement des jus. Les particules ayant été récupérées après centrifugation et filtration ont ensuite été introduites à raison de 0,5 g et 1 g par 50 mL, dans un effluent réel, l'Eau de rejet, non moussant et dont la tension de surface est très proche de celle de l'eau pure. Les résultats rassemblés sur la Figure 10 montrent également que les particules de taille supérieure à  $0,45 \mu\text{m}$  ne modifient pas de façon significative le comportement de cet effluent. Ces résultats montrent que les particules de la matière en suspension présentes dans l'effluent d'alimentation de traitement des jus ne semblent pas responsables de la formation de la mousse permanente observée sur site.

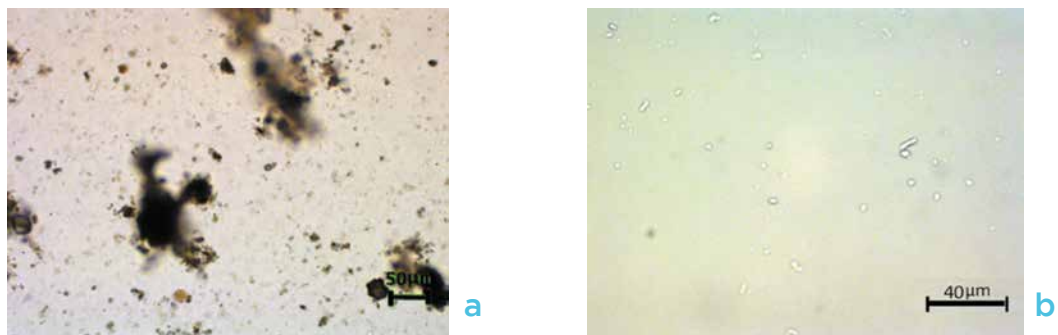


Figure 8 : Images représentatives de l'effluent Alimentation de traitement des jus (Alim TDJ) prises au microscope optique (a) brut et (b) après centrifugation et filtration

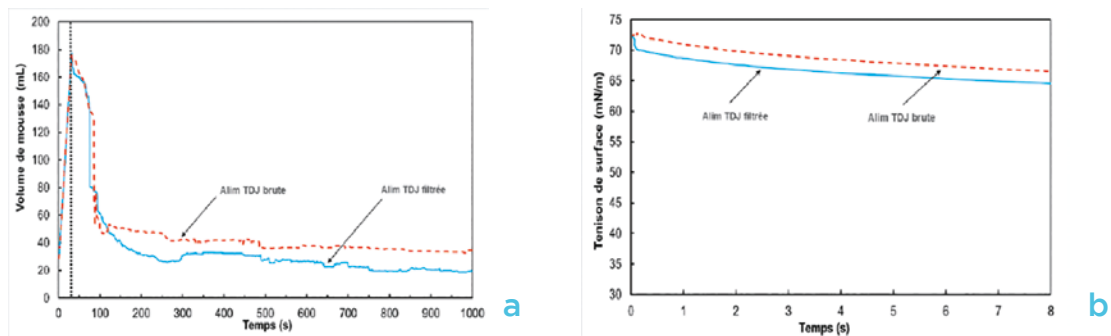


Figure 9 : Mesures représentatives de (a) la capacité moussante et (b) la tension superficielle dynamique de l'effluent de traitement des jus de Seine Aval (Alim TDJ) brut et après centrifugation/filtration

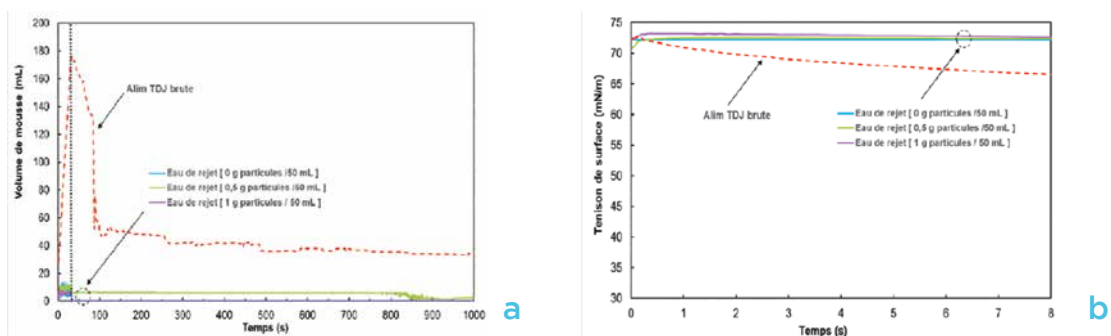


Figure 10 : Mesures représentatives de (a) la capacité moussante et (b) la tension superficielle dynamique de l'effluent de traitement des jus de Seine Aval (Alim TDJ) et l'eau de rejet de Seine Centre après ajout, à différentes concentrations, de particules récupérées après centrifugation et filtration de l'Alim TDJ



## 6. Conclusion et perspectives

En conclusion, ces premiers résultats montrent l'intérêt de la démarche initiée dans le cadre de cette étude : il semblerait que le suivi de l'évolution des propriétés interfaciales, à travers la mesure de la tension de surface dynamique (aux temps très courts), permet de détecter l'aptitude à mousser de l'effluent d'alimentation de traitement des jus issu de la filière boues. Une démarche identique est actuellement appliquée à un autre effluent posant des problèmes de moussage récurrent au niveau de la zone aérée de traitement biologique de la filière eaux.

Par ailleurs, les résultats présentés dans ce chapitre montrent que le moussage permanent de l'effluent issu des jus de digestion observé sur site ne semble pas dû à la teneur élevée en matière en suspension, qui est une caractéristique de cet effluent, ni à la présence de bactéries, quasi inexistantes, dans cet effluent. Il semblerait plutôt que la capacité à mousser de cet effluent soit due à la présence de molécules amphiphiles qui se déplaceraient très lentement à travers le milieu aqueux avant de venir s'adsorber à l'interface des bulles d'air pour les stabiliser. Cette diffusion lente pourrait être corrélée à la taille élevée des molécules amphiphiles ou à la présence de nombreuses particules en suspension dans le milieu aqueux qui gênerait la progression des molécules amphiphiles.

En perspectives, il est prévu d'identifier le type de molécules amphiphiles évoquées ci-dessus, et de réaliser une étude de l'évolution des propriétés interfaciales pour des valeurs de filtration plus diverses afin d'étudier l'influence de la taille et de la nature des molécules amphiphiles sur le moussage. En complément, des mesures de viscoélasticité de surface seront réalisées afin de mieux comprendre le comportement et le mécanisme d'adsorption des molécules lors de la formation des bulles. Par ailleurs, les observations sur site ayant montré que la capacité de moussage de cet effluent est plus intense lorsque cet effluent est plus chaud, l'effet de la température sera également étudié.

À terme, ce travail devrait permettre de mieux gérer les différentes unités de traitement des STEP avec des réglages d'aération et des doses d'anti-mousse adaptés, visant à réaliser des économies de fonctionnement. Ce travail *in fine* permettra d'anticiper et de mieux détecter les dérives de fonctionnement afin d'optimiser et améliorer le contrôle-commande, et maintenir la qualité du rejet à long terme.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- › LARACHICHE M., DRELICH A., PAUSS A. (2017) : *Evaluation de la moussabilité des effluents de STEP*. Rapport d'activité Mocopée 2017 ; Axe 1 Métrologie et traitement du signal, Action n°4 : Caractérisation des ERU par des méthodes physiques en lien avec des applications opérationnelles.
- › MERLO L., GRAUDEL C. (2017) : *Etude des propriétés moussantes des effluents de STEP*. Rapport de stage Master 1, Université de Technologie de Compiègne.
- › LARACHICHE M., DRELICH A. (2016) : *Evaluation de la moussabilité des effluents de STEP*. Rapport d'activité Mocopée 2016 ; Axe 1 Métrologie et traitement du signal, Action n°4 : Caractérisation des ERU par des méthodes physiques en lien avec des applications opérationnelles.
- › LARACHICHE M., DRELICH A. (2016) : *Etude du vieillissement des échantillons d'eau usée*. Rapport d'activité Mocopée 2016 ; Axe 1 Métrologie et traitement du signal, Action n°4 : Caractérisation des ERU par des méthodes physiques en lien avec des applications opérationnelles.
- › WIDYANINGTYAS S., PEZRON I. (2015) : *Etude des propriétés physicochimiques de fluides complexes en lien avec leur aptitude au moussage*. Rapport de stage Master 2, Université de Technologie de Compiègne.
- › NESTERNKO A. (2014) : *Etude de la tension de surface et du pouvoir moussant des eaux usées*. Rapport d'activité Mocopée 2014 ; Axe 1 Métrologie et traitement du signal, Action n°4 : Caractérisation des ERU par des méthodes physiques en lien avec des applications opérationnelles.

## Bibliographie

- › BIKERMAN J.J. (1973) : *Foams*. New York: Springer-Verlag.
- › BINDAL S.K., NIKOLOV A.D., WASAN D.T., LAMBERT D.P., KOOPMAN D.C. (2001) : « Foaming in simulated radioactive waste. » *Environmental Science & Technology* ; 35 : 3941-3947.
- › BROOKES A., JUDD S.J., REID E., GERMAIN E., SMITH S., ALVAREZ H., LECLECH P., STEPHENSON T., TURRA E., JEFFERSON B. (2003) : *Characterization and impact of biomass foulants in membrane bioreactors*. Sydney.
- › BURA R., CHEUNG M., LIAO B., FINLAYSON J., LEE B.C., DROPPA I.G., LEPPARD G.G., LISS S.N. (1998) : « Composition of extracellular polymeric substances in the activated sludge floc matrix. » *Water Science and Technology* ; 37 : 325-333.
- › CANTAT I., COHEN-ADDAD S., ELIAS F., GRANER F., HÖHLER R., PITOIS O., ROUYER F., SAINT-JALMES A. (2010) : « Les mousses : structure et dynamique ». *Belin* : 278 p.
- › CHUDOBA J., BLÁHA J., MADĚRA V. (1974) : « Control of activated sludge filamentous bulking—iii. effect of sludge loading. » *Water Research* ; 8 : 231-237.
- › DAVENPORT R.J., PICKERING R.L., GOODHEAD A.K., CURTIS T.P. (2008) : « A universal threshold concept for hydrophobic mycolata in activated sludge foaming. » *Water Research* ; 42 : 3446-3454.
- › DE GENNES P.-G., BROCHARD-WYART F. (2015) : « Gouttes, bulles, perles et ondes. » *Belin*.
- › DI BELLA G., TORREGROSSA M., VIVIANI G. (2011) : « The Role of eps concentration in mbr foaming: analysis of a submerged pilot plant. » *Bioresource Technology* ; 102 : 1628-1635.
- › FRYER M., GRAY N.F. (2012) : « Foaming scum index (fsi) – a new tool for the assessment and characterisation of biological mediated activated sludge foams. » *Journal of Environmental Management* ; 110 : 8-19.
- › GOODFELLOW M., MALDONADO L. A. (2006) : « The families Dietziaceae, Gordoniaceae, Nocardiaceae and Tsukamurellaceae. » in *The Prokaryotes*: Springer, 843-888.
- › HEARD J., HARVEY E., JOHNSON B.B., WELLS J. D., ANGOVE M.J. (2008) : « The effect of filamentous bacteria on foam production and stability. » *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces* ; 63 : 21-26.
- › JENKINS D., RICHARD M. G., DAIGGER G.T. (2003) : *Manual on the causes and control of activated sludge bulking, foaming, and other solids separation problems*. Crc Press.
- › KAPTAY G. (2003) : « Interfacial criteria for stabilization of liquid foams by solid particles. » *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* ; 230 : 67-80.
- › KRUSS : *Bubble Pressure Tensiometer*. Disponible en ligne : <https://www.kruss-scientific.com/services/education-theory/glossary/bubble-pressure-tensiometer/>.
- › LIAO B.Q., ALLEN D.G., DROPPA I.G., LEPPARD G.G., LISS S. N. (2001) : « Surface properties of sludge and their role in bioflocculation and settleability. » *Water Research* ; 35 : 339-350.
- › MANEV E. D., NGUYEN A.V. (2005) : « Effects of surfactant adsorption and surface forces on thinning and rupture of foam liquid films. » *International Journal of Mineral Processing* ; 77 : 1-45.
- › MARA D., HORAN N.J. (2003) : *Handbook of water and wastewater microbiology*. Elsevier.
- › MAURINES-CARBONEILL C., MORIN L., PERNELLE J.J., DERLET N., SACHON G., LEBLON G. (1998) : « Reviviscence of aerobic chemoheterotrophic bacteria in an activated sludge pilot plant after a prolonged absence of oxygen. » *Water Research* ; 32 : 2211-2219.
- › PETROVSKI S., DYSON Z. A., QUILL E. S., MCILROY S.J., TILLET D., SEVIOUR R.J. (2011) : « An examination of the mechanisms for stable foam formation in activated sludge systems. » *Water Research* ; 45 : 2146-2154.
- › PUJOL R. (1987) : « Maîtrise du foisonnement des boues activées : Biosorption et zones de contact. » *Lyon : INSA Approche méthodologique* : 154.

- PUJOL R., VACHON A., MARTIN G. (1990) : *Guide technique sur le foisonnement des boues activées*. FNDAE n° 8.
- RALSTON J., FORNASIERO D., MISHCHUK N. (2001) : « The hydrophobic force in flotation-a critique. » *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* ; 192 : 39-51.
- ROSEN M.J., KUNJAPPU J.T. (2012) : *Surfactants and interfacial phenomena*. John Wiley & Sons.
- SEVIOUR R. J., BLACKALL L. (2012) : *The microbiology of activated sludge*. Springer Science & Business Media.
- SODDELL J.A., STAINSBY F.M., EALES K.L., SEVIOUR R.J., GOODFELLOW M. (2006) : « *Gordonia Defluvii* Sp. Nov., an Actinomycete isolated from activated sludge foam. » *International journal of systematic and evolutionary microbiology* ; 56 : 2265-2269.
- WILÉN B.-M., JIN B., LANT P. (2003) : « The influence of key chemical constituents in activated sludge on surface and flocculating properties. » *Water Research* ; 37 : 2127-2139.



# Mesure *in situ* et en semi continu de la qualité bactériologique d'effluents de stations d'épuration - retour sur les essais du système « ALERT » de Fluidion

## *Autonomous system for rapid in situ quantification of bacterial quality of wastewater a performance report of the Fluidion « ALERT » system*

Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[1]\*</sup>, Vaizanne Huynh<sup>[2]</sup>, Elise Alibert<sup>[1]</sup>, Andreas Hausot<sup>[2]</sup>, David Abi-Saab<sup>[2]</sup>, Dan Angelescu<sup>[2]</sup>, Sam Azimi<sup>[1]</sup>, Vincent Rocher<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Siaap, Direction Innovation Environnement, Colombes

<sup>[2]</sup> Fluidion SAS, Paris

\* Auteur de correspondance : [sabrina.guerin@siapp.fr](mailto:sabrina.guerin@siapp.fr)



*Ce chapitre s'est intéressé aux performances métrologiques du système ALERT de Fluidion® pour le suivi des bactéries fécales en STEP, et en particulier pour le paramètre E. coli. Il s'agit d'un travail collaboratif entre le Siaap, via sa Direction de l'Innovation et de l'Environnement et l'équipe R&D de Fluidion. La première étape de ce travail a été d'ajuster le protocole d'analyse et de proposer une nouvelle droite de calibration adaptée à la matrice « eaux usées ». La seconde étape a été de valider le système ALERT en comparant ses résultats avec ceux obtenus par la méthode réglementaire de référence. L'étude statistique des écarts entre les mesures du système ALERT et celles du laboratoire montre que 46 % des mesures sont à moins d'un facteur 2, et 93 % des mesures à moins d'un facteur 5 par rapport à la méthode de référence, sans aucune déviation systématique sur toute la gamme de 400 à 10<sup>8</sup> NPP/100ml. Les coefficients de corrélation élevés obtenus à la fois pour la gamme complète, ainsi que pour la gamme de concentrations inférieures à 10<sup>5</sup> NPP/100 mL, permettent de confirmer que les résultats donnés par le système ALERT sont comparables avec les résultats de la méthode de référence. Cela est confirmé aussi par la comparaison des intervalles de confiance.*

## E. Coli - Méthode rapide - Eaux usées - Qualité de l'eau - STeP

### Introduction

En agglomération parisienne, l'amélioration du système d'assainissement, en termes de collecte, de qualité de traitement en station d'épuration (STEP) et de gestion des eaux pluviales, a permis d'améliorer la qualité physico-chimique et microbiologique des eaux de surface. En particulier, les efforts consentis ces 15 dernières années (2000-2015) pour généraliser le traitement de l'azote et du phosphore sur les usines et pour limiter les rejets urbains par temps de pluie ont permis de limiter significativement les flux de micro-organismes introduits dans le milieu naturel. Cette réduction notable a conduit à une amélioration significative de la qualité bactériologique des eaux de Seine (ROCHER et AZIMI, 2016). Cette amélioration de la qualité sanitaire des eaux de Seine conduit aujourd'hui à se poser la question de l'autorisation de la baignade sur certains secteurs, notamment dans le cas de l'organisation d'événements sportifs. À ce jour, la réglementation relative à la baignade (arrêté du 22 septembre 2008) porte sur deux bactéries indicatrices de contamination fécale : *E. coli* (seuil de l'eau de qualité fixé à 900 NPP/100 mL, calcul du 90<sup>e</sup> percentile) et entérocoques intestinaux (seuil fixé à 330 NPP/100 mL, calcul du 90<sup>e</sup> percentile).

Le suivi et l'évaluation de la qualité sanitaire des eaux de surface sont donc devenus des enjeux majeurs pour les différents acteurs régionaux (Siaap, Ville de Paris, Départements, etc.). La surveillance en permanence de la



qualité microbiologique de l'eau permet aux autorités sanitaires de maîtriser les risques liés aux contaminations bactériennes dans le milieu aquatique. Les méthodes de quantification employées pour assurer ces suivis sont normalisées. Tout d'abord, la norme NF EN ISO 8199 décrit de manière générale les techniques et les matériels utilisés pour effectuer les analyses microbiologiques en laboratoire. Ensuite, selon le type de bactérie, une méthode de quantification normalisée précise le protocole de réalisation de l'analyse et d'expression des résultats (NF EN ISO 9308-2 utilisant le Quanti-Tray® de IDEXX Laboratories ou la méthode miniaturisée NF EN ISO 9308-3 utilisant une microplaque [la plus pratiquée par les laboratoires accrédités]). Les méthodes analytiques employées dans le cadre de ces suivis sont relativement lentes et le délai d'obtention du résultat est compris entre 18 et 72 heures.

Dans le cadre de la surveillance de la qualité d'une masse d'eau au quotidien, des méthodes rapides alternatives peuvent être nécessaires. De nos jours, diverses techniques de quantification des *E.coli* existent (LOPEZ-ROLDAN *et al.*, 2013 ; NOBLE et WEISBERG, 2005) allant de la simple mesure de la turbidité aux techniques de quantification qPCR utilisant l'amplification de l'ADN par PCR (Polymerase Chain Reaction) (BERGERON *et al.*, 2011) et en passant par les méthodes enzymatiques utilisant des substrats spécifiques aux *E. Coli* (HEERY *et al.*, 2016 ; BAUDART *et al.*, 2009). Certaines ont été implémentées sur des appareils utilisables sur site et permettent, par exemple, une surveillance de l'eau de boisson en quasi-continu (MILES *et al.*, 2011 ; NAKACHE *et al.*, 2000). La miniaturisation et l'intégration des systèmes fluidiques dans des instruments complexes *in situ* est un sujet d'actualité, mais le milieu naturel pose des contraintes très importantes (ANGELESCU, 2011).

Dans ce contexte, le Siaap, via sa Direction Innovation Environnement, et l'équipe R&D de la société Fluidion ont engagé un partenariat visant à étalonner et valider un système capable de mesurer en semi-continu des bactéries fécales dans différentes matrices (effluents de STEP et eaux de surface). Il s'agit du Système ALERT qui est un analyseur *in situ* autonome capable de quantifier les *E.coli*, indicatrices d'une contamination récente, présentes dans le milieu. Il effectue automatiquement et directement *in situ* toutes les étapes nécessaires à la réalisation d'une analyse microbiologique, telles que l'échantillonnage, le mélange avec un bioréactif spécifique, l'incubation et le suivi optique multi-spectral (absorbance et fluorescence). Les données obtenues sont transmises en temps réel vers une interface Web (HUYNH *et al.*, 2016, ANGELESCU *et al.*, 2018). Ainsi, il est possible d'émettre des alertes automatiques en cas de dépassement de seuil afin de permettre l'identification rapide d'un épisode de pollution, et permettre une plus grande réactivité de l'opérateur.

Ce chapitre présente l'étude de validation du Système ALERT appliqué au suivi des effluents transitant au sein des filières de traitement des eaux usées, des eaux partiellement traitées jusqu'aux eaux de rejets. Ce chapitre est composé de trois parties. La première partie présente les caractéristiques du Système ALERT : descriptif technique du système et principes de mesure et d'étalonnage. La deuxième partie décrit la stratégie expérimentale ainsi que le site d'étude (station d'épuration Seine Centre). La troisième partie présente et discute les résultats obtenus sur : (1) l'adaptation du protocole expérimental aux effluents de STEP et (2) la validation des résultats obtenus sur l'ensemble de la filière de traitement, depuis les eaux décantées jusqu'aux effluents ayant subi un traitement poussé (traitement conventionnel suivi d'un traitement tertiaire par charbon actif).

## 1. Présentation du système de mesure ALERT

### 1.1. DESCRIPTIF TECHNIQUE DU DISPOSITIF

La gamme d'analyseurs ALERT est déclinée en deux produits (Figure 1). Le système ALERT System *in situ*, adapté à une installation extérieure, est intégré dans un corps cylindrique étanche en PVC (dimension de D 25 cm x L 40 cm ; poids de 9,3 kg). Déployé dans le milieu, il réalise automatiquement et de façon autonome jusqu'à sept prélèvements et analyses microbiologiques indépendantes dans des bioréacteurs individuels. La version ALERT LAB, plus allégée, est dépourvue de système de flottation et de prélèvement automatique. Le principe de détection reste identique pour les deux modèles, la seule différence réside dans le nombre de bioréacteurs, six pour l'ALERT LAB au lieu de sept pour la version ALERT *in situ*. Dans le cadre de cette étude, les analyses ont été réalisées à l'aide du dispositif ALERT LAB.

Dans l'ALERT *in situ*, chaque bioréacteur est composé d'un flacon d'échantillonnage relié, moyennant un adaptateur d'échantillonnage, à un tube de prélèvement, d'une gaine de chauffage asservie à un contrôleur de température et d'une carte opto-électronique en forme d'anneau réalisant les mesures spectrophotométriques à travers le flacon (Figure 1). Un capteur de température est positionné contre la gaine de chauffage pour un

contrôle précis de l'incubation. Trois LED et une photodiode permettent la réalisation des mesures d'absorbance et de fluorescence, et un filtre UV élimine les interférences dues à l'excitation de la fluorescence.

Dans l'ALERT LAB, chaque bioréacteur permet l'analyse d'un échantillon d'eau prélevé manuellement. Mélangé avec du bioréactif et incubé à une température contrôlée de 37 °C, les caractéristiques optiques de l'échantillon (absorbance et fluorescence) sont suivies en temps réel et les données sont transmises sans fil. Un microprocesseur embarqué contrôle les modules d'incubation et de mesure optique ; aussi, il collecte, stocke les données des mesures et transmet les informations en temps réel au serveur central Fluidion via le réseau GSM. Enfin, le système ALERT peut être configuré et opéré depuis un téléphone portable ou via l'interface Web sécurisée.

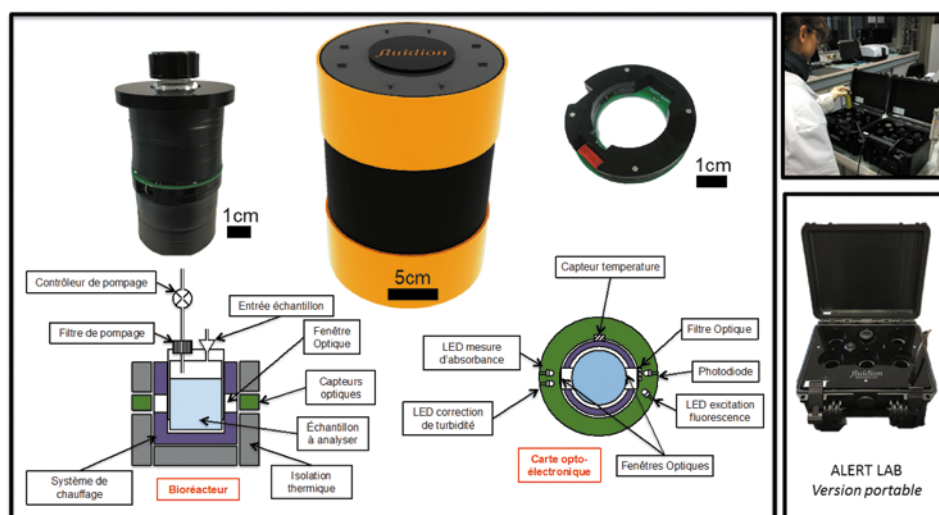


Figure 1 : Encadré de gauche : photo et schéma d'un bioréacteur (gauche), photo du système ALERT (centre) ; photo et schéma d'une carte opto-électronique (à droite). Encadrés de droite : Système portable ALERT LAB

## 1.2. PRINCIPE DE MESURE ET D'ÉTALONNAGE DU DISPOSITIF

La méthode de quantification utilisée dans le Système ALERT est basée sur une modification de la technique *Defined Substrate Technology*, avec un traitement en temps réel des signaux optiques. Elle est spécifique aux *E. Coli* mais aussi aux Coliformes totaux (CT) qui ne seront pas abordés ici. D'autres bactéries, comme les entérocoques intestinaux, peuvent également être analysées. Basé sur le développement d'une activité enzymatique, le bioréactif contient un milieu de culture spécifique et également les substrats ONPG (ortho-nitrophenyl- $\beta$ -galactoside) et MUG (4-methylumbelliferyl- $\beta$ -D-glucuronide) qui sont respectivement spécifiques aux enzymes de CT et *E. Coli*. La  $\beta$ -galactosidase, l'enzyme présente sur les CT, hydrolyse l'ONPG pour produire l'ONP (ortho-nitrophenol), composé de couleur jaune, alors que la  $\beta$ -glucuronidase, présente sur les *E. Coli*, transforme le MUG en MUF (4-methylumbelliferyl), un composé fluorescent. Lorsque l'échantillon d'eau à analyser est mélangé avec le bioréactif et ensuite incubé à 37 °C (température idéale pour la croissance des *E. Coli*), l'apparition de ces composés est suivie dans le temps par des mesures d'absorbance et de fluorescence (Figure 2).

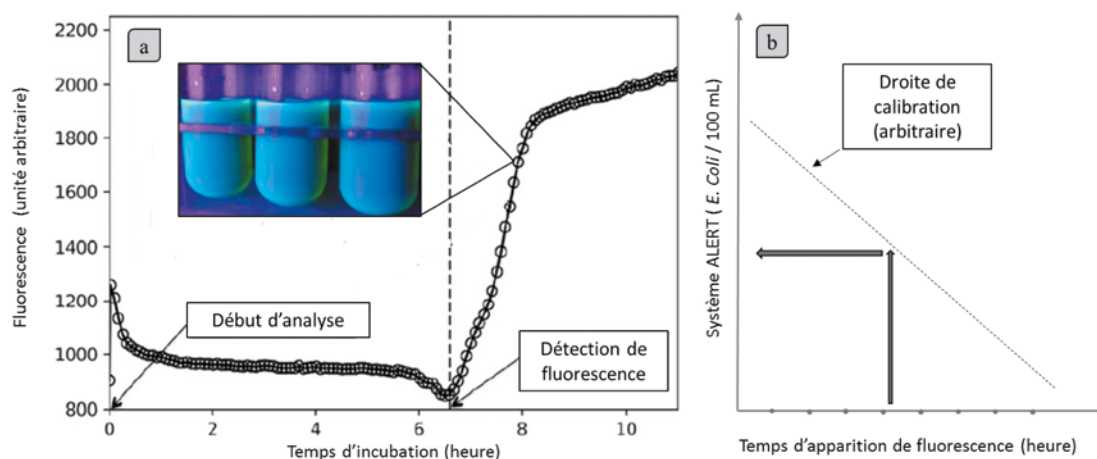


Figure 2 : Évolution-type du signal de fluorescence dans le temps pour un échantillon d'eau contenant des *E. Coli* (a) ; courbe-type de calibration permettant la quantification des *E. Coli* à partir du temps d'apparition de la fluorescence (b)

Le signal de fluorescence est mesuré à  $> 400$  nm après une excitation à 385 nm. Une correction de turbidité est également appliquée pour compenser la diffusion de la lumière induite par la croissance bactérienne. Dans un premier temps, le signal optique est constant au niveau de la ligne de base, correspondant à une absence de production des composés fluorescents. Après un certain temps d'incubation, un signal de fluorescence apparaît correspondant à la production du MUF (Figure 2a). L'analyse des courbes permet de mesurer le délai d'apparition du signal optique et de le corrélérer avec les concentrations en *E. Coli* via une droite de calibration (Figure 2b).

## 2. Description du site d'étude et de la stratégie expérimentale

### 2.1. SITE D'ÉTUDE : STATION D'ÉPURATION SEINE CENTRE (COLOMBES)

L'étude a été réalisée sur des échantillons prélevés sur la STEP Seine Centre du Siaap (Service public pour l'assainissement francilien). Cette STEP urbaine, implantée à Colombes (Hauts-de-Seine) traite quotidiennement les eaux usées générées par près de 900 000 équivalent-habitants, soit 240 000 m<sup>3</sup>/j d'eau usée. La filière de traitement des eaux est composée d'une étape de prétraitement (dégrillage, dessablage et déshuilage), d'une décantation physico-chimique lamellaire (élimination des matières en suspension et du phosphore) et d'un traitement biologique par biofiltration en trois étapes (décarbonation, nitrification et dénitrification). Tous les détails concernant le fonctionnement de la file de traitement des eaux de cette usine sont apportés par ROCHER *et al.* (2008 et 2006). La filière est complétée par un traitement tertiaire par charbon actif (Prototype Carboplus®, STEREAU-SAUR). Ce prototype à vocation expérimentale ne traite qu'une partie des eaux de rejet (700-1200 m<sup>3</sup>/j). Tous les détails concernant le fonctionnement et les performances de ce prototype sont apportés par MAILLER *et al.* (2016 et 2015) et ROCHER *et al.* (2016).

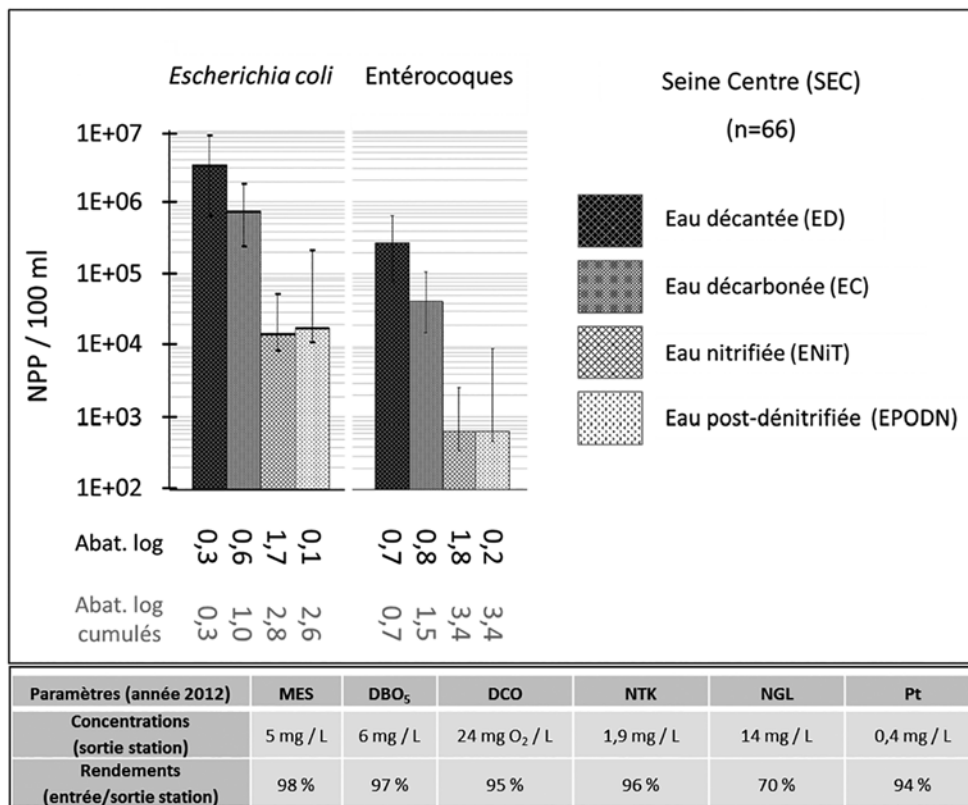


Figure 3 : Concentrations médianes (3 quartiles) en bactéries fécales dans les eaux prélevées aux différentes étapes du traitement biologique de la station Seine Centre (Colombes) - [Figure tirée de (ROCHER et AZIMI, 2016)] et les performances épuratoires globales de la STEP ([www.siaap.fr](http://www.siaap.fr))

La file de traitement des eaux de la STEP Seine Centre présente des performances épuratoires élevées avec des rendements d'élimination globaux en carbone, azote et phosphore comprises entre 70-98 % (Figure 3). Les bactéries indicatrices fécales sont également éliminées avec efficacité, notamment grâce à l'étape de nitrification. De ce fait, les concentrations en bactéries fécales entre l'entrée du traitement biologique et la sortie de l'usine sont très contrastées. Par exemple pour le *E. coli* des concentrations sont globalement comprises entre 10<sup>7</sup> NPP/100 mL pour l'eau décantée et 10<sup>4</sup> NPP/100 mL pour l'eau post-dénitrifiée (Figure 3). Ces niveaux de concentrations sont encore plus faibles en sortie du traitement tertiaire (MAILLER, 2015), pouvant atteindre les limites de quantification analytiques (38 NPP/100 mL).

## 2.2. STRATÉGIE EXPÉRIMENTALE EN DEUX VOILETS

Afin de couvrir une large gamme de concentrations en bactéries, les effluents ont été prélevés aux différentes étapes du traitement : (1) décantées - 26 échantillons, (2) décarbonées - 24 échantillons, (3) nitrifiées - 24 échantillons, (4) eau de rejet - 32 échantillons et (5) sortie traitement tertiaire (Carboplus®) - 19 échantillons (Figure 4). Au total 125 échantillons ponctuels ont été prélevés entre novembre et décembre 2017. Chaque échantillon a été récolté dans un flacon neuf en polypropylène, homogénéisé puis séparé en deux fractions. La première fraction destinée à l'analyse des *E. Coli* par le système ALERT et l'autre fraction conditionnée dans un flacon contenant du thiosulfate (20 mg/L). Ce dernier a ensuite été expédié (à 4 °C) le jour même à un laboratoire prestataire accrédité pour analyser les *E. Coli*, par la méthode de référence basée sur le nombre le plus probable (dénombrement sur microplaque NF EN ISO 9308-3) dans les 24h après l'envoi.

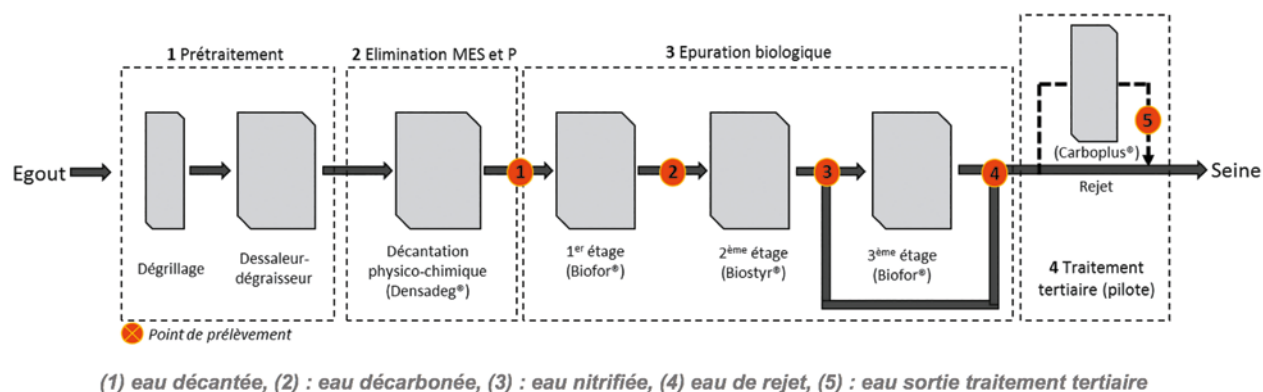


Figure 4 : Filière de traitement des eaux usées de la STEP Seine Centre (Colombes) et localisation des points de prélèvements

Les analyses réalisées sur les 125 échantillons ont été exploitées de manière à répondre à des objectifs de calibration puis de validation du système ALERT. La première étape a utilisé le protocole pour l'analyse des eaux de surface, qui a été validé préalablement sur les eaux de Seine en agglomération parisienne (49 échantillons). Suite à quelques anomalies de mesure, décrites plus bas, lors de cette étape il a été décidé d'adapter le protocole de mesure par l'ajout d'une étape de dilution, et de réaliser une nouvelle calibration. Le nouveau protocole expérimental a été utilisé pour obtenir une nouvelle droite de calibration adaptée aux effluents de STEP (41 échantillons) et ensuite de valider sa robustesse (35 échantillons). Cette adaptation de la calibration est normale quand la matrice de l'eau, la préparation de l'échantillon, ou les souches bactériennes utilisées changent. Une précédente étude a montré que la droite de calibration adaptée à une matrice environnementale (eaux de surface) pouvait être significativement différente de celle réalisée sur des échantillons artificiels préparés en laboratoire (ANGELESCU *et al.*, 2018 ; GUÉRIN *et al.*, 2017).

## 3. Résultats et discussion

### 3.1. ADAPTATION DU PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL

#### 3.1.1 Adaptation du milieu réactionnel

La procédure pour la quantification des *E.Coli* pour les eaux douces de surface utilisant la technologie ALERT de Fluidion est basée sur la détection du temps d'apparition de la fluorescence lors de l'incubation de l'échantillon, en additionnant 1 mL de bioréactif à 25 mL d'échantillon environnemental. Cette détection, qui se fait automatiquement par le logiciel, est une étape essentielle car elle conditionne la qualité des résultats. Cependant, avec ce protocole, certaines matrices d'eau peuvent générer des faux positifs, ou des signaux atypiques (c'est souvent le cas des échantillons d'eau de mer, où d'autres micro-organismes peuvent entrer en compétition avec les souches recherchées). Dans les eaux très chargées en enzyme  $\beta$ -glucuronidase libre, une croissance de la fluorescence peut être observée dès le début de l'incubation. Cet artefact est notamment présent pour les eaux usées concentrées, où des bactéries non-viables ou mortes génèrent une concentration importante d'enzymes résiduelles. Dans ces cas, une dilution de l'échantillon avec de l'eau stérile doit être appliquée avant l'analyse, ce qui permet d'éliminer tout faux positif et d'obtenir des mesures fiables pour toutes les matrices, mais conduisant en contrepartie à une limite de détection légèrement plus élevée.

Dans le cadre de cette étude, les courbes obtenues pour les eaux usées en début de filière de traitement [(1) décantées et (2) décarbonées] présentaient un tel profil atypique dû notamment à la présence d'enzymes résiduelles. Sur la Figure 5a, on note en effet que le signal de fluorescence augmente dès le début de l'incubation, rendant la détection du temps d'apparition de la fluorescence, due aux *E.coli* viables et cultivables, complexe et moins précise. Ces artefacts observés sur les matrices complexes (notamment sur les eaux décantées et décarbonées) ont été résolus par une modification du milieu réactionnel, en diluant le bioréactif avec de l'eau stérile, de manière à baisser la concentration des enzymes résiduelles. Les échantillons d'eaux usées dilués au 1/4 dans de l'eau stérile permettent ainsi de rétablir un profil classique de courbes (Figure 5b), avec un plateau de la fluorescence (et d'absorbance) en début d'incubation puis une croissance rapide du signal optique correspondant au développement bactérien.



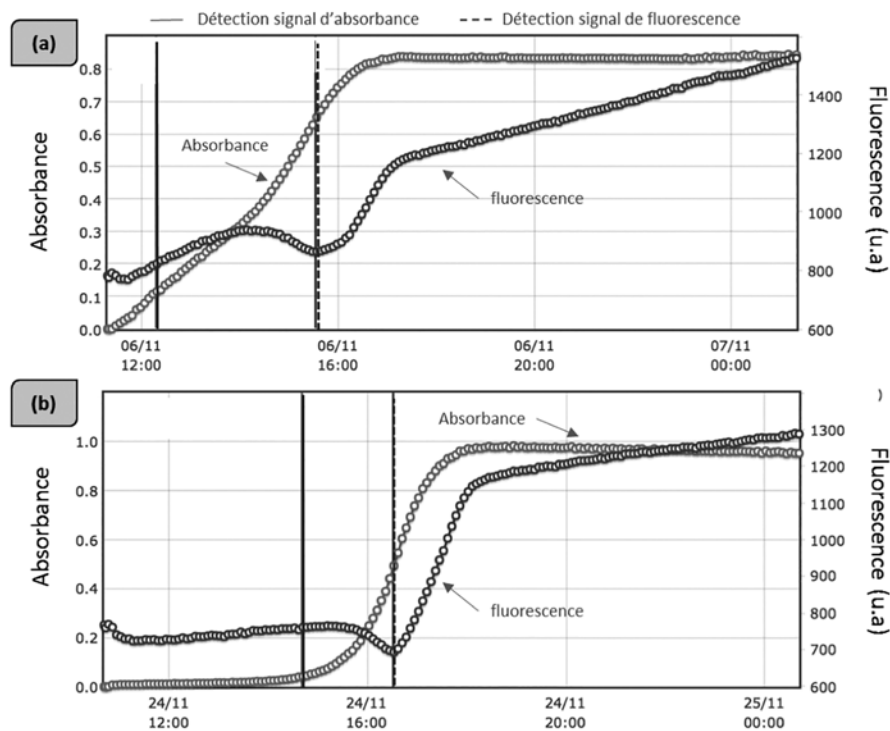


Figure 5 : Allures des courbes des mesures optiques d'une eau décantée avant (a) et après (b) la modification du protocole expérimental

### 3.1.2 Ajustement de la droite de calibration

Pour quantifier les concentrations en bactéries, le système ALERT s'appuie sur une droite de calibration, tel que mentionné ci-avant. La définition de cette droite de calibration est la première étape à réaliser lorsqu'on est confronté à une nouvelle matrice. La composition physico-chimique et bactériologique des effluents doit être prise en compte pour obtenir des résultats représentatifs du milieu réel. La précédente étude réalisée sur les eaux de Seine en agglomération parisienne a permis de définir une nouvelle droite d'étalonnage, différente de celle obtenue initialement en laboratoire sur des échantillons artificiels (GUÉRIN *et al.*, 2017). Cette étude a permis également de confirmer la robustesse de cette droite de calibration pour les eaux de la Marne et de l'Oise, à l'échelle du laboratoire et *in situ* (ANGELESCU *et al.*, 2018).

Dans le cadre de la présente étude sur les eaux résiduaires urbaines, un travail similaire de calibration a été réalisé sur la station d'épuration de Seine Centre, à différentes étapes de traitement. Cette diversité d'échantillons a permis de couvrir une large gamme de concentrations en *E.Coli* avec une droite de calibration couvrant 5 ordres de grandeur (ou unités log), tel que présentée par la Figure 6. Cette droite a été obtenue grâce aux analyses réalisées simultanément par le système ALERT et le laboratoire d'analyse par méthode de référence (NPP), sur des aliquotes d'un même échantillon. Les barres d'erreurs correspondent aux intervalles de confiances à 95 % de la méthode NPP fournies par le laboratoire. La droite de calibration obtenue sur les eaux de surface a été indiquée à titre de comparaison.

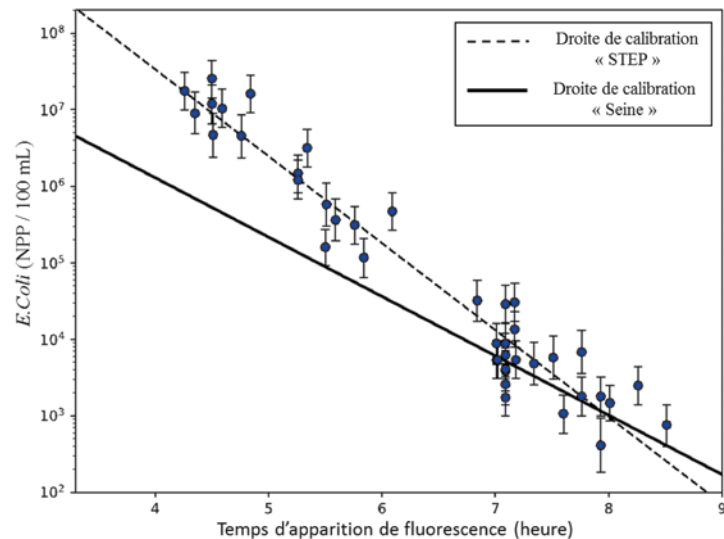


Figure 6 : Droite de calibration « STEP » obtenue sur les eaux résiduaires urbaines (droite en pointillé) et la courbe de calibration « Seine » obtenue lors d'une précédente étude à titre de comparaison (droite pleine)

On observe un écart entre la nouvelle droite de calibration « STEP », utilisant le nouveau protocole et la droite de calibration « Seine », utilisant le protocole d'eaux de surface. Les temps d'apparition des signaux de fluorescence pour les eaux résiduaires urbaines sont décalés par rapport aux eaux de surface. Au regard des concentrations observées sur les eaux de STEP (Figure 3), le temps nécessaire à la mesure des concentrations en *E. Coli* est compris entre 4h et 7h, le temps de réponse étant plus court pour les échantillons les plus concentrés.

## 3.2. VALIDATION DES RÉSULTATS STEP

### 3.2.1. Analyse des résultats obtenus sur l'ensemble de la filière de traitement

La droite de calibration obtenue lors de « l'étape de calibration » a été appliquée sur un panel de 35 échantillons, prélevés aux différentes étapes de la file de traitement des eaux. Les concentrations en *E. Coli* quantifiées par le système ALERT ont été confrontées aux résultats fournis par le laboratoire selon la méthode de référence basée sur le NPP (Figure 7, points rouges). Les points bleus correspondent aux mesures obtenues lors de la phase de calibration. Egalement représentés les échantillons mesurés sans étape de dilution préalable (points gris). Les barres d'erreurs correspondent aux intervalles de confiances à 95 % de la méthode NPP fournies par le laboratoire. La droite parfaite  $y=x$  est indiquée comme aide visuelle à la corrélation.

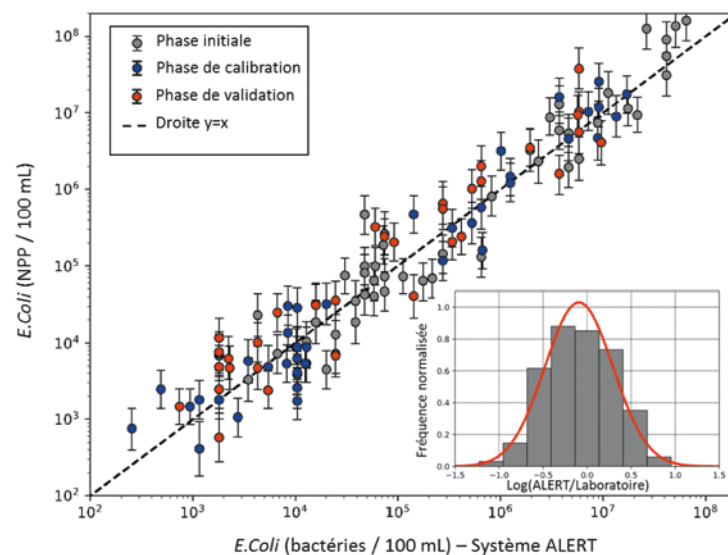


Figure 7 : Comparaison entre les mesures *E. Coli* de l'ALERT (abscisse) et les mesures laboratoire par la méthode de référence (NPP) (ordonnée) - Encart : Histogramme de la distribution statistique des rapports (ALERT/Laboratoire)

La Figure 7 permet d'apprécier la répartition homogène des données autour de la droite de corrélation parfaite ( $y=x$ ). La dispersion des points autour de la droite  $y=x$  est constante sur l'ensemble de la gamme de concentrations en *E.Coli*, allant de 400 à  $10^8$  NPP/100 mL. Il apparaît clairement que tous les points se superposent sur la même droite de calibration, ce qui signifie que la dilution n'affecte d'aucune façon la croissance bactérienne, mais seulement élimine l'artefact lié aux enzymes résiduelles. On observe globalement que 93 % des résultats s'écartent d'un facteur inférieur à 5 par rapport aux valeurs de référence (Laboratoire) ; et 46 % ne s'écartent pas plus d'un facteur 2. Un coefficient de corrélation de Pearson élevé ( $r=0,89$ ) est obtenu. Enfin, les mesures obtenues par le système ALERT ne semblent pas induire de biais systématique avec un histogramme relativement symétrique (encart ajouté à la Figure 7). Cette représentation de la distribution statistique des données vient confirmer la robustesse des résultats. Une étude statistique similaire a été menée sur les eaux de surface (ANGELESCU *et al.*, 2018). Les résultats présentaient les mêmes tendances que pour les eaux résiduaires avec 97 % des données qui s'écartaient d'un facteur inférieur à 5, toujours par rapport à la méthode de référence par NPP.

### 3.2.2. Focus sur les données acquises sur les effluents traités (application baignade, reuse)

Les bactéries fécales ne sont généralement pas intégrées dans la liste des paramètres à suivre dans le cadre de l'auto-surveillance des usines. Les arrêtés prescrits par les autorités reprennent le plus souvent les paramètres et les performances indiqués dans la Directive sur les Eaux Résiduaires Urbaines (DERU). Mais, selon la situation locale, des performances supérieures vis-à-vis des paramètres classiquement suivis peuvent être exigées et la liste des paramètres à suivre et maîtriser peut être étendue. C'est notamment le cas lorsque localement, on estime que le respect des performances indiquées dans la DERU ne permet pas d'atteindre les objectifs du bon état tels qu'ils sont définis dans la Directive Cadre sur l'Eau (DCE), ou lorsqu'une réutilisation de l'eau usée traitée est envisagée (reuse). De la même manière, les eaux de surface réceptrices des rejets de STEP peuvent être jugées particulièrement sensibles dans le cas où elles font l'objet d'usages récréatifs (baignade, activité récréative) ou lorsqu'elles sont pompées pour la production d'eau potable (point de captage). Dans ce cas, les performances de traitement exigées sur les STEP peuvent être supérieures et le suivi des bactéries fécales dans leur rejet prend tout son sens.

Dans ce contexte, il nous a semblé important de porter une attention particulière aux performances du système ALERT sur les eaux de rejet de STEP ayant subi ou non un traitement tertiaire. Aussi, la Figure 8 présente les résultats obtenus dans le cadre du suivi de la STEP Seine Centre en indiquant, via un code couleur, le type d'effluent concerné (eau décantée, eau décarbonée, eau nitrifiée, eau de rejet, eau de rejet ayant subi un traitement tertiaire). D'une part, cette représentation souligne à nouveau que la droite de calibration « eaux usées » est valable pour l'ensemble des effluents transitant au sein de la STEP, quel que soit le niveau de traitement. D'autre part, cette représentation permet d'analyser plus finement la justesse du système ALERT pour les effluents de fin de filière, présentant des concentrations moindres en bactéries fécales (étoiles marrons pour les eaux de rejet et triangles roses pour les eaux de rejet ayant subi un traitement tertiaire).

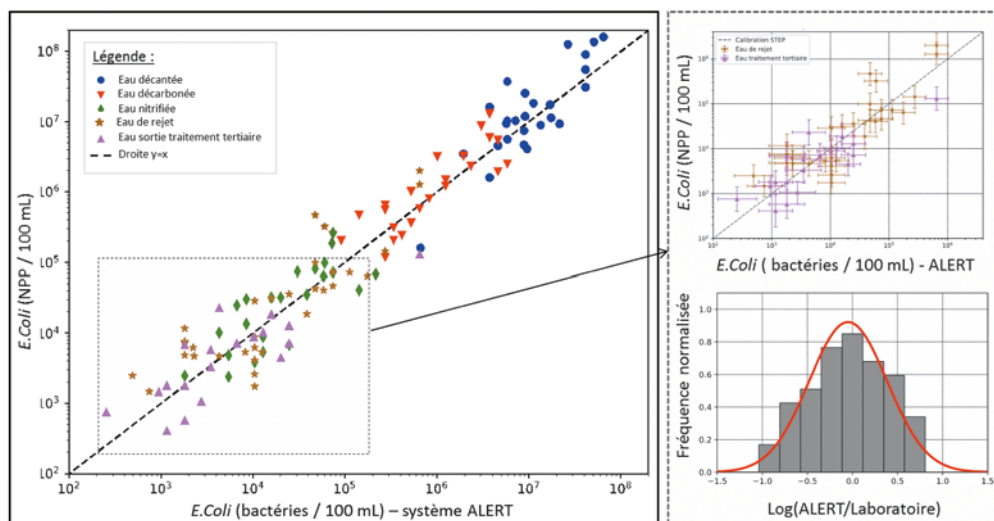
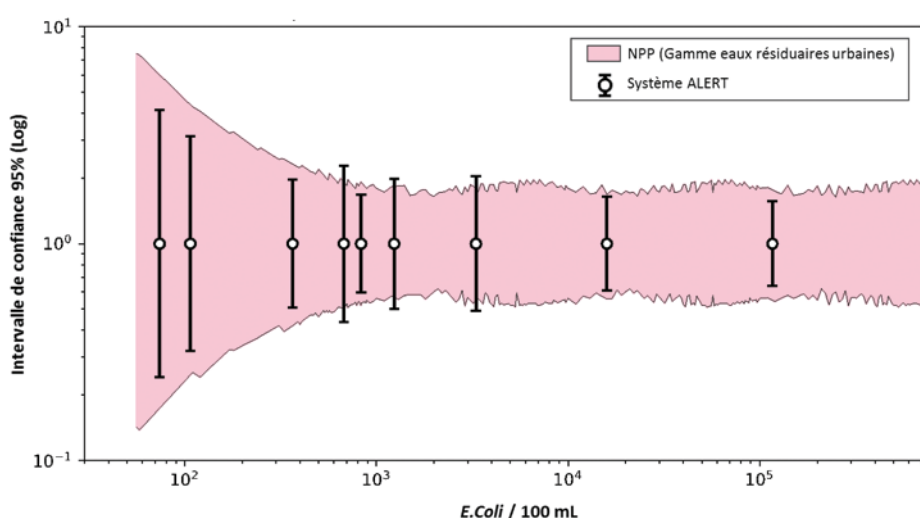


Figure 8 : Comparaison entre les mesures *E.Coli* de l'ALERT (abscisse) et les mesures laboratoire par la méthode de référence (NPP) (ordonnée) sur l'ensemble des étapes de traitement de la station Seine Centre - Zoom : focus sur les eaux traitées avec les incertitudes de mesures

Le zoom sur les points correspondant aux effluents de fin de filière, proposé par la Figure 8 (partie du haut, droite) permet d'apprécier la répartition homogène des données autour de la droite de corrélation parfaite ( $y=x$ ), illustrée par un coefficient de corrélation de Pearson élevé ( $r=0,89$ ). L'historgramme (bas, droite) présente la répartition des rapports des mesures (ALERT/Laboratoire) par classe de fréquence. Cette représentation de la distribution statistique des données vient confirmer la robustesse des résultats et l'absence de biais pour ces effluents plus faiblement concentrés en bactéries fécales. On observe globalement, pour ces eaux à faibles concentrations, que 88 % des résultats s'écartent d'un facteur inférieur à 5 par rapport aux valeurs de référence (Laboratoire) ; et 47 % ne s'écartent pas plus d'un facteur 2.

Il est également intéressant de comparer les intervalles de confiance à 95 % de la méthode de référence et de la méthode ALERT. Une étude préalable menée par ANGELESCU *et al.* (2018) a permis d'évaluer les intervalles de confiance des mesures ALERT pour des concentrations comprises entre  $10^2$  et  $10^5$  *E.coli*/100 mL. Utilisant les méthodes développées dans JARVIS *et al.* (2010), il est possible également de calculer ces intervalles pour toute concentration obtenue par la méthode NPP (microplaque avec le protocole d'eaux résiduaires urbaines). La comparaison est présentée en Figure 9.



**Figure 9 : Comparaison des intervalles de confiance entre la méthode NPP pour les eaux résiduaires urbaines (utilisée comme méthode de référence) et la méthode ALERT**

Il est important de souligner que les intervalles de confiance présentés en Figure 9 pour la méthode ALERT comprennent toutes les erreurs de prélèvement et préparation de l'échantillon, en plus des incertitudes de mesure, tandis que pour la méthode de référence l'intervalle de confiance correspond uniquement aux incertitudes statistiques de la méthode, sans prise en compte des erreurs potentielles supplémentaires introduites lors de la manipulation de l'échantillon. Malgré ceci, on observe que globalement, les deux méthodes ont des performances similaires, la technique ALERT présentant, toutefois, une meilleure précision globale.

## Conclusion et perspectives

Ce chapitre s'est intéressé aux performances métrologiques du système ALERT de Fluidion® pour le suivi des bactéries fécales en STEP, et en particulier pour le paramètre *E. Coli*. La première étape de ce travail a été d'ajuster le protocole d'analyse et de modifier la calibration du système pour adapter le système ALERT à la matrice « eaux usées ». Cette étape, réalisée en s'appuyant sur plus de 40 échantillons prélevés aux différentes étapes de la file de traitement des eaux de la STEP Seine Centre a permis de définir une nouvelle droite de calibration adaptée à la matrice « eaux usées », quelle que soit son niveau de traitement. La seconde étape a été de valider le système ALERT en comparant les résultats obtenus avec ce dispositif déporté avec ceux obtenus par la méthode réglementaire de référence. L'étude statistique des écarts entre les mesures du système ALERT et celles du laboratoire montre que 46 % des mesures sont à moins d'un facteur 2, et 93 % des mesures à moins d'un facteur 5 par rapport à la méthode de référence NPP, sans aucune déviation systématique sur toute la gamme de 400 à

10<sup>8</sup> NPP/100 mL. Les coefficients de corrélation élevés obtenus à la fois pour la gamme complète, ainsi que pour la gamme de concentrations inférieures à 10<sup>5</sup> NPP/100 mL, permettent de confirmer que les résultats donnés par le système ALERT sont comparables avec les résultats de la méthode de référence. Cela est confirmé aussi par la comparaison des intervalles de confiance.

Il est à noter que le système de suivi *in situ* a également fait l'objet de travaux de validation pour la matrice eaux de surface (GUÉRIN *et al.* 2017 et ANGELESCU *et al.* 2018). Les conclusions positives obtenues lors de ces études ont permis d'engager un déploiement et une utilisation opérationnelle de cet outil de surveillance. Ainsi, durant les périodes estivales 2017 et 2018, ce système a été déployé pour suivre la qualité des eaux de Seine et du bassin de la Villette (Ville de Paris) et en 2017 pour mener des campagnes de suivi de la qualité des eaux de Marne (Syndicat mixte de Marne Vive). Ce système est également en cours de déploiement sur certaines stations du réseau de mesure MeSeine (Mesure en Seine, réseau de suivi de la qualité de la Seine et de ses affluents du Siaap). D'autres installations ont été réalisées à l'étranger (États Unis, Royaume Uni, Afrique de Sud, Allemagne, Portugal etc.). Parallèlement à ces déploiements et utilisations opérationnelles, des actions R&D complémentaires sont actuellement menées notamment pour valider les performances du système ALERT vis-à-vis des entérocoques intestinaux et optimiser les actions de maintenance et d'entretien du système ALERT.

## Remerciements

Les auteurs remercient Anne-Sophie Permal, technicienne de recherche au Siaap pour son soutien technique apporté à cette étude ainsi qu'aux exploitants de la station Seine Centre.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- › ANGELESCU D.E., HUYNH V., HAUSOT A., YALKIN G., PLET V., MOUCHEL J.-M., GUERIN-RECHDAOUI S., AZIMI S., ROCHER V. (2018) : « Autonomous system for rapid field quantification of *E. Coli* in surface waters. » *Journal of Applied Microbiology* ; doi:10.1111/jam.14066
- › GUERIN-RECHDAOUI S., ANGELESCU D.E., ALIBERT E., PLET V., HUYNH V., HAUSOT A., ABI-SAAB D., MOUCHEL J.M., AZIMI S., ROCHER V. (2018) : *Mesure in-situ et en semi-continu de la qualité bactériologique des effluents - Retour sur les essais du système ALERT de Fluidion pour le paramètre E.Coli.* Communication orale. Congrès de l'Astee, Marseille 2018.
- › GUERIN S., HUYNH V., ANGELESCU D., ALIBERT E., BERNIER J., AZIMI S., ROCHER V. (2017) : « Mesure de la qualité microbiologique des eaux de surface par le Système ALERT de Fluidion. Présentation des essais laboratoire sur la matrice « eau de Seine » ». *Eau, Industrie, les Nuisances* ; 399 : 81.



## Bibliographie

- ANGELESCU D. (2011) : *Highly integrated microfluidics design*. Artech House. 268 p. ISBN-13: 978-1596939790.
- ANGELESCU D, HUYNH V., HAUSOT A., YALKIN G., PLET V., MOUCHEL J.-M., GUERIN-RECHDAOUI S., AZIMI S., ROCHER V. (2018) : « Autonomous system for rapid field quantification of *E. Coli* in surface waters. » *Journal of Applied Microbiology* ; doi:10.1111/jam.14066
- BAUDART J., SERVAIS P., DE PAOLI H., HENRY A., LEBARON P. (2009) : « Rapid enumeration of *Escherichia coli* in marine bathing waters: potential interference of nontarget bacteria. » *Journal of Applied Microbiology* ; 2054-2062.
- BERGERON P., OUJATI H., CUENCA V.C., MESTRE J.M.H., COURTOIS S (2011) : « Rapid monitoring of *Escherichia coli* and *Enterococcus* spp . in bathing water using Reverse Transcription-quantitative PCR. » *International Journal of Hygiene and Environmental Health* ; 214(6) : 478-484.
- GONÇALVES A., ROCHER V., PICHON S. (2009) : « Qualité bactériologique des eaux de la région parisienne. De l'eau d'égout au milieu récepteur. » *Techniques Sciences et Méthodes* ; 3 : 38-49.
- GUERIN S., HUYNH V., ANGELESCU D., ALIBERT E., BERNIER J., AZIMI S., ROCHER V. (2017) : « Mesure de la qualité microbiologique des eaux de surface par le Système ALERT de fluidion. Présentation des essais laboratoire sur la matrice « eau de Seine ». » *Eau, Industrie, les Nuisances* ; 399 : 81.
- HEERY, B., BRICIU-BURGHINA, C., ZHANG, D., DUFFY, G., BRABAZON, D., O'CONNOR, N. (2016) : « ColiSense, today's sample today: A rapid on-site detection of b-D-Glucuronidase activity in surface water as a surrogate for *E. coli*. » *Talanta* ; 75-83.
- HUYNH V., HAUSOT A., ANGELESCU D.E. (2016) : *An autonomous field sensor for Total Coliform and E. Coli monitoring at remote sites*. IEEE Oceans Conference Proceedings.
- JARVIS B., WILRICH C., WILRICH P.T. (2010) : « Reconsideration of the derivation of Most Probable Numbers, their standard deviations, confidence bounds and rarity values. » *Journal of Applied Microbiology* ; doi:10.1093/infdis/17.1.183
- LOPEZ-ROLDAN R., TUSELL P., COURTOIS S., CORTINA J.L., (2013) : « On-line bacteriological detection in water. » *Trends in Analytical Chemistry* ; 44 : 46-57.
- MAILLER R., GASPERI J., COQUET Y., DEROME C., BULETE A., VULLIET E., BRESSY A., VARRAULT G., CHEBBO G., ROCHER V. (2016) : « Élimination des polluants émergents dans les rejets de STEP. » *Techniques Sciences et Méthodes* ; 3 : 28-40.
- MAILLER R. (2015) : *Manuscrit de thèse : Devenir des micropolluants prioritaires et émergents dans les filières conventionnelles de traitement des eaux résiduaires urbaines des grosses collectivités (files eau et boues), et au cours du traitement tertiaire par charbon actif*. [thèse]. Siaap.
- MAILLER R., GASPERI J., COQUET Y., DESHAYES S., ZEDEK S., CREN-OLIVÉ C., CARTISER N., EUDES V., BRESSY A., CAUPOS E., MOILLERON R., CHEBBO G., ROCHER V. (2014) : « Study of a large scale powdered activated carbon pilot: Removals of a wide range of emerging and priority micropollutants from wastewater treatment plant effluents. » *Water Research* ; 72 : 315-330.
- MILES S.L., SINCLAIR R.G., RILEY M.R., PEPPER I.L. (2011) : « Evaluation of select sensors for real-time monitoring of *Escherichia Coli* in water distribution. » *Applied and environmental microbiology*, 2813-2816.
- NAKACHE F., RACAUD P., SAUR D.T. (2000) : *Automated bacteriological quality monitoring of drinking water : COLITRACK®*, support de poster n° HRWM 32, 4 p. Congrès mondial de l'IWA, Paris, 3-7 juillet 2000
- ROCHER V., MAILLER R., GASPERI J., COQUET Y., NAULEAU F., ROUSSELOT O., AZIMI S., DESHAYES S., ZEDEK S., EUDES V., BRESSY A., CAUPOS E., MOILLERON R., CHEBBO G. (2016) : « Élimination des polluants émergents dans les rejets de STEP. » *Techniques Sciences et Méthodes* ; 3 : 12-26.
- ROCHER V., PAFFONI C., GONÇALVES A., AZIMI S., GOUSAILLES, M. (2008) : « La biofiltration des eaux résiduaires urbaines : retour d'expérience du Siaap. » *La Revue des Sciences de l'Eau* ; 21(4) : 475-485.
- ROCHER V., PAFFONI C., GONÇALVES A., LEGAIGNEUR V., DUTOT A., GOUSAILLES M. (2006) : « Le traitement des eaux usées par biofiltration : cas de la station Seine Centre (Siaap). » *Techniques Sciences et Méthodes* ; 10 : 105-125.
- ROCHER V., AZIMI S. (2016) : *Qualité microbiologique des eaux en agglomération parisienne : des eaux usées aux eaux de Seine*. Johanet ed., 96 p.

# Évolution de la perturbation endocrinienne des eaux usées lors de leur traitement en STEP – Utilisation des modèles WATCHFROG

## *Using watchfrog's technology for the assessment of endocrine activities during wastewater treatment*

David Du Pasquier<sup>[1]\*</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[2]</sup>, Sam Azimi<sup>[2]</sup>, Anne Féraudet<sup>[1]</sup>, Grégory Lemkine<sup>[1]</sup>, Vincent Rocher<sup>[2]</sup>

<sup>[1]</sup> Laboratoire Watchfrog, Evry

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

\* Auteur de correspondance : pasquier@watchfrog.fr



*Certains micropolluants ont des effets sur notre équilibre hormonal, ce sont les perturbateurs endocriniens (PE). L'élimination des PE nécessite d'adapter le traitement de l'eau mais également de disposer des moyens technologiques permettant de mesurer leur présence. Le laboratoire Watchfrog et le Siaap (Service public pour l'assainissement francilien) travaillent depuis plusieurs années au sein du programme Mocopée sur l'utilisation de bio-indicateurs pour suivre les performances des stations d'épuration (STEP). Il s'agit de larves de poissons et d'amphibiens qui deviennent fluorescentes en présence de PE. L'objectif de ce travail est d'évaluer l'abattement des effets endocriniens obtenu après différentes étapes de traitement pour trois stations d'épuration du Siaap. Les résultats montrent que toutes les stations d'épuration reçoivent une eau brute présentant des effets endocriniens importants et néanmoins variables d'une STEP à l'autre et dans le temps pour une même STEP. Dans la majorité des cas, les effets endocriniens sont abattus complètement après l'étape de traitement biologique mais dans certains cas l'abattement n'atteint que 40 %. Les abattements les moins performants ne correspondent pas aux cas où l'eau brute possède les potentiels endocriniens les plus forts. L'abattement est vraisemblablement dépendant de la nature des molécules contenues dans les effluents.*

## Station d'épuration - Performance - Perturbateurs endocriniens - Bioindicateurs

### Introduction

Le contrôle de la qualité de l'eau rejetée dans le milieu récepteur est un enjeu majeur pour le bon état écologique des milieux naturels. Une des préoccupations actuelles concerne les micropolluants. Cette classe de polluants regroupe des molécules de toutes natures et présentant des effets biologiques très variés. Certains micropolluants ont des effets sur l'équilibre hormonal des hommes et de la faune, ce sont les perturbateurs endocriniens. L'arrêt de leur rejet et de leur accumulation dans l'environnement sont nécessaires pour garantir un possible bon état écologique des masses d'eau. L'élimination des effets de perturbation endocrinienne présents dans les rejets de stations d'épuration nécessite d'adapter le traitement de l'eau usée qui historiquement n'a pas été optimisé pour éliminer ce type de molécules. Disposer d'outils pertinents pour mesurer la contamination en PE et caractériser le niveau de contamination des eaux brutes et traitées est un prérequis à cet objectif. Les bioindicateurs sont actuellement la technologie la plus adaptée car ils permettent de caractériser le potentiel global de perturbation endocrinienne d'un échantillon en intégrant les effets de toutes les substances présentes. Un des avantages supplémentaires des bioindicateurs est qu'ils ne soient pas ciblés sur une ou des molécules en particulier mais sur un effet biologique permettant ainsi de mettre en évidence la présence de molécules dont les effets endocriniens ne sont pas forcément référencés.

Le laboratoire Watchfrog et le Siaap travaillent depuis plusieurs années au sein du programme Mocopée sur l'utilisation de bioindicateurs pour suivre les performances des stations d'épuration (STEP). Le travail que nous menons s'inscrit dans un des grands objectifs du programme Mocopée : Innover dans la métrologie pour accroître le niveau de maîtrise et d'optimisation des systèmes de traitement. Au-delà de la mise en œuvre et de l'évaluation de ces moyens innovants pour la détection des PE, ce projet vise à répondre à deux objectifs : (1) améliorer les connaissances sur la toxicité des effluents dans le continuum réseau d'assainissement-STEP en évaluant la perturbation endocrinienne dans les effluents de réseau d'assainissement collectés dans les émissaires de l'agglomération parisienne ; (2) étudier l'évolution de la perturbation endocrinienne le long de la file de traitement des eaux. Pour ce second objectif, trois stations d'épuration avec des procédés de traitement biologique différents ont été choisies. Il s'agit de boues activées, boues activées combinées à une filtration membranaire et de biofiltres, permettant ainsi une comparaison des performances selon le type de technologie déployé.

Dans ce cadre, nous avons ciblé deux types de PE, la perturbation thyroïdienne et la perturbation oestrogénique. Des organismes embryonnaires comme modèles biologiques ont été appliqués (Tests *in vivo* de Watchfrog). Les tests *in vivo* permettent de considérer un plus grand nombre d'action contrairement aux tests *in vitro* (en culture de cellule). En effet, les hormones sont synthétisées par une glande, transportées dans le sang et importées dans les cellules cibles. Lorsqu'elles rentrent dans la cellule cible, elles interagissent avec un récepteur qui leur permet de modifier l'expression d'un ensemble de gènes cibles. Toutes ces étapes peuvent être les cibles de molécules appartenant à la catégorie des PE et peuvent être détectées par les tests *in vivo* ; les tests *in vitro* permettent de détecter uniquement les molécules dont le mécanisme d'action est l'interaction avec le récepteur hormonal car c'est le seul mécanisme présent dans une cellule isolée de l'organisme.

## 1. Matériel et méthodes

### 1.1. SITES INDUSTRIELS SUIVIS

Le Siaap avec ses six stations d'épuration, draine un bassin versant d'environ 2 000 km<sup>2</sup> et rejette les eaux traitées dans la Seine et la Marne. Deux types de réseaux caractérisent le système d'assainissement de l'agglomération parisienne. La zone éloignée de Paris (zone est) est composée de réseaux principalement séparatifs, alors que la zone ouest comprenant Paris (75) et les départements du Val-de-Marne (94), de Seine-Saint-Denis (93) et des Hauts-de-Seine (92) est principalement dotée d'un réseau unitaire, majoritairement alimenté par des effluents de type domestique. Les volumes d'effluents transitant quotidiennement dans le réseau d'assainissement sont de l'ordre de 2,5 millions de mètres cubes, par temps sec, et peuvent dépasser les 5 millions de mètres cubes lors des journées pluvieuses.

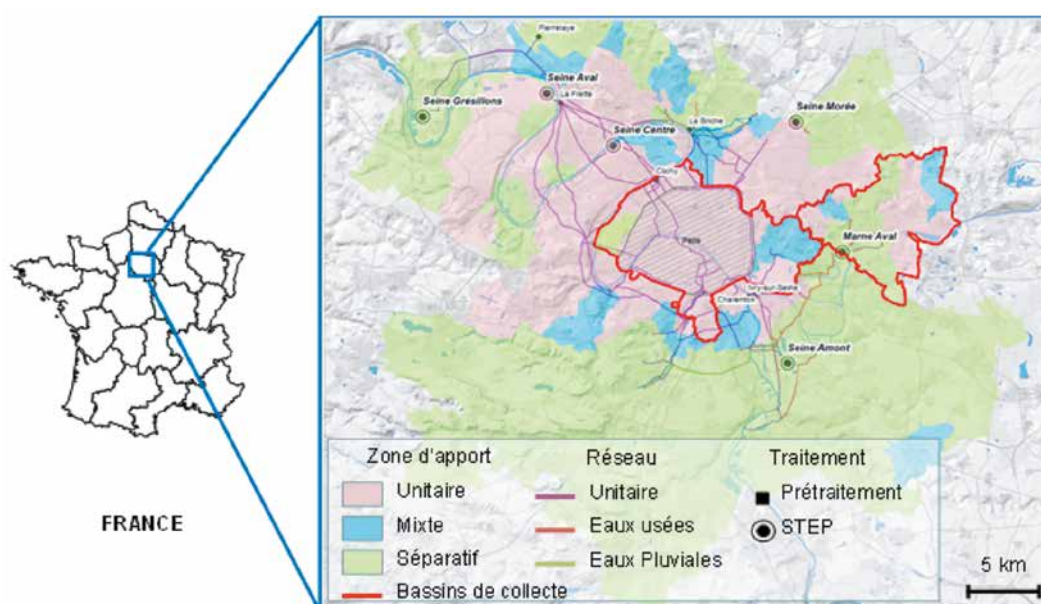


Figure 1 : Localisation des stations d'épuration du Siaap et les caractéristiques du réseau d'assainissement de l'agglomération parisienne

Trois stations d'épuration du Siaap sont étudiées dans le cadre de ce projet (Figure 1) :

- La station Seine Valenton (SEV) d'une capacité de traitement de 600 000 m<sup>3</sup>/j. Sa filière de traitement des eaux est composée d'une décantation simple suivie d'un traitement biologique par boues activées très faible charge où sont éliminées les pollutions carbonée, azotée et phosphorée (dé-phosphatation chimique et biologique).
- La station Seine centre (SEC) d'une capacité de traitement de 240 000 m<sup>3</sup>/j. Sa filière de traitement est composée d'une décantation physico-chimique accélérée suivie d'une étape de biofiltration permettant l'élimination des pollutions carbonée et azotée.
- La station Seine Morée (SEM) d'une capacité de traitement de 50 000 m<sup>3</sup>/j. Sa filière de traitement est composée d'une décantation physico-chimique suivie d'un traitement biologique par bioréacteurs à membranes permettant l'élimination des pollutions carbonée et azotée.

## 1.2. DESCRIPTIF DES CAMPAGNES DE MESURES

Deux campagnes de prélèvements ont été effectuées sur les trois stations du Siaap. La première campagne (décembre 2016) a consisté à prélever des échantillons ponctuels à toutes les étapes de traitement de la station Seine centre sur 6 jours différents (Figure 2-b). Il s'agit de l'eau brute, l'eau décantée, l'eau décarbonée, l'eau nitrifiée, l'eau dénitrifiée et l'eau de rejet [mélange eau nitrifiée (30 %) et dénitrifiée (70 %)]. L'objectif de cette première campagne « complète » est d'évaluer finement le comportement des PE au fil de la filière de traitement des eaux. Une seconde campagne de prélèvement a été engagée à l'été 2017 sur trois stations, Seine Valenton, Seine centre et Seine Morée mais sur des étapes de traitement plus ciblées. Des échantillons ponctuels ont été pris au niveau de l'eau brute, de l'eau décantée et de l'eau traitée biologiquement (Figure 2) sur 3-4 jours différents. L'objectif de cette seconde étape est d'une part d'apprécier une éventuelle variabilité des PE en fonction du type de réseau d'assainissement ; d'autre part de comparer les performances des différents procédés vis-à-vis de ces PE. L'ensemble des prélèvements a été effectué dans des flacons neufs en verre.

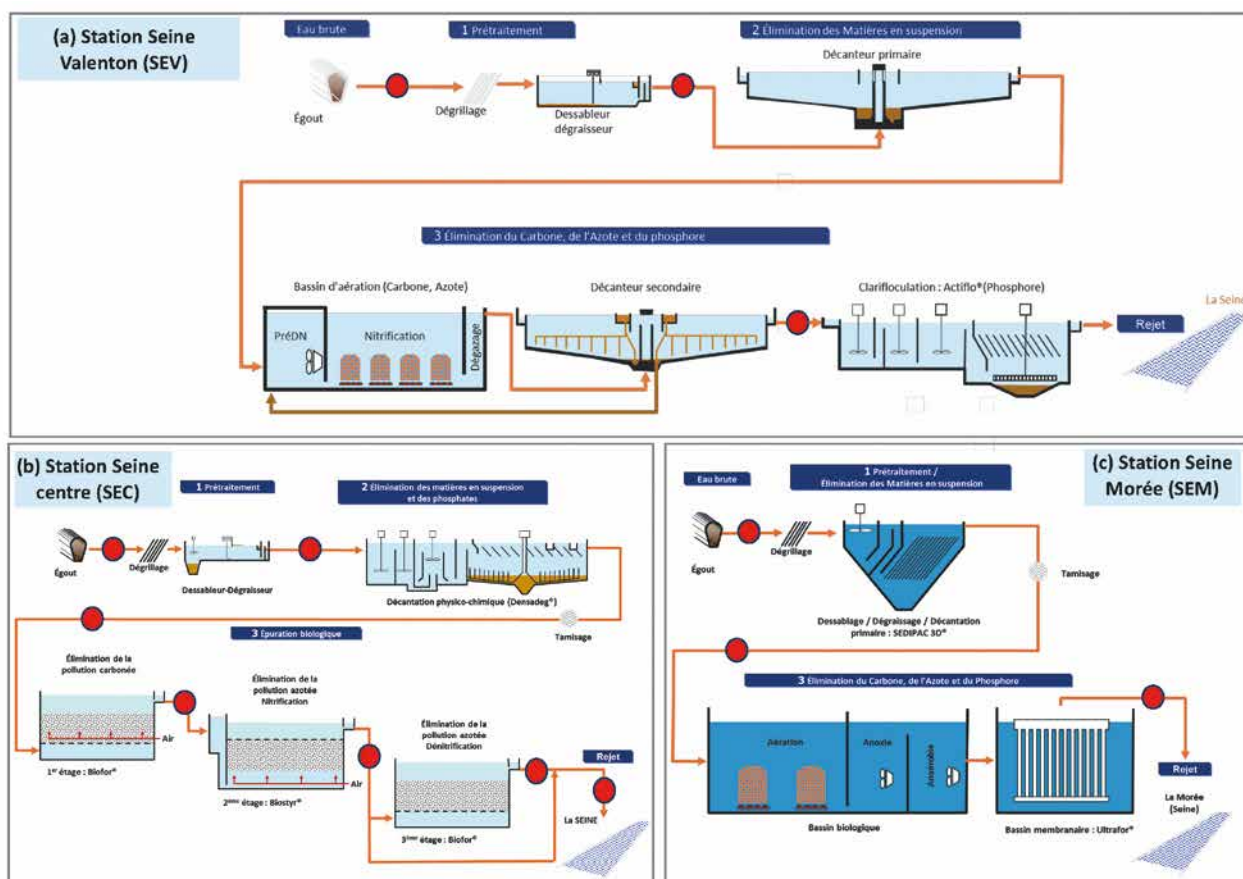


Figure 2 : Filières de traitement des eaux avec les points de prélèvements pour (a) Seine Valenton (SEV), (b) Seine centre et (c) Seine Morée (SEM)



Avec ces deux campagnes on regroupe trois types de décantation primaire : décantation primaire classique pour la station Seine Valenton, décantation physico-chimique lamellaire pour la station Seine centre et une décantation incluant un dessablage/dégraissage pour la station Seine Morée. Pour le traitement biologique, on a également trois types de procédés différents : boues activées faible charge pour la station Seine Valenton, biofiltration pour la station Seine centre et des bioréacteurs à membranes pour Seine Morée. La diversité des procédés et technologies étudiés va permettre d'étudier finement les performances d'élimination des PE.

### 1.3. MODÈLES BIOLOGIQUES UTILISÉS POUR ÉVALUER LA PERTURBATION ENDOCRINIENNE

Deux types de perturbateurs endocriniens sont étudiés : la perturbation thyroïdienne et la perturbation oestrogénique. Pour les détecter, nous avons appliqué des tests utilisant des organismes vertébrés aquatiques, poissons et amphibiens, représentatifs d'animaux de l'écosystème [AFNOR T90-716-1/2 : « Qualité de l'eau - Mesure par fluorescence *in vivo* des effets perturbateurs endocriniens des eaux naturelles et eaux résiduaires - Partie 1 : mesure des effets sur l'axe thyroïdien d'embryons d'amphibiens (*Xenopus laevis*). Partie 2 : mesure des effets sur l'axe oestrogénique et de l'activité de l'enzyme aromatase d'embryons de poissons (*Oryzias latipes*) »].

Le test utilisant des poissons permet de détecter les perturbateurs oestrogéniques, connus pour pouvoir entraîner la réversion sexuelle de poissons. Les perturbateurs thyroïdiens sont ciblés par un test sur têtards d'amphibiens dont ils modifient la métamorphose. Plus précisément, l'évaluation de la perturbation endocrinienne est basée sur l'utilisation de larves ces petits organismes modèles aquatiques : têtards de l'amphibien Xénope pour la perturbation thyroïdienne et alevins du poisson Médaka pour la perturbation oestrogénique. A ces organismes sont associés des marqueurs génétiques qui leur permettent d'être fluorescents lorsqu'ils sont en contact avec des molécules modifiant le fonctionnement des axes hormonaux (TSM 2009, 2010, 2013, DU PASQUIER *et al.*, 2015). La Figure 3 illustre l'augmentation de fluorescence qui est obtenue lorsqu'un têtard bioindicateur est en contact avec une eau polluée par des perturbateurs thyroïdiens. Pour permettre la détection de l'ensemble des perturbations possibles, les échantillons sont testés avec ou sans co-traitement avec une hormone. On parle alors respectivement de modes « stimulé » et « non stimulé ». Les stades larvaires utilisés ne synthétisant pas encore ces hormones, cette stimulation permet de révéler certains mécanismes d'action des micropolluants perturbateurs endocriniens qui ne peuvent l'être en absence d'hormone. Les tests sont effectués en laboratoire : les larves sont exposées aux échantillons en plaques six puits pendant 24 h pour les alevins ou 48 h pour les têtards. Les larves sont ensuite transférées dans des plaques 96 puits et la fluorescence est analysée par imagerie robotisée : une image est prise de chaque larve sous un éclairage spécifique permettant de révéler la fluorescence et un algorithme d'analyse d'image est utilisé pour obtenir une quantification de la fluorescence. Une analyse statistique est ensuite effectuée pour comparer les valeurs de fluorescence obtenues pour les échantillons à celles de larves témoins exposées à de l'eau d'Evian.

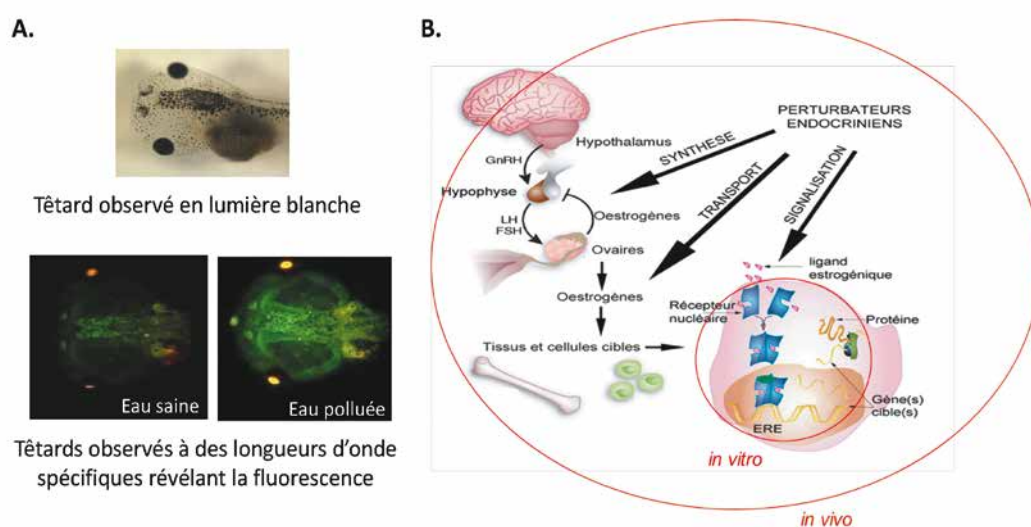


Figure 3 : Photographies des têtards utilisés comme bio-indicateurs (A) Schéma des mécanismes d'action pris en compte par l'utilisation des modèles *in vitro* et *in vivo* (B)



Pour préciser le niveau de contamination de l'échantillon, la fluorescence des larves induite par l'échantillon d'eau à tester est comparée à celle de témoins négatifs (eau minérale) et positifs (eau dopée avec des hormones de référence). Les valeurs de fluorescence obtenues pour les témoins négatifs correspondent à une activité biologique naturelle normale des organismes vivants et ne sont pas le témoin d'une quelconque perturbation. Les valeurs de fluorescence obtenues pour les témoins positifs définissent le seuil de perturbation endocrinienne. Lorsque l'intensité de fluorescence induite par un échantillon est supérieure à ce seuil, il est probable qu'une exposition à cet échantillon entraîne des effets physiologiques nocifs observables. La concentration de triiodothyronine (hormone thyroïdienne T3) utilisée pour le témoin positif du test thyroïdien est de 3,25 µg/L. Elle correspond à une dose physiologique trouvée dans le plasma des têtards lors de leur métamorphose, à l'état naturel (LELOUP, 1977). Elle est décrite dans la littérature comme étant capable de provoquer des effets physiologiques nocifs observables : une accélération de la vitesse de métamorphose du xénope qui entraîne la mort des têtards s'ils y sont exposés à des stades non métamorphiques (YUN-BO SHI, 1998). Pour le témoin positif du test oestrogénique, la concentration d'éthinylestradiol utilisée est de 64 ng/L. Elle est décrite dans la littérature comme étant capable de modifier la reproduction des poissons (SEKI, 2002).

Au-delà de l'expression des résultats sous cette forme qualitative, renseignant sur la capacité de l'échantillon à induire un effet physiologique nocif, les résultats sont exprimés sous forme quantitative. Lors de chaque expérience, parallèlement aux larves exposées aux échantillons, des larves sont exposées à une gamme de différentes concentrations d'hormone de référence qui permet d'obtenir une courbe « étalon » définissant la fluorescence obtenue en fonction de la concentration d'hormone. A l'aide de cette courbe « étalon », les valeurs de fluorescence obtenues pour les échantillons peuvent être converties en équivalents hormonaux pour connaître la concentration d'hormone qui aurait induit la même variation de fluorescence que l'échantillon. L'utilisation de ces équivalents hormonaux permet de comparer les résultats obtenus pour des échantillons testés dans différentes expériences.

## 2. Résultats et discussion

### 2.1 SUIVI DE LA PERTURBATION ENDOCRINIENNE LE LONG DE LA FILIÈRE DE TRAITEMENT DE L'USINE SEINE CENTRE

Le premier objectif de ce travail est d'évaluer le comportement des PE le long de la filière de traitement des eaux usées. La campagne réalisée sur la station Seine centre, intégrant l'ensemble des étapes de traitement (Figure 2-b), a permis d'obtenir les résultats présentés par la Figure 4. La perturbation thyroïdienne pour les modes « non stimulé » et « stimulé » sont présentés respectivement sur les Figure 4 A-B et Figure 4 C-D. Les résultats sont exprimés en niveaux de fluorescence pour les Figure 4A-C, le pourcentage indique la dilution à laquelle l'échantillon a pu être testé (absence de létalité). Les résultats sont également exprimés en équivalents hormonaux après correction de la dilution sur les Figure 4 B-D. Lorsque le niveau de fluorescence est significativement différent de celui de l'eau d'Evian, celui-ci est identifié par des étoiles (\*\*\*) . Dans le cas contraire, lorsque le niveau de fluorescence est statistiquement identique à celui de l'eau d'Evian, la mention « NS » est indiquée.

Préalablement aux tests des PE, un test de létalité a dû être effectué. L'objectif est de définir une éventuelle dilution à apporter aux échantillons pour assurer la survie des larves et ainsi pouvoir déterminer un potentiel endocrinien. En effet, une toxicité aigüe importante pour les organismes aquatiques a été observée à la fois pour les eaux brutes et les eaux décantées. Une dilution à 25 % dans de l'eau d'Evian a dû être appliquée pour ces deux types d'eaux. Concernant l'eau décantée, une toxicité aigüe moins importante a été observée nécessitant une dilution plus faible à 50 % dans l'eau d'Evian. Après l'étape de nitrification les échantillons ne présentent plus de toxicité aigüe et ont pu être testés non dilués.

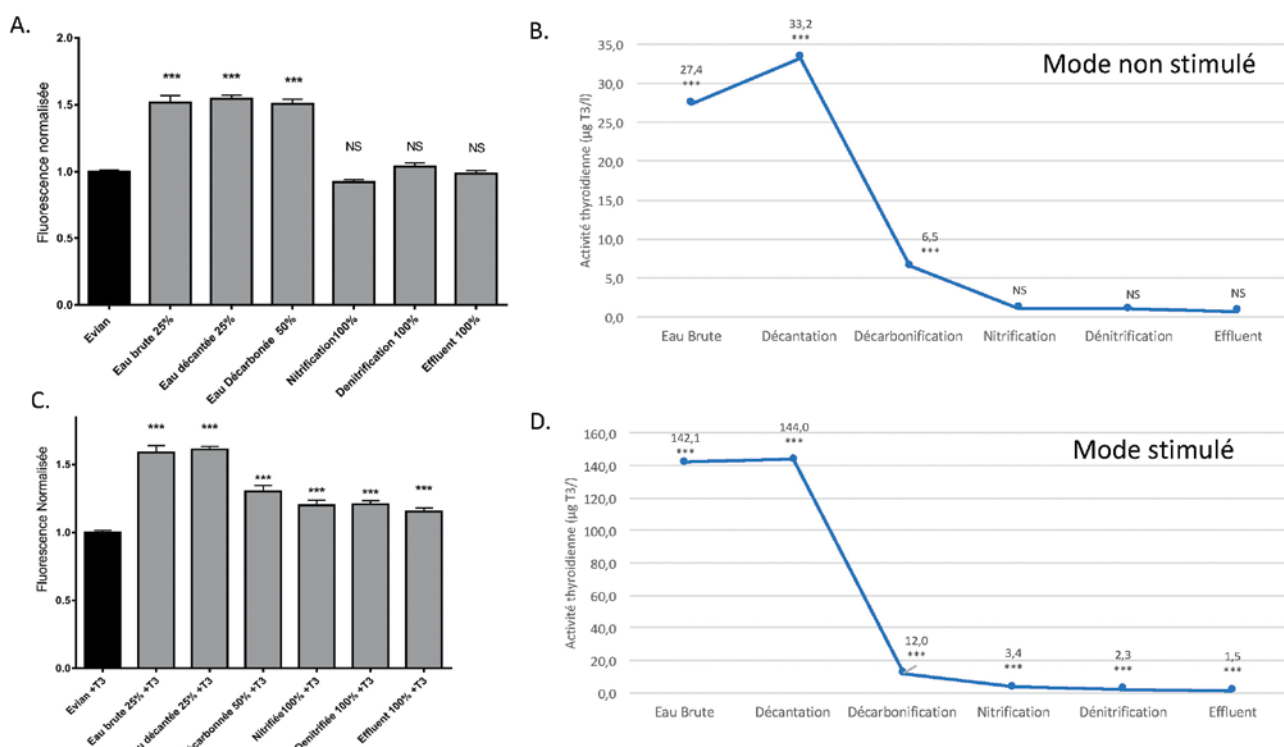
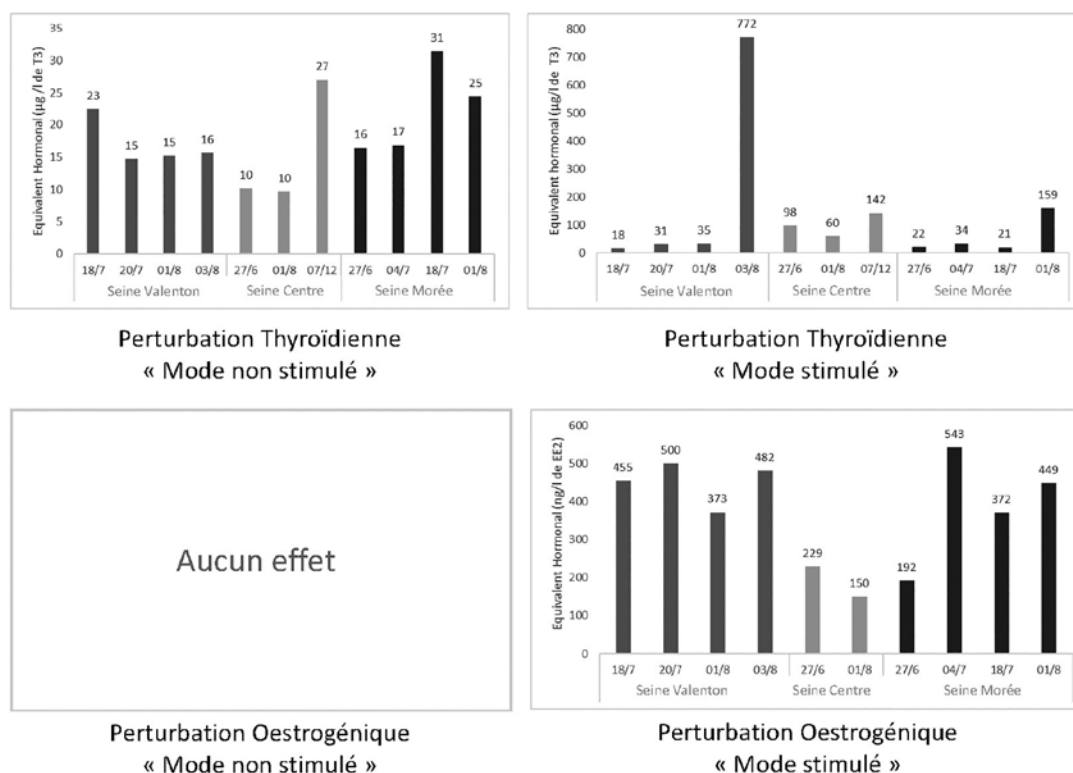


Figure 4 : Perturbation thyroïdienne mesurée sur les différentes étapes de traitement de l'usine Seine centre , en mode « non stimulé » : exprimé en fluorescence normalisée (a) et en équivalent hormonal (b) ; et en mode « stimulé » : exprimé en fluorescence normalisée (c) et en équivalent hormonal (d)

En mode « non stimulé », on observe la présence d'un potentiel thyroïdien de 27,4 µg de T3/L dans l'eau brute qui diminue à 6,5 µg de T3/L après l'étape de traitement du carbone pour devenir inférieur à la limite de détection après la nitrification (Figure 4A-B). Le rejet de la STEP ne contient plus d'effet thyroïdien détectable en mode non stimulé. Le mode stimulé permet de détecter des molécules ayant des modes d'action différents de celles détectées en mode non stimulé. Le potentiel thyroïdien détecté pour l'eau brute dans ce mode est plus important : 142 µg de T3/L, il est abattu jusqu'à 12 µg de T3/L après l'étape de traitement du carbone, 3,4 µg de T3/L après la nitrification et 2,3 après la dénitrification. Le rejet de la station contient encore un effet thyroïdien détectable correspondant à 1,5 µg de T3/L. Ce niveau reste néanmoins inférieur au potentiel thyroïdien capable d'induire des effets physiologiques nocifs chez les amphibiens qui est de 3,25 µg de T3/L. On retiendra donc de cette première étude que l'essentiel de l'effet thyroïdien est abattu par les étapes de traitement du carbone et de nitrification et qu'un effet thyroïdien résiduel est présent dans le rejet lors de cette campagne de mesures.

## 2.2 SUIVI DE LA PERTURBATION ENDOCRINIENNE DANS LES EAUX BRUTES DE TROIS BASSINS VERSANTS

Pour évaluer le potentiel endocrinien des eaux brutes transitant dans les réseaux d'assainissement, nous avons travaillé sur les eaux brutes alimentant chacune des trois stations étudiées. Ces trois stations drainent des bassins versants différents et sont alimentées par des réseaux d'assainissement différents (unitaires pour Seine centre, séparatif et/ou mixte pour Seine Valenton et Seine Morée). Les tests de détection d'effets thyroïdiens et oestrogéniques ont été réalisés dans les modes « stimulé » et « non stimulé » (Figure 5). Aucun effet oestrogénique n'a été mis en évidence par le test oestrogénique en mode non stimulé, d'où l'absence de ce résultat dans la figure.



**Figure 5 : Suivi de la perturbation endocrinienne dans les eaux brutes de trois stations d'épuration. Les histogrammes représentent les équivalents hormonaux déterminés pour l'eau brute aux différentes dates de prélèvement.**

Pour le test thyroïdien en mode non stimulé, les résultats montrent que les effets thyroïdiens sont variables d'une station à une autre mais également au sein même de la station pour des échantillons prélevés à quelques jours d'intervalle. Les potentiels thyroïdiens mesurés varient de 10 à 31  $\mu\text{g}$  de T3/L, le plus faible ayant été déterminé pour Seine centre et le plus fort pour Seine Morée. En moyenne sur l'ensemble des campagnes, le potentiel le plus faible est également observé pour Seine centre (15  $\mu\text{g}$  de T3/L) et le plus fort pour Seine Morée (22  $\mu\text{g}$  de T3/L). Les résultats du test thyroïdien en mode stimulé montrent une plus grande variabilité du potentiel endocrinien de l'eau brute. Les potentiels thyroïdiens mesurés varient de 18 à 772  $\mu\text{g}$  de T3/L, ces deux valeurs ayant été mesurées pour Seine Valenton. La seconde valeur est beaucoup plus élevée que toutes les autres activités mesurées. Pour le test oestrogénique en mode stimulé, les valeurs mesurées varient de 150 à 453  $\text{ng}$  de EE2/L. En moyenne, les potentiels oestrogéniques les plus faibles sont observés pour Seine Centre (189  $\text{ng}$  de EE2/L) et les plus forts pour Seine Valenton (452  $\text{ng}$  de EE2/L). Les activités endocriniennes détectées dans les eaux brutes sont donc d'intensités très variables selon les bassins versants et les dates de prélèvement, mais semblent globalement plus faibles pour la station Seine centre. Cette tendance peut être expliquée par le fait que la station Seine centre soit alimentée par un réseau unitaire majoritairement domestique ; et que Seine Morée et Seine Valenton soient plutôt alimentées par un réseau séparatif/mixte drainant un bassin versant avec une activité industrielle probablement plus importante.

## 2.3 SUIVI DE L'ABATTEMENT DE LA PERTURBATION ENDOCRINIENNE APRÈS LES ÉTAPES DE DÉCANTATION ET DE TRAITEMENT BIOLOGIQUE

Pour les trois stations d'épuration suivies, nous avons déterminé les potentiels endocriniens présents dans l'eau après les étapes de décantation et de traitement biologique. Les abattements des effets endocriniens présents initialement dans les eaux brutes ont ensuite été déterminés (Figure 5).

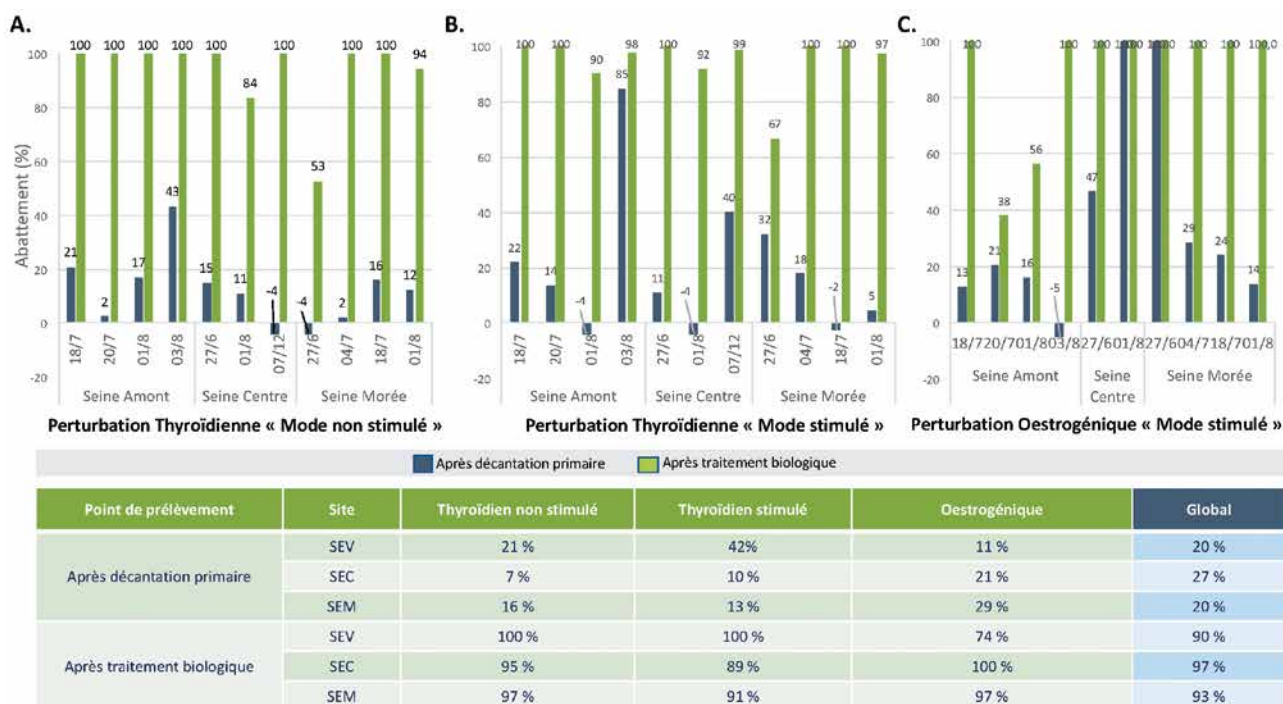


Figure 6 : Abattements de la perturbation endocrinienne le long de la filière de traitement des trois stations d'épuration. L'abattement du potentiel endocrinien présent dans l'eau brute a été déterminé après l'étape de décantation (bleu) et après étape de traitement biologique (vert). Le tableau présente la moyenne des pourcentages d'abattement pour chaque test et site.

### Performances de la décantation vis-à-vis des PE

On peut observer que l'étape de décantation permet d'abattre des quantités variables d'effets endocriniens. Pour le test thyroïdien non stimulé l'abattement est généralement très limité, la valeur maximale observée à cette étape est de 43 % mais la valeur moyenne n'est que de 12 %. Pour le test thyroïdien en mode stimulé, des abattements supérieurs sont observés avec un maximum à 85 % et une moyenne de 20 %. C'est pour le test oestrogénique en mode stimulé que les abattements les plus importants sont observés. A deux dates de prélèvement un abattement complet du potentiel oestrogénique a été obtenu après l'étape de décantation. Le niveau moyen d'abattement du potentiel oestrogénique à cette étape est de 36 %. Globalement, la décantation primaire montre une faible efficacité d'élimination des effets endocriniens ce qui semble indiquer que les perturbateurs endocriniens seraient véhiculés dans la phase dissoute ; une phase contenant des polluants potentiellement biodisponibles aux microorganismes. Cette faible efficacité d'abattement en étape de décantation est logique dans la mesure où cette étape a pour but d'éliminer les particules voire des orthophosphates et des colloïdes (dans le cas d'ajout de réactifs) et une fraction faible des composés solubles [environ 20 % en DCO soluble et 15 % en azote kjeldahl ; (ROCHER *et al.*, 2006)]. Un abattement limité lors de la décantation a également été observée vis-à-vis de certains micropolluants, organiques notamment (MAILLER *et al.*, 2016a ; ROCHER *et al.*, 2011 ; ROCHER *et al.*, 2006). Ces travaux ont mis en évidence des abattements fluctuants mais globalement inférieurs à 20 % pour des molécules identifiées comme hydrophiles ; tels que les pesticides, COHV (composés halogénés volatiles), les BTEX (Benzène, toluène, éthylbenzène et xylènes) et les HAP (hydrocarbures aromatiques polycycliques) de faibles poids moléculaires. Un abattement compris entre 20 et 50 % a été également souligné pour des molécules présentant un caractère hydrophile intermédiaire, tels que le fluorène et le phénanthrène. Les taux d'élimination de ces micropolluants hydrophiles en décantation primaire a été similaire quel que soit le type de décantation (classique ou favorisé par l'ajout de réactifs) (GASPERI *et al.*, 2010) ; ce qui est observé également pour les PE dans le cadre de cette étude. La grande variabilité de l'abattement des PE observée en décantation primaire illustre le fait que des polluants différents selon les jours de prélèvement sont responsables des effets observés. La différence du type du réseau d'assainissement alimentant les trois stations (Figure 1) permet, en partie, d'expliquer cette grande variabilité d'abattement. En effet, le réseau d'assainissement alimentant la station Seine Valenton et Seine Morée est de type mixte drainant un bassin versant domestique et industriel ; alors que celui alimentant la station Seine centre est majoritairement domestique.

Enfin, si on observe l'évolution de l'abattement après décantation en fonction de la charge appliquée en effets endocriniens de l'eau brute (Figure 7), on peut également remarquer que l'efficacité de l'abattement est

inversement proportionnelle à l'intensité de l'effet oestrogénique ; les abattements les plus performants ont été obtenus pour les charges les moins élevées en effet oestrogénique. En revanche, cette relation n'est pas observée pour les effets thyroïdiens détectés en modes non stimulé et stimulé (Figure 7).

### Performances du traitement biologiques vis-à-vis des PE

Après l'étape de traitement biologique, le potentiel endocrinien est abattu totalement dans sept cas sur onze pour le test thyroïdien non stimulé et stimulé et huit cas sur dix pour le test oestrogénique stimulé (Figure 6). Si on considère les trois tests pratiqués, il n'y a au total que cinq cas sur trente-deux pour lesquels un abattement inférieur à 90 % est obtenu par la filière de traitement. Nous constatons donc une efficacité importante mais pas totale du traitement biologique pour l'élimination des effets endocriniens. Ces niveaux élevés d'abattement des PE en traitement biologique sont logiques dans la mesure où les composés solubles sont fortement éliminés lors de cette étape. Le rendement d'élimination est de l'ordre de 80 % pour la DCO soluble et de plus de 95 % pour l'azote kjeldahl (ROCHER *et al.*, 2006). Les mêmes tendances ont été observées vis-à-vis des micropolluants. Les études menées par ROCHER *et al.* (2011) et MAILLER *et al.* (2014 et 2016b) sur la station Seine centre ont en effet montré que le traitement biologique permettait un abattement de plus de 80 % des micropolluants ; ces abattements élevés étant liés à la multiplicité des processus impliqués dans l'élimination des micropolluants (rétention des particules, volatilisation, adsorption et biodégradation). Néanmoins, les auteurs remarquent que certains composés sont éliminés moins efficacement. Par exemple, les molécules hydrophiles, non volatiles et réfractaires à la biodégradation, telles que les pesticides, sont moins bien éliminées sur la filière de traitement biologique (ROCHER *et al.*, 2011 ; MAILLER *et al.*, 2014). En somme, des résiduels de micropolluants subsistent encore en sortie des stations d'épuration avec des concentrations faibles et comprises entre quelques ng/L à quelques dizaines de µg/L pouvant induire un effet endocrinien (GASPERI *et al.*, 2008 ; ROCHER *et al.*, 2011). Enfin, on peut constater sur la Figure 7 que les abattements les moins performants ne correspondent pas aux jours de prélèvement pour lesquels les potentiels hormonaux étaient les plus forts dans l'eau brute. On peut supposer que l'abattement est dépendant de la nature des molécules contenues dans les effluents.

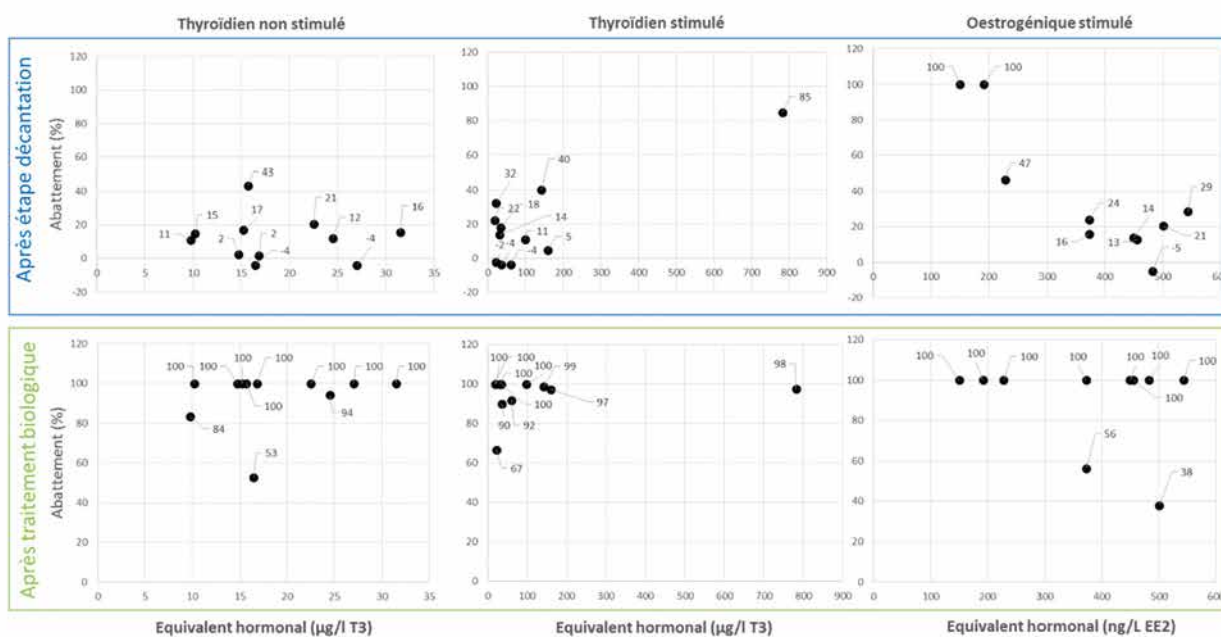


Figure 7 : Abattements observés en fonction du niveau de perturbation présent dans de l'eau brute après l'étape de décaantation (encadré bleu) et après l'étape de traitement biologique (encadré vert)

Ces résultats permettent une inter-comparaison des traitements biologiques. Si pour les effets thyroïdiens les trois STEP atteignent des performances voisines avec des taux moyens d'abattements compris entre 90 et 100 %, l'écart de performance est plus marqué pour les effets oestrogéniques détectés en mode stimulé. L'abattement moyen obtenu sur le site de Seine Valenton après le traitement biologique par boues activées faible charge n'atteint que 74 % alors qu'il est de 100 % pour la biofiltration et les bioréacteurs à membranes des usines Seine centre et Seine Morée. Cette différence ne peut être expliquée par une moindre performance de la file de traitement biologique de SEV vis-à-vis des micropolluants dans la mesure où les précédentes études ont montré



que les bassins biologiques à boues activées fonctionnant en aération prolongée permettaient un abattement de la micro-contamination au moins aussi efficace, voire plus efficace pour certains composés, que celui obtenu par biofiltration (MAILLER *et al.*, 2014). En revanche, il est possible que cette différence puisse être liée aux compositions chimiques différentes des effluents alimentant ces usines ; le bassin versant drainé par la station SEV présentant un caractère plus industrialisé.

## Conclusions et perspectives

Cette étude menée dans le cadre du programme de recherche Mocopée montre que les tests utilisant les bioindicateurs en laboratoire sont des outils pertinents pour étudier l'efficacité des différentes phases de traitement sur l'élimination des micropolluants perturbateurs endocriniens. Les résultats de cette étude montrent que, bien que les STEP n'aient pas été conçues spécifiquement pour éliminer les effets endocriniens, des abattements importants voir totaux sont régulièrement obtenus sur les filières étudiées. L'observation régulière d'abattements insuffisants pour éliminer totalement les effets endocriniens souligne néanmoins la nécessité d'utiliser des traitements tertiaires pour garantir un meilleur état écologique des masses d'eau réceptrices (DU PASQUIER, 2015).

Les variations du potentiel endocrinien observées dans l'eau brute et les variations dans l'abattement obtenu par les différentes étapes de traitement montrent qu'une étude ponctuelle ne peut être suffisante pour caractériser l'efficacité d'une station d'épuration. Ces variations impliquent qu'une étude des performances d'une station d'épuration vis-à-vis des perturbateurs endocriniens doit se baser sur plusieurs campagnes, idéalement effectuées dans des conditions de fonctionnement différentes de la STEP (période de l'année, température, pluviométrie, etc.).

## Remerciements

Les auteurs remercient les exploitants des stations Seine centre, Seine Valenton et Seine Morée du Siaap pour les différentes campagnes de prélèvements.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- DU PASQUIER D., LEMKINE G., MEYNEROL K., SAUVIGNET P., BORSATO J., GONCALVES A., ROCHER V. (2015) : « Intérêt de la mesure biologique dans le suivi des performances de traitement des polluants « émergents » en eaux résiduaires municipales. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 10 : 33-42.
- DU PASQUIER D., GUERIN S., LEMKINE G., ROCHER V. (2018) : *Retour d'expérience sur l'utilisation de bio-indicateurs pour le suivi des effluents de STEP*. Communication affiche. Congrès de l'Astee, Marseille 2018.
- DU PASQUIER D., LOIRE N., LEMKINE G., GUERIN S., BERNIER J., AZIMI S., ALIBERT E., ROCHER V. (2017) : *Intérêt des bio-indicateurs dans le suivi des performances des STEP*. Communication orale. Congrès de l'Astee, Liège 2017.

## Bibliographie

- DU PASQUIER D., LEMKINE G., MEYNEROL K., SAUVIGNET P., BORSATO J., GONCALVES A., ROCHER V. (2015) : « Intérêt de la mesure biologique dans le suivi des performances de traitement des polluants « émergents » en eaux résiduaires municipales. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 10 : 33-42
- GASPERI J., GARNAUD S., ROCHER V., MOILLERON R. (2008) : « Polluants prioritaires dans les eaux usées et les rejets urbains de temps de pluie. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 11 : 49-70.
- GASPERI J., ROCHER V., GILBERT S., AZIMI S., CHEBBO G. (2010) : « Occurrence and removal of priority pollutants by lamella clarification and biofiltration. » *Water Research* ; 44 : 3065-3076.
- LELOUP J. BUSCAGALIA M. (1977) : « La triiodothyronine: Hormone de la métamorphose des amphibiens. » C. R. *Academy of Science* ; 284 : 2261-2263.
- MAILLER R., GASPERI J., ROCHER V., GILBERT-PAWLIK S., GEARA-MATTA D., MOILLERON R., CHEBBO G. (2014) : « Biofiltration vs conventional activated sludge plants: what about priority and emerging pollutants removal? » *Environmental Science and Pollution Research* ; 21(8) : 5379-90.
- MAILLER R., GASPERI J., COQUET Y., BULETE A., VULLIET E., DESHAYES S., ZEDEK S., MIRANDE-BRET C., EUDES V., BRESSY A., CAUPOS E., MOILLERON R., CHEBBO G., ROCHER V. (2016a) : « Removal of a wide range of emerging pollutants from wastewater treatment plant discharges by micro-grain activated carbon in fluidized bed as tertiary treatment at large pilot scale. » *Science of The Total Environment* ; 542 Part A : 983-996.
- MAILLER R., GASPERI J., COQUET Y., DEROME C., BULETE A., VULLIET E., BRESSY A., VARRAULT G., CHEBBO G., ROCHER V. (2016b) « Élimination des polluants émergents dans les rejets de STEP. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 3 : 28-40.
- ROCHER V., PAFFONI C., GONÇALVES A., LEGAIGNEUR V., DUTOT A., GOUSAILLES M. (2006) : « Le traitement des eaux usées par biofiltration : cas de la station Seine Centre (Siaap). » *Techniques Sciences Méthodes* ; 10 : 105-125.
- ROCHER V., GASPERI J., AZIMI S., GILBERT S., PAFFONI C. (2011) : « Comportement des substances prioritaires sur les ouvrages de traitement des eaux usées : cas de la décantation lamellaire et de la biofiltration. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 3 : 20-34.
- SEKI M., YOKOTA H., MATSUBARA H., TSURUDA Y., MAEDA M. (2002) : « Effect of ethinylestradiol on the reproduction and induction of vitellogenin and testis-ova in medaka (*Oryzias latipes*). » *Environmental Toxicology and Chemistry* ; 21(8) : 1692-1698.
- TSM (TECHNIQUES SCIENCES METHODES) (2009) : *Dossier Eau et micropolluants : sources - impacts - maîtrise*. TSM4 : 15-101.
- TSM (TECHNIQUES SCIENCES METHODES) (2010) : *Les têtards fluos de Watchfrog pour suivre l'impact des polluants*. TSM1/2 - Actualités des entreprises : 5-6.
- TSM (TECHNIQUES SCIENCES METHODES) (2013) : *Veolia et Watchfrog industrialisent des tests biologiques en ligne*. TSM11 - Actualités des entreprises : 10.
- YUN-BO S. (1998) : *Whiley-Liss. Amphibian Metamorphosis: From Morphology to Molecular Biology*. January 1998.





## Métrieologie innovante appliquée à la file de traitement des boues







# Développement et validation d'une méthode alternative pour l'estimation rapide du potentiel méthane des boues d'épuration urbaine

## *Development and validation of a rapid alternative method for the estimation of the biomethane potential of sewage sludge*

Solenn Bellaton<sup>[1]\*</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[2]</sup>, Nathalie Pautremat<sup>[3]</sup>, Mathieu Muller<sup>[1]</sup>, Sam Azimi<sup>[2]</sup>, André Pauss<sup>[4]</sup>, Vincent Rocher<sup>[2]</sup>

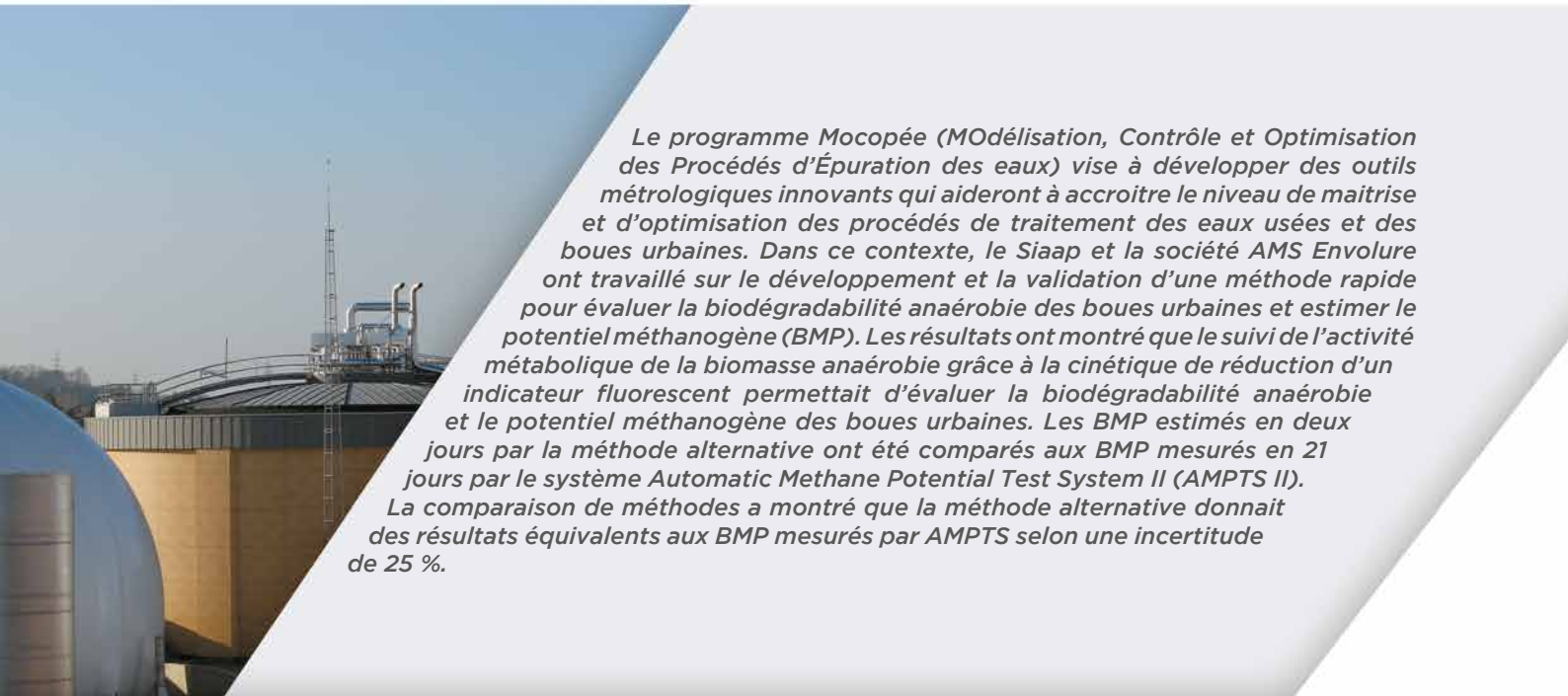
<sup>[1]</sup> AMS Envolure, Montpellier

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

<sup>[3]</sup> Scanae, Grabels

<sup>[4]</sup> Centre de Recherche Royallieu, Université Technologique de Compiègne

\* Auteur de correspondance : [solenn.bellaton@envolure.com](mailto:solenn.bellaton@envolure.com)



*Le programme Mocopée (MOdélisation, COntrôle et OptiMisation des Procédés d'Épuration des eaux) vise à développer des outils métrologiques innovants qui aideront à accroître le niveau de maîtrise et d'optimisation des procédés de traitement des eaux usées et des boues urbaines. Dans ce contexte, le Siaap et la société AMS Envolure ont travaillé sur le développement et la validation d'une méthode rapide pour évaluer la biodégradabilité anaérobie des boues urbaines et estimer le potentiel méthanogène (BMP). Les résultats ont montré que le suivi de l'activité métabolique de la biomasse anaérobie grâce à la cinétique de réduction d'un indicateur fluorescent permettait d'évaluer la biodégradabilité anaérobie et le potentiel méthanogène des boues urbaines. Les BMP estimés en deux jours par la méthode alternative ont été comparés aux BMP mesurés en 21 jours par le système Automatic Methane Potential Test System II (AMPTS II). La comparaison de méthodes a montré que la méthode alternative donnait des résultats équivalents aux BMP mesurés par AMPTS selon une incertitude de 25 %.*

Digestion anaérobie - Boues urbaines - Innovation - Biodégradabilité - Fluorimétrie - AMPTS - Potentiel méthanogène

## Introduction

La loi de transition énergétique vise à promouvoir les énergies renouvelables et de récupération (EnRR) (ADEME 2017). En France, la part des EnRR devra représenter 23 % de la consommation d'énergie brute dès 2020 et devra atteindre 32 % en 2030. Dans ce nouveau modèle énergétique, les industriels en charge du traitement des eaux résiduaires urbaines (ERU) ont mis au cœur de leurs préoccupations la problématique de la dépense énergétique. D'une part, il s'agit de trouver des voies de réduction des consommations énergétiques et, d'autre part, d'optimiser la production et l'utilisation des EnRR. Pour cette seconde voie, la valorisation énergétique des boues, via le procédé de digestion anaérobie, occupe une place privilégiée. A titre d'illustration sur la station de Seine Aval en agglomération parisienne, la valorisation des boues par digestion anaérobie sous forme de biogaz permet de fournir 70 % des besoins énergétiques de la station d'épuration (<https://www.siaap.fr/metiers/valoriser/>).

La digestion anaérobie est un procédé biologique naturel durant lequel la matière organique est transformée en biogaz, principalement composé de dioxyde de carbone et de méthane. Ce procédé permet de produire un gain net d'énergie en biogaz (méthane) tout en réduisant le flux de polluants : volume des boues produites, réduction du nombre de pathogènes et des odeurs (SILVESTRE *et al.*, 2015). La digestion anaérobie se déroule quatre étapes biochimiques complexes : hydrolyse, acidogénèse, acétogénèse et méthanogénèse. Chaque étape fait appel à une communauté de microorganismes diverse. La première étape permet d'hydrolyser les macromolécules en monomères grâce à des bactéries spécifiques sécrétant des enzymes extracellulaires. C'est l'étape limitante de la digestion anaérobie. Les monomères obtenus sont ensuite transformés en acides gras volatils, alcools et acides organiques lors de l'acidogénèse afin que ces derniers substrats soient transformés en acétate lors de l'acétogénèse. Une fois l'acétate produit, les archées méthanogènes vont dégrader l'acétate en méthane et dioxyde de carbone. La production de  $\text{CH}_4$  provient de la dégradation partielle ou complète de la matière organique biodégradable (BUFFIÈRE *et al.*, 2006).

La composition et « l'état » de la matière organique sont à l'origine de la mise en œuvre du développement de la digestion anaérobie. De nombreux travaux se sont développés autour de l'étude de l'état et de la composition biochimique de la matière organique pour modéliser la cinétique et le taux de biogaz produit à partir de la dégradation de la matière organique (YASUI *et al.*, 2008 ; LESTEUR *et al.*, 2010 ; MOTTET *et al.*, 2010). La notion de biodégradabilité se réfère à la capacité d'une substance à être dégradée par l'activité enzymatique de microorganismes. Souvent, pour définir la biodégradabilité de la matière organique, celle-ci peut être classée selon trois pools de biodégradabilité fonction de la composition de la matière organique : ❶ rapidement biodégradable, ❷ lentement biodégradable, ❸ peu ou pas biodégradable. Ainsi, les sucres simples sont rapidement biodégradables. Les protéines de structure plus complexe et de poids moléculaire plus important peuvent être considérées comme lentement biodégradables tandis que les fibres de structure très complexe et de très haut poids moléculaire seront considérées comme peu biodégradables. La biodégradabilité d'une substance va dépendre également de sa « biodisponibilité ». En effet, la molécule doit être biodisponible pour être dégradée par les microorganismes. En revanche, si elle est adsorbée ou complexée, elle sera considérée comme bioaccessible. Il est possible de jouer sur les conditions physico-chimiques pour changer son « état » : température, procédés mécaniques, chélation, ajout d'enzymes, etc. (cela peut être associé aux prétraitements opérés en méthanisation). Dès lors, il est possible de considérer que la dégradation de la matière organique dépend de sa bioaccessibilité, de sa biodisponibilité et de sa biodégradabilité et que la cinétique et le taux de production de méthane est fonction de ces différents paramètres (AQUINO *et al.*, 2008).

Le test BMP (*Biochemical Methane Potential*) est une mesure communément utilisée pour l'évaluation de la biodégradabilité anaérobie et du potentiel méthanogène des boues urbaines produites durant le traitement des eaux usées (AQUINO *et al.*, 2008 ; MOTTET *et al.*, 2010). Un test BMP requiert 20 à 60 jours pour mesurer le potentiel méthane des substrats fermentescibles. Le temps requis est un inconvénient majeur pour répondre aux requêtes opérationnelles dans les stations d'épuration de traitement des eaux usées. Pour apporter un caractère opérationnel à ce paramètre, des approches alternatives ont été proposées : la modélisation avec model ADM1 de l'IWA (*International Water Association*) (BATSTONE *et al.*, 2002), ou des méthodes basées sur de la spectroscopie infrarouge (JIMENEZ *et al.*, 2014 ; LESTEUR *et al.*, 2010). Récemment, de nouveaux outils basés sur la mesure de fluorescence ont été développés pour répondre aux questions opérationnelles telles que la toxicité (CHEN *et al.*, 2015) ou pour la gestion des performances de digesteurs. Plus précisément, ces technologies utilisent une sonde fluorescente où la cinétique de réduction de l'indicateur redox est directement corrélée avec l'activité métabolique de la boue anaérobie (CHEN *et al.*, 2015).

Ce chapitre est consacré à l'étude d'un test rapide basé sur la mesure de l'intensité de fluorescence, le kit Envital®. L'objectif est d'étudier la biodégradabilité anaérobie des boues urbaines et leur potentiel méthanogène. Il s'agit de présenter les travaux menés sur la digestion anaérobie des boues urbaines à l'aide de ce kit ainsi que la validation de cette méthode alternative sur le paramètre BMP en comparaison à l'outil de référence AMPTS.

## 1. Matériels et méthodes

### 1.1. ECHANTILLONNAGE

Pour les tests de digestibilité, un prélèvement de boue anaérobie (Digestat, sortie de digestion) de la station Seine Aval dans les Yvelines a été sélectionné comme inoculum. Cette station traite principalement des eaux résiduelles urbaines d'origine domestique avec une capacité de traitement de l'ordre 1 700 000 m<sup>3</sup> d'eaux usées par jour. Cette station a été sélectionnée en raison du caractère ubiquitaire de la boue anaérobie. Le digestat a

été systématiquement collecté à partir du même digesteur secondaire n°9 de la branche AIII impaire placé en aval de quatre digesteurs primaires mésophiles de la station.

Pour l'essai de performance du digestat, six digesteurs mésophiles ont été sélectionnés : cinq sur la station de Seine Aval et un sur la station de Seine Grésillons. Sur les cinq digesteurs de la Station Seine Aval, un est alimenté avec des boues activées à fortes charges et les quatre autres sont alimentés par des boues mixtes de la bêche d'alimentation générale. Le digesteur mésophile de la station Seine Grésillons est alimenté par des boues mixtes. Identification des inocula pour l'essai de performance anaérobie :

- › Inoculum A : prélevé sur la branche AI-II de la station Seine Aval (boues activées fortes charges)
- › Inoculum B : prélevé sur la branche AIII i de la station Seine Aval (boues mixtes)
- › Inoculum C : prélevé sur la branche AIII p de la station Seine Aval (boues mixtes)
- › Inoculum D : prélevé sur la branche AIV de la station Seine Aval (boues mixtes)
- › Inoculum E : prélevé sur la branche AS de la station Seine Aval (boues mixtes)
- › Inoculum F : prélevé sur la station Seine Grésillons (boues mixtes)

Dans le cadre du programme Mocopée et de cette étude, les substrats types pour les tests de digestibilité étaient des boues urbaines issues de la station Seine Aval. Quatre types de boues produites au fil de la station ont été sélectionnés afin d'évaluer leur biodégradabilité anaérobie et leur potentiel méthanogène : boues primaires, biologiques, mixtes et tertiaires. Les boues primaires ont été prélevées au niveau de la décantation primaire classique. Les boues biologiques ont été collectées sur trois types de procédés de traitement secondaire : nitrification (biofiltres : Biostyr®), post-dénitrification (biofiltres : Biostyr® ; Biofor®) et boues activées moyennes charges. Les boues tertiaires provenaient du procédé de clarifloculation (procédé Actiflo®). Les boues appelées « mixtes », constituées de boues primaires, secondaires et tertiaires, ont été collectées dans la bêche d'alimentation du digesteur mésophile.

L'acétate de sodium a été sélectionné comme substrat de référence pour les tests de digestibilité et pour l'essai de performance de digestion anaérobie. En effet, pour les tests de digestibilité, il est classiquement utilisé en tant que témoin « chaud » ou « positif » pour valider l'activité méthanogène de l'inoculum (CRESSON *et al.*, 2015). Le BMP théorique d'un gramme d'acétate de sodium est de 373 NmL CH<sub>4</sub>/gMv. Pour l'essai de performance de digestion anaérobie, il constitue un substrat de référence rapidement biodégradable ① permettant ainsi de caractériser la performance d'activité méthanogène d'une boue anaérobie.

## 1.2 CARACTÉRISATION PHYSICO-CHIMIQUE DES BOUES

Les propriétés physico-chimiques des boues et du digestat : matières sèches (MS), matières volatiles (MV) et demande chimique en oxygène (DCO) ont été mesurées selon les méthodes normalisées par le laboratoire central de la Direction de l'Innovation et de l'Environnement du Siaap accrédité COFFRAC (n°1-1452, www.cofrac.fr).

Boues urbaines	MS (g/L) (moyenne±écart-type)	MV (%MS) (moyenne±écart-type)	DCO (g O <sub>2</sub> /g MV) (moyenne±écart-type)
<i>Boues primaires</i>	30,7 ± 11,6	79,3 ± 3,1	1,8 ± 0,1
<i>Boues biologiques Boues activées</i>	34,2 ± 2,2	81,1 ± 4,3	1,5 ± 0,4
<i>Boues biologiques biofiltres</i>	42,7 ± 16,9	72,3 ± 10,6	1,5 ± 0,4
<i>Boues mixtes</i>	37,0 ± 0,4	77,4 ± 4,7	1,7 ± 0,2
<i>Boues tertiaires</i>	29,7 ± 12,1	79,3 ± 3,1	1,8 ± 0,3
<i>Boue anaérobie mésophile (inoculum)</i>	22,7 ± 2,8	62,2 ± 6,6	1,7 ± 0,1

Tableau 1 : Principaux paramètres caractéristiques des boues urbaines et du digestat servant d'inoculum

## 1.3 LES MÉTHODES D'ESTIMATION DU BMP

### 1.3.1 Méthode AMPTS

L'étude de la caractérisation des boues urbaines de la station Seine Aval a été menée depuis 2013 en utilisant l'appareil AMPTS II de chez Bioprocess Control (Lund, Suède). Cette technologie a permis de mesurer la production de biogaz de manière totalement automatisée et en temps réel sur une période d'incubation d'environ 20 jours à une température de  $35\text{ °C} \pm 0.2$ . Chaque flacon en verre, est assimilé à un réacteur de type digesteur, qui est homogénéisé par une agitation mécanique circulaire réalisée par un moteur placé sur la tête de chaque flacon avec un agitateur coudé (vitesse de rotation : 80 rpm – fréquence d'agitation : 60 s ON/60 s OFF). Dans ce système, le biogaz produit est amené par un tube flexible dans un petit flacon individuel qui contient une solution alcaline (NaOH 4M) pour piéger les gaz acides produits ( $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2\text{S}$ ) afin de conduire vers l'unité de mesure uniquement le méthane produit (gaz restant). La qualité de piégeage est vérifiée grâce à un indicateur coloré de pH qui contrôle la saturation des solutions par les gaz acides. Lorsque l'affinité des solutions pour les gaz acides est trop faible, l'indicateur de pH coloré devient incolore. L'unité de mesure du méthane repose sur le principe de déplacement des fluides et la limite de flottabilité des cellules de mesure (BASSARD *et al.*, 2014). En effet, quand la cellule de mesure est pleine de méthane, elle va libérer une bulle de gaz qui correspond à un volume donné (cellule calibrée selon un volume précis). La libération de ces bulles de gaz génère des impulsions qui sont enregistrées et traduites en volumes ( $\text{NmL CH}_4$ ) et en débits ( $\text{N mL CH}_4/\text{h}$ ) par le logiciel AMPTS® v5. Ces grandeurs sont ensuite rapportées à la matière organique pour être exprimées en  $\text{NmL CH}_4/\text{g MV}$  et en  $\text{NmL CH}_4/\text{gMV/h}$ . L'unité de mesure comprend également des sondes de température et de pression pour la correction en ligne des résultats.

Pour l'analyse AMPTS, les boues fraîches et l'inoculum frais ont été ajoutés dans les flacons en verre de 500 mL, en suivant le ratio [I]/[S] de 3 basé sur le contenu en MV. Ce ratio est largement cité dans la littérature (JACKOWIAK *et al.*, 2011) et conseillé par le fabricant. Des témoins blancs contenant uniquement de l'inoculum sans substrat ont été utilisés pour soustraire le potentiel méthane endogène.

### 1.3.2 Méthode rapide Envital®

#### 1.3.2.1 Principe de la mesure

Le principe du kit repose sur l'intégration d'une molécule faiblement fluorescente dans les cellules vivantes qui va se réduire sous une forme très fluorescente suite aux échanges d'électrons liés à l'activité des micro-organismes (Figure 1). La quantité de fluorescence émise est proportionnelle à la biodégradation de la matière organique par les archéobactéries et donc à la quantité de méthane produite. Grâce à la sensibilité de détection de la fluorescence, l'analyse Envital® peut s'appliquer à un format de type microplaque à fluorescence de 96 puits conférant à la technologie une capacité d'analyse à haut-débit. De plus, la mesure de biodégradabilité anaérobie par fluorescence permet de visualiser en temps réel les cinétiques de biodégradation de la matière organique des divers intrants.

La technologie Envital® permet également une estimation de la quantification d'équivalents BMP en 48 heures grâce à la mesure de l'intensité de fluorescence et à l'utilisation de standards BMP développés par AMS Envolve. Le potentiel méthanogène de ces étalons a été déterminé par un test de digestibilité BMP classique. Les données brutes de fluorescence des échantillons obtenues après 48H sont rapportées sur la courbe de calibration qui suit un modèle de régression linéaire. Les BMP estimés sont ensuite exprimés en  $\text{NmL CH}_4/\text{g MV}$ . (Figure 2b)

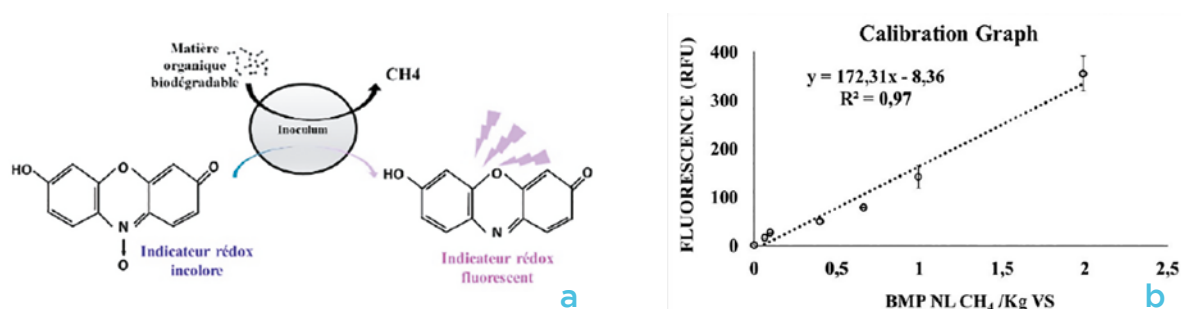


Figure 1 : Schéma du principe analytique de la méthode Envital® (à gauche), schéma courbe de calibration BMP pour la technologie Envital® (à droite)

### 1.3.2.2 Mode opératoire

#### Préparation des échantillons

La collecte des échantillons réels a démarré en 2013, 40 mL de chaque échantillon de boues urbaines ont été congelés pour la création d'une banque d'échantillons conservés à -20 °C et pour la comparaison avec la technologie Envital® en microplaque. La congélation, faisant partie du protocole expérimental, permet de stabiliser et de conserver la matière organique sur plusieurs mois. Juste avant les analyses Envital®, les 40 mL d'échantillon congelés ont été lentement décongelés à température ambiante. Ensuite, les échantillons ont été broyés afin d'être homogénéisés avant la réalisation de la suspension à 1/10<sup>ème</sup> puis de la dilution au 1/25<sup>ème</sup>.

#### Préparation de l'inoculum

Pour l'analyse Envital®, la boue anaérobie de digesteur mésophile, utilisée comme inoculum, a été pré-incubée à 37 °C pendant 24 heures après le prélèvement dans le digesteur mésophile. La pré-incubation de la boue anaérobie a permis d'affamer l'inoculum en réduisant la matière organique endogène de l'inoculum avant d'être utilisé pour les tests de digestibilité. Après incubation, l'inoculum a été préparé par filtration en utilisant un filtre avec une membrane en polyéthersulfone hydrophile à 1.2 µm fourni dans le kit Envital® pour enlever une partie la matière organique en suspension.

#### Préparation de la microplaque

Chaque puits de la microplaque constitue un milieu réactionnel, c'est-à-dire représente un micro-digesteur (Figure 2). La microplaque a été remplie pour les tests de digestibilité et de performance de digestion anaérobie avec 50 µl de réactif A (solution de tampon pH nutritive), 100 µl de réactif B (indicateur redox fluorescent), 100 µl de solution étalon ou contrôle acétate de sodium ou d'échantillon de boues diluée et 30 µl de préparation d'inoculum. Les conditions anaérobies ont été créées par l'ajout du réactif C (paraffine) et du couvercle pour le scellement des puits. Chaque expérience a été réalisée en triplicats pour l'ensemble des essais afin de pouvoir évaluer la répétabilité du kit.

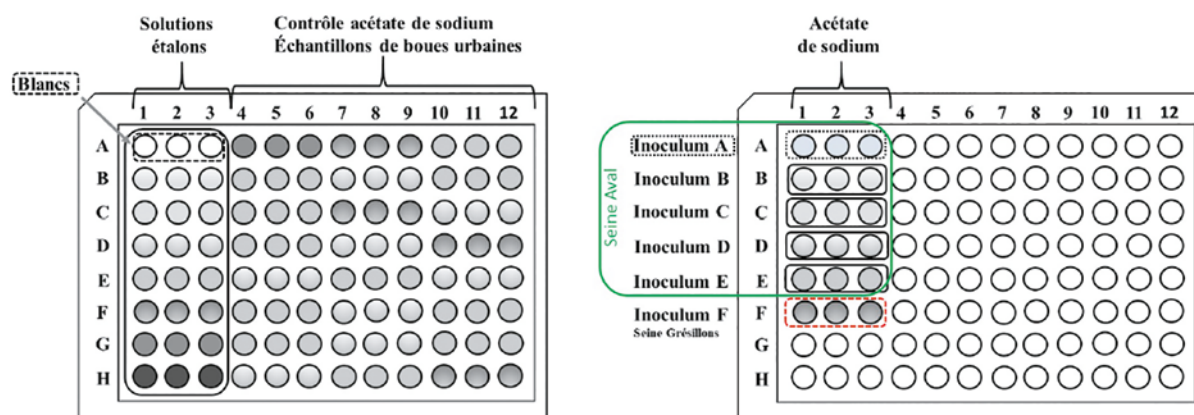


Figure 2 : Schéma d'un essai d'analyse Envital® BMP en microplaque 96 puits (à gauche). Schéma d'un essai d'analyse Envital® performance de digestion anaérobie en microplaque 96 puits (à droite)

#### Suivi de la fluorescence en temps réel et traitement des données

La lecture de fluorescence est automatisée via un fluorimètre qui permet de régler les différentes conditions d'analyse et de lecture (durée, température d'incubation, fréquence des mesures, etc.). La fluorescence a été mesurée toutes les 30 minutes par un lecteur de fluorescence (FLx800, BioTek®, USA) à une longueur d'onde d'excitation de 540 nm et une longueur d'onde d'émission à 600 nm ; avec un gain de 35. Le lecteur de microplaque a permis l'incubation de la microplaque sur les 48 heures d'analyse à 35 °C. Il y a eu une agitation avant chaque lecture de fluorescence. Le pilotage du lecteur a été réalisé via le logiciel Gen 5 2.00 de chez BioTek. Les données brutes de fluorescence ont été traitées via un fichier Excel automatisé (développé par AMS Envulure) qui permet de visualiser les profils de biodégradabilité par échantillon et d'estimer les BMP en NmL CH<sub>4</sub>/g MV.



## 2. Résultats et discussion

### 2.1 ENVITAL POUR DÉFINIR LA CINÉTIQUE DE BIODÉGRADABILITÉ ANAÉROBIE D'UNE BOUE URBAINE

La Figure 3a présente l'intensité de fluorescence cumulée résultant de l'activité métabolique de l'inoculum suite à la biodégradation de la matière organique présente dans les échantillons de boues urbaines et du substrat de référence (acétate de sodium). Le témoin blanc ou témoin froid (courbe rouge) représente l'activité métabolique endogène de l'inoculum sans addition de matière organique tandis que l'ajout d'acétate de sodium constitue le témoin chaud parce qu'il reflète l'activité métabolique de l'inoculum en présence de matière organique rapidement biodégradable ❶. En effet, l'acétate de sodium est le précurseur direct du  $\text{CH}_4$ . Ces deux témoins permettent ainsi de caractériser la qualité et la performance de l'inoculum. D'après la Figure 3a), l'ensemble des courbes de fluorescence cumulée ont présenté une phase de latence plus ou moins importante située entre 5H et 15H. D'après WANG *et al.*, (2015b), une pré-incubation de l'inoculum à 37 °C et une filtration de l'inoculum introduit un temps de latence. Cette phase de latence traduirait au départ une faible activité enzymatique et par conséquent être à l'origine d'un faible rendement en méthane. Dans différentes normes de tests de digestibilité (OFEN, 2011), l'inoculum subit un prétraitement soit avec une pré-incubation sur plusieurs jours ou avec un lavage ou les deux combinés. Le but de ces prétraitements est de diminuer la production de méthane endogène, c'est-à-dire propre à l'inoculum (OFEN, 2011). L'observation de la phase de latence au niveau du témoin blanc et pour les autres substrats (acétate et boues urbaines) confirme l'impact des prétraitements avec le ralentissement de l'activité enzymatique et la diminution de rendement méthane au niveau du témoin froid.

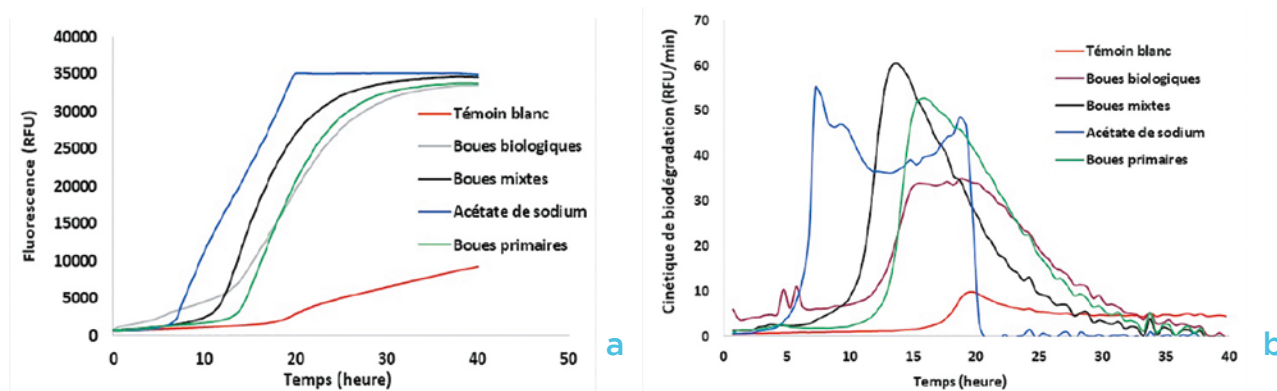


Figure 3 : a) Évolution de l'intensité de fluorescence pour les échantillons de boues urbaines et contrôles des tests de digestibilités (témoin blanc et acétate de sodium). b) Suivi cinétique de la biodégradation des échantillons de boues urbaines et des contrôles (témoin blanc et acétate de sodium)

Les courbes d'intensité de fluorescence cumulée observées en Figure 3a montrent que plus la teneur en matière organique est élevée (Tableau 1), plus l'intensité de fluorescence cumulée est élevée et par conséquent plus l'activité métabolique de l'inoculum est importante. Il semble également que plus la matière organique est rapidement biodégradable ❶, plus la phase de latence observée est courte. Ces résultats confirment la corrélation entre la cinétique de réduction de la sonde fluorescente et l'activité métabolique de la boue anaérobie (CHEN *et al.*; 2015). À partir des données brutes de fluorescence, les profils des cinétiques de biodégradabilité ont été tracés (Figure 3b). L'étude de ces profils de cinétique de biodégradabilité ont permis d'observer la complexité de biodégradation des substrats et la performance de l'inoculum à les dégrader. En effet, l'acétate de sodium, précurseur direct du méthane, a commencé à être dégradé à partir de 5H. La dégradation d'1 g d'acétate par cette boue anaérobie semble s'effectuer entre 5H et 20H après une pré-incubation de la boue anaérobie à 37 °C pendant 24 heures. La dégradation de l'acétate est caractérisée par un pic important après le début de la phase de latence avant l'observation d'un ralentissement entre 6H et 15H avant la fin de la dégradation complète vers 20H. Le profil de biodégradabilité de l'acétate a constitué un profil témoin positif de référence de biodégradabilité (pool rapidement biodégradable) étant donné que l'acétate de sodium est considéré comme substrat de référence pour la validation des tests de digestibilité. En comparaison avec le profil de biodégradabilité de l'acétate, les profils de cinétique de biodégradation des boues urbaines présentaient des cinétiques de biodégradabilité différentes. En effet, la nature d'une boue urbaine va dépendre du traitement qu'elle aura subi. Les boues primaires, étant traitées essentiellement selon une séparation physique, contiennent une part importante de matières organiques fortement fermentescibles. Quant aux boues biologiques, dont le traitement cible l'élimination de la matière

organique par les processus biologiques, les boues produites sont composées majoritairement de biomasses épuratrices et de ses sous-produits. L'étude des profils a montré une bonne biodégradabilité des boues urbaines mais décalée par rapport à la biodégradation de l'acétate (pool ❶). Elles ont été dégradées entre 10H et 30H. Cette observation est en accord avec la biodégradabilité des composés selon leur degré de complexité de composition de matière organique. Ainsi de la même manière, il semble possible de classer la biodégradabilité des boues selon leur étape de traitement. En effet, les boues biologiques sont dégradées plus tardivement par rapport aux boues primaires parce qu'elles contiennent principalement des bactéries : un fort taux de protéines issues des membranes des cellules constituant la biomasse des boues biologiques (AQUINO *et al.*, 2008). Ces résultats ont démontré l'intérêt, la pertinence et l'opérationnalité de ce test rapide pour évaluer rapidement la biodégradabilité anaérobie des boues urbaines en seulement 2 jours. Ces essais ont permis d'évaluer les caractéristiques de cinétique de biodégradation des boues urbaines et par conséquent leur fort potentiel comme source de carbone et d'énergie en digestion anaérobie.

## 2.2 ENVITAL POUR ESTIMER LA PERFORMANCE D'UN DIGESTAT

Il est possible d'évaluer la performance d'un inoculum par rapport à un autre inoculum en étudiant les profils de biodégradabilité obtenus à partir de la dégradation d'un substrat de référence. Un premier essai de performance de biodégradabilité de l'acétate de sodium a été mené sur six inocula de digesteurs mésophiles. Cinq inocula provenaient de la station Seine Aval et le sixième de la station Seine Grésillons. Sur les cinq digesteurs de la Station Seine Aval, un est alimenté avec des boues activées à fortes charges et les quatre autres sont alimentés par des boues mixtes de la bache d'alimentation générale. Pour ces quatre digesteurs étant donné qu'ils reçoivent la même alimentation, ils devraient avoir la même performance pour dégrader la matière organique des boues mixtes ou ici dans cet essai pour dégrader l'acétate de sodium. Le sixième inoculum issu de la station Seine Grésillons est alimenté également par des boues mixtes. L'essai de performance a été mené en triplicats. La Figure 4 présente les profils de cinétique de biodégradation de l'acétate de sodium issus des résultats de l'essai de performance de digestion anaérobie. Cet essai a montré la performance de digestion anaérobie de l'acétate de sodium pour les six inocula mais avec des cinétiques de dégradation différentes. L'acétate de sodium est le précurseur direct du  $CH_4$ , il reste par conséquent un substrat rapidement biodégradable ❶, ne nécessitant pas une étape d'hydrolyse importante comme pour les boues urbaines qui peuvent être considérées comme lentement biodégradables ❶. Ce premier essai de performance de digestion anaérobie permet d'envisager d'utiliser la technologie Envital® comme premier outil de criblage rapide pour la mise en route de digesteur ou lors de suivi de digesteur mésophile.

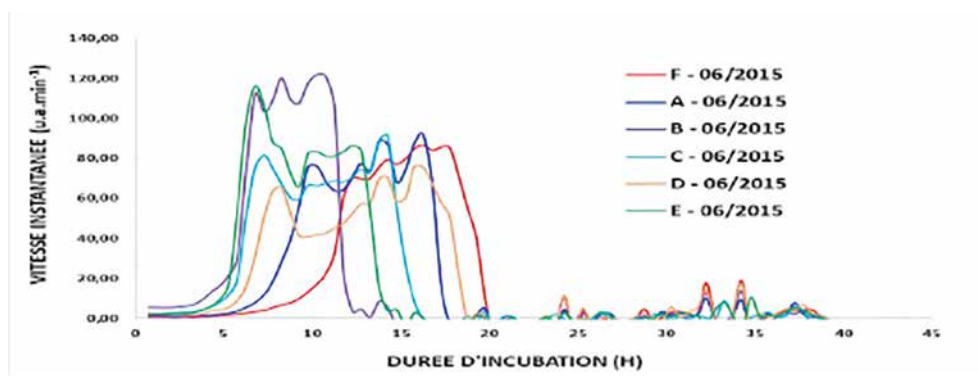


Figure 4 : Test de performance de digestion anaérobie de l'acétate de sodium avec la technologie Envital® mené sur six inocula. A : branche AI-II de la station Seine Aval (boues activées fortes charges) ; B : branche AIII i de la station Seine Aval (boues mixtes) ; C : branche AIII p de la station Seine Aval (boues mixtes) ; D : branche AIV de la station Seine Aval (boues mixtes) ; E : branche AS de la station Seine Aval (boues mixtes) ; F : prélevé sur la station Seine Grésillons (boues mixtes)

## 2.3 ENVITAL POUR ÉVALUER RAPIDEMENT LE BMP D'UNE BOUE URBAINE

Envital® donne une estimation de la production de méthane par une mesure indirecte de la biodégradabilité de la matière organique basée sur l'activité microbienne. La comparaison entre une mesure directe avec l'AMPTS et une mesure indirecte avec Envital® sur le paramètre BMP a été réalisée sur cinq expériences sur un total de 19 échantillons de boues urbaines. La production de méthane avec la technologie Envital® est estimée en 2 jours alors que la technologie AMPTS requiert 21 jours. Le méthane endogène produit est soustrait du méthane total produit pour tous les autres échantillons. Le biométhane estimé de l'acétate de sodium a été sélectionné comme contrôle qualité pour les tests de digestibilité de BMP. Les mesures AMPTS sont considérées comme valeurs de référence pour la comparaison avec la méthode alternative Envital®. Une incertitude limite de 25 % usuellement admise (LESTEUR *et al.*, 2011 ; PHAM *et al.*, 2013) a été sélectionnée pour valider le BMP estimé par la technologie Envital® par rapport à la méthode de référence. De plus, le BMP de l'acétate de sodium mesuré avec la méthode de référence AMPTS II est de 251 NmL CH<sub>4</sub>/gMV soit 67 % du BMP théorique (373 NmL CH<sub>4</sub>/gMV). Ainsi une incertitude limite de 25 % est justifiée au vu du résultat AMPTS pour le contrôle qualité du test de digestibilité BMP. La performance opérationnelle de la technologie Envital® a également été évaluée sur l'estimation du biométhane produit avec 1 g d'acétate de sodium. Le BMP estimé est de l'ordre de 319 NmL CH<sub>4</sub>/gMV avec une incertitude très satisfaisante en dessous de 10 %. Ce résultat suggère que la technologie Envital® est également pertinente pour estimer la production de méthane.

La Figure 5 présente le potentiel méthanogène (BMP) mesuré par la méthode de référence (AMPTS), diagrammes en gris foncé, et estimé par le kit Envital, diagrammes en gris clair, pour les 19 échantillons de boues urbaines. Les BMP théoriques calculés à partir de la DCO des échantillons (350 NmL CH<sub>4</sub> par gramme de DCO, T = 35 °C) sont présentés par des tirets. Pour les échantillons identifiés par (\*), l'inoculum utilisé est collecté le même jour pour les deux analyses Envital® et AMPTS. Les résultats obtenus sont du même ordre de grandeur entre les deux méthodes (dans l'incertitude acceptée) et en cohérence avec la littérature (CARRÈRE *et al.*, 2010 ; JENSEN *et al.*, 2014) excepté pour un échantillon, la boue tertiaire. Ces premiers résultats confirment que la méthode de substitution peut être corrélée avec succès avec la biodégradabilité anaérobie et qu'elle peut permettre l'estimation de la production de biométhane des boues urbaines en moins de 48 heures.

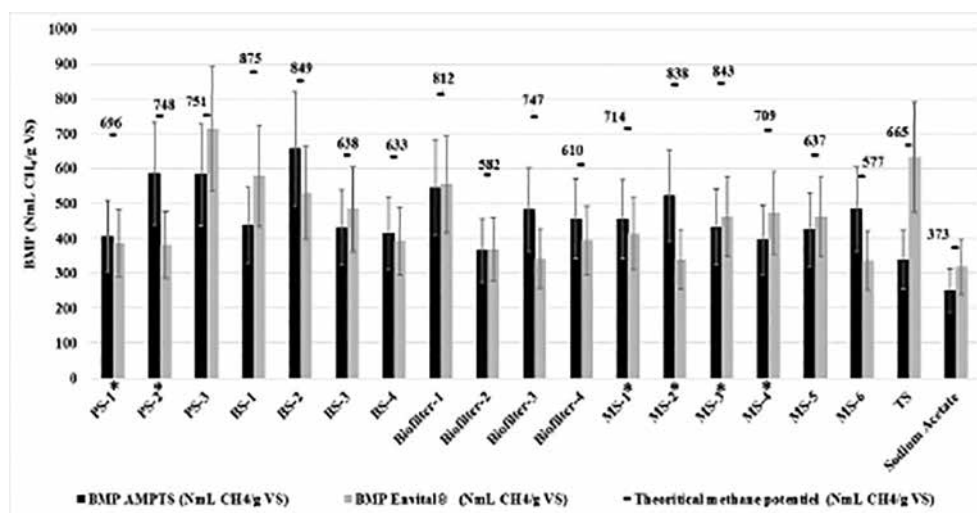


Figure 5 : Comparaison entre les mesures AMPTS et Envital® sur le paramètre BMP. PS (boues primaires) ; BS-1 à BS-4 (Boues biologiques activées) ; BS-5 à BS-8 (Boues biologiques biofiltres) ; MS (Boues mixtes) ; TS (Boues tertiaires). Prélèvement de boue anaérobie (inoculum) collecté le même jour pour les deux méthodes AMPTS et Envital®

Les essais ont été réalisés en triplicats à chaque fois afin de déterminer le coefficient de variation associé à la méthode Envital®. Les résultats ont montré que pour 87 % des échantillons analysés les CV étaient inférieurs à 20 % et que pour 52 % des échantillons analysés les CV étaient inférieurs à 10 %. La comparaison boxplot (Figure 6) a permis de comparer ce résultat à la variation observée avec la méthode AMPTS étant donné que les bases de données étaient différentes entre les deux outils (108 échantillons disponibles pour l'AMPTS contre 40 échantillons pour la méthode Envital®). L'étude boxplot montre que la variabilité est plus élevée par rapport à l'outil AMPTS. Cependant, la base de données est 2.5 fois inférieure à la base de données AMPTS.

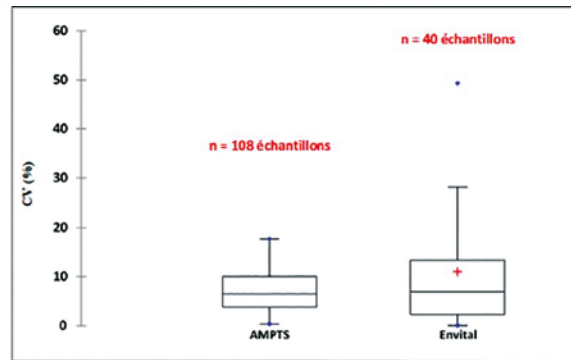


Figure 6 : Étude des coefficients de variation obtenus pour la biodégradation anaérobie des boues urbaines par comparaison boxplot pour l'ensemble des coefficients obtenus pour les deux méthodes de mesure de biodégradabilité anaérobie (AMPTS et Envital)

## Conclusion

L'ensemble de ces résultats issus des travaux menés lors de la première phase du programme Mocopée suggère que la technologie Envital® est une méthode rapide, simple, haut-débit avec une approche pertinente pour caractériser la biodégradabilité des boues urbaines en digestion anaérobie et pour répondre rapidement aux besoins opérationnels des exploitants. Cette analyse rapide basée sur la mesure de fluorescence a permis l'estimation des cinétiques de biodégradation et de production de biométhane des boues urbaines en seulement deux jours. La justesse et la répétabilité de la méthode innovante sont comparables aux mesures AMPTS. Ce nouvel outil haut-débit redonne un caractère opérationnel à l'étude de biodégradabilité en digestion anaérobie avec un fort potentiel grâce à ces différentes applications : cinétiques de biodégradabilité, étude de performance de digesteur, estimation de BMP voire de la toxicité. Aujourd'hui, la technologie Envital® est exploitée par la société SCANAE sous la marque Fluométhane®.

## Remerciements

Les auteurs remercient sincèrement les différents collaborateurs du Siaap qui ont participé au succès de cette étude : Elise Alibert, Céline Briand, Claire Plessis, Mélanie Eustache et également le programme Mocopée (MModelisation Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux) pour le support technique et financier.

## POUR EN SAVOIR PLUS

- › BELLATON S., GUERIN S., PAUTREMAT N., BERNIER J., MULLER M., MOTTELET S., AZIMI S., PAUSS A., ROCHER V. (2016) : « Early Assessment of a rapid alternative method for the estimation of the biomethane potential of sewage sludge. *Bioresource Technology* ; 206 : 279-284.
- › GUERIN-RECHDAOUI S., AZIMI S., BERNIER J., ROCHER V., MOTTELET S., PAUSS A., RIBEIRO T. (2016) : « Le pouvoir méthanogène des boues urbaines – Cartographie des boues de STEP et réduction du temps de mesure par un couplage « expérimentation en réacteur/modélisation ». *La Revue L'Eau, l'Industrie et les Nuisances* ; 397 : 59-66.
- › MOTTELET S., GUERIN S., AZIMI S., BERNIER J., ROCHER V., PAUSS A., RIBEIRO T. (2017) : *A new methodology for early BMP assessment using a mathematical model*. Communication affiche. Séminaire Mocopée 2017.

## Bibliographie

- ADEME (2017) : *Les énergies renouvelables et de récupération*. Fiche technique
- AQUINO S.F., CHERNICHARO C.A.L., SOARES H., TAKEMOTO S.Y., VAZOLLER R.F. (2008) : « Methodologies for determining the bioavailability and biodegradability of sludges. » *Environmental Technology* ; 29 : 855-862.
- BASSARD D., ANDRE L., DOTAL N., VALENTIN L., NONUS M., PAUSS A., RIBEIRO T. (2014) : « A simple and rapid one-time method to evaluate the non-acidic gas content from bioprocesses. » *Bioprocess and Biosystems Engineering* ; 37 : 337-341.
- BATSTONE D.J., KELLER J., ANGELIDAKI I., KALYUZHNYI S.V., PAVLOSTATHIS S.G., ROZZI A., SANDERS W.T.M., SIEGRIST H., VAVILIN V.A. (2002) : « The IWA anaerobic digestion model no 1(ADM 1). » *Water Science Technology* ; 45 : 65-73.
- BUFFIERE P., LOISEL D., BERNET N., DELGENES J.P. (2006) : « Towards new indicators for the prediction of solid waste anaerobic digestion properties. » *Water Science Technology* ; 53(8) : 233- 41
- CARRERE H., DUMAS C., BATTIMELLI A., BATSTONE D., DELGENES J., STEYER J., FERRER I. (2010) : « Pretreatment methods to improve sludge anaerobic degradability: A review. » *Journal of Hazardous Materials* ; 183(1-3) : 1-15.
- CHEN J.L., ORTIZ R., XIAO Y., STEELE T.W.J., STUCKEY D.C. (2015) : « Rapid fluorescence-based measurement of toxicity in anaerobic digestion. » *Water Research* ; 75 : 123-130.
- CRESSON O, POMMIER S., BELINE F., BOUCHEZ T., BUFFIERE P., CACHO J., CAMACHO P., PAUSS A., POUECH P., RIBEIRO T., TORRIJOS M. (2015) : *Etude Interlaboratoire pour l'harmonisation des protocoles de mesure du potentiel méthanogène des matrices solides hétérogènes*. Conférence ATEE Club Biogaz, Rennes, 3-15 février 2015.
- JACKOWIAK D., BASSARD D., PAUSS A., RIBEIRO T. (2011) : « Enhancing solubilisation and methane production kinetic of switchgrass by microwave pretreatment. » *Bioresource Technology* ; 102 : 3535-3540.
- JENSEN P., ASTALS S., Lu Y., DEVADAS M., BATSTONE D. (2014) : « Anaerobic codigestion of sewage sludge and glycerol, focusing on process kinetics, microbial dynamics and sludge dewaterability. » *Water Research* ; 67 : 355-366.
- JIMENEZ J., GONIDEC E., CACHO J.A., LATRILLE E., VEDRENNE F., STEYER J.P. (2014) : « Prediction of anaerobic biodegradability and bioaccessibility of municipal sludge by coupling sequential extractions with fluorescence spectroscopy: Towards ADM1 variables characterization. » *Water Research* ; 50 : 359-372.
- LESTEUR M., BELLON-MAUREL V., GONZALES C., LATRILLE E., ROGER J.M., JUNQUA G., STEYER J.P., (2010) : « Alternative methods for determining anaerobic biodegradability: A review. » *Process Biochemistry* ; 45 : 431-440.
- LESTEUR M., LATRILLE E., BELLON-MAUREL V., ROGER J.M., GONZALES C., JUNQUA G., STEYER J.P. (2011) : « First step towards a fast analytical method for the determination of biochemical methane potential of solid wastes by near infrared spectroscopy. » *Bioresource Technology* ; 102 : 2280-2288.
- MOTTET A., FRANCOIS E., LATRILLE E., STEYER J.P., DELERIS S., VEDRENNE F., CARRERE H. (2010) : « Estimating anaerobic biodegradability indicators for waste activated sludge. » *Chemical Engineering Journal* ; 160 : 488-496.
- OFEN, BACHMANN N., DERONT M., FRUTEAU H., HOLLIGER C., MEMBREZ Y., WELLINGER A. (2011) : *Optimisation des tests standardisés de digestibilité dans des réacteurs batch*. Rapport final Office fédéral de l'énergie (OFEN).
- PHAM C.H., TRIOLO J.M., CU T.T.T, PEDERSEN L., SOMMER S.G. (2013) : « Validation and recommendation of methods to measure biogas production potential of animal manure. » *Asian-Australasian Journal of Animal Sciences* ; 26 : 864-873

- SILVESTRE G., FERNANDES B., BONMATI A. (2015) : « Significance of anaerobic digestion as a source of clean energy in wastewater treatment plants. » *Energy Conversion and Management* ; 101 : 255-262.
- STROMBERG S., NISTOR M., LIU J. (2014) : « Towards eliminating systematic errors caused by the experimental conditions in Biochemical Methane Potential (BMP) tests. » *Waste Management* ; 34 : 1939-1948.
- YASUI H., GOEL R., LI Y., NOIKE T. (2008) : « Modified ADM1 structure for modelling municipal primary sludge hydrolysis. » *Water Research* ; 42 : 249-259.
- WANG B., STROMBERG S., NGES I.A., NISTOR M., LIU J. (2016) : « Impacts of inoculum pre-treatments on enzyme activity and biochemical methane potential. » *Journal of Bioscience and Bioengineering* ; 121 : 557-560.





# Couplage « mesure en réacteur - modélisation » pour une estimation rapide du potentiel méthanogène des boues

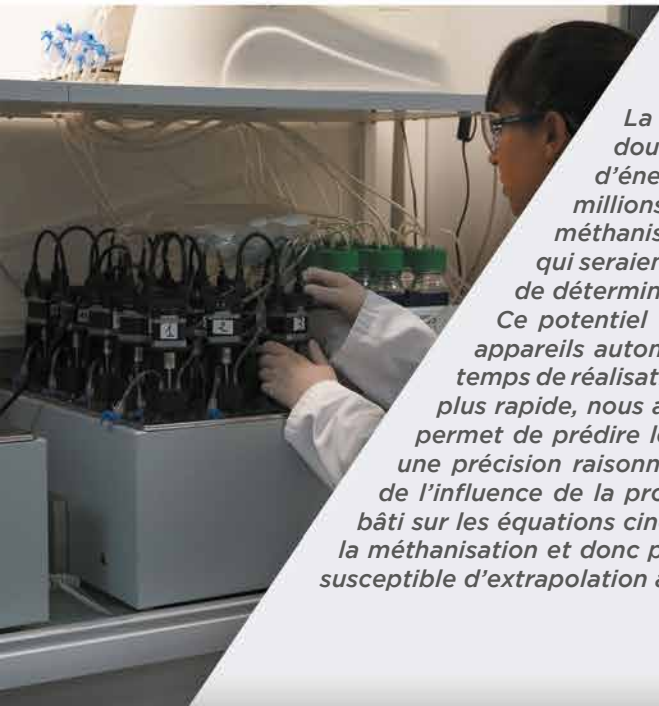
## *Early sludge biomethane potential assessment by coupling reactor experiments with modelling*

Stéphane Mottelet<sup>[1]\*</sup>, Jean Bernier<sup>[2]</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[2]</sup>, Sam Azimi<sup>[2]</sup>, Vincent Rocher<sup>[2]</sup>, André Paus<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Sorbonne Universités, Université de Technologie de Compiègne, Compiègne

<sup>[2]</sup> Siaap, Direction Développement Prospective, Colombes

\* Auteur de correspondance : [stephane.mottelet@utc.fr](mailto:stephane.mottelet@utc.fr)



*La méthanisation des boues de station d'épuration répond à un double objectif de minimisation de volume de boue et de production d'énergie valorisable. A l'échelle du Siaap, cela représente plus 80 millions de mètres cubes de biogaz par an. La gestion des procédés de méthanisation de ces boues dépend de leur nature voire des cosubstrats qui seraient susceptibles d'être co-méthanisés. Pour ce faire il est important de déterminer le potentiel méthanogène de ces boues seules ou en mélange. Ce potentiel (appelé par son acronyme en anglais BMP) se mesure par des appareils automatisés de type AMPTS. Une contrainte majeure des BMP est le temps de réalisation qui peut prendre de 10 à 100 jours. Afin d'obtenir une réponse plus rapide, nous avons développé dans ce travail un modèle mathématique qui permet de prédire le BMP à partir de la production de méthane à 4 jours avec une précision raisonnable tout en donnant la possibilité d'une compréhension de l'influence de la proportion initiale des différents substrats. Ce modèle est bâti sur les équations cinétiques biochimiques des populations microbiennes de la méthanisation et donc plus facilement que d'autres modèles de la littérature susceptible d'extrapolation à d'autres matières méthanisables.*

## Pouvoir méthanogène - BMP - Boues urbaines - AMPTS - Modélisation mathématique

### Introduction

Pour contribuer à la réalisation de la loi transition énergétique pour la croissance verte (2015-992 du 17 août 2015), les industriels en charge du traitement des eaux résiduaires urbaines (ERU) ont ainsi mis au cœur de leurs préoccupations la problématique de la dépense énergétique. Il s'agit d'une part de trouver des voies de réduction des consommations énergétiques et, d'autre part, d'optimiser la production et l'utilisation des EnRR. Une des voies privilégiées est la valorisation énergétique des boues via le procédé de digestion anaérobie. À l'échelle de l'agglomération parisienne (zone Siaap, bassin versant 2 000 km<sup>2</sup>, 8,5 millions d'habitants), la filière de digestion anaérobie admet d'ailleurs plus de 70 % des boues produites, permettant chaque année la production de plus de 80 millions de mètres cubes de biogaz. La situation de l'agglomération parisienne se distingue du reste du territoire. À l'échelle nationale, sur les 19 500 stations d'épuration présentes en métropole (production annuelle de 1 036 855 tonnes de boue [matière sèche]), seules 85 ont une unité de digestion anaérobie sur site. La production de biogaz via la digestion de boue d'épuration ne représente d'ailleurs que 26 % de la production totale de biogaz issue de la digestion de tous les gisements (ADEME, 2014). Pour ce faire il est nécessaire d'améliorer les connaissances sur les matrices complexes qui sont introduites dans les digesteurs et de développer des outils d'évaluation de l'état du système afin d'en améliorer la conduite.

Dans ce contexte, des travaux de recherche appliquée ont été engagés dans le cadre du programme Mocopée dans le but de valider à l'échelle industrielle des méthodes d'estimation du potentiel méthane des boues urbaines (BMP pour *Biochemical Methane Potential*) et de construire des modèles de prédiction du fonctionnement des systèmes de digestion anaérobie (mésophile/thermophile).

Le test du BMP est aujourd'hui la méthodologie la plus utilisée par les praticiens universitaires et techniques et la plus fiable pour déterminer la production maximale de méthane d'un certain substrat, voire sa cinétique de production. Cependant, les tests BMP des substrats très particuliers ou particuliers peuvent parfois être longs, avec des durées de test allant de 20 jours à plus de 100 jours. Pour obtenir de manière plus rapide une information pertinente, on peut soit avoir recours à des méthodes alternatives (par exemple LESTEUR *et al.*, 2010 ; WARD, 2016 ; BELLATON *et al.*, 2016), soit traiter numériquement en temps réel les productions de gaz (STRÖMBERG *et al.*, 2015 ; DA SILVA *et al.*, 2018). La question du modèle cinétique utilisé et de la qualité des approches mathématiques pour ce faire est alors cruciale. Des modèles empiriques (cinétique de premier ordre, équation de Gompertz, équation de Monod) peuvent être utilisés, faisant le choix de la parcimonie, c'est-à-dire consistant à utiliser un nombre réduit de paramètres, mais ils reflètent mal la complexité biologique de la digestion anaérobie et sont dès lors souvent réduits à n'être validés que pour les types de milieux à partir desquels ils ont été élaborés.

La présente étude vise à développer une méthodologie mathématiquement robuste et basée sur les principales réactions biologiques de la digestion anaérobie.

## 1. Matériels et méthodes

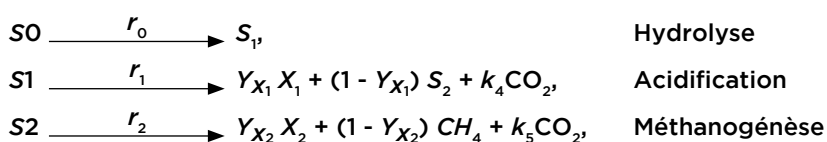
### 1.1 DESCRIPTION DE L'APPROCHE MATHÉMATIQUE

La recherche de modèles mathématiques suffisamment simples afin d'être utilisés pour la commande et/ou la prévision est d'une importance capitale pour optimiser le procédé et permettre le développement de la filière des énergies renouvelables utilisant les déchets. Dans les modèles obtenus à partir d'une simplification du modèle ADM1, la digestion anaérobie est souvent considérée comme une chaîne trophique à trois étapes : une étape d'hydrolyse et de liquéfaction de grandes molécules organiques insolubles, suivie d'une étape de production d'acides gras volatils par un premier consortium microbien, et terminée par une production de méthane impliquant un écosystème méthanogène. Pour cette étude nous avons utilisé le modèle AM2 modifié (FEKIH SALEM, 2012) dans une formulation où toutes les concentrations sont exprimées en DCO (Demande Chimique en Oxygène) ce qui permet de limiter le nombre de coefficients pseudo-stœchiométriques (DONOSO-BRAVO, 2015).

Afin de calibrer ce modèle, nous disposons d'une masse de données importante, sous la forme de données de production de méthane issues de la digestion de boues issues des différentes étapes du procédé d'épuration mis en œuvre dans différentes stations du Siaap (boues primaires, de nitrification et de dénitrification). Ces données se présentent sous la forme de volumes de méthane en fonction du temps et pour 90 expériences différentes issues de la réplication en triplicata de 30 mélanges substrat/*inoculum* différents. Malgré cette abondance de données, on verra que les paramètres du modèle ne sont pas déterminés de manière unique, mais nous montrons dans la suite comment nous avons pu obtenir un jeu de paramètres permettant de reproduire correctement les profils de production pour l'ensemble des expériences. L'idée exploitée consiste à séparer les paramètres en deux sous-ensembles distincts : d'une part les paramètres cinétiques (constantes de vitesse, rendements, etc.) et d'autre part les conditions initiales des différents états du système (substrats et biomasse).

### 1.2 MODÈLE AM2 MODIFIÉ

Le schéma réactionnel est le suivant :



où  $S_0$  représente la DCO solide,  $X_1$  la biomasse acidogène,  $X_2$  la biomasse méthanogène,  $S_1$  la DCO facilement biodégradable,  $S_2$  les acides gras volatils et  $r_i$ ,  $i=0,1,2$  les vitesses de réaction. Les rendements associés aux réactions biologiques sont notés  $Y_{X_1}, Y_{X_2}$ . Nous utilisons les mêmes notations pour désigner les concentrations (g DCO par litre) des différents constituants du système, qui sont des fonctions du temps  $t$  et vérifient le système d'équations différentielles suivant,

$$\begin{aligned} S_0' &= -r_0, & S_1' &= r_0 - r_1, & S_2' &= (1 - Y_{X_1})r_1 - r_2' \\ X_1' &= Y_{X_1}r_1, & X_2' &= Y_{X_2}r_2, & CH_4' &= (1 - Y_{X_2})r_2 \end{aligned}$$

avec les conditions initiales

$$S_0(0) = S_0^0, \quad S_1(0) = S_1^0, \quad X_1(0) = X_1^0, \quad X_2(0) = X_2^0$$

Les vitesses spécifiques sont données par

$$r_0 = \mu_0 S_0, \quad r_1 = \mu_1^{\max} \frac{S_1 X_1}{S_1 + K_{S_1}}, \quad r_2 = \mu_2^{\max} \frac{S_2 X_2}{S_2 + K_{S_2} + S_2^2/K_1}$$

et le volume de méthane est donné en fonction du temps par

$$CH_4(t) = (1 - Y_{X_2})(X_2(t) - X_2(0))$$

### 1.3 PARAMÈTRES DU MODÈLE ET IDENTIFIABILITÉ

Les paramètres du modèle, qui sont à identifier à partir des mesures, sont rassemblés dans le vecteur  $\theta = (\theta_c, \theta_b)$  où

$$\theta_c = (Y_{X_1}, Y_{X_2}, \theta_0, \mu_1^{\max}, \mu_2^{\max}, K_{S_1}, K_{S_2}, K_1),$$

$$\theta_b = (X_1^0, X_2^0, S_0^0, S_1^0, S_2^0),$$

Le vecteur  $\theta_c$  contient les paramètres cinétiques du procédé et sera donc commun à toutes les expériences alors que  $\theta_b$  sera différent. La question de l'identifiabilité, c'est-à-dire l'unicité d'un vecteur de paramètres donnant un volume de méthane donné au cours du temps, doit être posée avant d'entreprendre l'identification pratique. Notons  $CH_4(t; \theta_c)$  et  $CH_4(t; \theta_b)$  les volumes de méthane donnés pour deux vecteurs de paramètres  $\theta_1$  et  $\theta_2$  : si des volumes de méthane identiques pour tout  $t > 0$  impliquent que  $\theta_1 = \theta_2$ , on pourra affirmer que les paramètres sont identifiables.

Vu le peu d'information apporté par le volume de méthane, la réponse est négative (BERNARD, 2001) mais certaines expressions algébriques calculées à partir des paramètres sont néanmoins identifiables, comme par exemple

$$CH_4(\infty) = 1 - Y_{X_2}((1 - Y_{X_1})(S_0^0 + S_1^0) + S_2^0)$$

qui donne le potentiel méthanogène. Lorsque l'identifiabilité n'est pas vérifiée, les méthodes numériques de détermination des paramètres rencontrent de sérieux problèmes de convergence et il faut donc adopter des stratégies adéquates, nous précisons cela plus loin.

L'absence d'identifiabilité pose un problème pour la signification physique des paramètres obtenus, mais ce que nous recherchons ici est un modèle mathématique permettant de reproduire fidèlement le volume de méthane en fonction du temps, sans nécessairement décrire de manière unique les variables d'état ( $X_1, X_2, S_1, S_2, S_0$ ). Dans les résultats obtenus, les évolutions relatives, par exemple de  $S_0$ ,  $S_1$  et  $S_2$  permettent de comprendre la diversité des comportements observés dans les expériences, comme par exemple le caractère limitant de l'étape d'hydrolyse suivant les valeurs relatives de  $S_0^0$ ,  $S_1^0$  et  $S_2^0$ . Du point de vue de l'identifiabilité, nous pensons que les expressions correspondantes, c'est à dire

$$\frac{S_0^0}{S_0^0 + S_1^0 + S_2^0}, \quad \frac{S_1^0}{S_0^0 + S_1^0 + S_2^0}, \quad \frac{S_2^0}{S_0^0 + S_1^0 + S_2^0}$$

sont identifiables, mais cela reste à démontrer rigoureusement.

## 1.4 STRATÉGIE D'IDENTIFICATION DES PARAMÈTRES

Il s'agit dans un premier temps de déterminer les paramètres cinétiques  $\theta_c$  permettant de reproduire au mieux l'ensemble des expériences sur leur durée totale. Leur détermination est faite en utilisant la totalité de l'horizon temporel des expériences en vue de les utiliser ensuite lors d'une seconde phase de prédiction du potentiel méthanogène à horizon limité (4 jours).

Pour chaque batch n°i on dispose de mesures constituées de :

- $(t_k^i)_{k=1..m_i}$  : instants des levées de clapets du dispositif AMPTS
- $(D_k^i)_{k=2..m_i}$  : débits moyens mesurés à  $t=t_k^i$ ,  $k=1..m_i$

D'autre part pour  $\theta=(\theta_c, \theta_b)$  on sait simuler le débit moyen de  $CH_4$  :

$$d_k^i(\theta_c, \theta_b) = (CH_4(t_k^i) - CH_4(t_{k-1}^i)) / (t_k^i - t_{k-1}^i)$$

où  $CH_4(t)$  est le volume de méthane obtenu en résolvant les équations du modèle AM2 (BENYAHIA, 2010) modifié pour le vecteur de paramètres  $\theta=(\theta_c, \theta_b)$ .

### 1.4.1 Apprentissage

Nous définissons dans un premier temps un critère de moindres carrés  $J_i(\theta)$  par

$$J_i(\theta) \equiv J_i(\theta_c, \theta_b) = \sum_{k=2}^{m_i} (t_k^i - J_i(\theta_c, \theta_b))^2 = \sum_{k=2}^{m_i} (t_k^i - t_{k-1}^i)(D_k^i - d_k^i(\theta_c, \theta_b))^2$$

La recherche d'un vecteur réalisant le minimum de  $J_i$  ne prend en compte que l'expérience numéro  $i$ . C'est pourquoi nous considérons  $n$  expériences en les couplant par la cinétique, en considérant le vecteur à déterminer  $\xi=(\theta_c, \theta_b^1, \dots, \theta_b^n)$  et le critère multi-expériences :

$$J(\xi) \equiv J(\theta_c, \theta_b^1, \dots, \theta_b^n) = \sum_{i=1}^n J_i(\theta_c, \theta_b^i).$$

Le vecteur optimal  $\hat{\xi}=(\hat{\theta}_c, \hat{\theta}_b^1, \dots, \hat{\theta}_b^n)$  est défini par  $\hat{\xi} = \underset{\xi \in \Xi}{\operatorname{argmin}} J(\xi)$ , où  $\Xi$  est le sous-espace admissible exprimant les contraintes que nous imposons aux divers paramètres, espérant améliorer le comportement de l'algorithme d'optimisation. Il est de la forme :

$$\Xi = \{\xi \in \mathbb{R}^{\theta+5n}, \xi_{inf} \leq \xi \leq \xi_{sup}\}.$$

### 1.4.2. Prédiction/validation

Etant donné  $\hat{\theta}_c$  obtenu lors de la phase d'apprentissage et une nouvelle expérience de durée arbitraire et définie par les données  $(t_k, D_k)$  on définit le critère suivant :

$$\tilde{J}(\theta_b) = \sum_{k=2}^m (t_k - t_{k-1})(d_k(\hat{\theta}_c, \theta_b) - D_k)^2$$

et on détermine le vecteur optimal  $\tilde{\theta}_b = \underset{\theta_b}{\operatorname{argmin}} \tilde{J}(\theta_b)$ . Les paramètres cinétiques  $\hat{\theta}_c$  sont fixés et pour une expérience donnée les seuls paramètres à déterminer sont les conditions initiales des deux biomasses et des trois substrats, qui permettent d'obtenir une estimation du volume final de méthane.

### 1.4.3 Aspects numériques

Dans cette étude, nous avons utilisé 69 parmi les 108 expériences pour l'apprentissage, il y a donc 353 paramètres à déterminer, ce qui peut paraître difficile étant donné les problèmes d'identifiabilité déjà évoqués et les temps de calculs potentiellement prohibitifs : en effet, pour évaluer  $J(\xi)$  et sa dérivée  $J'(\xi)$ , nécessaires à l'algorithme d'optimisation, il faut résoudre 69 équations différentielles dont l'inconnue au temps  $t$  est une matrice de taille  $5 \times 14$  (le vecteur  $(X_1, X_2, S_1, S_2, S_0)$  ainsi que sa dérivée par rapport à  $\theta$ ). Les calculs de  $J(\xi)$  et de sa dérivée  $J'(\xi)$  sont

effectués en un temps raisonnable grâce une machine multi-processeurs (serveur à 20 processeurs Xeon E5-2660-v2), La phase d'apprentissage est réalisée avec une méthode de points intérieurs à l'aide du logiciel Matlab. Par contre la phase de prédiction pour une expérience particulière est très rapide car elle ne porte que sur cinq paramètres (conditions initiales des deux biomasses et des trois substrats). Les résultats obtenus sont très satisfaisants comme nous le montrons dans la section suivante.

## 1.5 DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DES BMP

Les potentiels méthanogènes des boues ont été déterminés à l'aide d'un AMPTS II® (Bioprocess Control, Suède), pour Automated Methane Potential Testing System Ce système permet de mesurer de manière automatisée et en ligne les cinétiques et potentiels de production de méthane d'un substrat donné. Il est composé de 15 réacteurs de 500 ml, assimilés à des digesteurs, placés dans un bain thermostaté régulé à  $35,0 \pm 0,2$  °C. Le biogaz produit dans chaque digesteur est préalablement épuré des gaz acides par une solution alcaline de NaOH 4 M (piège à CO<sub>2</sub>) afin de ne comptabiliser que le méthane produit. Les productions de gaz sont ramenées aux conditions standard de pression et de température. Le volume cumulé de biogaz produit au cours de l'incubation est comptabilisé par le nombre d'impulsions provoquées par le soulèvement des clapets reliés aux réacteurs, chaque clapet étant calibré à un volume donné (environ 10 ml). L'AMPTS II® donne le volume cumulé de méthane produit ainsi que la cinétique de production.

Le BMP de différents types de boue provenant de l'installation de Seine Aval du Siaap ont été analysés afin de disposer d'un échantillon le plus large possible pour valider la démarche. Il s'agit (1) de boues primaires issues d'une décantation classique, (2) de boues biologiques issues de trois types de traitement (-élimination du carbone par boues activées fortes charges, - nitrification par biofiltration (Biostyr®), -post-dénitrification sur méthanol par biofiltration (Biostyr® et Biofor®), (3) de boues tertiaires issues de la décantation physico-chimique lestée par microsables (Actiflo®), placée à l'aval du traitement du carbone, (4) de boues mixtes issues de la bêche alimentant la digestion anaérobie mésophile, constituées par un mélange de boues primaires, biologiques et tertiaires.

Parallèlement à la mesure du BMP, une caractérisation de la matière organique a été réalisée systématiquement sur l'ensemble des boues : matières volatiles (MV), matières sèches (MS), Demande Chimique en Oxygène (DCO), Demande biochimique en Oxygène à 5 jours (DBO<sub>5</sub>) et Carbone Organique Total (COT). Les analyses et les BMP ont été réalisées au sein du laboratoire de la Direction du Développement et de la Prospective du Siaap (GUÉRIN *et al.*, 2016).

## 2. Résultats et discussion

### 2.1 APPRENTISSAGE

L'apprentissage effectué sur les batchs 1 à 69 nous a permis d'obtenir les estimations suivantes des paramètres cinétiques  $\hat{\theta}_c$  :

$Y_{x_1}$	$Y_{x_2}$	$\mu_0$	$\mu_1^{\max}$	$\mu_2^{\max}$	$K_{S_1}$	$K_{S_2}$	$K_i$
0,58	0,12	0,29	3,63	2,67	1,02	3,45	1,44

La figure 1 montre que les cinétiques de production sont bien reproduites dans deux situations très différentes, pour une boue primaire et pour une boue biologique (dénitrification). On pourra aussi noter que les concentrations initiales relatives des substrats sont en accord avec la nature des boues. D'une manière générale les informations données par les graphes représentant  $S_0, S_1, S_2, X_1, X_2$  sont intéressantes car elles permettent de comprendre comment les proportions des trois types de substrats jouent sur la cinétique apparente de production du méthane.



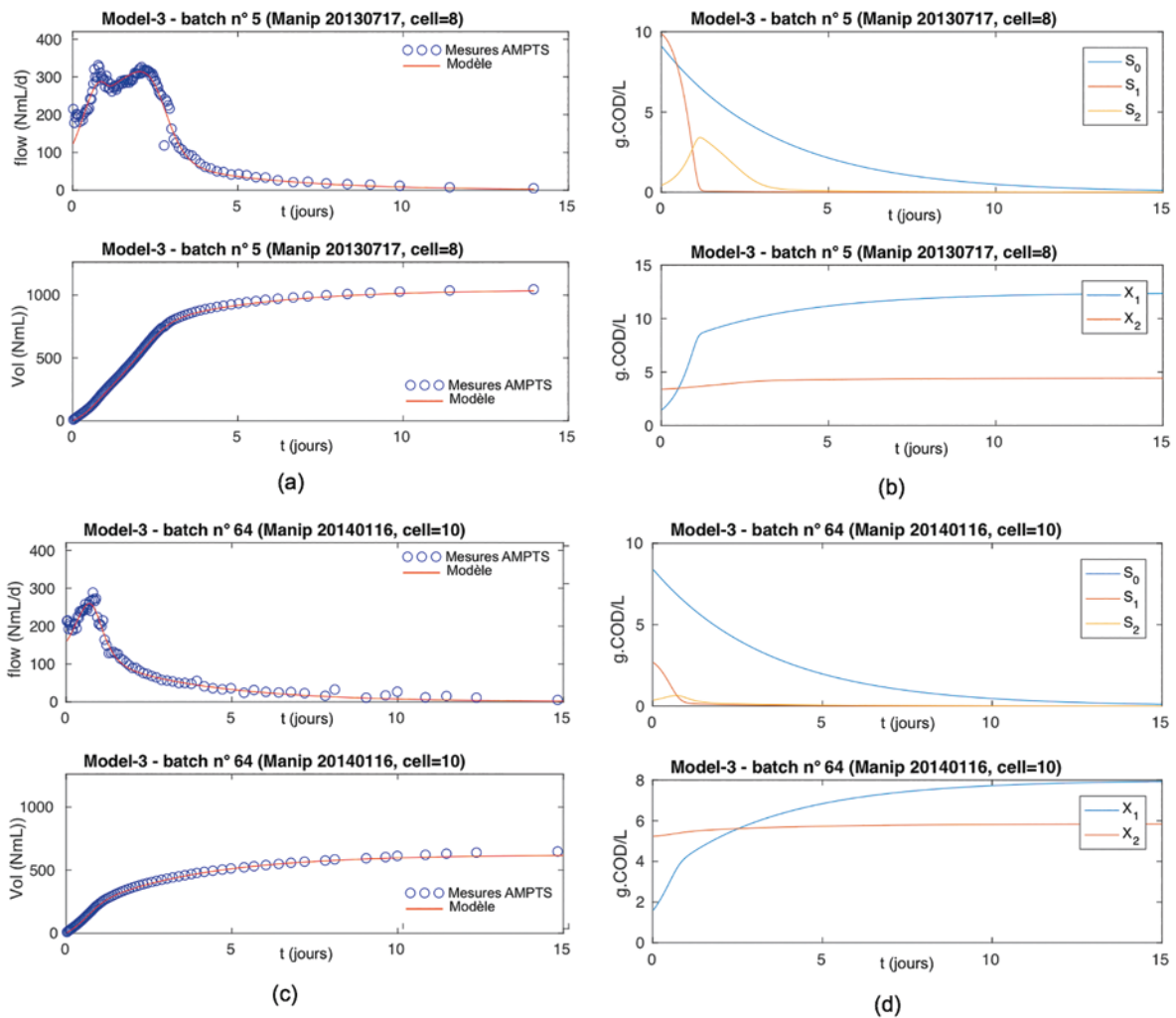


Figure 1 : Résultats de l'apprentissage pour le cas d'une boue primaire (a),(b) et d'une boue de dénitrification (c),(d), vitesse et volume de méthane cumulé (gauche), états du modèle AM2 modifié (droite)

## 2.2 VALIDATION

Une fois effectuée la phase d'apprentissage, nous avons validé notre approche en effectuant les prédictions à  $t=4$  jours sur les batch n°70 à n°108. La Figure 2 donne l'ensemble des résultats sous la forme d'un diagramme de validation (a). Elle montre sur une expérience particulière (c) (d) que la prédiction à 4 jours est très bonne du point de vue quantitatif.

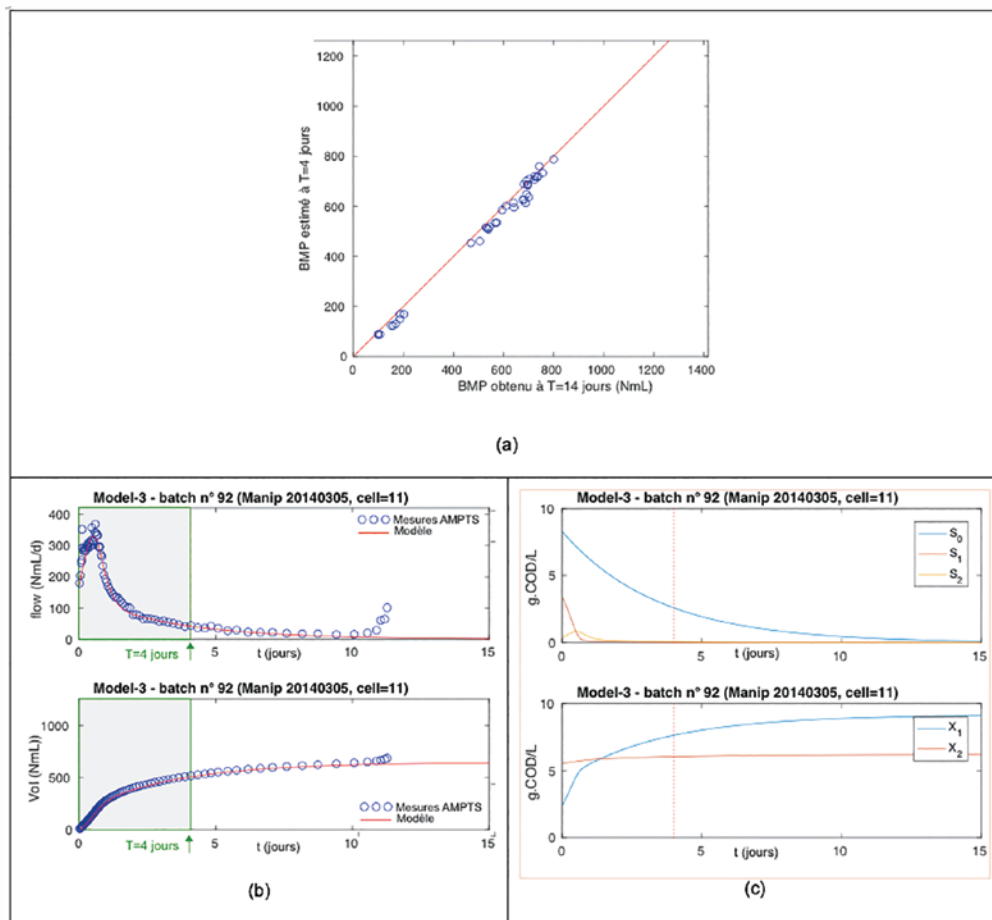


Figure 2 : Résultats de la validation sur les batches 70 à 108 à  $t=4$  jours, diagramme de validation (a), vitesse et volume de méthane cumulé (b) et pour une boue flottée et états du modèle AM2 modifié (c).

## Conclusion

Dans ce travail, nous avons établi un modèle décrivant avec parcimonie la digestion anaérobie et l'avons appliqué aux cinétiques de différentes boues du Siaap, mesurées par un AMPTS II. Après calibration puis validation, le modèle s'est révélé apte à reproduire la production de méthane de ces boues et de pouvoir extrapoler avec les productions obtenues dès 4 jours de réaction la production ultime. La différence de cette approche par rapport aux approches statistiques proposées par la littérature réside dans le fait que cette prédiction est accompagnée d'une estimation des proportions relatives des différents types de substrats, grâce à l'utilisation d'un modèle mathématique prenant en compte les trois étapes principales du procédé : hydrolyse, acidification et méthanogénèse.

## Remerciements

Cette étude a été financée par le programme de recherche Mocopée.

## POUR EN SAVOIR PLUS

➤ MOTTELET S., GUÉRIN S., AZIMI S., BERNIER J., ROCHER V., PAUSS A., RIBEIRO T. (2017) : *A new methodology for early BMP assessment using a mathematical model*. 15<sup>th</sup> IWA World Conference on Anaerobic Digestion (AD-15), Beijing, China, October 17-20.

## Bibliographie

- ADEME (2014) : *Evaluation du potentiel de production de biométhane à partir des boues issues des stations d'épuration des eaux usées urbaines*. 93 pages. Disponible en ligne sur <https://www.ademe.fr/evaluation-potentiel-production-biomethane-a-partir-boues-issues-stations-depuration-eaux-usees-urbaines>.
- BELLATON S., GUÉRIN S., PAUTREMAT N., BERNIER J., MULLER M., MOTTELET S., AZIMI S., DUDAL Y., PAUSS A., ROCHER V. (2016) : « Early assessment of a rapid alternative method for the estimation of the biomethane potential of sewage sludge. » *Bioresource Technology* ; 206 : 279-84.
- BENYAHIA B., SARI T., CHERKI B., HARMAND J. (2010) : *Sur le modèle AM2 de digestion anaérobie*. CARI 2010, HAL archives ouvertes. Disponible en ligne sur <https://hal.inria.fr/inria-00505230>.
- BERNARD O., HADJ-SADOK Z., DOCHAIN D., GENOVESI A., STEYER J. P. (2001) : « Dynamical model development and parameter identification for an anaerobic wastewater treatment process. » *Biotechnology and Bioengineering* ; 75(4) : 424-38.
- DA SILVA C., ASTALS S., PECES M., CAMPOS J.L., L. GUERRERO L. (2018) : « Biochemical methane potential (BMP) tests: Reducing test time by early parameter estimation. » *Waste Management* ; 17 : 19-24.
- DONOSO-BRAVO A., GRACIA G., PÉREZ-ELVIRA S., FDZ-POLANCO F. (2011) : « Initial rates technique as a procedure to predict the anaerobic digester operation. » *Biochemical Engineering Journal* ; 53 : 275-80.
- DONOSO-BRAVO A., PÉREZ-ELVIRA S., FDZ-POLANCO F. (2015) : « Simplified mechanistic model for the two-stage anaerobic degradation of sewage sludge. » *Environmental Technology* ; 36(9-12) : 1334-46.
- FEKIH-SALEM R., ABDELLATIF N., SARI T., HARMAND J. (2012) : *On a three step model of anaerobic digestion including the hydrolysis of particulate matter*, MATHMOD 2012, 7<sup>th</sup> Vienna International Conference on Mathematical Modelling, Volume: F. Breitenecker, I. Troch (Editors), 7(1) : 671-6.
- GUERIN S., AZIMI S., BERNIER J., ROCHER V., MOTTELET S., PAUSS A., RIBEIRO T. (2016) : Le pouvoir méthanogène des boues urbaines. Cartographie des boues de STEP et réduction du temps de mesure par un couplage « expérimentation en réacteur/modélisation. » *L'Eau, l'Industrie, les Nuisances* ; 397 : 59-66.
- HOLLIGER C. *et al.* (43 auteurs) (2016) « Towards a standardization of biomethane potential tests », *Water Science Technology* ; 74(11): 2515-22.
- LESTEUR M., BELLON-MAUREL V., GONZALEZ C., LATRILLE E., ROGER J.M., JUNQUA G., STEYER J.P. (2010) : « Alternative methods for determining anaerobic biodegradability: a review. » *Process Biochemistry* ; 45 : 431-40.
- STRÖMBERG S., NISTOR M., JING LIU J. (2015) : « Early prediction of Biochemical Methane Potential through statistical and kinetic modelling of initial gas production. » *Bioresource Technology* ; 176 : 233-41.
- WARD A.J. (2016) : « Near-infrared spectroscopy for determination of the biochemical methane potential: state of the art. » *Chemical Engineering Technology* ; 39 : 611-9.

# Potentiel méthanogène de déchets valorisables en STEP : focus sur les boues urbaines

## *Methanogenic potential of recoverable wastes in WWTP: focus on urban sludges*

Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[1]\*</sup>, Stéphane Mottelet<sup>[2]</sup>, Sam Azimi<sup>[1]</sup>, Jean Bernier<sup>[1]</sup>, Thierry Ribeiro<sup>[3]</sup>, André Paus<sup>[2]</sup>, Vincent Rocher<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Siaap Direction Innovation Environnement, Colombes

<sup>[2]</sup> Université de Technologie de Compiègne, TIMR (EA 4297), Compiègne

<sup>[3]</sup> UniLaSalle, Beauvais

\* Auteur de correspondance : [sabrina.guerin@siaap.fr](mailto:sabrina.guerin@siaap.fr)



*Au regard de la place importante occupée par la digestion anaérobie dans les stations d'épuration de l'agglomération parisienne, de nombreuses actions R et D traitant de la question de l'optimisation du procédé de digestion ont été engagées dans le programme Mocopée. Ces actions visent notamment à valider à l'échelle industrielle des méthodes d'estimation du potentiel méthane des boues urbaines et à construire des modèles de prédiction du fonctionnement des systèmes de digestion anaérobie. Cet article technique, consacré à l'évaluation du BMP des boues urbaines, a permis de dresser un état des lieux des niveaux de potentiel méthanogène des boues urbaines. Les valeurs moyennes sont comprises entre 300 et 500 NmL CH<sub>4</sub>/g MV (160 et 370 NmL CH<sub>4</sub>/g MS) pour tous les types de boues (primaires, biologiques, mixtes, etc.). Ce travail a également confirmé que la mesure des paramètres classiques (DCO, MV, MS) ne permettait pas de prédire de manière précise le potentiel méthanogène.*

## Boues urbaines - BMP - Digestion - Potentiel méthane - Valorisation énergétique

### Introduction

Face aux impératifs de protection de l'environnement contre le dérèglement climatique et à l'épuisement des ressources, la loi transition énergétique pour la croissance verte (2015-992 du 17 août 2015) a dessiné, pour le milieu du siècle, les grands objectifs d'un nouveau modèle énergétique français. Pour donner un cadre à l'action conjointe des citoyens, des industriels, des territoires et de l'État, la loi fixe des objectifs à moyen et long termes : réduire les émissions de gaz à effet de serre de 40 % entre 1990 et 2030 pour les diviser par quatre d'ici 2050 et réduire la consommation énergétique de 50 % à l'horizon 2050 par rapport à 2012 en visant un objectif intermédiaire de 20 % en 2030. Pour atteindre ces objectifs ambitieux, il est notamment question de recourir aux énergies renouvelables et de récupération (EnRR). La part des EnRR devra représenter 23 % de la consommation d'énergie brute dès 2020 et devra atteindre 32 % en 2030.

Dans ce nouveau modèle énergétique, les industriels en charge du traitement des eaux résiduaires urbaines (ERU) ont mis au cœur de leurs préoccupations la problématique de la dépense énergétique (AZIMI et ROCHER 2016 ; FRIEDRICH *et al.*, 2009 ; CHUDOBA *et al.*, 2011 ; MÜLLER *et al.*, 2006). Il s'agit d'une part de trouver des voies de réduction des consommations énergétiques et, d'autre part, d'optimiser la production et l'utilisation des EnRR.

Pour cette seconde voie, au sein des stations d'épuration franciliennes, la valorisation énergétique des boues, via le procédé de digestion anaérobie, occupe une place privilégiée. A l'échelle de l'agglomération parisienne (zone du Service Public de l'Assainissement Francilien [Siaap], bassin versant de 2000 km<sup>2</sup>, 9 millions d'habitants), la filière de digestion anaérobie admet plus de 70 % des boues produites et permet chaque année la production de plus de 80 millions de mètres cubes de biogaz. La situation de l'agglomération parisienne se distingue du reste du territoire, puisqu'à l'échelle nationale, sur les 19 500 stations d'épuration présentes (production annuelle de 1 036 855 tonnes de boue [matière sèche]), seules 85 ont une unité de production de biogaz (GRENNBIRDIE et LE CRIGEN, 2015 ; JIMENEZ *et al.*, 2015). La très faible part de boue d'épuration utilisée à l'échelle nationale pour produire du biogaz au regard de son potentiel laisse à penser qu'une mutualisation de la production d'EnRR, sous la forme de mélange de différents sous-produits valorisables, dont les boues d'épuration, aiderait à atteindre les objectifs nationaux à l'horizon 2050. Les avantages de cette co-méthanisation seront à évaluer, bien évidemment, par rapport au respect des règles liées au mélange de déchets organiques, à savoir de privilégier la valorisation matière, de respecter le principe de proximité des filières et enfin, de favoriser le retour au sol du carbone, facteur contribuant à lutter contre le réchauffement climatique.

Favoriser la production d'EnRR en mélangeant différents intrants organiques peut parfois contraindre à ne pas respecter cette hiérarchie des modes de traitement, le mélange de certains intrants en digestion ne permettant plus un usage agricole des digestats. Dans ce contexte, des travaux de recherche appliquée ont été engagés dans le cadre du programme Mocopée (Modélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux, [www.mocopee.com](http://www.mocopee.com)) dans le but d'évaluer le potentiel méthane (BMP pour *Biochemical Methane Potential*) de différents intrants organiques et d'apporter des éléments de réponses permettant d'évaluer les avantages et inconvénients des différentes voies de valorisation. Cet article technique est consacré à la première étape de ce travail d'évaluation du BMP des déchets organiques et se focalise sur les boues urbaines avec un double objectif. Il s'agit, premièrement, de dresser un état des lieux des niveaux de BMP de différents types de boues urbaines. Pour cela, pendant trois ans, de nombreux types de boues ont été échantillonnés sur le site industriel de Seine aval (Achères, 1 700 000 m<sup>3</sup>/j) : boues primaires, boues biologiques (bassins à boues activées « forte charge », biofiltres nitrifiants et post-dénitrifiants), boues physico-chimiques tertiaires et boues mixtes. La diversité des matrices considérées et le grand nombre d'échantillons analysés a permis de dresser une cartographie du pouvoir méthanogène des boues urbaines. Le second objectif vise à cerner les limites des relations liant les paramètres classiquement mesurés sur les boues (MS, MV, DCO, DBO<sub>5</sub>, COT) et leur potentiel méthanogène ; le but ultime étant de définir des outils « simples » et « rapide » d'évaluation du potentiel méthane des boues urbaines.

## 1. Présentation de la démarche technico-scientifique

### 1.1. TYPES DE BOUES URBAINES ÉTUDIÉES

Les boues résiduaires urbaines caractérisées dans le cadre de cette étude sont issues de la station d'épuration de Seine aval du Siaap. Cette station qui traite quotidiennement 1 700 000 m<sup>3</sup> d'eaux usées (6,5 millions équivalent-habitants), est alimentée par un réseau unitaire majoritairement domestique. La filière de traitement de l'eau comportait au moment du projet ❶ un prétraitement (dégrillage, dessablage/déshuilage), ❷ une décantation classique, ❸ un traitement biologique du carbone par boues activées suivi d'une décantation physico-chimique lestée par micro-sable (Actiflo®) et ❹ un traitement biologique de l'azote par biofiltration (nitrification puis post-dénitrification avec ajout de méthanol).

Les boues produites dans cette station ont été caractérisées afin de dresser une cartographie précise de leur comportement méthanogène. Quatre familles de boues ont été étudiées entre 2013 et 2015 (Figure 1) :

- Boues primaires issues d'une décantation classique ;
- Boues biologiques issues de trois types de traitement :
  - (a) élimination du carbone par boues activées fortes charges ;
  - (b) nitrification par biofiltration (Biostyr®) ;
  - (c) post-dénitrification sur méthanol par biofiltration (Biostyr® et Biofor®).
- Boues tertiaires issues de la décantation physico-chimique lestée par micro-sable (Actiflo®), placée à l'aval du traitement du carbone ;
- Boues mixtes issues de la bêche alimentant la digestion anaérobie mésophile, constituées par un mélange de boues primaires, biologiques et tertiaires.

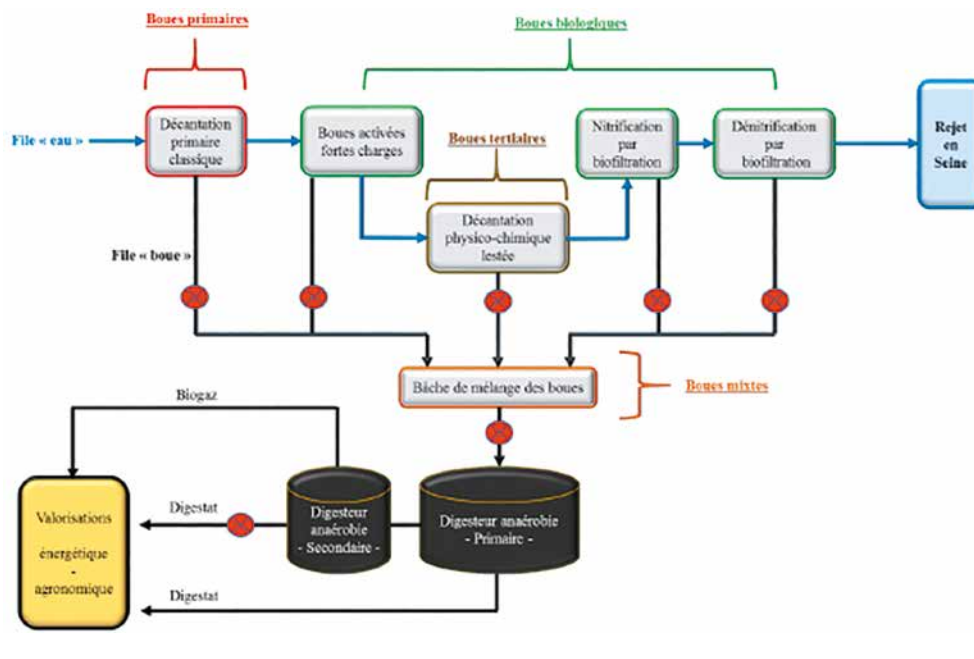


Figure 1 : Schéma de la filière de traitement des boues considérées dans le cadre de ce projet (Station épuration Seine aval - Siaap)

## 1.2. DESCRIPTIF DE LA MÉTHODE D'ÉVALUATION DU POTENTIEL MÉTHANE

### 1.2.1. Présentation du dispositif AMPTS II®

Le dispositif employé pour mesurer le potentiel méthanogène des boues est l'AMPTS II® (Bioprocess Control, fournisseur français : Labo-M Solutions), pour *Automated Methane Potential Testing System* (Figure 2). Ce système permet de mesurer de manière automatisée et en ligne les cinétiques et potentiels de production de méthane d'un substrat donné. Il est composé de 15 réacteurs de 500 ml, assimilés à des digesteurs, placés dans un bain thermostaté régulé à  $35,0 \pm 0,2$  °C. Le biogaz produit dans chaque digesteur est préalablement épuré des gaz acides par une solution alcaline de NaOH 4 M (piège à CO<sub>2</sub>) afin de ne comptabiliser que le méthane produit (BASSARD *et al.*, 2014). Un indicateur coloré de pH (thymolphtaléine) est également ajouté à cette solution alcaline, qui devient incolore lorsque cette solution n'est plus capable de piéger les gaz acides. Des capteurs de pression et de température sont incorporés pour la correction en ligne des résultats (condition standard, 273 K - 1 atm). Le volume cumulé de méthane produit au cours de l'incubation est défini par la comptabilisation des impulsions provoquées par le soulèvement des clapets reliés aux réacteurs, chaque clapet étant calibré à un volume donné (environ 10 ml). Les résultats obtenus via le dispositif AMPTS II® sont présentés sous deux formats complémentaires ❶ les volumes cumulés en méthane dont le plateau correspond au BMP, exprimé en NmL CH<sub>4</sub> et ❷ les vitesses de production de méthane instantanées en NmL CH<sub>4</sub>/h. Ces deux grandeurs sont ensuite rapportées à la quantité de matière organique introduite dans chacun des réacteurs, pour exprimer le BMP en NmL CH<sub>4</sub>/g MS ou MV et la vitesse en NmL CH<sub>4</sub>/h/g MS ou MV.



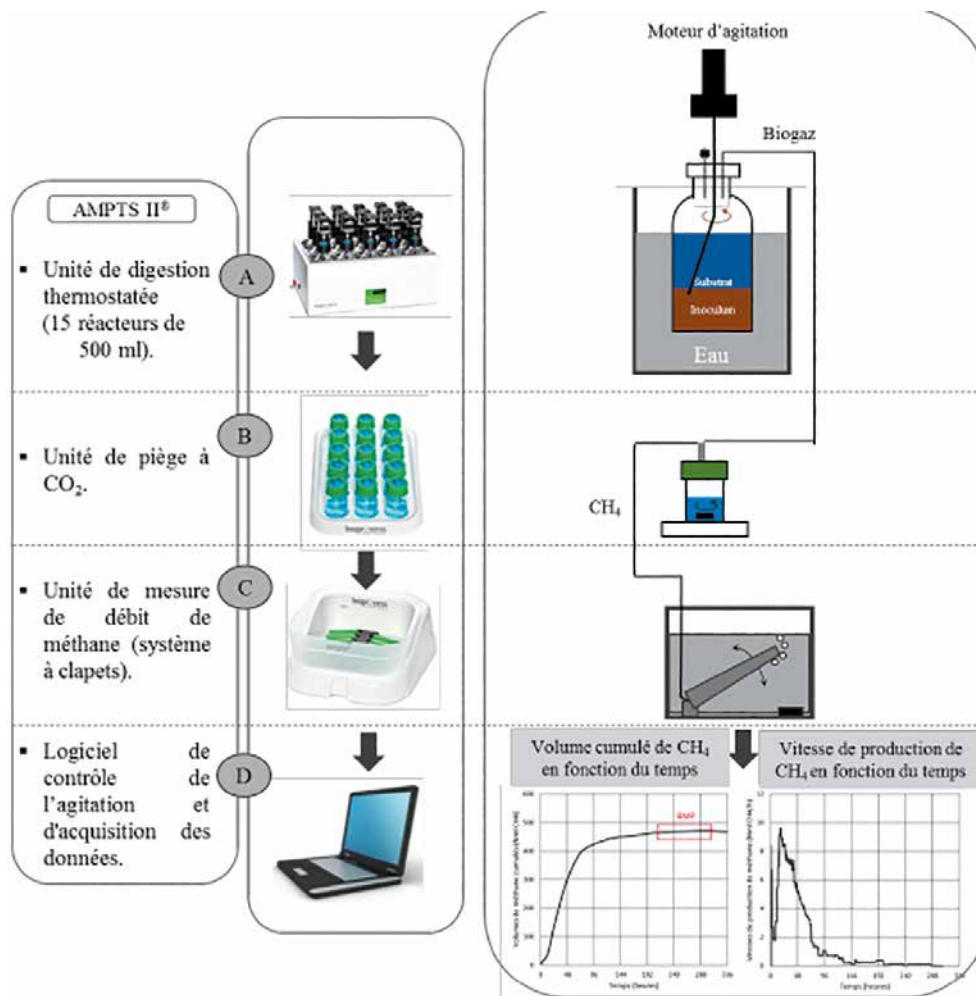


Figure 2 : Présentation schématique du dispositif AMPTS II® (*Automated Methane Potential Testing System*) utilisé dans le cadre de ce projet

### 1.2.2. Protocole opératoire utilisé avec l'AMPTS II®

Au sein de chaque réacteur de 500 mL, un consortium bactérien (I pour *Inoculum*) est mis en contact avec le substrat à caractériser (S pour Substrat), en respectant un rapport I/S de 3, exprimé en matières volatiles (BASSARD *et al.*, 2014 ; CHOPY et BACHMANN, 2012). Le *consortium* bactérien servant d'*inoculum* est prélevé à la sortie des digesteurs secondaires du site Seine aval. Sur ce site, la digestion anaérobie étudiée s'opère en deux parties : digestion primaire mésophile (temps de séjour hydraulique du digesteur étudié de 17 jours (médiane, n=374) - production majeure de biogaz) suivie d'une digestion secondaire non chauffée (temps de séjour hydraulique du digesteur étudié de 3 jours (médiane, n=374) - finalisation de la production de biogaz). La concentration du mélange dans chaque réacteur ne doit pas dépasser 50 g/L pour assurer une bonne homogénéisation des boues. Le volume occupé dans chaque réacteur est de 400 mL. Les expérimentations sont menées en triplicata pour chaque substrat. La respiration endogène de l'*inoculum* est également évaluée en introduisant 200 mL d'*inoculum* dans un réacteur complété par 200 mL d'eau distillée, opéré pareillement en triplicata. Ainsi, le volume d'*inoculum* introduit dans chaque réacteur est identique, réduisant les facteurs d'incertitude dans le calcul du BMP des substrats à caractériser. Ce calcul correspond à la moyenne des triplicatas des volumes cumulés de méthane pour les mélanges *Inoculum*/Substrat amoindri de la moyenne des triplicatas de la respiration endogène. Un coefficient de variation de 20 % dans les triplicatas est accepté, au-delà la moyenne est calculée sur des duplicatas.

### 1.3. MESURE DES PARAMÈTRES CLASSIQUES

Préalablement à la mesure du BMP, une caractérisation de la matière organique a été réalisée systématiquement sur l'ensemble des boues : Matières Volatiles (MV), Matières Sèches (MS), Demande Chimique en Oxygène (DCO), Demande Biochimique en Oxygène à 5 jours ( $DBO_5$ ) et Carbone Organique Total (COT). Les analyses ont été réalisées au sein du laboratoire de la Direction Innovation et Environnement du Siap (Accréditation Cofrac Essais, n°1-1452, portée disponible sur [www.cofrac.fr](http://www.cofrac.fr)). Le Tableau 1 présente les résultats obtenus par type de boues.

		MS (g/l)	MV (%*)	DCO (g O <sub>2</sub> /g MV)	DBO <sub>5</sub> (g O <sub>2</sub> /g MV)	COT (g C/g MV)
<b>Boues primaires</b>	Décantation classique	30,7 ± 11,6	79,3 ± 3,1	1,78 ± 0,28	0,55 ± 0,13	0,39 ± 0,16
	BA** fortes charges	34,2 ± 2,2	81,1 ± 4,3	1,81 ± 0,29	0,49 ± 0,08	0,42 ± 0,19
	BF*** - Nitrification	47,0 ± 1,6	70,4 ± 6,7	1,60 ± 0,23	0,37 ± 0,16	0,47 ± 0,11
	BF*** - Post-dénitrification	22,8 ± 2,9	62,3 ± 6,7	1,69 ± 0,16	1,79 ± 0,58	0,83 ± 0,62
<b>Boues tertiaires</b>	Décantation physico-chimique lestée	42,5 ± 3,1	54,0 ± 4,2	1,65 ± 0,29	0,39 ± 0,22	0,36 ± 0,22
<b>Boues mixtes</b>		37,0 ± 4,1	77,4 ± 4,7	1,67 ± 0,28	0,46 ± 0,17	0,56 ± 0,36
<b>Boues digérées (Inoculum)</b>		22,2 ± 2,3	60,5 ± 2,5	1,54 ± 0,33	0,15 ± 0,05	0,39 ± 0,16

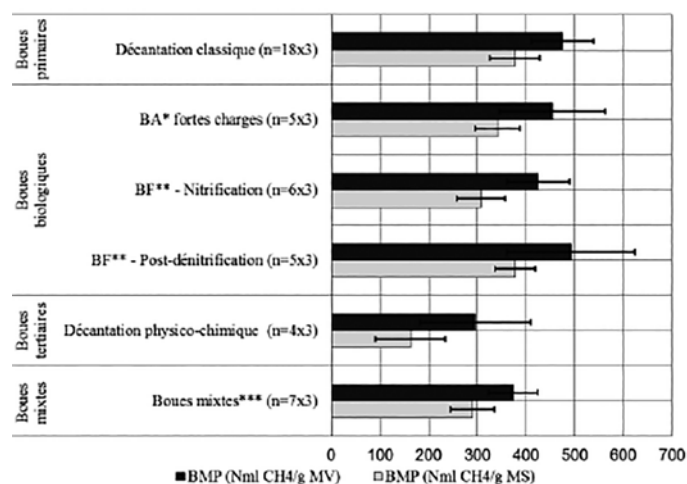
\*Proportion de matières volatiles par rapport à la quantité de matière sèche ; \*\*BA : Boues Activées ; \*\*\*BF : biofiltres

Tableau 1 : Paramètres classiques mesurés sur les boues considérés dans le cadre de ce projet

## 2. Potentiel méthane des différents types de boues urbaines

### 2.1. INTER-COMPARAISON DES BMP DES DIFFÉRENTS TYPES DE BOUES

La présente étude a permis de dresser une cartographie complète du pouvoir méthanogène des différentes boues produites dans la station d'épuration de Seine aval. La Figure 3 permet d'apprécier cette cartographie pour les quatre familles de boues étudiées : les boues primaires, les boues biologiques, les boues tertiaires et les boues mixtes. Pour apporter une clé de lecture opérationnelle en exploitation où la production de boues est estimée en matière sèche (MS), le BMP est exprimé en NmL CH<sub>4</sub>/g MS (diagramme en gris clair). Ces mêmes BMP sont également exprimés en NmL CH<sub>4</sub>/g MV selon les pratiques de la communauté scientifique (diagramme en gris foncé). Chaque diagramme présente la moyenne des BMP obtenus pour chaque type de boue et les barres d'erreur illustrent les écarts types associés. Le nombre de mesures en triplicatas réalisé pour chaque type de boue est indiqué entre parenthèses, conduisant ainsi à un total de 135 expérimentations.



\*BA : Boues Activées ; \*\*BF : biofiltres ; \*\*\*Boues mixtes : mélange entre les différents types de boues (répartition exprimée en volume : ~50 % boues primaires, ~40 % boues biologiques, ~10 % boues tertiaires) – Les histogrammes correspondent aux valeurs moyennes et les barres d'erreur aux écarts types.

Figure 3 : Potentiels méthanogènes de différents types de boues urbaines de la station Seine aval (exprimés en NmL CH<sub>4</sub>/g MS et NmL CH<sub>4</sub>/g MV)

Les boues urbaines présentent un BMP moyen compris entre 300 et 500 NmL CH<sub>4</sub>/g MV et entre 160 et 370 NmLCH<sub>4</sub>/g MS. Ces valeurs sont en cohérence avec la littérature (CHOPY et BACHMANN, 2012 ; PEREZ FABIEL, 2009). Les boues urbaines présentent un BMP supérieur à celui des déchets verts (SERVAIS, 2008), et bien inférieur à celui des boues graisseuses (GREENBIRDIE et LE CRIGEN, 2015).

Les boues primaires et les boues biologiques présentent des BMP moyens proches, respectivement de 470 NmL CH<sub>4</sub>/g MV (370 NmL CH<sub>4</sub>/g MS) et 460 NmL CH<sub>4</sub>/g MV (340 NmL CH<sub>4</sub>/g MS). En revanche, le BMP des boues tertiaires est nettement plus faible avec une valeur moyenne de 300 NmL CH<sub>4</sub>/g MV (160 NmL CH<sub>4</sub>/g MS). Enfin, le BMP des boues mixtes se situe logiquement dans une gamme intermédiaire avec une valeur moyenne de 370 NmL CH<sub>4</sub>/g MV (290 NmL CH<sub>4</sub>/g MS). Les différences entre les types de boues sont globalement dues à la nature de la matière organique qui devient plus minérale au fil du traitement. D'ailleurs, ces écarts observés sont moins marqués lorsque le potentiel méthane est rapporté à la matière volatile (diagramme en gris foncé).

## 2.2. RELATION ENTRE BMP ET PARAMÈTRES CLASSIQUES

Ce paragraphe vise à confirmer que les paramètres classiquement mesurés sur les matrices boues (MS, MV, DCO, DBO<sub>5</sub>, COT) n'ont qu'un faible caractère prédictif du potentiel méthanogène. La Figure 4 présente, pour différents types de boues, la relation entre le BMP et les ratios DCO/MV et DCO/MS ; ces ratios permettant d'obtenir les meilleures corrélations.

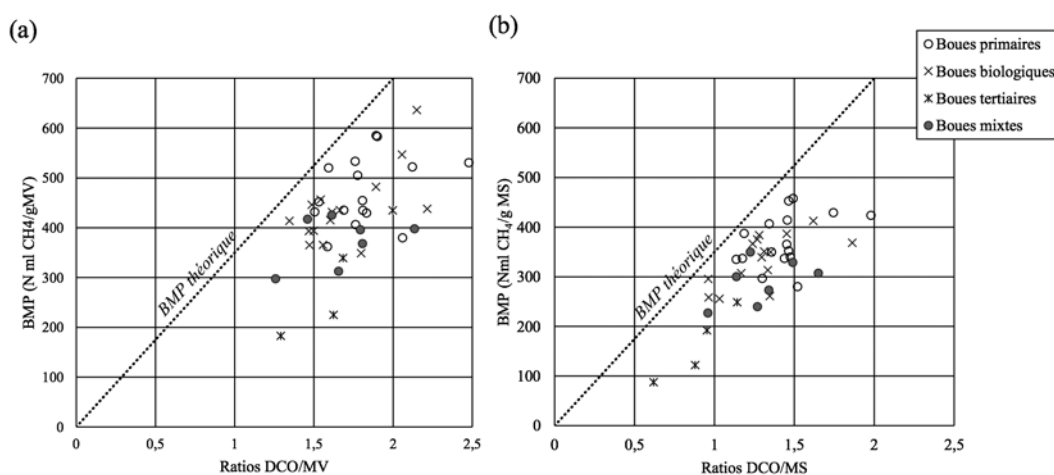


Figure 4 : Corrélations entre le BMP et les ratios (a) DCO/MV et (b) DCO/MS dans les boues résiduaire urbaine de Seine aval

Logiquement on note que, plus une boue contient de la matière organique et plus son potentiel méthanogène est élevé. Ainsi, quel que soit le type de boue, pour un ratio DCO/MV inférieur à 1,5, le BMP est inférieur à 400 NmL CH<sub>4</sub>/g MV alors que le BMP est compris entre 400 et 600 NmL CH<sub>4</sub>/g MV lorsque le ratio DCO/MV dépasse la valeur de 2 (Figure 4a). De la même manière, pour un ratio DCO/MS inférieur à 1, le BMP est inférieur à 300 NmL CH<sub>4</sub>/g MV alors que le BMP est compris entre 300 et 500 NmL CH<sub>4</sub>/g MS lorsque que le ratio DCO/MS dépasse la valeur de 1,5 (Figure 4b). Cependant, la forte dispersion des points sur ces deux diagrammes témoignent du faible pouvoir prédictif de ces ratios. Les résultats obtenus pour la boue primaire (cercles vides sur les figures 4a et 4b) illustrent le faible caractère prédictif. Pour un ratio DCO/MV de l'ordre de 1,7-1,8, les BMP obtenus pour ce type de boue varient entre 400 et 550 NmL CH<sub>4</sub>/g MV.

## Conclusion

Un nouveau modèle énergétique a été initié par l'intermédiaire de la loi de transition énergétique pour la croissance verte. Outre la réduction des émissions de gaz à effet de serre, cette loi promeut la production et l'utilisation des EnRR. A l'échelle des territoires, une des voies pour accroître la part des énergies renouvelables vient de la mutualisation du traitement des déchets organiques dans l'objectif de produire du biogaz par méthanisation. Cependant, et dans un objectif de gestion intégrée des ressources et de l'énergie, il est important de maintenir le respect de la hiérarchisation des modes de traitement des déchets, qui impose une valorisation matière en premier lieu. Aussi, et afin d'aider à définir les meilleures stratégies de gestion à l'échelle locale et régionale en la matière, le programme de recherche Mocopée a initié une cartographie du potentiel de production de biogaz des différents déchets du territoire francilien. La première étape de cette cartographie, présentée et discutée dans le présent document, concerne le potentiel méthane des boues résiduaires urbaines.

Ainsi, tous les types de boue produits dans la station d'épuration Seine Aval du Siaap (1 700 000 m<sup>3</sup> d'eaux usées par jour, soit 6,5 millions équivalent-habitants) ont été caractérisés entre 2013 et 2015 afin de dresser une cartographie précise de leur comportement méthanogène. Les principaux résultats montrent qu'au sein des différents types de boues, les boues primaires et les boues biologiques présentent des BMP moyens proches, et nettement supérieurs à celui des boues tertiaires ; la différence entre les types de boues étant globalement liée à la nature de la matière organique.

## Remerciements

Les auteurs remercient Monsieur Jean-Philippe Steyer (INRA, Laboratoire de Biotechnologie de l'Environnement) pour ses apports ainsi que Céline Briand, Claire Plessis, Elise Alibert et Mélanie Eustache (Siaap) pour leur soutien technique dans ce travail.

### POUR EN SAVOIR PLUS

› GUERIN-RECHDAOUI S., AZIMI S., BERNIER J., ROCHER V., MOTTELET S., PAUSS A., RIBEIRO T. (2016) : « Le pouvoir méthanogène des boues urbaines - Cartographie des boues de STEP et réduction du temps de mesure par un couplage « expérimentation en réacteur/modélisation ». *Eau, Industrie et Nuisances* ; 397.

## Bibliographie

- GREENBIRDIE, LE CRIGEN (2015) *Evaluation du potentiel de production de biométhane à partir des boues issues des stations d'épuration des eaux usées urbaines*. Rapport final ADEME. 93p. Disponible en ligne : <https://www.ademe.fr/evaluation-potentiel-production-biomethane-a-partir-boues-issues-stations-depuration-eaux-usees-urbaines>
- AZIMI S., ROCHER V. (2016) : « Energy consumption reduction in a wastewater treatment plant. » *Water Practice and Technology* ; 12(1) : 104-116.
- BASSARD D., ANDRÉ L., DOTAL N., VALENTIN L., NONUS M., PAUSS A., RIBEIRO T. (2014) : « A simple and rapid one-time method to evaluate the non-acidic gas content from bioprocesses. » *Bioprocess and Biosystems Engineering* ; 37(2) : 337-341.
- CHOPY X. et BACHMANN N (2012) : *La digestion des boues d'épuration : situation et potentiel d'optimisation*. Rapport final de l'Office fédéral de l'énergie (OFEN). 92 p. Disponible en ligne : <http://www.bfe.admin.ch/dokumentation/energieforschung/index.html?lang=fr&publication=11147>.
- CHUDOBA P., SARDET C., PALKO G., GUIBELIN E. (2011) : « Main factors influencing anaerobic digestion of sludge and energy efficiency at several large WWTP in central Europe. » *Journal of Residuals Science & Technology* ; 8(2) : 89-96.
- DEGUEURCE A., CAPDEVILLE J., PERROT C., BIOTEAU T., MARTINEZ J., PEU, P. (2016) : « Cattle manure as a resource for biogas conversion in France? » *Sciences Eaux and Territoires : la Revue d'Irstea*. Hors série 24 : 9 p.
- FRIEDRICH, E., PILLAY, S., BUCKLEY, C. (2009) : « Environmental life cycle assessments for water treatment processes a South African case study of an urban water cycle. » *Water SA* ; 35 : 73-84.
- JIMENEZ J., LATRILLE E., HARMAND J., ROBLES A., FERRER J., GAIDA D., WOLF C., MAIRET F., BERNARD O., ALCARAZ-GONZALEZ V., MENDEZ-ACOSTA H., ZITOMER D., TOTZKE D., SPANJERS H., JACOBI F., GUWY A., DINSDALE R., PREMIER G., MAZHEGRANE S., RUIZ-FILIPPI G., SECO A., RIBEIRO T., PAUSS A., STEYER J.-P. (2015) : « Instrumentation and control of anaerobic digestion processes: a review and some research challenges. » *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology* ; 14(4) : 615-648.
- MÜLLER E.A., SCHMID F., KOBEL B. (2006) : « Activity "Energy in WWTPs" - 10 years of experience in Switzerland (Langue Allemande). » *Korrespondenz Abwasser* ; 53 : 793-797.
- PEREZ FABIEL S. (2009) : *Etude de la biodégradabilité de boues secondaires soumises à un traitement thermique à 65°C et du couplage digestion anaérobie et digestion thermophile aérobie pour la réduction de boues* [thèse]. Toulouse : INSA. 213p.
- SERVAIS C. (2008) : *La méthanisation*. Edition Tec Doc Lavoisier, R. Moletta coordinateur (ISBN 978-2-7430-1036-2).



## Espèces intermédiaires du cycle de l'azote en station d'épuration







# Évaluation simultanée des concentrations résiduelles de nitrites et nitrates en sortie de dénitrification biologique

## *Simultaneous evaluation of residual content of nitrate and nitrite out from a biological denitrification process*

Stéphane Mottelet<sup>[1]\*</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[2]</sup>, Ahlem Filali<sup>[3]</sup>, Vincent Rocher<sup>[2]</sup>, Sam Azimi<sup>[2]</sup>, André Paus<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Sorbonne Universités, Université de Technologie de Compiègne (UTC), EA 4297 TIMR, Compiègne

<sup>[2]</sup> Siaap, Direction Développement Prospective, Colombes

<sup>[3]</sup> Irstea, UR HBAN, Antony

\* Auteur de correspondance : [stephane.mottelet@utc.fr](mailto:stephane.mottelet@utc.fr)



*Cette étude vise à évaluer la capacité d'une sonde à rayons ultraviolets (UV) à estimer simultanément les teneurs en nitrate et nitrite en sortie d'une unité de biofiltration en post-dénitrification. L'estimation de ces deux espèces est compliquée du fait de la très grande similitude de leur spectre UV et de la présence d'autres molécules absorbant dans l'UV. Celle-ci est pourtant indispensable au développement d'algorithmes de contrôle, seuls à même de garantir un résiduel en nitrite et nitrate conforme aux exigences de la Directive Cadre sur L'Eau. La sonde WTW Nitra Vis 705 IQ NI a été calibrée puis validée en laboratoire sur un effluent réel dans une gamme de 0 à 3,5 mg-N/L en nitrite. Elle a ensuite été installée en sortie d'une unité de biofiltration de la station de Seine Centre afin d'évaluer sa capacité à prédire les dynamiques de concentrations en nitrites et nitrates. Le suivi a montré que, moyennant une calibration multipoint pour le nitrite et multilinéaire pour le nitrate, il est possible de mesurer simultanément et dynamiquement le nitrite dans la gamme 0-5 mg-N/L avec une précision de 0,2 mg-N/L et le nitrate dans la gamme 0-10 mg-N/L avec une précision de 0,3 à 0,4 mg-N/L.*

## Identification spectrale - Ultraviolet - Sonde - Mesure en ligne - Nitrate - Nitrite

### Introduction

La directive cadre sur l'eau (décembre 2000) a imposé aux États membres l'Union Européenne de restaurer le bon état écologique (physico-chimique et biologique) et chimique (substances dangereuses) des masses d'eau superficielle dans un délai de 15 ans. Cette directive implique le suivi et le contrôle de molécules diverses dont les ions nitrate et nitrite. Le bon état physicochimique a été défini et des concentrations à ne pas dépasser dans ces eaux ont été fixées pour les paramètres physiques (oxygène, température) et les nutriments (carbone, azote, phosphore). Dans le cas des composés azotés, les seuils ont été fixés à 0,5 mg/L, 0,3 mg/L et 50 mg/L respectivement pour l'azote ammoniacal ( $\text{NH}_4^+$ ), l'azote nitreux ( $\text{NO}_2^-$ ) et l'azote nitrique ( $\text{NO}_3^-$ ), soit encore 0,39 mg-N/L, 0,09 mg-N/L et 11,3 mg-N/L respectivement.

Cet accroissement des exigences réglementaires a conduit les collectivités en charge du traitement des eaux résiduaires urbaines à moderniser leurs usines afin de disposer de filières de traitement capables d'éliminer de manière efficace le carbone, l'azote et le phosphore des eaux usées. En particulier, des efforts importants ont été consentis afin d'intégrer dans les filières de traitement des eaux des unités de traitement biologique de l'azote permettant l'oxydation de l'azote ammoniacal en azote nitrique (étape de nitrification) puis sa réduction en azote gazeux (étape de dénitrification). D'autres procédés émergents basés sur l'oxydation en conditions

anaérobies de l'azote ammoniacal (anammox) permettent également de traiter efficacement l'azote à moindre coût énergétique comparativement aux filières classiques.

Le pilotage et la surveillance du fonctionnement de ces usines modernes, supposent que l'on soit capable de suivre l'évolution de la pollution carbonée, phosphorée et azotée tout le long de la filière de traitement. De même, le pilotage de plus en plus fin de ces procédés nécessite des mesures en temps réel ou, à défaut, très fréquentes de ces espèces (cf. ROCHER *et al.*, chapitre 4.2 dans cet ouvrage).

Dans le cas des unités de dénitrification des eaux usées par biofiltre, des sondes permettant le suivi en continu des concentrations en azote oxydé (NOx) sont placées en amont et aval des systèmes de traitement. Ces sondes permettent, d'une part, de piloter les injections des réactifs qui doivent être adaptées aux flux de polluants azotés acceptés sur le système et, d'autre part, de vérifier que la qualité des eaux traitées est conforme aux exigences réglementaires, mais elles ne mesurent que la somme des ions nitrate et nitrite alors leur discrimination est nécessaire au vu de l'évolution de la réglementation.

Différentes méthodes permettent le dosage simultané des ions nitrate et nitrite : la chromatographie ionique (KITAMAKI *et al.*, 2003 ; NIEDZIELSKI *et al.*, 2006), la chromatographie liquide haute performance (ZUO *et al.*, 2006), l'analyse d'injection séquentielle (LEGNEROVA *et al.*, 2002), l'analyse par injection en flux continu (YUE *et al.*, 2004), les électrodes sélectives d'ions (CAPELO *et al.*, 2007), la fluorométrie (BISWAS *et al.*, 2004), la spectrophotométrie (ZATAR *et al.*, 1999). Cependant, si ces méthodes permettent de mesurer simultanément et précisément ces deux espèces, elles ne permettent pas de suivre en continu l'évolution de leurs concentrations dans un effluent (KOROSTYNSKA *et al.*, 2012 ; WANG *et al.*, 2017).

La mesure par spectroscopie Ultra-Violet (UV) est en revanche compatible avec les exigences de mesure rapide et de suivi en continu des concentrations des nitrates et nitrites. Elle est basée sur la loi de Beer-Lambert qui relie linéairement la concentration de composés chromophores à l'absorbance. Cependant, si le nitrate peut être facilement estimé par UV, cet ion présentant un pic net avec un maximum à 205 nm, la présence d'ions nitrite (pic important avec un maximum à 211 nm) perturbe cette estimation et rend la discrimination des deux ions délicate. Les techniques d'identification spectrale sont alors utilisées pour discriminer les spectres.

Le principe est le suivant : le spectre brut de la solution est considéré comme la résultante de la somme des spectres élémentaires des molécules absorbant ou diffractant la lumière d'analyse. L'identification spectrale réside ensuite dans un calcul de régression multilinéaire [PCR (*Principal Component Regression*) et PLS (*Partial Least Squares*)] intégrant un nombre de spectres de référence, correspondant soit aux espèces élémentaires dont le spectre est connu, soit à des spectres bruts dont les teneurs en molécules visées ont été déterminées analytiquement par d'autres méthodes (THOMAS *et al.*, 1993 ; DROLIC et VRTOVŠEK, 2010 ; PONS *et al.*, 2017).

L'efficacité du modèle de régression dépend fortement des données utilisées par le fabricant pour réaliser la calibration-usine de ce modèle. Ces données se présentent sous la forme d'un grand nombre de spectres d'absorption associés aux concentrations des espèces mesurées avec une méthode de référence en laboratoire. Elles n'ont pas vocation à être modifiées par l'utilisateur final, car de leur richesse dépend la capacité à discriminer les différentes espèces, par exemple ici les nitrates et les nitrites. Cependant, l'effet matrice dû à la présence de matières organiques ou d'autres espèces absorbant dans l'UV fait que ce type de sonde ne peut pas être utilisé directement, mais nécessite une calibration sur site. Un certain nombre de sondes commerciales revendent la mesure simultanée de nitrites et nitrates dans les eaux de rivière et les effluents de stations de traitement : TriOS OPUS (TriOS Mess- und Datentechnik GmbH, Rastede, Germany), spectro::lyzer et nitro::lyzer (s::can Messtechnik GmbH, Vienna, Austria), Nitra Vis 705 IQ NI (Xylem Analytics Germany Sales GmbH & Co. KG, WTW, Weilheim, Germany). Nous avons utilisé dans ce travail la sonde WTW avec pour objectif ultime de l'utiliser pour contrôler en temps réel le procédé de dénitrification biologique en biofiltre. Sa réponse doit donc être exacte, non affectée par les autres molécules absorbantes dans l'UV, discriminante entre le nitrate et le nitrite en conditions réelles, mais également rapide pour le contrôle.

# 1. Matériels et méthodes

## 1.1. MÉTHODES DE CALIBRATION DES SONDÉS

### 1.1.1 Calibration linéaire à deux points

Pour certaines sondes commerciales, et ici pour la sonde la WTW, les coefficients de cette transformation sont calculés en mettant la sonde en présence de deux concentrations de l'espèce à mesurer, situées aux limites de la gamme de mesure désirée. Par exemple si l'on note  $[\text{NO}_2^-]_{\text{max}}$  et  $[\text{NO}_2^-]_{\text{min}}$  les concentrations extrêmes mesurées en laboratoire, on a

$$[\text{NO}_2^-]_{\text{mes}} = f([\text{NO}_2^-]_{\#}) = [\text{NO}_2^-]_{\text{min}} + \frac{[\text{NO}_2^-]_{\text{max}} - [\text{NO}_2^-]_{\text{min}}}{[\text{NO}_2^-]_{\#,\text{max}} - [\text{NO}_2^-]_{\#,\text{min}}} \left( [\text{NO}_2^-]_{\#} - [\text{NO}_2^-]_{\#,\text{min}} \right)$$

où les indices mes et # désignent respectivement la concentration affichée par la sonde et la mesure expérimentale avec des méthodes de référence. On peut vérifier que l'on a  $[\text{NO}_2^-]_{\text{min}} = f([\text{NO}_2^-]_{\#,\text{min}})$  et  $[\text{NO}_2^-]_{\text{max}} = f([\text{NO}_2^-]_{\#,\text{max}})$ . Dès l'instant où indépendamment de l'effet matrice potentiellement affectant le signal UV la sonde a un comportement linéaire, cette transformation permet de la calibrer dans toute la gamme et même au-delà. En pratique, il suffit de rentrer dans le logiciel de la sonde les valeurs extrêmes (min et max) mesurées au laboratoire, celui-ci gérant tout seul la transformation linéaire avec les valeurs brutes de la sonde.

### 1.1.2 Calibration linéaire multipoints

Si l'on dispose de plus de deux mesures, on peut augmenter la robustesse de la calibration précédente, tout en restant dans un cadre linéaire. Par exemple à l'aide de  $N$  paires  $([\text{NO}_2^-]_i, [\text{NO}_2^-]_{i,\#})_{i=1,N}$ , on peut effectuer une régression linéaire classique et obtenir un modèle linéaire qui pourra être rentré dans le logiciel de la sonde en associant aux valeurs brutes  $[\text{NO}_2^-]_{\text{min},\#}$ ,  $[\text{NO}_2^-]_{\text{max},\#}$  les valeurs  $g([\text{NO}_2^-]_{\text{min},\#})$ ,  $g([\text{NO}_2^-]_{\text{max},\#})$ .

$$[\text{NO}_2^-]_{\text{mes}} = g([\text{NO}_2^-]_{\#}) = \beta_0 + \beta_1 [\text{NO}_2^-]_{\#}$$

Un autre intérêt de la régression linéaire basée sur de nombreuses mesures obtenues avec une méthode de référence est aussi de pouvoir calculer des intervalles de prédiction sur les valeurs qui sont rendues par sonde, ce que ne permet pas la calibration à deux points. Ceci sera illustré ci-dessous.

### 1.1.3 Calibration multilinéaire

La discrimination des nitrates et des nitrites est particulièrement difficile du fait de l'étalement des spectres et de la proximité des longueurs d'onde des maxima d'absorption de ces deux espèces. C'est pourquoi il n'est pas possible d'obtenir une réponse parfaite dans les gammes de mesure annoncées par les constructeurs (ici WTW) par exemple 0-25 mg-N/L pour  $\text{NO}_2^-$  et 0-50 mg-N/L pour  $\text{NO}_3^-$ . En particulier, nous avons noté une mauvaise discrimination pour une concentration faible ou nulle de  $\text{NO}_3^-$ ; la sonde donnant dans ce cas une valeur de  $[\text{NO}_3^-]_{\#}$  très proche de  $[\text{NO}_2^-]_{\#}$ . D'où l'idée de faire une calibration multivariable, en utilisant simultanément les deux valeurs brutes  $[\text{NO}_2^-]_{\#}$  et  $[\text{NO}_3^-]_{\#}$  pour prédire chacune des valeurs mesurées  $[\text{NO}_2^-]_{\text{mes}}$  ou  $[\text{NO}_3^-]_{\text{mes}}$  avec un modèle multilinéaire intégrant les deux paramètres simultanément.

$$[\text{NO}_3^-]_{\text{mes}} = g([\text{NO}_3^-]_{\#}) = \beta_0 + \beta_1 [\text{NO}_2^-]_{\#} + \beta_2 [\text{NO}_3^-]_{\#}$$

On voit donc l'intérêt d'avoir accès en temps réel aux valeurs brutes, car ce modèle n'est bien évidemment pas implémenté dans les logiciels des sondes commerciales.

## 1.2 SONDE WTW NITRA VIS 705 IQ NI

Les essais ont été menés avec une sonde Nitra Vis 705 IQ NI aimablement prêtée par la société Xylem/WTW (Figure 1). Cette sonde fait partie de la dernière génération de sondes UV, analysant 256 incréments de 0,74 nm dans la gamme de 200 à 390 nm. Elle communique en temps réel grâce à la connexion ethernet du boîtier DIQ/S 284 (protocole réseau http), ouvrant donc la possibilité d'utiliser le signal pour un contrôle de procédé en temps réel. Cela est d'autant plus vrai que les valeurs brutes sont accessibles en permanence, celles-ci étant affichées et surtout enregistrées au même titre que les valeurs calibrées, ceci permettant d'envisager d'autres types de calibration que la méthode standard de calibration à deux points.



Figure 1 : Sonde WTW Nitra Vis 705 IQ NI et son interface DIQ/S 284

## 1.3 CALIBRATION ET VALIDATION DE LA SONDE EN LABORATOIRE

Les essais de calibration et de validation ont été menés sur le site de Seine Centre du Siaap avec des eaux prélevées le jour même en sortie d'un biofiltre dénitrifiant à l'aide d'un dispositif illustré sur la Figure 2. Celui-ci comprend un volume tampon sous agitation magnétique d'environ 3 L, une pompe péristaltique (Masterflex 7796320) et une chambre en PVC contenant la sonde. Le volume total du dispositif est d'environ 5 L. Parallèlement à la mesure par sonde, des prélèvements ont régulièrement été effectués dans le volume tampon et leur teneur en nitrate et nitrite a été analysée à l'aide de kits « Merck Spectroquant ».

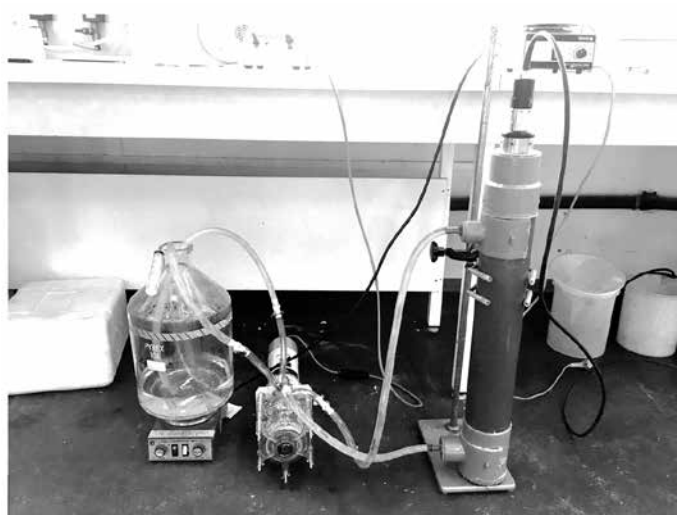


Figure 2 : Dispositif expérimental de calibration en laboratoire

## 2. Résultats et discussion

### 2.1 CALIBRATION ET VALIDATION DE LA SONDE EN LABORATOIRE

Sur cette eau prélevée sur le site du Siaap, la valeur brute donnée par la sonde étant de  $[\text{NO}_2^-]_{\#,\text{min}} = 0,15 \text{ mg-N/L}$ , cette dernière a été associée à la valeur  $[\text{NO}_2^-]_{\text{min}} = 0,074 \text{ mg-N/L}$  dans le logiciel. La teneur en nitrate était inférieure à  $1 \text{ mg-N/L}$ .

Un ajout dosé a permis d'obtenir une valeur kit de  $[\text{NO}_2^-]_{\text{max}} = 2,61 \text{ mg-N/L}$  associée à la valeur brute  $[\text{NO}_2^-]_{\#,\text{max}} = 2,65 \text{ mg-N/L}$ . On notera que les valeurs brutes sont par défaut très correctes dans cette gamme.

Afin de vérifier la linéarité de la sonde entre ces valeurs extrêmes de calibration, nous avons effectué des ajouts dosés sur l'eau initiale pour augmenter  $[\text{NO}_2^-]$  par pas approximatifs de  $0,1 \text{ mg-N/L}$  jusqu'à  $1 \text{ mg-N/L}$  puis par pas de  $0,5 \text{ mg-N/L}$  au-delà. Les résultats sont donnés dans la Figure 3. On constate que la sonde mesure très bien les nitrites dans la gamme testée.

Par contre, la valeur de concentration de nitrate donnée par la sonde n'est pas satisfaisante, car celle-ci n'a cessé d'augmenter de manière complètement corrélée avec les ajouts successifs de nitrite. Par principe, dans le logiciel de la sonde nous avons associé la dernière valeur kit de  $[\text{NO}_3^-] \approx 3 \text{ mg-N/L}$  à la valeur brute affichée soit  $[\text{NO}_3^-]_{\#,\text{max}} = 10,06 \text{ mg-N/L}$ , tout en sachant par avance que sur le terrain la mesure de nitrate risquerait d'être relativement approximative.

Mais on peut constater qu'une teneur élevée en nitrate ( $3 \text{ mg-N/L}$ ) ne perturbe pas la lecture des nitrites par la sonde, la valeur de concentration en nitrite mesurée par le kit et donnée par la sonde étant respectivement dans ces conditions de  $1,99$  et  $1,98 \text{ mg-N/L}$ .

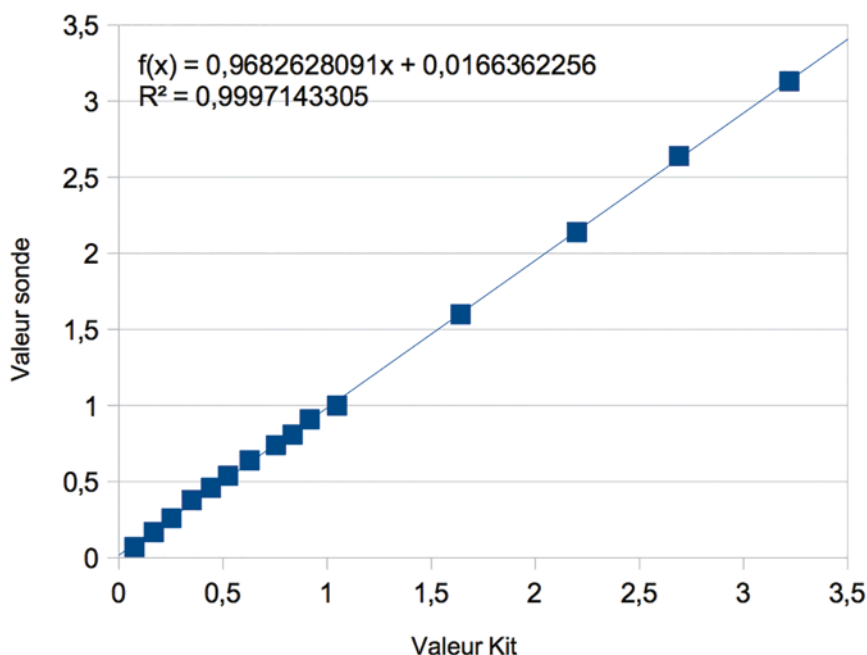


Figure 3 : Diagramme de calibration mesure  $[\text{NO}_2^-]$  (concentrations en mg-N/L)

### 2.2 ESSAIS SUR SITE INDUSTRIEL EN SORTIE DE DÉNITRIFICATION - BILAN

De manière à vérifier la potentialité de mesure en temps réel sur un site industriel, la sonde a été installée durant 12 jours en sortie d'un biofiltre dénitrifiant de la station de Seine Centre (précisément dans le canal de surverse du biofiltre 3400). Cette opération a été réalisée en parallèle des mesures de protoxyde d'azote réalisées par l'équipe d'Irstea. La sonde a été nettoyée quotidiennement avec de l'eau distillée ; il s'est avéré que ce nettoyage quotidien n'était pas nécessaire, peu de dépôt s'étant formé à sa surface durant les essais, une fréquence de nettoyage plus petite pourrait suffire.



Durant cette période 72 échantillons d'eau ont été analysés par des kits et confrontés aux mesures continues de la sonde, en utilisant la calibration issue de l'étape en laboratoire.

Les courbes de validation de la Figure 4 montrent que la sonde donne de très bons résultats (malgré deux valeurs aberrantes pour le nitrite et ce, malgré la présence de nitrate à des niveaux très variables).

Par contre pour le nitrate les résultats sont moins bons, spécifiquement pour les basses teneurs en nitrate ; la sonde montre une évidente non-linéarité et une mauvaise discrimination nitrate/nitrite pour les faibles concentrations en nitrate. Cela confirme les résultats obtenus en laboratoire sur une base de calibration à deux points pour le nitrite. On pourrait imaginer appliquer une correction non-linéaire mais il apparaît plus opportun de modifier la calibration pour le nitrite et le nitrate.

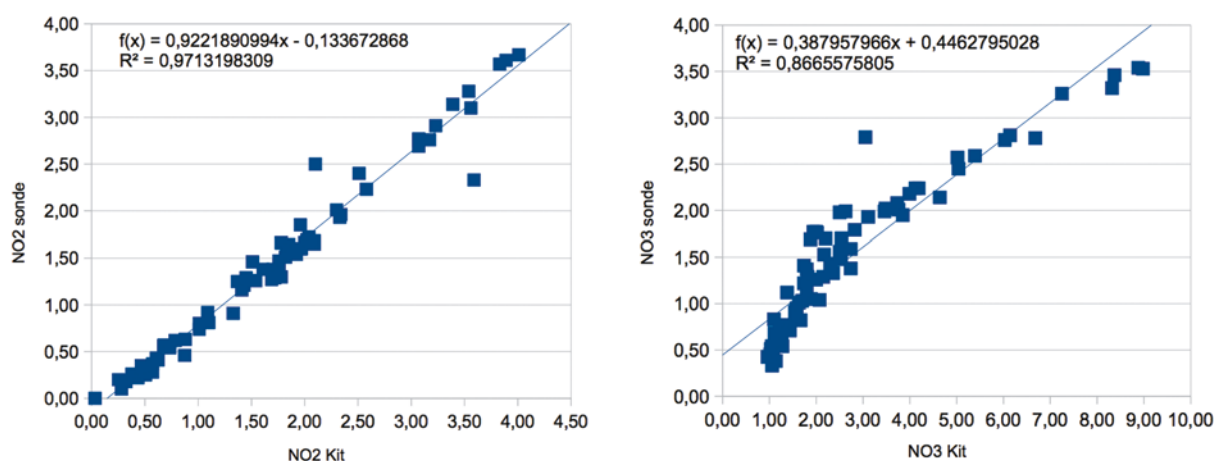


Figure 4. Courbes de validation sur site  $[\text{NO}_2^-]$  (à gauche) et  $[\text{NO}_3^-]$  (à droite) (concentrations en mg-N/L)

Une calibration multipoints a été effectuée sur ordinateur en sélectionnant pour chaque espèce les kits correspondant aux valeurs minimale, moyenne et maximale des concentrations mesurées durant la campagne ainsi que les valeurs brutes données par la sonde. Pour le nitrite il s'agit d'une régression linéaire simple de  $[\text{NO}_2^-]_{\text{mes}}$  en fonction de  $[\text{NO}_2^-]_{\#}$ , donne la formule suivante (effectué avec Matlab).

$$[\text{NO}_2^-]_{\text{mes}} = 0,0779 + 1,059 [\text{NO}_2^-]_{\#}$$

Pour le nitrate, les mêmes 6 données sont utilisées pour réaliser une régression multilinéaire de  $[\text{NO}_3^-]$  en fonction de  $[\text{NO}_2^-]_{\#}$  et  $[\text{NO}_3^-]_{\#}$ , qui donne après calcul (effectué avec Matlab).

$$[\text{NO}_3^-]_{\text{mes}} = 0,0781 - 0,7235 [\text{NO}_2^-]_{\#} + 0,8584 [\text{NO}_3^-]_{\#}$$

Afin de valider les résultats, les 66 mesures restantes ont ensuite été confrontées avec les valeurs calculées par ces deux modèles à partir des valeurs brutes correspondantes.

Le diagramme de validation (points rouges) sur la gauche de la Figure 5 montre une nette amélioration pour les nitrites par rapport à la calibration à deux points (pente et ordonnée à l'origine). Grâce à cette approche multipoints on a pu calculer des intervalles de prédiction à 95 %, qui donnent une incertitude pratiquement identique de 0,2 mg-N/L dans la gamme de mesure 0-4 mg-N/L.

Le diagramme de validation (points rouges) sur la droite de la Figure 5 montre une amélioration considérable pour les nitrates, car avec le modèle ci-dessus la réponse de la sonde est maintenant linéaire dans toute la gamme. Il est à noter que dans la formule ci-dessus le coefficient devant  $[\text{NO}_2^-]_{\#}$  est négatif et de même magnitude que le coefficient devant  $[\text{NO}_3^-]_{\#}$  ce qui montre que cette valeur brute est une combinaison linéaire nitrate + nitrite. Cela étant, les intervalles de prédiction à 95 % donnent une incertitude de l'ordre de 0,5 mg-N/L dans la gamme de mesure 0-9 mg-N/L de nitrate ce qui est satisfaisant.

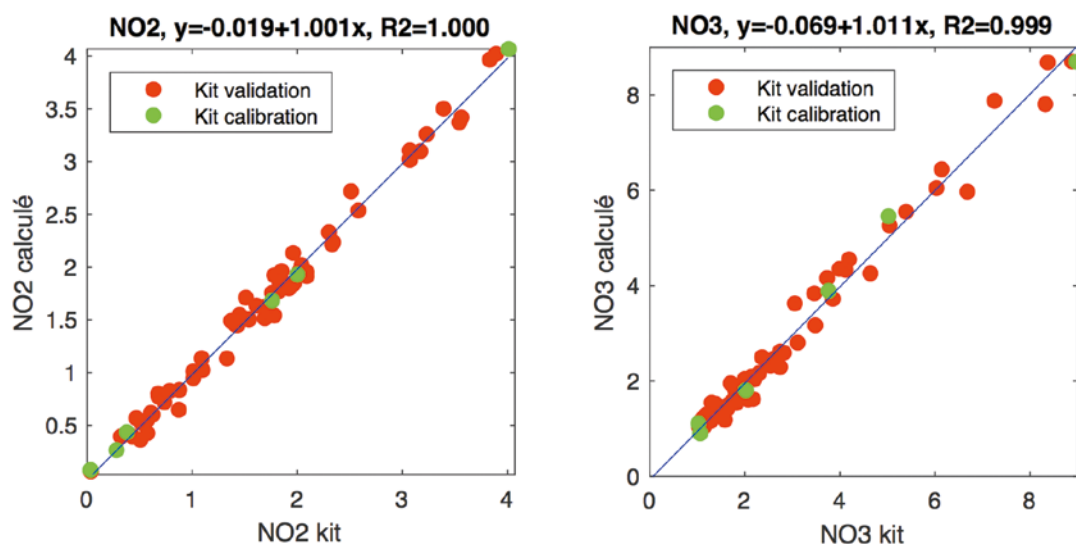


Figure 5. Courbes de validation  $[\text{NO}_2^-]$  et  $[\text{NO}_3^-]$  après calibration multipoints et multilinéaire (concentrations en mg-N/L)

## 2.3 ESSAIS SUR SITE INDUSTRIEL EN SORTIE DE DÉNITRIFICATION - DYNAMIQUE

La Figure 6 montre les concentrations de nitrite et nitrate calculées pendant toute la campagne ainsi que les valeurs kit utilisées pour la calibration des modèles (en vert) et pour leur validation (en rouge). On constate les variations quotidiennes attendues et, compte tenu des réponses très rapides de la sonde observées durant les essais en laboratoire, cela gage de la pertinence de son usage pour des besoins de contrôle du procédé.

Durant la journée du 21 juin, trente échantillons ont été prélevés et analysés par kit de manière à vérifier la dynamique et la qualité des résultats donnés par la sonde et nos méthodes de calibration en fonction du temps. Sur la Figure 7 on constate une très bonne restitution des valeurs de référence dans les marges d'erreur prévues.

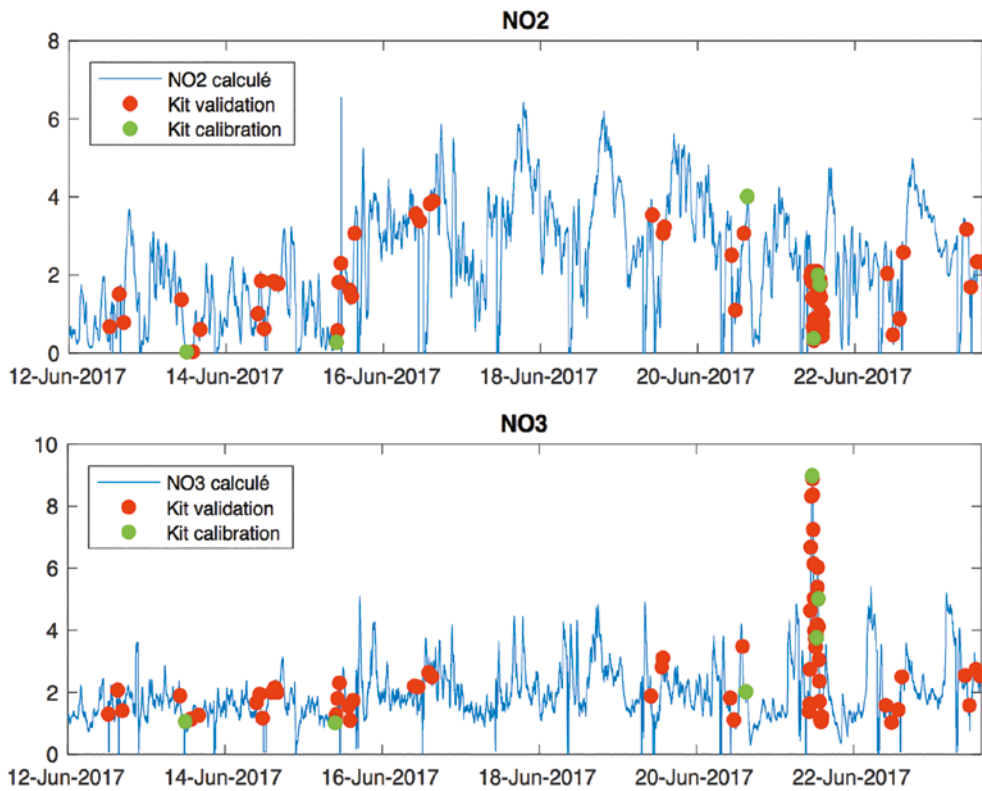


Figure 6 : Concentrations calculées sur l'ensemble de la campagne (concentrations en mg-N/L)

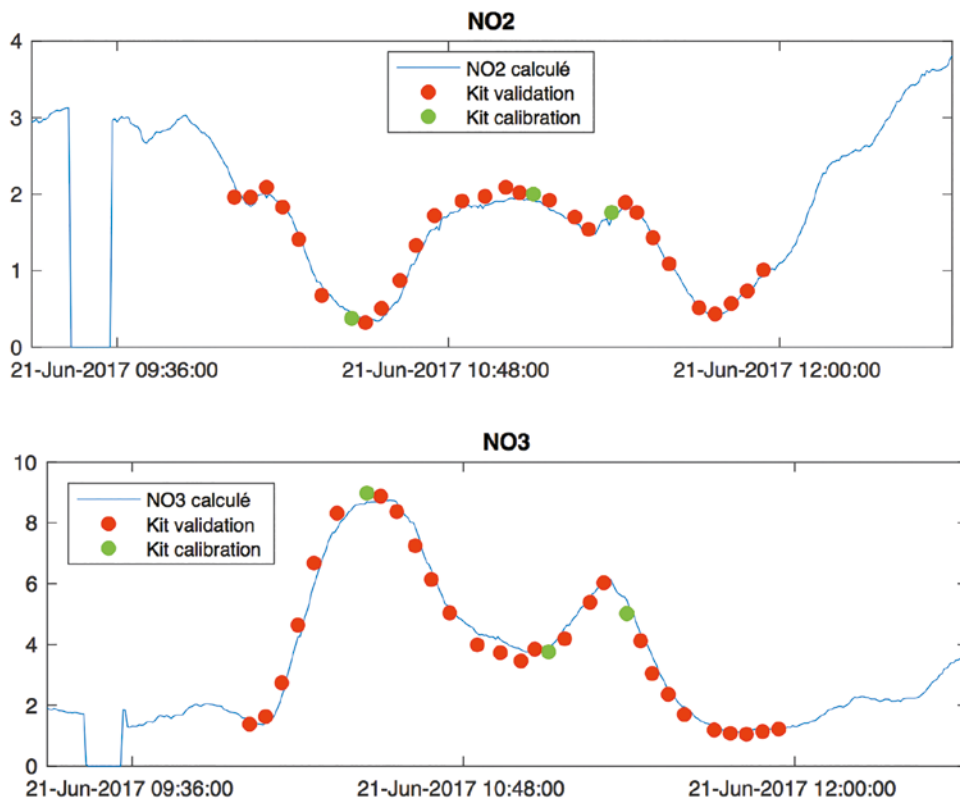


Figure 7 : Concentrations calculées sur l'ensemble de la campagne (concentrations en mg-N/L)

## Conclusion

Les travaux réalisés dans le cadre de cette étude indiquent qu'avec une méthode de calibration différenciée pour les nitrites et les nitrates, il est possible de mesurer simultanément mais indépendamment le nitrite dans la gamme 0-5 mg-N/L avec une précision de 0,2 mg-N/L et le nitrate dans la gamme 0-10 mg-N/L avec une précision de 0,3 à 0,4 mg-N/L, gammes qui correspondent aux caractéristiques des effluents en sortie des biofiltres dénitrifiants de la station de Seine Centre durant la période de l'étude. La sonde WTW et les modèles de calibration pourraient permettre d'alimenter un système de régulation / contrôle du procédé de dénitrification en temps réel. En pratique, pour un usage à long terme, il paraît judicieux d'entretenir la calibration de haut niveau grâce à des mesures de référence faites dans l'idéal une fois par jour voire avec une fréquence supérieure.

## Remerciements

Cette étude a été financée par le programme de recherche Mocopée. Les auteurs tiennent à remercier chaleureusement M. Olivier Floch de Xylem/WTW pour le prêt de la sonde et le soutien au développement de ce travail. Ils remercient également S. Pageot, D. Delage et J. Fiat (Irstea) pour leur contribution à l'acquisition de données contradictoires à pleine échelle.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- › ROCHER V., JOIN C., MOTTELET S., AZIMI S., BERNIER J., GUERIN S., LESSARD P., PAUSS A., FLIESS M. (2018) : « La production de nitrites lors de la dénitrification des eaux usées par biofiltration - Stratégie de contrôle et de réduction des concentrations résiduelles ». *Revue des Sciences de l'Eau* ; 31(1) : 61-73.
- › ROCHER V., LAVERMAN A.M., GASPERI J., AZIMI S., GUERIN S., MOTTELET S., VILLIERES T., PAUSS A. (2015). « Nitrite accumulation during denitrification depends on the carbon quality and quantity in wastewater treatment with biofilters ». *Environmental Science and Pollution Research* ; 22(13) : 10179-88.
- › PHAM H. N., MOTTELET S., SCHOEFS O., PAUSS A., ROCHER V., PAFFONI C., MEUNIER F., RECHDAOUI S., AZIMI S. (2010) : « Estimation simultanée et en ligne de nitrates et nitrites par identification spectrale UV en traitement des eaux usées ». *L'Eau, l'Industrie, les Nuisances* ; 335 : 61-9.
- › BOUVIER J.-C., BEKRI M., MAZOUNI D., SCHOEFS O., HARMAND J., RIBEIRO T., PHAM N., PAUSS A. (2008) : « On-line monitoring of nitrate, nitrite by UV spectrophotometry in a SBR process used for the treatment of industrial wastewaters. » *International Journal of Chemical Reactor Engineering* ; 6(A106) : 20 p.

## Bibliographie

- BISWAS S., CHOWDHURY B., RAY B.C. (2004) : « A novel spectrofluorimetric method for the ultra trace analysis of nitrite and nitrate in aqueous medium and its application to air, water, soil and forensic samples. » *Talanta* ; 64(2) : 308-12.
- CAPELO S., MIRA F., DE BETTENCOURT A.M. (2007) : « In situ continuous monitoring of chloride, nitrate and ammonium in a temporary stream: comparison with standard methods. » *Talanta* ; 71 : 1166-71.
- DROLC A., JVRTOVŠEK J (2010) : « Nitrate and nitrite nitrogen determination in waste water using on-line UV spectrometric method. » *Bioresource Technology* ; 101 :4228-33.
- KITAMAKI Y., JIN J-Y., TAKEUCHI T. (2003) : « Simultaneous determination of inorganic nitrogen species by microcolumn ion chromatography. » *Journal of Chromatography A* ; 003(1-2) : 197-202.
- KOROSTYNSKA O., MASON A., AL-SHAMMA'A A. (2012) : « Monitoring of nitrates and phosphates in wastewater: current technologies and further challenges. » *International Journal on Smart Sensing and Intelligent Systems* ; 5(1) : 149-76.
- LEGNEROVA Z., SOLICH P., SKLENAROVA H., SATINSKY D., KARLICEK R. (2002) : « Automated simultaneous monitoring of nitrate and nitrite in surface water by sequential injection analysis. » *Water Research* ; 36(11) : 2777-83.
- NIEDZIELSKI P., KURZYCA I., SIEPAK J. (2006) : « A new tool for inorganic speciation study: Simultaneous determination of ammonium ion, nitrite and nitrate by ion chromatography with post-column ammonium derivatization by Nessler reagent and diode-array detection in rain water samples. » *Analytical Chimica Acta* ; 577(2) : 220-4.
- PONS M.-N., ASSAAD A., OUCACHA C., PONTVIANNE S., POLLIER B., WAGNER P., LEGOUT A., GUÉROLD F. (2017) : « Nitrates monitoring by UV-vis spectral analysis. » *Ecohydrology & Hydrobiology* ; 17 : 46-52.
- THOMAS O., THERAULAZ F., DOMEIZEL M., MASSIANI C. (1993) : « UV spectral deconvolution: a valuable tool for waste water quality determination. » *Environmental Technology* ; 14 : 1187-92.
- WANG Q.-H., YUB L.-J., LIU Y., LIN L., LU R., ZHU J., HE L., LU Z.-L. (2017) « Methods for the detection and determination of nitrite and nitrate : A review. » *Talanta* ; 165 : 709-20.
- YUE X.-F., ZHI-QI Z., HONG-TAO Y. (2004) : « Flow injection catalytic spectrophotometric simultaneous determination of nitrite and nitrate. » *Talanta* ; 62(1) : 97-101.
- ZATAR N.A., ABU-EID M.A., EID A.F. (1999) : « Spectrophotometric determination of nitrite and nitrate using phosphomolybdenum blue complex. » *Talanta* ; 50(4) : 819-26.
- ZUO Y., WANG C., VAN T. (2006) : « Simultaneous determination of nitrate and nitrite in dew, rain, snow and lake water samples by ion-pair high-performance liquid chromatography. » *Talanta* ; 70(2) : 281-5 .

# La production de nitrites lors de la dénitrification des eaux usées par biofiltration - Stratégie de contrôle des concentrations résiduelles

## *Nitrite production during wastewater denitrification by biofiltration - a control strategy towards the decrease of residual concentrations*

Vincent Rocher<sup>[1]\*</sup>, Cédric Join<sup>[2,6]</sup>, Stéphane Mottelet<sup>[3]</sup>, Jean Bernier<sup>[1]</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[1]</sup>, Sam Azimi<sup>[1]</sup>, Paul Lessard<sup>[4]</sup>, André Pauss<sup>[3]</sup>, Michel Fliess<sup>[5,6]</sup>

<sup>[1]</sup> Siaap, Direction Innovation Environnement, Colombes

<sup>[2]</sup> CRAN (CNRS, UMR 7039), Université de Lorraine, Vandœuvre-lès-Nancy

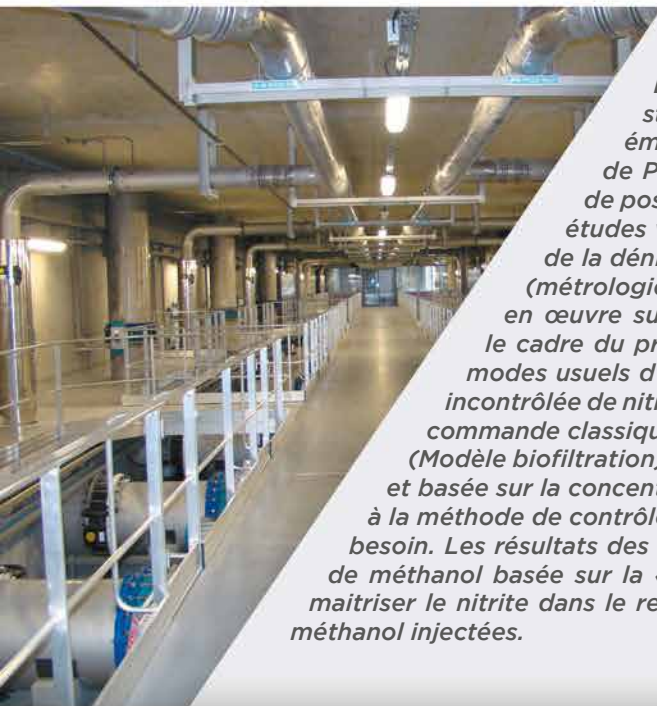
<sup>[3]</sup> TIMR (EA 4297), Sorbonne Universités & Université de Technologie de Compiègne

<sup>[4]</sup> Département de génie civil et de génie des eaux, Université Laval, Québec

<sup>[5]</sup> LIX (CNRS, UMR 7161), Ecole polytechnique, Palaiseau

<sup>[6]</sup> AL.I.E.N., Nancy

\* Auteur de correspondance : [vincent.rocher@siaap.fr](mailto:vincent.rocher@siaap.fr)



*Le développement des unités de post-dénitrification dans les stations d'épuration de l'agglomération parisienne a fait ré-émerger la problématique du nitrite dans les eaux de Seine en aval de Paris. Le contrôle de l'apparition des nitrites au cours de l'étape de post-dénitrification est donc devenu un enjeu technique majeur. Des études visant à appréhender les mécanismes d'apparition du nitrite lors de la dénitrification des eaux usées et à étudier des évolutions techniques (métrologie et boucles de contrôle-commande des procédés) à mettre en œuvre sur les usines pour limiter sa production ont été engagées dans le cadre du programme Mocopée. De précédents travaux ont montré que les modes usuels d'injection du méthanol conduisent à une production erratique et incontrôlée de nitrites. La possibilité d'ajouter une « commande sans modèle » à la commande classique a donc été testée à l'aide du modèle mathématique SimBio (Modèle biofiltration). La commande sans modèle placée « en fin de traitement » et basée sur la concentration en nitrites mesurée en sortie de procédé, se greffe à la méthode de contrôle classique en y apportant des corrections seulement au besoin. Les résultats des simulations montrent qu'une régulation des injections de méthanol basée sur la « commande sans modèle » permet de stabiliser et maîtriser le nitrite dans le rejet, sans induire d'augmentation des quantités de méthanol injectées.*

## Commande sans modèle - Dénitrification - Méthanol

### Introduction

Ces vingt dernières années, la réglementation concernant le traitement des eaux résiduaires urbaines (ERU) et la qualité des eaux rejetées dans le milieu naturel a fortement évolué. En 2000, la Directive Cadre sur l'Eau (décembre 2000) a notamment imposé aux états membres de l'Union Européenne de restaurer le bon état écologique et chimique des masses d'eau superficielle dans un délai de 15 ans. Le bon état physico-chimique a été défini et des concentrations à ne pas dépasser dans les eaux superficielles ont été fixées pour les paramètres physiques (oxygène, température) et les nutriments (carbone, azote, phosphore). Dans le cas des composés azotés, les seuils à ne pas dépasser ont été fixés à 0,5 mg/L, 0,3 mg/L et 50 mg/L respectivement pour l'azote ammoniacal ( $\text{NH}_4^+$ ), l'azote nitreux ( $\text{NO}_2^-$ ) et l'azote nitrique ( $\text{NO}_3^-$ ).

L'accroissement des exigences réglementaires a conduit les collectivités en charge du traitement des eaux résiduaires urbaines à moderniser leurs usines afin de disposer de filières de traitement capables d'éliminer de manière efficace le carbone, l'azote et le phosphore des eaux usées. En particulier, des efforts importants ont été



consentis afin d'intégrer dans les filières de traitement des eaux des unités de traitement biologique de l'azote permettant l'oxydation de l'azote ammoniacal en azote nitrique (étape de nitrification) puis sa réduction en azote gazeux (étape de dénitrification). Ainsi, en région parisienne, le Siaap traite aujourd'hui l'azote sur l'ensemble de ses usines. Les 2,5 millions de mètres cubes d'eau usée générés sur le bassin versant du Siaap sont acheminés vers des usines d'épuration qui disposent de filières de traitement biologique permettant la nitrification et la dénitrification des eaux usées (Figure 1).

Parmi les technologies disponibles pour traiter biologiquement l'azote, la technologie « biofiltration », très compacte, a été largement déployée dans les stations d'épuration parisiennes. Dans le cas d'une filière « biofiltration », le traitement de l'azote se fait généralement en associant successivement les étapes de pré-dénitrification, nitrification et post-dénitrification sur méthanol. Dans cette configuration type, les nitrates formés lors de la nitrification sont quasiment totalement éliminés lors de la dénitrification ; les étapes de pré et de post-dénitrification éliminent environ chacune la moitié des nitrates formés (ROCHER *et al.*, 2012a et b). Dans le cas des installations parisiennes, sur les 2,1 millions de m<sup>3</sup> d'eau usée nitrifiés quotidiennement sur biofiltres, environ 1 300 000 m<sup>3</sup> étaient dénitrifiés sur des biofiltres post-dénitrifiants au moment de l'étude. Cette proportion diminue aujourd'hui suite aux travaux de modernisation de l'usine Seine Aval (Projet BioSav - Horizon 2022), qui conduit à une modification forte de la file de traitement biologique (biofiltres pré-dénitrifiants privilégiés et intégration d'une filière membranaire).

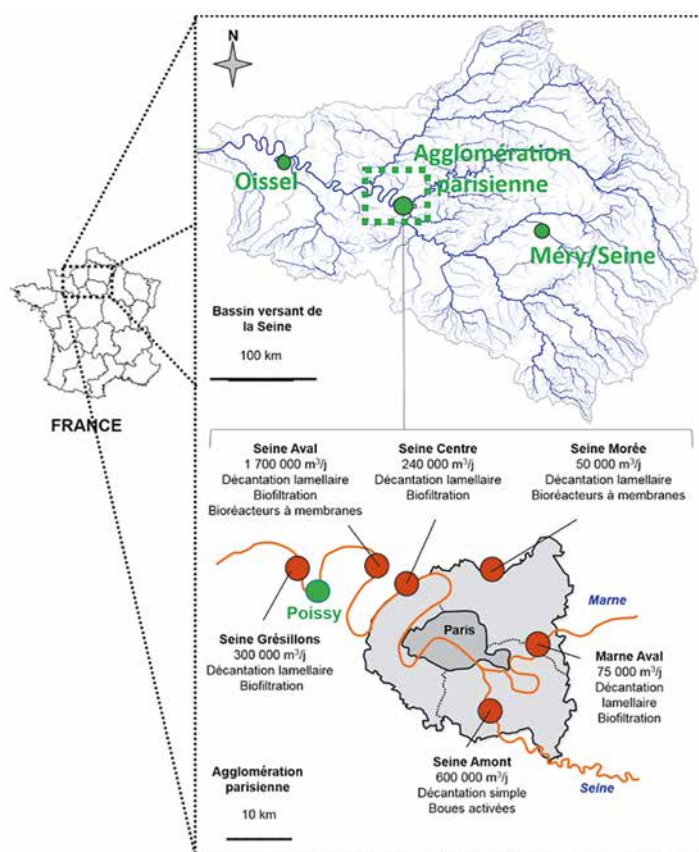


Figure 1 : Bassin versant de la Seine et localisation et caractéristiques des stations d'épuration traitant les eaux usées de l'agglomération parisienne

La politique d'aménagement et de modernisation des filières de traitement des eaux engagée ces dernières années a permis d'améliorer significativement la qualité de la Seine, notamment vis-à-vis du paramètre azote ammoniacal (ROCHER et AZIMI, 2017). D'un point de vue strictement réglementaire, la diminution des concentrations en azote ammoniacal dans le milieu s'est traduite par une amélioration de la qualité de cette masse d'eau, de l'état « médiocre » à l'état « passable » (concentrations inférieures à 2 mgN/L). Mais le développement des unités de traitement de l'azote a conjointement fait ré-émerger la problématique du nitrite. La Figure 2, qui présente l'évolution des concentrations en nitrites mesurées ces 10 dernières années au niveau du site de Poissy (aval de la station Seine Aval), montre en effet que la mise en place de l'unité de post-dénitrification sur le site Seine

Aval a engendré une augmentation des concentrations en nitrites en Seine. Avant 2007, date de la mise en fonctionnement de l'unité de nitrification-dénitrification de l'usine Seine Aval, les niveaux de concentration en nitrites étaient de l'ordre de 0,3-0,4 mg/L. La présence de ces nitrites résultait principalement du processus de nitrification qui s'opérait dans le fleuve et, dans une moindre mesure, des apports des stations d'épuration déjà équipées de post-dénitrification (Seine Centre, Colombes). Depuis 2007, année de la mise en place de l'unité de post-dénitrification sur Seine Aval, les concentrations en nitrites fluctuent entre 0,2 et 1 mg/L ; la limite du bon état étant fixée à 0,3 mg/L.

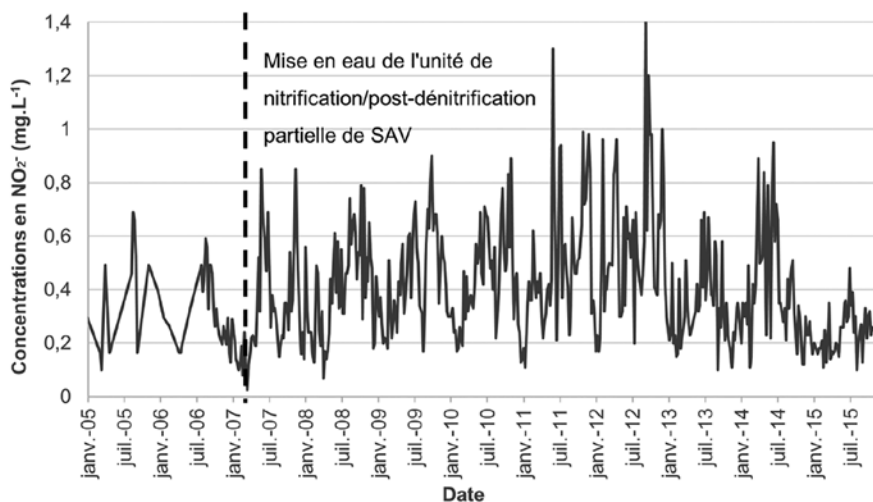
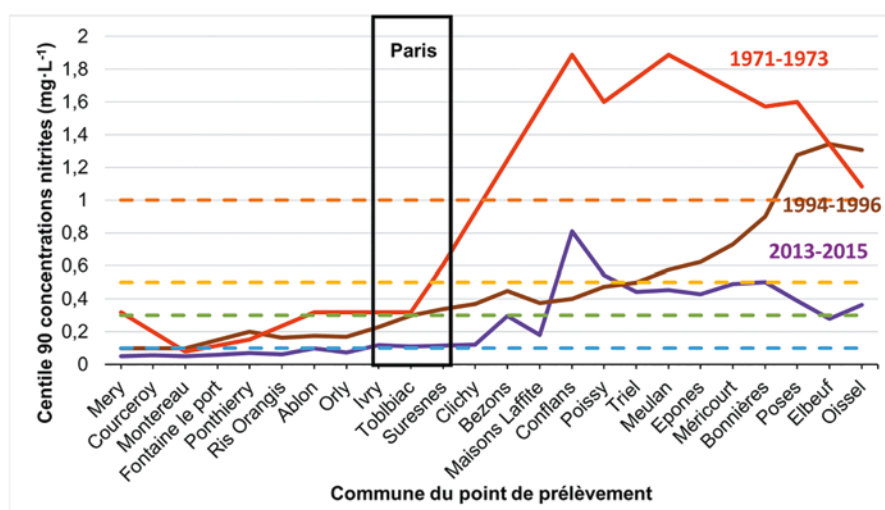


Figure 2 : Évolution de la qualité de la Seine vis-à-vis du paramètre  $\text{NO}_2^-$  en aval de l'agglomération parisienne (site de Poissy) entre 2005 et 2015 (Données du réseau de mesure MeSeine)

Il convient de souligner que cette augmentation des nitrites en Seine observée à l'aval des stations du Siaap ne constitue pas une problématique locale puisque les concentrations en nitrites dans les eaux de Seine restent élevées plus de 100 km après le rejet de SAV (ROCHER *et al.*, 2018). Enfin, il convient de rappeler que la présence de nitrites dans les eaux de surface à l'aval de l'agglomération parisienne n'est pas un phénomène récent. Ainsi, dès les années 1970, les concentrations en nitrites dans la rivière étaient élevées (Figure 3). Des concentrations de 1,90 mg/L (centile 90) étaient atteintes sur les tronçons de Seine allant de Conflans Sainte-Honorine à Meulan. Dans les années 1994-1995, on observait encore des concentrations importantes en nitrites, de l'ordre de 1,4 mg/L (centile 90), plus à l'aval, de Bonnières à Oissel. Il est probable que ces nitrites, mesurés dans les années 1970-1990, étaient en grande partie produits lors de la nitrification qui s'opérait dans la rivière du fait de la présence d'azote ammoniacal, les stations d'épuration de l'époque ne réalisant pas ou peu la nitrification.



Les lignes horizontales pointillées illustrent les limites supérieures du très bon état ( $0,1 \text{ mgNO}_2/\text{L}$ ), du bon état ( $0,3 \text{ mgNO}_2/\text{L}$ ), de l'état moyen ( $0,5 \text{ mgNO}_2/\text{L}$ ) et de l'état médiocre ( $1 \text{ mgNO}_2/\text{L}$ ) selon la DCE

Figure 3 : Évolution des centiles 90 des concentrations en nitrites en Seine de Mery à Oissel pour les années 1971-1973, 1994-1996 et 2013-2015 (Base de données 1970-2015 [SNS],  $n = 12-132$ )

## 1. Limites des modes d'injection du méthanol actuels en post-dénitrification

Lorsque que les charges en azote appliquées sur les biofiltres dénitrifiants ne dépassent pas la charge admissible et que les concentrations en ortho-phosphates dans l'influent ne sont pas limitantes, le facteur clé qui conditionne l'apparition de nitrites est la régulation des injections de carbone, et notamment de méthanol (ROCHER *et al.*, 2011a, b et c ; ROCHER *et al.*, 2015). Le ratio DBO injectée/N-NO<sub>x</sub> appliqué constitue un facteur de contrôle déterminant de l'apparition de nitrites. Le maintien d'un rapport d'environ C/N de 3 dans le réacteur biologique permet d'éviter la présence de nitrites dans les eaux de rejet. Cette capacité à stabiliser le rapport C/N dans le réacteur biologique dépend essentiellement du mode de régulation des injections de méthanol appliqué sur l'installation. De manière schématisée, les modes actuels de régulation du méthanol consistent d'abord à évaluer, en temps réel, le flux d'azote accepté sur les unités de dénitrification. Ce flux est généralement estimé à partir de mesures en continu des débits et des concentrations en azote dans les eaux acceptées sur l'ouvrage. Puis, le flux d'azote à éliminer est généralement déterminé en fixant une valeur de consigne en nitrates à respecter dans les eaux de rejet. La quantité de méthanol à injecter est alors calculée en multipliant le flux d'azote à éliminer par un coefficient d'exploitation (K). Ce coefficient d'exploitation, généralement de l'ordre de 3, correspond au rapport entre la quantité de matière organique biodégradable consommée et la quantité de nitrates éliminée au cours de la dénitrification (Figure 4). Ce coefficient est fixé à partir de la connaissance métier du système exploité.

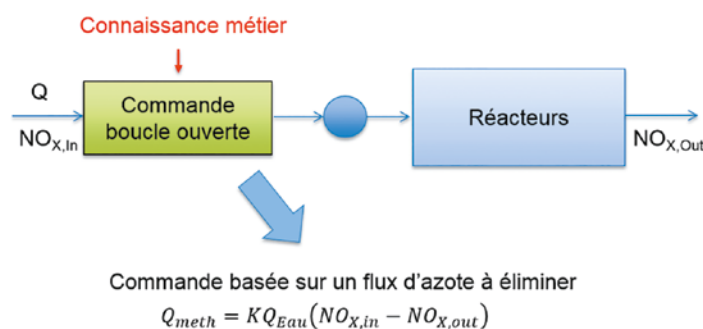


Figure 4 : Schéma de la boucle de régulation actuelle

Ce mode de régulation, basé sur une valeur de consigne en nitrates à respecter, ne permet pas de s'assurer de la stabilité du milieu réactionnel dans lequel baigne la biomasse épuratrice (ROCHER *et al.*, 2015). Pour un coefficient d'exploitation fixe, le ratio C/N réel maintenu dans le réacteur biologique peut fluctuer dans des proportions importantes si le niveau de concentration de l'effluent alimentant l'ouvrage est fluctuant. Cette instabilité du milieu réactionnel perturbe le fonctionnement de la biomasse épuratrice dont les besoins en carbone, azote et phosphore doivent, en toutes circonstances, être satisfaits pour assurer un traitement complet de l'azote nitrique. Ces perturbations conduisent à la production de nitrites.

## 2. Prise en compte du nitrite résiduel en temps réel via la Commande Sans Modèle (CSM)

### 2.1 PRINCIPES GÉNÉRAUX DE LA CSM

La commande sans modèle se place « en fin de traitement » et se base sur la concentration en nitrites mesurée en sortie de procédé. Elle se greffe à la méthode de contrôle classique précédemment décrite, en y apportant des corrections si besoin est (Figure 5). Elle permet de fermer la boucle de contrôle par rapport au schéma actuel, ce qui habituellement fournit de meilleurs résultats. Bien qu'elle soit capable d'effectuer des corrections tant positives que négatives, la commande sans modèle a été restreinte à un apport positif uniquement dans cette étude. Plus directement, elle est inactive lorsque la concentration de nitrite en sortie de procédé passe sous la consigne, et redevient active lorsqu'au contraire la consigne est dépassée.

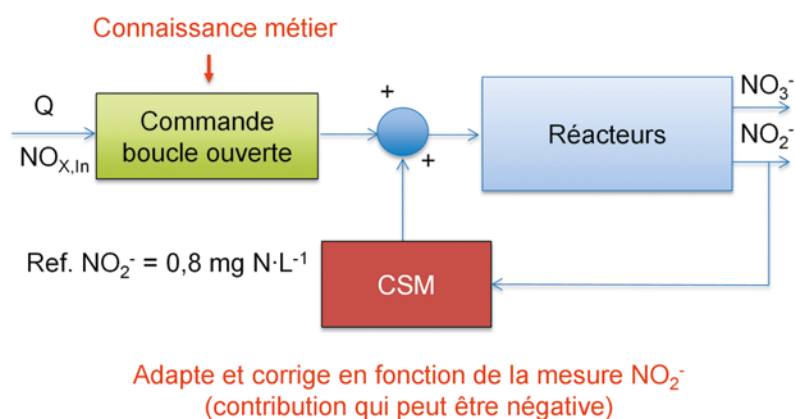


Figure 5 : Schéma de la boucle de régulation intégrant la commande sans modèle basée sur la mesure en nitrites résiduels en sortie d'ouvrage

Une écrasante majorité des correcteurs utilisés en pratique sont de type PID (proportionnel-intégral-différentiel). L'utilisation fréquente de correcteurs PID est généralement motivée par le fait qu'ils ne nécessitent pas de « bonne » modélisation par des équations différentielles ou aux différences, trop souvent inextricable. Cependant, le réglage des gains et des correcteurs PID sont difficiles (ÅSTRÖM et MURRAY, 2008 ; FRANKLIN *et al.*, 2015 ; de LARMINAT, 2012) et les performances de ces correcteurs se dégradent, parfois beaucoup, en présence de fortes non-stationnarités et non-linéarités.

Dans ce contexte, la « commande sans modèle » constitue une alternative intéressante. Cette commande repose sur des techniques nouvelles d'estimations en ligne (FLIESS et SIRA-RAMIREZ, 2008 ; SIRA-RAMIREZ *et al.*, 2014). Elle a pour but de conserver les avantages des PID (absence de modélisation) tout en gommant leurs inconvénients. Des applications réussies dans les domaines les plus variés, accompagnées quelquefois de brevets, ont vu le jour, en France et à l'étranger. A titre d'exemple, on peut citer : les commandes de barrages hydroélectriques (JOIN *et al.*, 2010), d'alliages à mémoire de forme (GEDOUIN *et al.*, 2011), de manipulateurs flexibles (AGEE *et al.*, 2015), de serres agricoles (LAFONT *et al.*, 2015), et de certains convertisseurs (CAO *et al.*, 2016). Mentionnons enfin la facilité et le coût faible de la mise-en-œuvre matérielle (JOIN *et al.*, 2013 et 2017).

Le lecteur intéressé par la CSM trouvera en FLIESS et JOIN (2013) tous les développements nécessaires à une meilleure compréhension. Les références JOIN *et al.* (2017) et ROCHER *et al.* (2018) contiennent quant à elles des compléments techniques utiles sur son application au cas de la dénitrification biologique.

## 2.2. EVALUATION DE LA CAPACITÉ DE LA CSM À MAITRISER LE FLUX DE NITRITES RÉSIDUELS

### 2.2.1. Description du modèle SimBio utilisé pour tester la CSM

Le modèle (SimBio, programme Mocopée), capable de simuler les performances des unités de post-dénitrification (BERNIER *et al.*, 2014), a été utilisé comme plateforme pour tester l'efficacité de la commande sans modèle. Il s'agit d'un modèle phénoménologique décrivant les processus globaux impliqués durant la biofiltration des eaux usées. Le modèle SimBio est construit sous l'environnement Matlab, avec la toolbox Simulink et à partir de sous-modèles disponibles dans la littérature scientifique. L'hydraulique du biofiltre y est représentée à l'aide de six réacteurs complètement mélangés de volume égal placés en série, de manière à approximer un écoulement piston tout en maintenant les temps de simulation dans le domaine du raisonnable. La base du modèle de conversion biologique de la pollution est l'*Activated Sludge Model 1* (ASM1, HENZE *et al.*, 1987). Ce modèle est fréquemment utilisé et représente la croissance des biomasses hétérotrophes et autotrophes, ainsi que la consommation et la production de substrats carbonés et azotés qui sont impliquées. Les réactions de nitrification et de dénitrification sont toutefois représentées dans l'ASM1 comme se déroulant en une seule étape, soit respectivement le passage du  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{NO}_3^-$  directement, puis la transformation du  $\text{NO}_3^-$  en  $\text{N}_2$ . Ceci fait en sorte que la version originale de ce modèle n'est pas en mesure de fournir des prédictions sur les concentrations en nitrites durant le traitement de l'azote. Afin de pallier ce manque, une modification est apportée au modèle de conversion biologique : la réaction de dénitrification est considérée par un processus se déroulant en deux étapes. Pour ce faire, les schémas du processus de dénitrification considérés dans le modèle ASM1N (HIATT et GRADY, 2008) sont utilisés.

Ce modèle est à la base conçu pour représenter la dénitrification en quatre étapes et ainsi pouvoir simuler les émissions de NO et N<sub>2</sub>O pouvant se produire. Une seule biomasse hétérotrophe est simulée, en considérant que seules certaines fractions sont en mesure de réaliser chacune des réactions impliquées. Seules les deux premières réactions de dénitrification du modèle ASMN (NO<sub>3</sub><sup>-</sup> vers NO<sub>2</sub><sup>-</sup> vers N<sub>2</sub>) sont pour l'instant implantées dans le modèle SimBio. Celles-ci sont quelque peu adaptées du point de vue stœchiométrie pour compenser l'absence des deux dernières réactions.

La version du modèle SimBio utilisée dans le cadre de cette étude a précédemment été calibrée sur des mesures horaires de nitrites et nitrates récoltées sur une partie du procédé de post-dénitrification de la station d'épuration de Seine-Centre située à Colombes en banlieue parisienne. Plus de détails sont disponibles sur le modèle SimBio tant en nitrification tertiaire qu'en post-dénitrification respectivement dans ROCHER *et al.* (2014a et b) et dans BERNIER *et al.* (2014).

### 2.2.2. Stratégie d'évaluation de l'efficacité de la CSM

Afin d'en comparer l'efficacité, les deux stratégies de contrôle du nitrite précédemment décrites (Figures 4 et 5) ont été implantées dans le modèle SimBio. Chaque méthode de contrôle a été simulée sur une période de dix jours, en utilisant un jeu de données synthétiques fortement représentatif des variations dans les charges de NOX observées en entrée de post-dénitrification à Seine-Centre. Les cinq premiers jours du modèle ont servi à acclimater le modèle aux conditions d'entrée imposées. Seuls les cinq derniers jours ont donc été considérés lors de l'évaluation des performances de chaque solution simulée. Afin de comparer l'efficacité des deux solutions de contrôle évaluées, la méthode de contrôle « actuelle » a été simulée en utilisant un jeu de paramètres de calcul de la dose de méthanol à injecter (rapport méthanol/NOX) calibré. Cette calibration a visé à obtenir une concentration moyenne en nitrites en sortie de traitement la plus proche possible de la consigne indiquée à la commande sans modèle. La calibration des paramètres a dans ce cas été réalisée *a posteriori* sur le même jeu de données utilisé pour l'évaluation. Ce scénario illustre donc les performances optimales du contrôle actuel que l'on pourrait atteindre vis-à-vis des nitrites.

La stratégie de contrôle utilisant la commande sans modèle a quant à elle été couplée au mode de régulation actuel tel qu'illustré en Figure 5. Les paramètres de la régulation actuelle ne sont dans ce cas-ci pas optimisés, l'amélioration des concentrations en nitrite dans l'effluent étant laissée entièrement à la commande sans modèle. Le coefficient d'exploitation est donc simplement fixé à sa valeur par défaut de 3.

### 2.2.3. Evaluation des résultats obtenus avec la CSM

La Figure 6 illustre les données de concentrations en NO<sub>3</sub><sup>-</sup> imposées à l'entrée du modèle durant les cinq jours d'évaluation des performances de contrôle. La Figure 7 illustre quant à elle les résultats des simulations pour les deux différents scénarios de contrôle évalués : le scénario actuel et le scénario commande sans modèle (CSM). Enfin, la Figure 8 illustre pour les deux scénarios les répartitions en nitrites en sortie de traitement, en dose de méthanol utilisé et en nitrates en sortie de traitement, sous forme de boîtes à moustaches. Dans tous les cas, la consigne visée est de 0,8 mgN/L en nitrites.

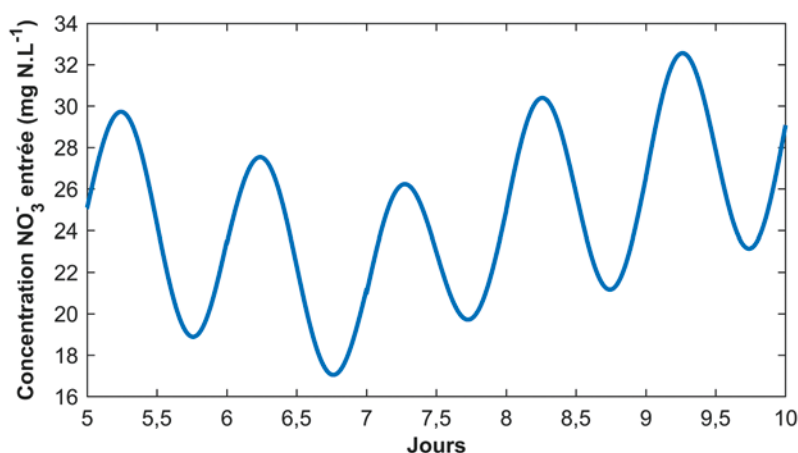
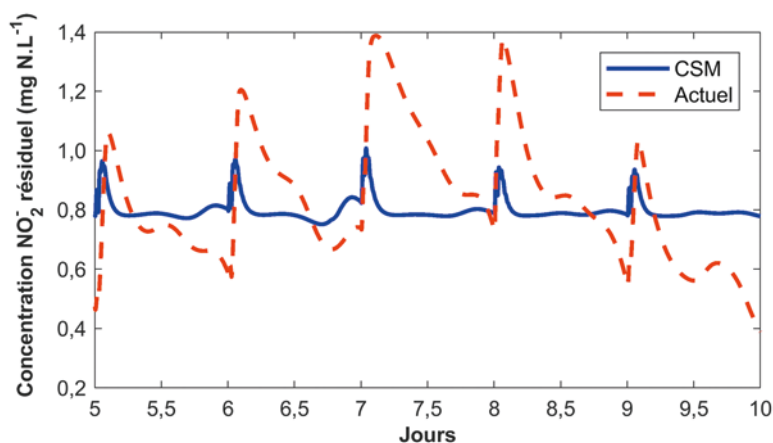


Figure 6 : Concentration en nitrates imposée en entrée du modèle SimBio lors des simulations des différents scénarios de contrôle

Tel qu'illustré en Figure 7, le contrôle actuel, une fois ses paramètres de calcul calibrés, parvient à osciller autour de la consigne visée (valeur moyenne simulée sur les nitrites de 0,84 mgN/L, médiane de 0,81 mgN/L). Ces oscillations sont par contre d'une ampleur relativement importante, atteignant un minimum et un maximum de respectivement 0,39 et 1,39 mgN/L de nitrite. Elles sont causées par le phénomène décrit précédemment : en utilisant des paramètres de calcul constants avec cette méthode de contrôle, le rapport C/N en entrée de traitement varie en fonction de la concentration en  $\text{NO}_3^-$ . Le modèle étant soumis à des variations intra et inter-journalières sur la teneur en nitrates (Figure 6), ceci affecte la répartition  $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$  dans l'eau traitée. Il est également important de rappeler que les paramètres de calcul utilisés pour obtenir ces résultats ont été optimisés *a posteriori* sur cette période de cinq jours pour viser l'atteinte de la consigne en moyenne autant que possible. Dans une situation réelle, ce degré d'optimisation est difficilement atteignable. La commande sans modèle parvient quant à elle à maintenir des concentrations en nitrites largement plus stables autour de la consigne. En effet, la valeur moyenne obtenue en sortie sur cette variable est de 0,80 mgN/L (médiane de 0,79 mgN/L), mais les valeurs minimale et maximale obtenues sont dans ce cas-ci de 0,75 et 1,00 mgN/L, respectivement. Seule une perturbation particulière est observable lors de chaque début de journée, où la teneur en nitrites en sortie augmente sur une courte période avant de revenir à la consigne. Celle-ci est due à la réalisation du lavage des biofiltres considérée se produire une fois par jour dans le modèle SimBio, en début de journée. Les lavages ont un effet potentiellement important sur les quantités de biomasse dénitrifiante dans le biofiltre et donc sur la production et l'élimination des nitrites et nitrates. Il semble que la commande sans modèle nécessite un certain moment avant d'arriver à se réadapter aux nouvelles conditions prévalant dans le réacteur. Cette période demeure toutefois relativement courte (~3 heures) et d'amplitude contenue, malgré l'effet important et soudain des lavages qui provoquent son apparition. Un effet similaire peut être observé sur les résultats de simulation obtenus avec le contrôle actuel. Il s'agit dans ce cas-ci d'un mélange de l'impact des lavages et de l'augmentation des concentrations de nitrate en entrée de procédé présente aux mêmes heures.



**Figure 8 : Simulation des concentrations en nitrites résiduels avec le mode de régulation actuel (pointillé rouge) et le mode de régulation combinant la boucle métier et la commande sans modèle (trait bleu)**

La boîte à moustaches sur les nitrites en figure 9 confirme la nette amélioration sur la stabilité des  $\text{NO}_2^-$  en sortie de traitement lors du passage à la méthode de contrôle actuelle au contrôle sans modèle. Les boîtes à moustaches du centre (débit de méthanol injecté par le contrôle) et de droite (concentration en nitrates en sortie de traitement) de la Figure 9 résumant le comportement des autres variables importantes dans le contexte de la post-dénitrification. Dans le cas du méthanol injecté, les moyennes et médianes pour chaque méthode de contrôle sont relativement semblables (contrôle actuel : moyenne de 1181 kg/j et médiane de 1185 kg/j ; commande sans modèle : moyenne de 1181 kg/j et médiane de 1195 kg/j). Les quartiles 1 et 3 sont quant à eux légèrement plus élevés dans le cas de la commande sans modèle. Les gains de stabilité sur les nitrites apportés sont donc relativement peu impactant sur les coûts d'opération du procédé. Dans le cas du nitrate, la méthode de contrôle actuelle est en fait plus stable que la commande sans modèle. En effet, dans ce second cas, l'injection du méthanol est principalement dictée pour stabiliser les nitrites. Les variations de charge en nitrates en entrée de traitement se répercutent donc moins sur les nitrites qu'auparavant, mais plus sur les nitrates. Les concentrations en  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$  dans ce cas-ci) simulées en sortie de traitement demeurent toutefois relativement similaires, quoique plus stables autour de la médiane pour la commande sans modèle que pour le contrôle actuel (non-montré). Ceci implique d'abord que le gain de stabilité sur les nitrites apporté par la commande sans modèle est dans l'absolu supérieur à la perte de stabilité sur les nitrates. Cela implique également qu'en dosant une quantité



approximativement similaire de méthanol, mais à des moments plus appropriés, la commande sans modèle arrive à stabiliser à la fois les concentrations simulées en sortie de traitement en  $\text{NO}_2^-$  et en  $\text{NO}_x$ .

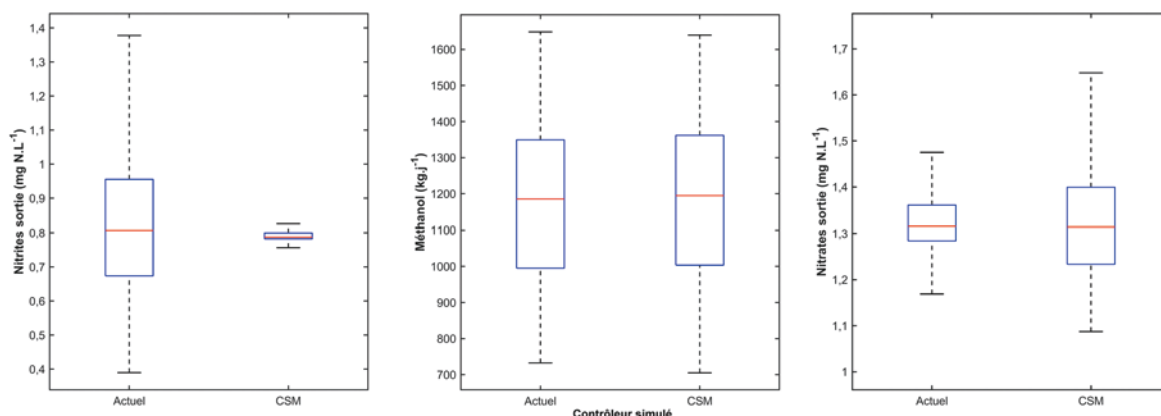


Figure 9 : Comparaison des performances simulées des deux modes de régulation au regard de la maîtrise des concentrations résiduelles en nitrites, de la consommation en méthanol et de la maîtrise des nitrates résiduels

## Conclusion

La modernisation des filières de traitement des eaux engagée ces 20 dernières années en agglomération parisienne a permis d'améliorer significativement la qualité de la Seine, notamment vis-à-vis de l'azote ammoniacal. Mais le développement des unités de post-dénitrification dans les stations d'épuration de l'agglomération parisienne a conjointement fait ré-émerger la problématique du nitrite dans les eaux de Seine. Ainsi, le contrôle de l'apparition des nitrites au cours de l'étape de post-dénitrification est devenu un enjeu technique majeur. Le Siaap a engagé des études visant à mieux appréhender les mécanismes d'apparition du nitrite lors de la dénitrification des eaux usées et à étudier des évolutions techniques à mettre en œuvre sur les usines pour contrôler et limiter sa production.

Ce chapitre montre que la modification des pratiques d'exploitation des unités de post-dénitrification permettrait d'accroître la maîtrise du nitrite en sortie de station d'épuration. Les modes de régulation classiques ne permettent pas de s'assurer de la stabilité du rapport C/N dans le réacteur biologique et conduisent à une production erratique et incontrôlée de nitrites. La possibilité d'ajouter une « commande sans modèle » à la commande classique a donc été testée à l'aide du modèle mathématique SimBio, modèle permettant de simuler le fonctionnement des unités de biofiltration. La commande sans modèle placée « en fin de traitement » et basée sur la concentration en nitrites mesurée en sortie de procédé, se greffe à la méthode de contrôle classique en y apportant des corrections seulement au besoin. Les résultats des simulations décrits dans ce chapitre montrent qu'une régulation des injections de méthanol basée sur la « commande sans modèle » permet de stabiliser et maîtriser le nitrite dans le rejet, sans induire d'augmentation des quantités de méthanol injectées.

## POUR EN SAVOIR PLUS

- › FLIESS M., JOIN C. (2013) : « Model-free control ». *International Journal Control* ; 86 : 2228-2252.
- › JOIN C., BERNIER J., MOTTELET S., FLIESS M., RECHDAOUI-GUERIN S., AZIMI S. et ROCHER V. (2017) : *A simple and efficient feedback control strategy for wastewater denitrification*. IFAC 2017 World Congress, Toulouse, France, 9-14 juillet 2017.
- › ROCHER V., JOIN C., MOTTELET S., BERNIER J., RECHDAOUI-GUERIN S., AZIMI S., LESSARD P., PAUSS A., FLIESS M. (2018) : La production de nitrites lors de la dénitrification des eaux usées par biofiltration - stratégie de contrôle et de réduction des concentrations résiduelles. *Revue des Sciences de l'Eau* ; 31(1) : 61-73.

## Bibliographie

- AGEE J.T., KIZIR S., BINGUL Z. (2015) : « Intelligent proportional-integral (iPI) control of a single link flexible joint manipulator ». *Journal Vibration Control* ; 21 : 2273-2288.
- ASTROM K.J., MURRAY R.M. (2008) : *Feedback Systems: An Introduction for Scientists and Engineers*. Princeton University Press, Princeton, NJ, Etats-Unis, 408 p.
- BERNIER J., ROCHER V., LESSARD P. (2014) : « Modelling headloss and two-step denitrification in a full-scale wastewater post-denitrifying biofiltration plant. » *Journal of Environmental Engineering and Science* ; 9 : JS3, 171-180.
- CAO L., Li H., ZHANG H. (2016) : *Model-free power control of front-end PFC AC/DC converter for on-board charger*. 8<sup>th</sup> International Power Electronics and Motion Control Conference (IPEMC-ECCE Asia), IEEE, Hefei, Chine.
- FLIESS M., JOIN C. (2013) : « Model-free control. » *International Journal Control* ; 86: 2228-2252.
- FLIESS M., SIRA-RAMIREZ H. (2008) : « Closed-loop parametric identification for continuous-time linear systems via new algebraic techniques. » In: Garnier H., Wang L. (Eds): *Identification of Continuous-time Models from Sampled Data*. Springer, 362-391.
- FRANKLIN G.F., POWELL J.D., EMMANI-NAEINI A. (2015) : *Feedback Control of Dynamic Systems* (7<sup>th</sup> ed.), Pearson Education, Harlow, 880 p.
- GEDOUIN P.-A., DELALEAU E., BOURGEOT J.-M., JOIN C., ARAB-CHIRANI S., CALLOCH S. (2011) : « Experimental comparison of classical pid and model-free control: position control of a shape memory alloy active spring. » *Control Engineering Practice* ; 19 : 433-441.
- HENZE M., GRADY C.P.L., GUJER W., MARAIS G.V.R., MATSUO T. (1987) : « A general-model for single-sludge waste-water treatment systems. » *Water Research* ; 21 : 505-515.
- HIATT W.C., GRADY C.P.L. (2008) : « An updated process model for carbon oxidation, nitrification and denitrification. » *Water Environment Research* ; 80 : 2145-2156.
- JOIN C., BERNIER J., MOTTELET S., FLIESS M., RECHDAOUI-GUERIN S., AZIMI S., ROCHER V. (2017) : *A simple and efficient feedback control strategy for wastewater denitrification*. IFAC 2017 World Congress, Toulouse, France, 9-14 juillet 2017.
- JOIN C., CHAXEL F., FLIESS M. (2013) : « Intelligent controllers on cheap and small programmable devices. 2<sup>nd</sup> International Conference on Control Fault-Tolerant Systems, Nice, France, 9-11 octobre. Compte rendu, pp. 554-559. Disponible en ligne : <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00845795/en/>
- JOIN C., ROBERT G., FLIESS M. (2010) : *Vers une commande sans modèle pour aménagements hydroélectriques en cascade*. 6<sup>e</sup> Conférence Internationale Francophone d'Automatique, Nancy, France, 2-4 juin. Disponible en ligne : <https://hal.archives-ouvertes.fr/inria-00460912/en/>
- LAFONT F., BALMAT J.-F., PESSEL N. et FLIESS M. (2015) : « A model-free control strategy for an experimental greenhouse with an application to fault accommodation. » *Computers and Electronics in Agriculture* ; 110 : 139-149.
- de LARMINAT Ph. (2009). *Automatique appliquée* (2<sup>e</sup> éd.), Hermès-Lavoisier, Paris, France, 390 p.
- ROCHER V., AZIMI S. et al. (2017) : *Evolution de la qualité de la Seine en lien avec les progrès de l'assainissement - De 1970 à 2015*. Editions Johanet, 76 p.
- ROCHER V., JOIN C., MOTTELET S., BERNIER J., RECHDAOUI-GUERIN S., AZIMI S., LESSARD P., PAUSS A., FLIESS M. (2018). « La production de nitrites lors de la dénitrification des eaux usées par biofiltration - stratégie de contrôle et de réduction des concentrations résiduelles. » *Revue des Sciences de l'Eau* ; 31(1) : 61-73.
- ROCHER V., PAFFONI C., GONCALVES A., GUERIN S., AZIMI S. GASPERI J., MOILLERON R., PAUSS A. (2012a) : « Municipal wastewater treatment by biofiltration: comparisons of various treatment layouts. Part 1: assessment of carbon and nitrogen removal. » *Water Science and Technology* ; 65 (9) : 1705-1712.

- ROCHER V., PAFFONI C., GONCALVES A., AZIMI S., PAUSS A. (2012b) : « 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.
- ROCHER V., LAVERMAN A.M., GASPERI J., AZIMI S., GUERIN S., MOTTELET S., VILLIERES T., PAUSS A. (2015) : « Nitrite accumulation during denitrification depends on the carbon quality and quantity in wastewater treatment with biofilters. » *Environmental Science and Pollution Research* ; 22(13) : 10179-10188.
- ROCHER V., PAFFONI C., GONCALVES A., AZIMI S., BRIAND C. (2011a) : « Conditions d'apparition des nitrites lors de la dénitrification des eaux usées par biofiltration. 1. Importance de la charge appliquée en azote. » *L'Eau, l'Industrie, les Nuisances* ; 344 : 384-388.
- ROCHER V., PAFFONI C., GONCALVES A., AZIMI S., GUERIN-RECHDAOUI S., PAUSS A. (2011b) : « Conditions d'apparition des nitrites lors de la dénitrification des eaux usées par biofiltration. 2. Importance des apports en substrat carboné. » *L'Eau, l'Industrie, les Nuisances* ; 344 : 389-397.
- ROCHER V., MECHE P., GUERIN-RECHDAOUI S., PAFFONI C., GONCALVES A., AZIMI S. (2011c) : « Conditions d'apparition des nitrites lors de la dénitrification des eaux usées par biofiltration. 3. Importance des apports en phosphore. » *L'Eau, l'Industrie, les Nuisances* ; 344 : 398-404.
- ROCHER V., BERNIER J., GUERIN S., LESSARD P. (2014a) : « Modélisation du fonctionnement des biofiltres nitrifiants de la station d'épuration Seine Aval (Siaap) : Cas des performances épuratoires. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 11 : 85-104.
- ROCHER V., BERNIER J., GUERIN S., LESSARD P. (2014b) : « Modélisation du fonctionnement des biofiltres nitrifiants de la station d'épuration Seine Aval (Siaap) : Cas de l'encrassement et des pertes de charge. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 11 : 106-118.
- SIRA-RAMIREZ H., GARCIA-RODRIGUEZ C., CORTES-ROMERO J., LUVIANO-JUAREZ A. (2014). *Algebraic Identification and Estimation Methods in Feedback Control Systems*. Chichester, 373 p.

# 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

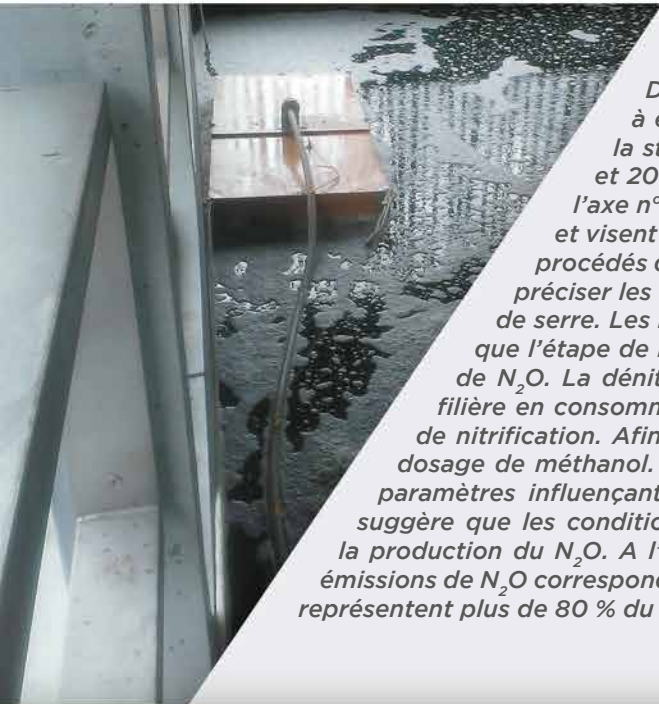
Ahlem Filali<sup>[1]\*</sup>, Julien Bollon<sup>[1]</sup>, Yannick Fayolle<sup>[1]</sup>, Sabrina Guérin<sup>[2]</sup>, Vincent Rocher<sup>[2]</sup>, Sylvie Gillot<sup>[3]</sup>

<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.

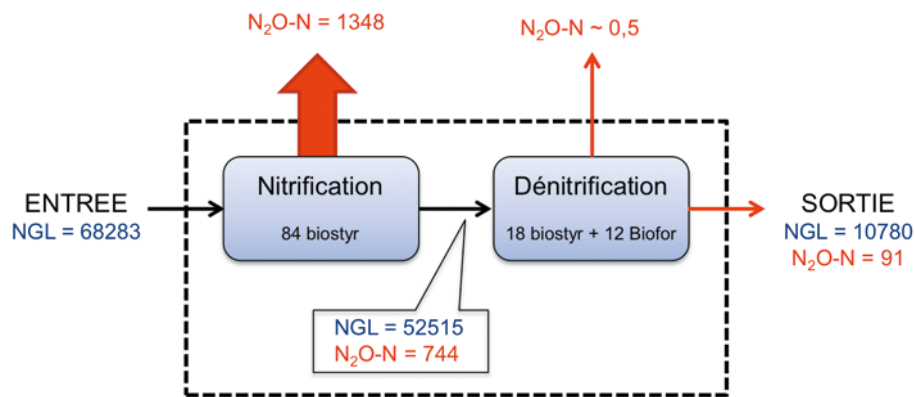


Figure 1 : Schéma représentant les flux d'azote moyens à l'échelle de la filière en période hivernale (kgN/j)

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.



# Traitement des jus de digestion par le procédé SHARON® : shunt des nitrates et dénitrification

## Treatment of digestion juices by the process sharon: shunt of nitrates and denitrification

Jean-Marc Perret<sup>[1]\*</sup>, Olivier Garcia<sup>[1]</sup>, Céline Roose-Amsaleg<sup>[2]</sup>, Annet Laverman<sup>[2]</sup>, Sébastien Pichon<sup>[3]</sup>, Sam Azimi<sup>[3]</sup>, Vincent Rocher<sup>[3]</sup>, Jean-Pierre Canler<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Irstea - UR REVERSAAL, Villeurbanne

<sup>[2]</sup> Université Rennes1 - UMR 6553 Ecobio, Rennes

<sup>[3]</sup> Siaap - Direction Innovation et Environnement, Colombes

\* Auteur de correspondance : jean-marc.perret@irstea.fr



*Les jus issus de la digestion des boues d'épuration sont fortement chargés en azote ammoniacal et leur retour en tête de station peut générer une surcharge pouvant atteindre 20 %. Pour éviter cela, la station Seine Grésillons du Siaap s'est dotée d'une étape de traitement des jus de digestion, avant retour en tête, par shunt des nitrates, le procédé SHARON®. Si le principe de shunt des nitrates est connu à l'échelle du laboratoire, sa mise en œuvre à l'échelle industrielle reste très récente. C'est pourquoi les équipes d'Irstea, d'Ecobio-Rennes et du Siaap ont collaboré depuis 2014 dans le but de maîtriser l'exploitation du procédé et de proposer des voies d'optimisation de son fonctionnement. Ainsi, après un état des lieux de son fonctionnement, réalisé en 2014 et 2015, des paramètres d'exploitation ont été définis afin de favoriser le bon fonctionnement de l'unité de traitement. Après plus d'une année de fonctionnement et certaines améliorations de son exploitation (choix de matériel, suivi analytique), des voies d'optimisations ont été testées durant l'année 2017. Trois campagnes de mesures ont été réalisées sur le procédé, en période stabilisée, afin de tester des modifications de consignes d'exploitation, visant une optimisation de fonctionnement. Durant ces suivis, différentes approches (bilan 24H, prélèvements instantanés, vitesses en batch, microbiologique moléculaire) ont montré l'existence d'une nitrification partielle importante et constante sur le site mais variable d'une période à l'autre. Bien qu'aucune corrélation n'ait été observée entre les performances et les paramètres d'exploitation, il apparaît que piloter le SHARON® avec une température supérieure à 35 °C permette d'assurer une nitrification partielle importante si la charge d'alimentation en N-NH<sub>4</sub> reste stable et proche du nominal et si l'âge de boue total est maintenu de l'ordre de 3,35 jours.*

Retours en tête - Âge de boue - Cinétiques - Nitrification - Dénitrification - AOB - NOB

## Introduction

Le procédé SHARON® (*Single reactor system for High Ammonia Removal Over Nitrite*) est implanté en France sur l'usine d'épuration de Seine Grésillons (Yvelines, 1,2 millions d'EH) exploitée par le Siaap.

Placé en complément de la filière de traitement des boues, son rôle est de traiter les retours issus de cette filière (centrats de déshydratation et condensats de séchage des boues digérées du site). Son intérêt est d'éviter un apport trop important d'azote sur la file de traitement des eaux par l'intermédiaire des retours en tête ; ces apports qui pourraient représenter à charge nominale jusqu'à 20 % d'apport supplémentaire en entrée de la station.

A l'exception de données bibliographiques, peu de connaissances techniques et scientifiques sont disponibles sur le fonctionnement de ce procédé à l'échelle industrielle. Dans le cadre du programme de recherche Mocopée (MOdélisation Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux), une étude a été menée pour acquérir des connaissances sur ce procédé de « shunt des nitrates » en grandeur réelle. L'objectif final est de mieux comprendre les facteurs clés pour l'obtention d'une activité biologique maximale (intégrant une approche quantitative des micro-organismes nitrifiants) et pour la maîtrise des facteurs limitants (P-PO<sub>4</sub>, T°C, nutriments ...).



Suite à cela, des leviers d'optimisation, traduits en consignes d'exploitation, pourront être proposés à l'attention des opérateurs afin de maintenir un mode de fonctionnement optimal.

Pour des raisons de clarté, dans la suite du document, le procédé sera nommé SHARON, sans sigle, bien que la marque soit déposée.

## 1. Matériels et méthodes

### 1.1. PRÉSENTATION DU PROCÉDÉ SHARON®

Le procédé SHARON® est un système biologique de traitement des effluents fortement chargés en azote ammoniacal. Il est basé sur la sélection d'une culture de micro-organismes spécifiques, du fait de conditions définies par différents paramètres process comme l'âge des boues, le pH et la température, afin de mettre en place une nitrification dite partielle, ou shunt des nitrates. Il s'agit d'obtenir un traitement de l'azote ammoniacal par une nitrification aérobie ( $N-NH_4^+ \rightarrow NO_2^-$ ) suivie d'une dénitrification anaérobie ( $NO_2^- \rightarrow N_2$ ). L'étape classique des Nitrates ( $NO_2^- \rightarrow NO_3^-$ ) n'étant pas recherchée. L'objectif de ce procédé est de réduire les consommations d'air nécessaires pour l'oxydation de l'ammonium mais également de diminuer les quantités de carbone exogène (méthanol) utilisé lors de l'étape de dénitrification. En effet, la maîtrise de ces deux fluides apparait comme incontournable dans le cadre d'une optimisation énergétique et économique des procédés de traitement des eaux résiduaires (AZIMI et ROCHER, 2017 ; ROCHER *et al.*, 2012).

Pour cela, les retours de la file de traitement des boues sont répartis sur deux files parallèles identiques de traitement équipées de réacteurs SHARON traitant chacune 50 % de la charge entrante. Chaque file est constituée de trois bassins concentriques (Figure 1) : un bassin tampon équipé d'un agitateur au centre qui homogénéise et lisse le débit des retours à traiter, un bassin anoxique pour la dénitrification (non aéré mais agité en continu) et un bassin aéré et agité pour la nitrification à l'extérieur du bassin précédent. L'effluent stocké temporairement dans le bassin tampon est refroidi dans un échangeur de chaleur puis alimente le réacteur anoxique. Le mélange boues-effluent passe ensuite dans le réacteur aéré par une pompe de paroi puis retourne vers le bassin anoxique par surverse. Le temps de séjour hydraulique du système est identique à l'âge de boues puisque ces dernières ne sont ni décantées ni recirculées. Le mélange Boues-effluent traité du bassin aéré est évacué par surverse et retourne en tête de la file de traitement des eaux de la station. Son alimentation est prévue 24h/24 et il est alimenté le week-end en fonction des volumes stockés au bassin tampon le vendredi.

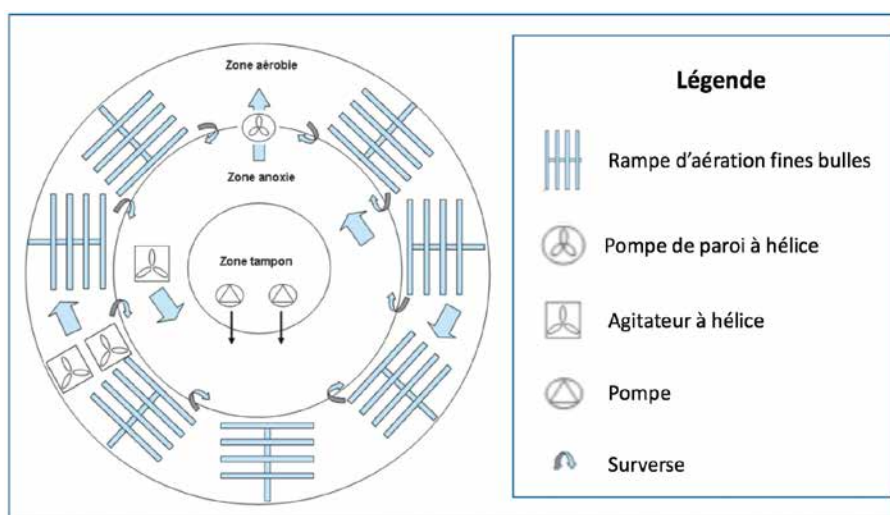


Figure 1 : Schéma de principe de fonctionnement du procédé SHARON®

Pour l'optimisation du procédé, le pH des bassins peut être régulé par un apport de soude, un rééquilibrage en phosphore est réalisable par un apport en acide phosphorique, et du carbone organique est apporté sous forme de méthanol pour la dénitrification. Ces apports sont gérés par automate et asservis à différentes mesures (pH, mesures de Noxydés). Les volumes horaires d'alimentation du procédé sont également gérés par automate suivant des mesures en continu de  $NH_4^+$  dans les bassins.

D'après le constructeur, le procédé SHARON® et son shunt des nitrates doit permettre de réduire les coûts énergétiques puisque les consommations annoncées sont inférieures de 25 % pour l'O<sub>2</sub> lors de la nitrification et de 40 % pour le carbone lors de la dénitrification. Il doit permettre de diminuer de 25 % la production de boues biologiques grâce à la réduction du nombre d'étapes lors des réactions chimiques. Enfin, le taux de dénitrification est aussi 1,5 à 2 fois supérieur avec une nitrification partielle par rapport à une nitrification conventionnelle.

## 1.2. EXPLOITATION - SUIVIS JOURNALIERS - PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL

Le procédé a été suivi une première fois par les équipes d'Irstea, d'Ecobio et du Siaap en 2014, suite à sa mise en route, afin d'en évaluer les conditions de fonctionnement, les performances et de connaître les possibilités d'optimisation. Cette première étude a évidemment montré des performances moindres que celles attendues, mais elle a tout de même mis en évidence la présence d'une nitrification partielle dans le réacteur malgré l'absence d'optimisation. Elle a également permis de vérifier les conditions de fonctionnement du procédé (caractéristiques des jus, concentration en matières en suspension [MES], charges appliquées, âge de boues, etc.) et de lister un ensemble de paramètres de fonctionnement à vérifier, à régler ou à optimiser pour la suite de l'étude.

Entre 2014 et 2017, un suivi fin de l'exploitation a permis de mieux cerner certaines contraintes de fonctionnement du procédé, de maîtriser les paramètres clés et d'améliorer certains points tels :

- Le fonctionnement des postes de déshydratation amont (taux de capture plus important, maîtrise de l'apport de polymère) permettant de limiter l'apport en matière en suspension à l'entrée.
- L'alimentation du SHARON® pour un fonctionnement à une charge hydraulique et azotée proche des données de dimensionnement. La maîtrise des charges en entrée de chaque file du procédé passe par un fonctionnement non automatisé nécessitant des réglages manuels réguliers sur les vannes d'alimentation.
- La mise en place de différents protocoles de décolmatage du système de refroidissement et leur application régulière.
- Le suivi et la maintenance périodique des différentes sondes équipant en fixe le procédé (O<sub>2</sub>, pH, T°C, NH<sub>4</sub>, NOx<sup>1</sup>).

Le procédé, dont l'exploitation est aujourd'hui bien maîtrisée par l'équipe d'exploitation du site a été calé au plus proche des paramètres de dimensionnement. Pour la présente étude, et dans l'objectif d'optimiser son fonctionnement, un protocole en 3 phases successives a été élaboré. Les 3 phases sont constituées de 2 périodes :

- Période 1 : fonctionnement en régime stabilisé (hydraulique et charge) durant trois semaines. Durant cette période, un suivi des performances du procédé est réalisé sur la base des données de la station et des analyses process réalisées à la Direction de l'Innovation et Environnement (DIE) du Siaap.
- Période 2 : suivi fin du procédé réalisé sur 24 heures. Durant ce suivi poussé, une intensification des mesures en entrée et sortie du réacteur est faite au pas de temps horaire.

Trois campagnes de mesures, correspondant aux trois phases, ont ainsi été réalisées durant les mois de Mai, Septembre et Novembre 2017. Pour chaque phase, un seul paramètre de fonctionnement a été volontairement modifié afin d'en évaluer le degré d'optimisation (Tableau 1).

	Mai	Septembre	Novembre
âge de boues	3,34 jours	3,34 jours	3,34 jours
T°C	35°C	35°C	35°C
pH	6,8	6,8	6,8
Taux de recirculation	2000% (20 X Q d'alimentation)	2000% (20 X Q d'alimentation)	2000% (20 X Q d'alimentation)
Consigne en O <sub>2</sub> en mg O <sub>2</sub> /L	1,5	0,8	0,8
Apport d'ortho phosphates	Oui	Oui	Non

**Tableau 1 : Paramètres process cibles suivant les campagnes**

<sup>1</sup> NO<sub>x</sub> représente la somme des principales formes oxydées de l'azote (NO<sub>2</sub> et NO<sub>3</sub>).

Deux paramètres process (ou consignes d'exploitation) ont ainsi pu être successivement modifiés durant l'étude à savoir la concentration en  $O_2$  et l'apport en ortho phosphates. Tout d'abord, a été appliquée une concentration en  $O_2$  de 1,5 mg/L en Mai, puis à partir de Septembre une concentration en  $O_2$  de 0,8 mg/L, puis un arrêt de l'apport d'acide phosphorique en Novembre. L'âge de boues, la température, le pH et le taux de circulation étant fixés au plus proche du dimensionnement. Durant cette étude, seule une des deux files de traitement (file sud) a été suivie.

### 1.3. CAMPAGNES DE MESURES 24H

Les campagnes de mesure 24H ont principalement comme objectif de mesurer les performances réelles du procédé en lien avec le paramètre testé. Ces mesure 24h sont réalisées sur le réacteur avec :

- le lancement d'un échantillonneur réfrigéré 24 flacons en entrée du réacteur (après refroidissement des effluents pompés dans le bassin tampon),
- la multiplication des prélèvements manuels instantanés en sortie, suivi d'une centrifugation, filtration et mise à 4°C immédiate des échantillons,
- la récupération des débits horaires d'alimentation qui permettent la reconstitution de l'échantillon moyen 24h,
- la mise en place d'une sonde de mesures en continu  $NH_4^+/NO_3^-$  en entrée du réacteur,
- la récupération auprès de l'exploitant, via la DIE, des mesures process durant la période comme la Température, le pH et l' $O_2$  dissous mesurés dans le réacteur, la concentration en N- $NH_4$  de sortie et les résultats des analyses journalières.

L'effluent à traiter est très spécifique avec une coloration foncée et une matrice très colloïdale. Le suivi analytique des performances du procédé a donc dû être adapté avec la mise en place d'une centrifugation-filtration immédiate des échantillons et le remplacement des prélèvements 24H, en sortie, par des prélèvements ponctuels instantanés.

#### Vitesses de nitrification en batch :

Parallèlement, des mesures de vitesses maximales de nitrification (nitritation et nitratisation) en batch (avec apport de N- $NH_4$ ) et de dénitrification (avec apport de N- $NO_2$  ou de N- $NO_3$ ) sont réalisées sur site. Elles consistent à mesurer des vitesses d'élimination/d'apparition des composés azotés dans le temps dans des conditions contrôlées.

- Vitesse de nitrification (nitritation + nitratisation) : Enceinte thermostatée pour maintenir une température proche de celle mesurée au sein du réacteur (35-40 °C), aération et agitation continue des boues du SHARON, dopage en N- $NH_4$  et Titre Alcalimétrique Complet (TAC) à T0 et prélèvements toutes les 30 mn. Ceux-ci sont immédiatement centrifugés, filtrés et stockés à 4 °C. Le pH, la température et l' $O_2$  sont suivis et modifiés si besoin au cours du temps par ajouts de quelques mL d'acide sulfurique ou de soude.
- Vitesse de dénitrification : Enceinte thermostatée pour maintenir une température proche de celle mesurée au sein du réacteur, agitation continue de boues du SHARON, dopage en N- $NO_2$  ou en N- $NO_3$  ainsi qu'en Méthanol à T0. Prélèvements toutes les 30 mn qui sont également immédiatement centrifugés, filtrés et stockés à 4 °C. Le pH est suivi et modifié si besoin au cours du temps.

L'ensemble des analyses chimiques a été réalisé par le laboratoire de la DIE, dès le lendemain des prélèvements.

#### Prélèvements pour quantification des micro-organismes

Les analyses microbiologiques ont été réalisées à l'UMR Ecobio de l'université de Rennes 1. Des prélèvements de 5 mL de boues, avant leur utilisation pour les batchs nitrifiants, ont été réalisés et conservés au frais avant d'être acheminés en carboglace jusqu'au laboratoire où ils ont été stockés en congélateur à -80 °C. Les densités de bactéries oxydant l'ammonium et oxydant le nitrite ont été estimées grâce à des mesures de nombre de copies de gènes fonctionnels (amoA et nxr respectivement) par PCR quantitative.

## 2. Résultats et discussion

### 2.1. CARACTÉRISATION DE L'EFFLUENT

La caractérisation moyenne de l'effluent à traiter lors des mesures est présentée dans le Tableau 2.

	Mai	Sept.	Nov.	Dim
Volume journalier traité (m <sup>3</sup> /j)	1035	1424	1257	1279
Age de boue moyen (j)	4,1	3,1	3,4	3,35
Concentration appliquée (mg N-NH <sub>4</sub> /L)	940	852	830	1038

Dim : données de dimensionnement constructeur

**Tableau 2 : Caractérisation de l'effluent en entrée SHARON®**

Le volume journalier d'alimentation du SHARON dépend de l'état de colmatage du système de refroidissement et de la concentration en N-NH<sub>4</sub> mesurée dans le réacteur. Le taux de charge hydraulique lors de nos campagnes est ainsi proche du dimensionnement et se situe entre 81 à 110 %, avec un maximum en Septembre.

Le temps de séjour hydraulique du système étant égal à l'âge de boues, celui-ci est également proche du dimensionnement moyen du procédé. Les concentrations en N-NH<sub>4</sub> mesurées en entrée sont en moyenne de 875 mg N-NH<sub>4</sub>/L et décroissent avec le temps.

Ces données permettent de calculer les flux journaliers appliqués au procédé (Tableau 3).

	Mai	Sept.	Nov.	Dim
Charge appliquée (kg N-NH <sub>4</sub> /j)	973	1205	1044	1328
Charge volumique appliquée (kg N-NH <sub>4</sub> /m <sup>3</sup> aéré.j)	0,34	0,42	0,36	0,46
Taux de charge en N-NH <sub>4</sub> (%)	73	91	79	100

Dim : données de dimensionnement constructeur

**Tableau 3 : Paramètres mesurés en entrée SHARON®**

Le taux de charge calculé en N-NH<sub>4</sub> est variable suivant la période, et le plus proche du dimensionnement en septembre (91%).

### 2.2. CARACTÉRISTIQUES DES REJETS ET PERFORMANCES MESURÉES

Les résultats des analyses réalisées sur les prélèvements moyens en sortie du procédé sont présentés dans le Tableau 4 et les performances de traitement dans le Tableau 5.

	Mai	Sept.	Nov.	Dim
NH <sub>4</sub> (mg N/L)	215	30,3	81	< 50
NO <sub>2</sub> (mg N/L)	25,1	39,6	43,6	
NO <sub>3</sub> (mg N/L)	1,75	5,2	1,85	
NO <sub>x</sub> (mg N/L)	26,85	44,8	45,5	< 50
Ratio N-NO <sub>2</sub> /NO <sub>x</sub> (%)	93,5%	88%	95,8%	-

Dim : données de dimensionnement constructeur

**Tableau 4 : Concentrations mesurées en sortie du SHARON® (file Sud)**

On observe, suivant la campagne de mesures, des concentrations en N-NH<sub>4</sub> très variables en sortie. Parallèlement, les concentrations en NO<sub>x</sub> augmentent avec le temps et sont à rapprocher principalement des concentrations en Nitrites (N-NO<sub>2</sub>) très nettement supérieures aux concentrations en Nitrates (N-NO<sub>3</sub>).

Le ratio  $N-NO_2/NO_x$  mesuré en sortie du réacteur SHARON est compris entre 88 et 96 %. Pour un fonctionnement du procédé stabilisé, ce ratio témoigne que plus de 88 % de l'ammonium présent en entrée est transformé en Nitrite sans passer par la forme nitrate, illustrant une nitrification partielle par shunt des nitrates bien établie. Parmi les trois campagnes de suivi, seuls les rejets de septembre sont inférieurs aux normes de rejets demandées. Les dépassements en  $N-NH_4$  en mai et novembre illustrent une nitrification insuffisante, la dénitrification étant convenable au regard des rejets en  $NO_x$ .

	Mai	Sept.	Nov.	Dim
$N-NH_4$ éliminé (Kg $N-NH_4$ /j)	750.4	1162	942,4	
Rendement $N-NH_4$ éliminé (%)	77,1 %	96,4 %	90,2	~ 95
Rendement N ( $NO_x+NH_4$ ) éliminé (%)	74 %	91,2 %	85 %	~ 91

Dim : données de dimensionnement constructeur

Tableau 5 : Performances mesurées

## 2.3. PARAMÈTRES DE FONCTIONNEMENT

Les paramètres de fonctionnement du réacteur durant les jours de mesure sont résumés dans le Tableau 6.

	Mai	Sept.	Nov.
Concentration en MES (mg/L) / % MVS	2,40	1,40 (62 %)	2,04 (67 %)
Age de boues aéré (j)	2,8	2,05	2,3
Consigne en $O_2$ (mg $O_2$ /L)	1,5	0,8	0,8
Mesures moyenne en $O_2$ (mg $O_2$ /L)	1,47	2,23	4,05
Taux de recirculation	22 X	20 X	21,5 X
pH	7,95	7,7	7,3
T°C	39,5	42,4	38,5
P- $PO_4$ (mg P/L)	1,4	1,4	0,87
TAC (mg $CaCO_3$ /L)	933	546	390

MES = Matière en suspension ; MVS = Matière volatile en suspension

Tableau 6 : Paramètres de fonctionnement du SHARON®

En examinant l'évolution dans le temps de l'ensemble de ces paramètres avant chaque campagne (stabilité du système recherché sur les 15 jours avant les mesures), on observe qu'à l'échelle industrielle certains facteurs sont difficilement maîtrisables et constamment modifiés. Ainsi l'âge de boue aéré, la T°C et le pH oscillent régulièrement tout en restant proches des données de dimensionnement (âge de boue aéré de 2.26 jours, T°C > 35°C, pH proche de 7). La concentration en MES (et MVS) du réacteur varie de façon importante d'une campagne à une autre en fonction des flux particuliers à l'alimentation.

La présence constante en sortie de réacteur de TAC, P- $PO_4$  et DCO soluble montre que ces paramètres n'ont pas été des facteurs limitants pour le développement de la biomasse et le traitement des retours au sein du SHARON. La consigne en  $O_2$  de 0,8 mg/L demandée n'a pas pu être obtenue lors des deux campagnes de septembre et novembre. Ces écarts s'expliquent par un débit minimal des surpresseurs trop élevé, couplé à des variations de charges appliquées en  $N-NH_4$  et de concentration en biomasse dans le bassin.

Ainsi, aucune réelle corrélation n'a été observée sur nos trois périodes de mesures entre les performances de Nitrification et Nitrification mesurées et les différentes variations des paramètres process, comme le pH, la T°C ou l' $O_2$ . En exploitation, il semble donc que piloter le SHARON avec une température élevée (> 35 °C), un effluent concentré induisant une charge d'alimentation en  $N-NH_4$  stable et proche du nominal, tout en maintenant un âge de boue faible (de l'ordre de 3,35 jours) permette d'assurer une nitrification partielle (shunt des nitrates) élevée. Pour la dénitrification, la baisse de performance observée en septembre semble liée au taux de circulation des boues entre les deux réacteurs (aérobie/anoxie) plus faible et à l'apport de quantité de méthanol (carbone exogène pour la dénitrification) également inférieur aux autres périodes.

## 2.4. VITESSES DE NITRIFICATION EN BATCH

Les mesures de l'évolution des différentes formes de l'azote dans le temps permettent de calculer des vitesses d'apparition ou de disparition de composés azotés comme illustré en exemple par la Figure 2 suivante.

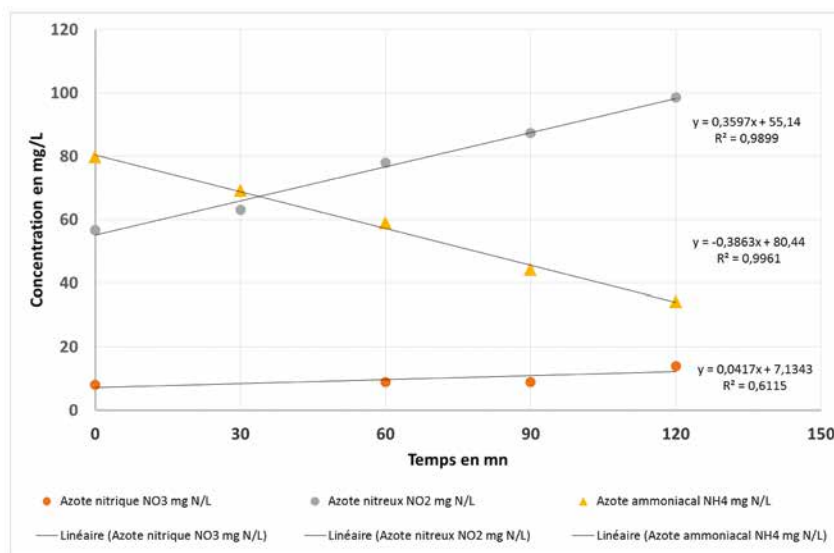


Figure 2 : Exemple de courbe de cinétique de Vitesse de nitrification obtenue en Batch

Les résultats moyens obtenus sont résumés dans le Tableau 7.

	Mai	Sept.	Nov.
Vitesses de Nitritation (mg N-NO <sub>2</sub> formé /L.h)	18,1	18,7	19,4
Vitesses de Nitratation (mg N-NO <sub>3</sub> formé/L.h)	1,64	1,1	0,86
Ratio vitesses (N-NO <sub>2</sub> /NO <sub>x</sub> ) (%)	92	94	96

Tableau 7 : Vitesses moyennes mesurées en Batch

Les vitesses en batch obtenues sont dites maximales en absence de facteur limitant. La concentration en O<sub>2</sub> dissous et le pH sont corrigés régulièrement mais certains paramètres pouvant influencer les cinétiques ont varié entre les trois campagnes de tests. C'est le cas de la température et de la concentration initiale des formes de l'azote.

On observe des vitesses maximales de nitritation, en mg N-NO<sub>2</sub> formé/L.h, semblables et légèrement en hausse pour les différentes campagnes de mesures. Inversement, les vitesses de nitratation, en mg N-NO<sub>3</sub> formé/L.h sont faibles et en diminution. Il en résulte des ratios Vitesse N-NO<sub>2</sub> formé/Vitesse NO<sub>x</sub> formé élevés et stables se situant entre 92 et 96 %. Cette stabilité indiquerait une répartition identique entre les populations bactériennes oxydant l'ammonium (AOB) et les populations bactériennes oxydant le nitrite (NOB) au sein du SHARON durant nos mesures à savoir une nette dominance des bactéries nitritantes par rapport aux bactéries nitratantes.

La standardisation des vitesses mesurées en les ramenant aux matières volatiles en suspension (MVS) donne les résultats suivants 11,1 ; 21,7 et 14,18 mg N-NO<sub>2</sub> formé/g MVS.h<sup>-1</sup> respectivement pour les campagnes de mai, septembre et novembre. Cette approche est discutable pour ce système alimenté avec des retours de centrifugation des boues digérées. En effet, on ne connaît pas le ratio entre les bactéries actives et inactives au sein des MVS présentes dans le procédé.



## 2.5. VITESSES DE DÉNITRIFICATION EN BATCH

L'évolution des différentes formes de l'azote dans le temps permettent de calculer des vitesses de disparition des  $\text{NO}_2$  et  $\text{NO}_3$ . Les résultats moyens obtenus sont résumés dans le Tableau 8.

	Mai	Sept.	Nov.
Vit. de Dénitritation mg N- $\text{NO}_2$ dénitrifié /L.h	19,8	23,5	16,8
Vit. de Dénitritation mg N- $\text{NO}_3$ dénitrifié /L.h	5,9	5,1	6,2

Tableau 8 : Vitesses moyennes mesurées en Batch

Les vitesses mesurées sont du même ordre de grandeur que les vitesses de Nitrification. On observe des vitesses maximales de Dénitritation, en mg N- $\text{NO}_2$  dénitrifié/L.h, nettement supérieures aux vitesses maximales de Dénitritation pour les trois campagnes de mesures. Cette différence est cohérente avec le fonctionnement du procédé et l'existence du shunt des Nitrates, la forme Nitrate étant minoritaire.

## 2.6. SUIVI DE LA COMPOSITION DES POPULATIONS MICROBIENNES NITRIFIANTES

L'approche microbiologique moléculaire de quantification des micro-organismes nitrifiants a permis de valider la dominance des bactéries oxydant l'ammonium (AO) sur celles oxydant le nitrite (NO, voir Figure 3). Si les nombres de copies de gènes fonctionnels des AO et des NO sont stables pour les trois périodes, lorsqu'ils sont considérés séparément, leurs proportions respectives varient de façon plus importante. En effet, il est observé que les gènes des AO sont 66 fois plus abondants que ceux des NO en novembre contre 277 fois plus en septembre.

Plus que des différences d'abondance entre les trois conditions testées, il semblerait que ce sont des espèces d'AO et/ou NO différentes qui sont majoritaires dans le SHARON. Ainsi, en mai, une population de NO très distincte a été remarquée alors que c'est une population d'AO qui est inédite en septembre. Ces taxons sont en cours d'identification.

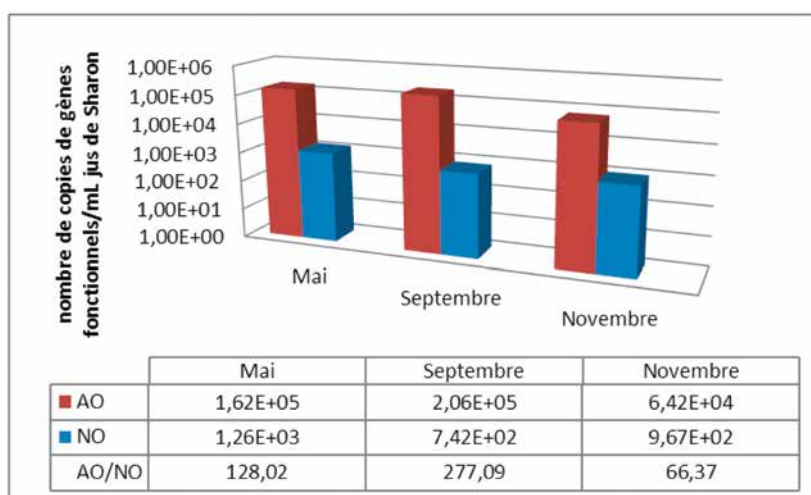


Figure 3 : Nombre de copies de gènes présents permettant d'estimer les densités de bactéries oxydant l'ammonium (AO, rouge) et le nitrite (NO, bleu), ainsi que le ratio entre les deux pour les trois périodes d'étude du réacteur SHARON®

### 3. Limites opérationnelles

Outre l'influence des paramètres d'exploitation sur la composition des populations microbiennes, et donc sur les performances de traitement, cette étude a permis de proposer certains points de vigilance et des préconisations à suivre ou à mettre en œuvre pour un fonctionnement optimisé pérenne du procédé SHARON. En effet, le fonctionnement du SHARON sur des bases proches du nominal se heurte à des dysfonctionnements du matériel en place comme par exemple :

- › un surdimensionnement probable des surpresseurs qui empêche le maintien dans le temps d'une consigne en  $O_2$  dissous faible ( $< 1.5 \text{ mg } O_2/L$ ),
- › un colmatage régulier des échangeurs de chaleur qui conduit à brider involontairement le débit et donc les flux en  $N-NH_4$  d'alimentation des réacteurs,
- › des sondes de mesures des  $NO_x$  non opérationnelles du fait probablement de la forte coloration des effluents.

Le contrôle de la température des effluents reste également un point qui nécessite une attention particulière. En effet, la gestion de la température du réacteur par dilution des effluents avec de l'eau traitée entraîne un lessivage de la biomasse, et donc un traitement dégradé du procédé. Etant donné que les protocoles de nettoyage manuels des échangeurs (lavage à co-courant, chimiques, et mécaniques) restent très contraignants en exploitation, d'autres solutions doivent être trouvées pour permettre un meilleur fonctionnement du procédé.

### Conclusion

Le suivi du procédé SHARON a permis de mesurer par différentes approches (bilan 24H, prélèvements instantanés, mesures de vitesses en batch, microbiologie moléculaire) l'existence d'une nitrification partielle ou shunt des nitrates importante et constante. En effet, les concentrations mesurées en  $N-NO_2$  de sortie sont nettement supérieures à celles en  $N-NO_3$  et permettent d'obtenir un ratio de concentrations  $N-NO_2/NO_x$  supérieur à 88 %, ratio mesuré aussi bien au niveau du réacteur que lors des tests en batch. De même, au niveau microbiologie moléculaire, les abondances de bactéries AO et NO mesurées sont stables dans le temps avec une dominance nette des bactéries AO.

Malgré un protocole d'étude rigoureux, on observe qu'à l'échelle industrielle certains facteurs sont instables et difficilement maîtrisables. Ainsi, aucune corrélation n'a été observée lors de cette étude entre les performances mesurées de Nitritation et Nitratation et les différentes variations des paramètres process, comme le pH, la température ou l' $O_2$ . La variabilité des performances de nitrification est à rapprocher du fonctionnement à grande échelle d'un système à faible temps de séjour. La moindre variabilité d'alimentation en  $N-NH_4$  est visible sur la qualité du traitement.

En exploitation, il semble que piloter le SHARON avec une température élevée ( $> 35 \text{ }^\circ\text{C}$ ), un effluent concentré induisant une charge d'alimentation en  $N-NH_4$  stable et proche du nominal, et en maintenant un âge de boue total faible (de l'ordre de 3,35 jours) permette d'assurer une nitrification partielle (shunt des nitrates) élevée.

Outre les interrogations sur le choix du matériel en place (dimensionnement des surpresseurs et des systèmes d'échangeur de chaleur, choix des sondes de mesure), cette étude a permis à l'exploitant de bien prendre en main le procédé (mode d'alimentation, fiabilité des mesures en continue, suivi fin des performances, modification régulière des consignes automate) et d'améliorer le suivi analytique de son procédé (tests de sonde de mesures, filtration immédiate nécessaire des échantillons, conservation avant mesure).

### Remerciements

Nos remerciements vont aux personnes du Siaap qui ont permis le bon déroulement de ces mesures de terrain, particulièrement Céline Briand du Service Expertise et Prospective de la Direction Innovation et Environnement et Henry Roda, Responsable adjoint d'exploitation de l'Usine d'épuration Seine Grésillons et son équipe.

## Bibliographie

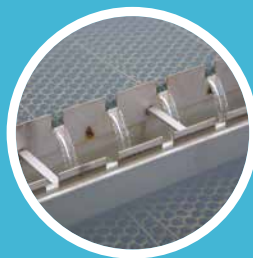
- AZIMI S., ROCHER V. (2017) : « Energy consumption reduction in a waste water treatment plant. » *Water Practice and Technology* ; 12(1) : 104-116.
- GE S. *et al.* (2015) : « Detection of nitrifiers and evaluation of partial nitrification for wastewater treatment: A review. » *Chemosphere* ; 140 : 85-98
- HELLINGA C. *et al.* (1998) : « The Sharon process: An innovative method for nitrogen removal from ammonium-rich waste water. » *Water Science and Technology* ; V.37 : 135-142.
- PAN Y. *et al.* (2013) : « Electron competition among nitrogen oxides reduction during methanol-utilizing denitrification in wastewater treatment. » *Water Research* ; 47 : 3273-3281
- PENG Y., ZHU G. (2006) : « Biological Nitrogen Removal with Nitrification and Denitrification via Nitrite Pathway. » *Applied Microbiology and Biotechnology* ; 73 : 15-26
- ROCHER V., PAFFONI C., GONCALVES A., GUERIN S., AZIMI S., GASPERI J., MOILLERON R., PAUSS A. (2012) : « Municipal wastewater treatment by biofiltration: comparisons of various treatment layouts. Part 1: assessment of carbon and nitrogen removal. » *Water Science and Technology* ; 65(9) : 1705-1712.
- SINHA B. *et al.* (2007) : « Partial nitrification-operational parameters and microorganisms involved. » *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology* ; V.6 : p.285-313.
- VASQUEZ-RODRIGUEZ G.A., ROLS J.-L. (1996) : « Etude du processus de nitrification avec boues activées : effet inhibiteur de l'ammoniac sur les bactéries nitrifiantes. » *Revue des Sciences de l'Eau* ; 3 : 359-375.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- CANLER J.P., PERRET J.M. (2016) : *Supports de Présentation « Evaluation du procédé Sharon », séminaire thématique sur la problématique du traitement des jus de digestion au sein de la Cité de l'Eau et de l'Assainissement du Siaap, Colombes, France 28 juin 2016.*
- LAVERMAN A.M., QUENETTE F., ROOSE-AMSALEG C. (2015) : *Communautés microbiennes nitrifiantes du procédé SHARON – Abondance des oxydants de l'ammonium et du nitrite. Rapport d'activité du programme Mocopée, 7p.*



## Modélisation des procédés de traitement en station d'épuration





# Calibration et validation d'un modèle de décantation physico-chimique à l'échelle industrielle, le modèle Simdec

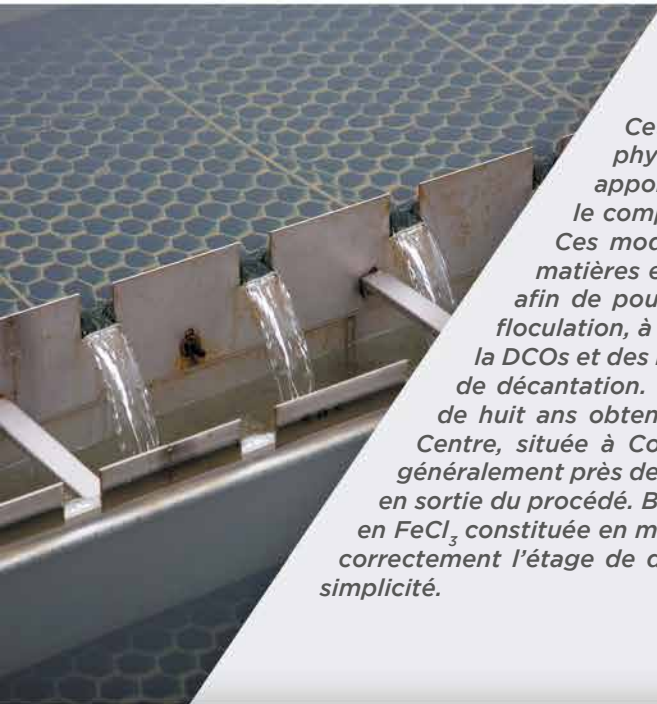
## Calibration and validation of a chemically assisted primary settling model on a full-size process

Jean Bernier<sup>[1]\*</sup>, Paul Lessard<sup>[2]</sup>, Vincent Rocher<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Siaap, Direction de l'Innovation et de l'Environnement, Colombes

<sup>[2]</sup> Université Laval, Département de Génie Civil et de Génie des Eaux, Québec

\* Auteur de correspondance : [jean.bernier@siaap.fr](mailto:jean.bernier@siaap.fr)



*Cette étude s'intéresse au procédé de décantation primaire physico-chimique. Des modifications relativement simples ont été apportées à un modèle de décantation à une dimension afin de simuler le comportement d'un décanteur primaire physico-chimique lamellaire. Ces modifications concernent en premier temps le fractionnement des matières en suspension (MeS) en plusieurs variables composites et d'état, afin de pouvoir simuler des polluants autres que les MeS. Un réacteur de floculation, à l'intérieur duquel l'effet du chlorure ferrique sur l'abattement de la DCOs et des  $PO_4^{3-}$  est simulé, est ensuite ajouté au modèle en amont du bassin de décantation. Le modèle est ensuite calibré et validé sur un jeu de données de huit ans obtenues sur l'étage de décantation primaire de la station Seine-Centre, située à Colombes en Île-de-France. Les prédictions du modèle sont généralement près des observations et suivent les tendances observées sur l'eau en sortie du procédé. Bien que calibré sur une plage de concentrations injectées en  $FeCl_3$  constituée en majorité de valeurs élevées, le modèle parvient à simuler correctement l'étage de décantation primaire étudié et ce, malgré sa relative simplicité.*

Décantation primaire - Décantation physico-chimique -  
Lamelles - Modélisation - Station d'épuration

## Introduction

L'évolution de la réglementation, qui impose un retour à une qualité écologique élevée des milieux récepteurs, conduit à devoir gérer les stations d'épuration avec un niveau d'exigence important et stable dans le temps, et ce tout en optimisant la pérennité des ouvrages et en minimisant les coûts. Il s'agit donc d'une tâche complexe qui nécessite l'utilisation de modèles mathématiques comme outils de gestion et d'aide à la décision. Dans ce contexte, dans le cadre de la première phase du programme Mocopée (2014-2017), une action dédiée à la construction de modèles de prédiction du fonctionnement des décanteurs physico-chimiques et à leur application dans un but d'optimisation des injections de réactifs coagulant-floculant a été engagée par l'Université Laval et le Siaap.

La décantation physico-chimique est, comme son nom l'indique, un procédé de séparation solides-liquide utilisé pour retirer une partie des particules en suspension d'une eau usée. Comparativement à la décantation conventionnelle, dans ce cas-ci une certaine combinaison de sels métalliques et de polymères est ajoutée et mélangée à l'eau en étapes successives en amont du bassin de décantation (METCALF & EDDY, 2003). Ces réactifs favorisent de manière importante la coagulation et la floculation des particules par le biais de plusieurs mécanismes différents. Ils produisent ainsi des matières en suspension plus grosses, plus lourdes et donc plus faciles à décanter (ØDEGAARD, 1998 ; KILANDER *et al.*, 2006). Ceci résulte donc en une réduction de la taille des décanteurs nécessaire pour une même efficacité d'enlèvement des matières en suspension. Les sels métalliques fréquemment utilisés ont également la propriété de réagir avec les ions de phosphate présents dans l'eau usée et d'ainsi produire différentes formes de précipités phosphorés, précipités qui peuvent ensuite être décanterés en



même temps que les autres MeS (SZABÓ *et al.*, 2008). Les décanteurs physico-chimiques peuvent donc aussi être utilisés pour réaliser un enlèvement partiel du phosphore. Les efficacités d'abattement rapportées dans la littérature sont de 60-90 % pour les MeS et de 65-95 % pour le phosphore, comparativement à respectivement 50-70 % et 5-10 % pour la décantation conventionnelle (DE FEO *et al.*, 2008).

Bien que plusieurs études aient été menées dans le passé quant à l'efficacité du procédé et à comment l'améliorer, seules quelques-unes se sont concentrées sur sa modélisation. TAY (1982) a proposé un modèle empirique très simple comprenant un seul paramètre pour estimer l'efficacité d'enlèvement des MeS d'un décanteur. L'auteur précise que son modèle est capable de reproduire à la fois des données observées sur des décanteurs conventionnels, lamellaires et physico-chimique, en modifiant simplement la valeur du seul paramètre utilisé. TIK *et al.* (2013) ont de leur côté utilisé un modèle à une dimension consistant en une version quelque peu modifiée du travail de TAKÁCS *et al.* (1991). Ces modifications ont surtout consisté en l'ajout de deux fonctions continues servant à décrire l'effet de la dose d'alun ajoutée sur la fraction non-décantable des MeS ainsi que sur leur vitesse de chute maximale. Leur modèle a été calibré sur un jeu de données récoltées sous diverses conditions de MeS en entrée et d'alun dosé, après quoi il a été utilisé pour évaluer diverses stratégies de contrôle du dosage de réactifs. De manière plus fondamentale, les modèles de population (COUFORT *et al.*, 2007) peuvent également être utilisés pour simuler l'effet du mélange et de l'ajout de réactifs sur la distribution des tailles de particules.

Pour ce qui est de la précipitation des phosphates, quelques modèles ont aussi été proposés, la plupart pour le chlorure ferrique. En général, plusieurs réactions décrivant les interactions possibles entre les ions ferriques, phosphates et l'eau sont considérées, et les concentrations finales de chaque composant sont déterminées à l'aide de constantes d'équilibre. Certaines de ces constantes sont fixées à partir de valeurs issues de la littérature scientifique, tandis que d'autres sont utilisées comme paramètre de calibration. Les modèles proposés par FYTIANOS *et al.* (1998) et TAKÁCS *et al.* (2006) font par exemple partie de cette catégorie, chacun d'eux considérant un jeu de réactions chimiques légèrement différent. SMITH *et al.* (2008) ont de leur côté proposé un modèle basé sur l'hypothèse que le phosphate est enlevé de l'eau par un mécanisme de complexation en surface des hydroxydes de fer.

La plupart des travaux résumés ici ont été réalisés à partir de données issues de bassins de décantation à l'échelle pilote ou industrielle dans le cas de la simulation des MeS. Pour le  $\text{PO}_4^{3-}$  par contre, la calibration des différents modèles a principalement été faite à l'aide de données laboratoire, hormis pour TAKÁCS *et al.* (2006) qui ont présenté des résultats sur une STEP de taille industrielle. Même dans ce dernier cas, les résultats de simulation et d'observations ne sont comparés que sur la base d'une moyenne annuelle. Peu d'expériences sur la simulation concomitante de l'enlèvement des MeS et des phosphates dans un décanteur physico-chimique à grande échelle n'ont été rapportés pour l'instant. Le but de ce travail est donc de présenter une modification relativement simple faite à un modèle de décantation des eaux usées à une dimension afin de prendre en compte la dose de chlorure ferrique utilisée sur son efficacité d'enlèvement.

## 1. Matériels et méthodes

### 1.1. DESCRIPTION DE LA STATION D'ÉPURATION

Un étage de décantation primaire physico-chimique à grande échelle a été étudié. Celui-ci constitue une partie du traitement effectué à la STEP Seine-Centre, située à Colombes en Île-de-France. La station est composée d'une première étape de dégrillage et dessablage/déshuilage, suivi de la décantation primaire étudiée. Des traitements secondaires et tertiaires sont ensuite effectués par trois étages de biofiltration. L'étape de décantation primaire consiste en neuf Densadeg® (Technologie Degrémont, Figure 1), qui sont des décanteurs lamellaires précédés par deux bassins de mélange en série, utilisés dans l'ordre pour l'injection de sels métalliques et de polymère.

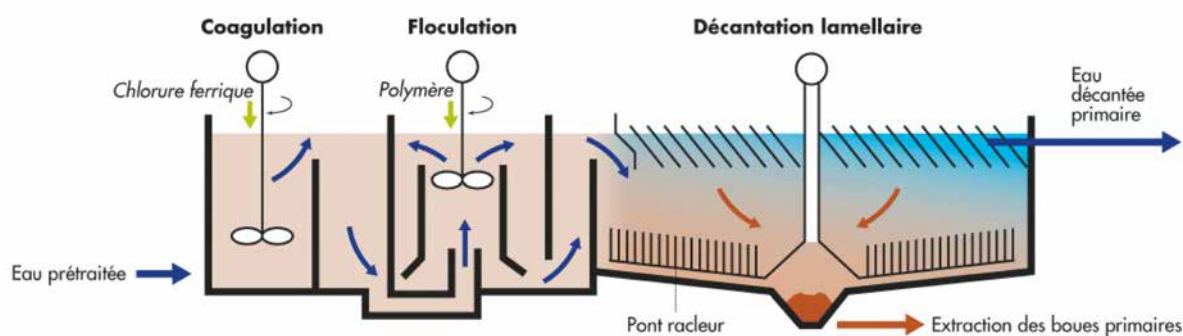


Figure 1 : Schéma de fonctionnement des décanteurs physico-chimiques lamellaires de la station Seine Centre (Colombes) – Densadeg (Technologie Degrémont)

Plus précisément, chaque décanteur est d'abord muni de deux bassins de mélange rapide de  $75 \text{ m}^3$  chacun suivi d'un bassin de flocculation de  $373 \text{ m}^3$ . Le bassin de décantation a quant à lui une surface de  $225 \text{ m}^2$  et un volume liquide de  $1640 \text{ m}^3$ . Les lamelles placées en sortie de bassin ont une surface horizontale projetée de  $1512 \text{ m}^2$ . Les conditions optimales de dosage des produits chimiques sont déterminées par jar-tests effectués à fréquences variables, et l'injection se fait ensuite de manière proportionnelle au débit d'eau usée. En pratique toutefois, la concentration en polymère est presque toujours fixée à  $1 \text{ mg/L}$ , et seule la valeur optimale de la concentration en chlorure ferrique varie. Les débits imposés par unité sont très stables, puisque le nombre de décanteurs en fonction est modifié selon le débit devant être traité.

## 1.2 JEUX DE DONNÉES UTILISÉES POUR LA CONSTRUCTION DU MODÈLE

Les jeux de données utilisés lors de cette étude consistent en l'analyse de plusieurs paramètres décrivant la qualité des eaux usées, réalisée sur des échantillons composites 24 h récoltés en amont des dessableurs et en sortie de décantation primaire. Ces paramètres incluent la DCO, la DCO filtrée (simplifié en DCOs), les MeS, le NTK, le  $\text{NH}_4^+$ , le Ptot, le  $\text{PO}_4^{3-}$  et le pH. Toutes ces mesures sont normalement effectuées de 5 à 7 jours par semaine. Les conditions d'opération telles que les débits d'eau, de boues et de réactifs sont mesurées sur l'étage de décantation complet. Ces données sont disponibles pour les années 2000 à 2008. Toutes les analyses sont effectuées au laboratoire d'analyse physico-chimique de la Direction Innovation et Environnement du Siaap (Accréditation COFRAC n°1-1452, portée disponible sur [www.cofrac.fr](http://www.cofrac.fr)).

## 1.3 DESCRIPTION DU MODÈLE UTILISÉ

Le modèle utilisé est une version légèrement modifiée de celui proposé par TAKÁCS *et al.* (1991), à l'origine pour la décantation secondaire. La configuration par défaut à 10 couches suggérée dans l'article original est aussi utilisée dans ce cas-ci, puisque très peu d'information sur le comportement hydraulique des décanteurs est disponible. Pour prendre en compte la présence de lamelles, leur surface horizontale projetée est ajoutée à celle du bassin de décantation dans le modèle. Afin de ne pas affecter le volume d'eau contenu dans le bassin par cet ajout artificiel de surface de décantation, la hauteur des décanteurs est diminuée de manière à conserver le même volume qu'en pratique et pour conserver un temps de résidence similaire.

Les modifications apportées au modèle proposé par TAKÁCS *et al.* (1991) sont les suivantes :

- (1) La première modification faite au modèle est proposée par GERNAEY *et al.* (2001) : la décomposition des MeS en variables particulières utilisées dans l'ASM1 (HENZE *et al.*, 1987) et l'inclusion de termes d'advection dans chaque couche pour les composants solubles, eux-aussi décrits par les variables ASM1 associées. Ceci permet au modèle de fournir des prédictions sur plusieurs variables autres que les MeS. En outre, une partie des particules en entrée est considérée inerte et participant aux MeS, mais pas à la DCO, ce que par défaut ne propose pas l'ASM1.
- (2) La seconde modification apportée est de considérer que les particules inertes possèdent une vitesse de chute différente que leur équivalent organique. Le but est dans ce cas-ci d'expliquer l'augmentation

observée du rapport DCO/MeS entre l'entrée et la sortie des décanteurs, les particules inertes n'étant comptabilisées que dans la mesure des MeS, pas de la DCO.

- (3) La troisième modification est faite pour prendre en compte l'effet du dosage de réactifs sur plusieurs variables durant le traitement. Pour simplifier les mécanismes relativement complexes impliqués dans la décantation physico-chimique, un réacteur de floculation, à l'intérieur duquel toutes les réactions sont considérées se produire, est placé en amont du modèle de décantation. Encore une fois, par manque d'informations sur l'hydraulique réelle de ces bassins sur Seine-Centre, ce réacteur est considéré être parfaitement mélangé. La première réaction y ayant lieu est la coagulation partielle de la DCO soluble en DCO particulaire. Il y a en effet une diminution de DCOs observée entre l'entrée et la sortie du traitement. Ce phénomène a été attribué à la coagulation par GERNAEY *et al.* (2001) dans leur étude de modélisation, phénomène qu'ils proposent de décrire par une cinétique d'ordre 1. Bien que cette étude ait porté sur la décantation primaire classique, le même mécanisme est utilisé dans ce cas-ci, suggérant que la coagulation de la DCOs n'est pas affectée, ou du moins limitée par la plage de dosage de chlorure ferrique utilisée à Seine-Centre.

La seconde réaction se produisant dans le bassin de floculation est la précipitation des phosphates. Un modèle simple comportant une seule réaction globale est utilisé, tel que proposé par Henze *et al.* (1999) pour l'abattement non-biologique du phosphore dans l'ASM2d. Le mécanisme proposé dans l'ASM2d est toutefois la formation directe de  $\text{FePO}_4$ , produit qui est réputé apparaître principalement lorsque le dosage initial du fer par rapport au phosphore est équimolaire ou inférieur. Puisque l'injection de chlorure ferrique à Seine-Centre est largement au-dessus de cette condition (99% du jeu de données est soumis à un rapport molaire initial de 1,4 ou plus), un produit final de réaction différent doit être considéré. Plusieurs études sur le sujet des réactions entre le  $\text{PO}_4^{3-}$  et le  $\text{Fe}^{3+}$  à concentrations élevées en fer ont trouvé des produits finaux de réaction différents. FYTIANOS *et al.* (1998) ont suggéré que le  $\text{Fe}_{2,5}\text{PO}_4(\text{OH})_{4,5}$  était probablement le produit final de la réaction, tandis que TAKÁCS *et al.* (2006) ont utilisé  $\text{Fe}_{1,6}\text{H}_2\text{PO}_4(\text{OH})_{3,8}$  dans leur modèle, en spécifiant que cette formulation devrait rester valide jusqu'à un dosage molaire de 1,6 Fe/P. LENTE *et al.* (2000) ont observé en conditions laboratoires que le précipité formé en présence de ce qu'ils ont appelé un large excès de fer était composé de 4 atomes de fer par atome de phosphore. SZABO *et al.* (2008) ainsi que EL SAMRANI *et al.* (2004) suggèrent plutôt que le rapport Fe/P du précipité formé varie en fonction du rapport Fe/P dosé.

Afin de garder le modèle simple, le produit de réaction proposé par FYTIANOS *et al.* (1998) a été d'abord supposé. À cause de l'incertitude quant à la nature exacte du précipité final, sa stœchiométrie a été considérée comme étant un paramètre modifiable durant la calibration du modèle. Un précipité de  $\text{Fe}_\alpha\text{PO}_4(\text{OH})_{3(\alpha-1)}$  a donc été considéré, avec une valeur par défaut de  $\alpha$  de 2,5. Une seule réaction est donc supposée se produire, ce qui implique également que celle-ci se produit assez rapidement pour qu'il n'y ait pas apparition de produits intermédiaires.

Finalement, bien que l'effet de la dose de réactifs sur l'enlèvement des MeS devait à l'origine être inclus dans le modèle, l'efficacité d'abattement observée sur le procédé est demeurée quasi-constante pour toute la période étudiée, peu importe la concentration de chlorure ferrique injectée. Les 10<sup>e</sup> et 90<sup>e</sup> percentiles sur l'efficacité d'enlèvement sont respectivement de 79,9 et 91,7 % pour tout le jeu de données, tandis que leur équivalent pour la dose de fer utilisée est de 25,6 et 40,1 mg $\text{FeCl}_3$ /L. Cette variation d'efficacité semble plus aléatoire qu'autre chose, puisque le coefficient de corrélation entre ces deux variables n'est que de 0,16. Aucune équation n'est donc présentement incluse au modèle pour décrire ce phénomène, du moins jusqu'à ce qu'un jeu de données plus riche en information ne soit disponible pour le faire correctement. De manière similaire, le pH est quasiment constant en entrée de décantation ( $7,94 \pm 0,15$ ) et diminue en moyenne de moins de 4 % durant le traitement. Son effet n'a pas été intégré au modèle, bien qu'il soit reconnu dans la littérature comme ayant un impact important sur la coagulation.

## 1.4 MÉTHODES DE CALIBRATION ET VALIDATION DU MODÈLE

Le modèle est d'abord calibré sur environ la moitié du jeu de données disponible de 2000 à 2008 (les 1650 premiers jours de 3230). La vitesse de chute moyenne des particules ainsi que la fraction non-décantable des MeS en entrée sont calibrées en premier afin d'avoir une correspondance aussi bonne que possible sur la mesure de MeS et de DCO en sortie. Les constantes cinétiques des réactions se produisant dans le bassin de floculation ainsi que la stœchiométrie du précipité  $\text{Fe-OH-PO}_4$  produit sont ensuite calibrées pour faire correspondre les simulations aux mesures de DCOs et de  $\text{PO}_4^{3-}$ . Le fractionnement de la DCO en parties solubles et particulaires

est déterminé à partir du rapport moyen entre les mesures de DCOs et DCO sur toute la période de calibration.

Le modèle est ensuite validé sur le reste du jeu de données de 2000 à 2008. La précision du modèle est évaluée de manière qualitative et quantitative durant la calibration et la validation, en utilisant des scores statistiques décrivant l'importance des erreurs de prédiction. L'erreur moyenne, l'erreur moyenne absolue et le coefficient de Janus sont utilisés à cette fin (HAUDUC, 2010).

## 2. Résultats et discussion

### 2.1 RÉSULTATS DE CALIBRATION

Les résultats de calibration du modèle sont présentés à la Figure 2 pour les MeS. Aux fins de clarté, seule la sortie des décanteurs pour une partie de la période simulée est présentée. Tel que visible à la Figure 2, les prédictions et les observations varient presque constamment d'un jour à l'autre. Le modèle n'arrive donc que rarement à simuler une concentration de sortie parfaitement égale à ce qui est mesuré. Les prédictions arrivent tout de même à varier autour et avec la même amplitude que les observations la plupart du temps. De même, les variations saisonnières légères sont bien reproduites. Ces variations sont dues en grande partie à celles observées en entrée de procédé. Les observations particulièrement élevées ou faibles ne sont par contre pas simulées correctement. Ceci pourrait être dû en partie à des changements dans le temps de la vitesse moyenne de chute des particules, par variation naturelle et/ou sous l'effet d'un changement de dosage de chlorure ferrique. Malheureusement, aucun de ces facteurs ne peut être quantifié et implanté dans le modèle actuellement.

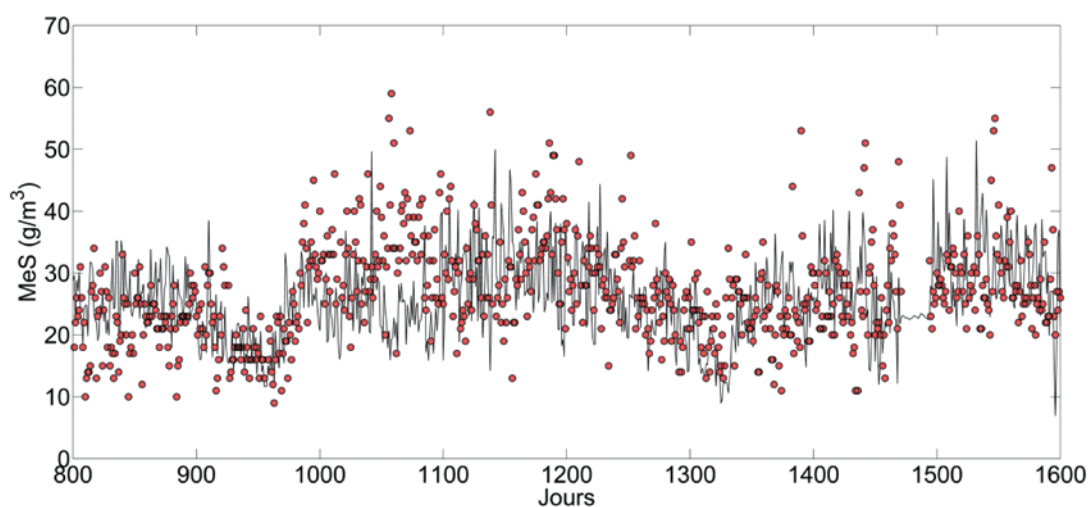


Figure 2 : Résultats partiels de calibration des MeS en sortie de décantation primaire en 2000-2008 (points : observations, ligne : simulation)

La Figure 3 montre les résultats partiels de calibration sur les phosphates. La période illustrée dans ce cas-ci est différente que pour les deux autres figures. La limite de quantification de l'analyse associée a en effet augmenté à partir du jour 700, et une bonne partie des mesures effectuées entre les jours 800 à 1600 se trouvent précisément sous ou sur cette limite. De fait, cette période est peu intéressante du point de vue simulation. Tel qu'affiché en Figure 3, deux périodes successives de pics de concentration en phosphates en sortie se produisent autour des jours 275-350 et 400-450. Durant ces périodes, une augmentation importante de la concentration en entrée se produit, tandis que la dose de chlorure ferrique injectée est augmentée, mais seulement après un certain délai. Hors de ces périodes, la sortie mesurée se situe quasiment constamment à ou sous la limite de quantification. Hormis pour la partie du jeu de données située après le jour 700, dans la Figure 3, le modèle parvient à bien prédire les concentrations observées, quoiqu'en surestimant quelques pics. Ceci pourrait être dû à l'utilisation d'un seul produit final de réaction entre le fer et les phosphates dans le modèle, alors qu'il semblerait que la nature de celui-ci soit variable en fonction du ratio molaire Fe/P initial (EL SAMRANI *et al.*, 2004). Ainsi, durant ces pics où le ratio Fe/P dosé varie de manière importante, le précipité formé pourrait être différent de la forme considérée, ce qui mènerait parfois à une erreur de prédiction.

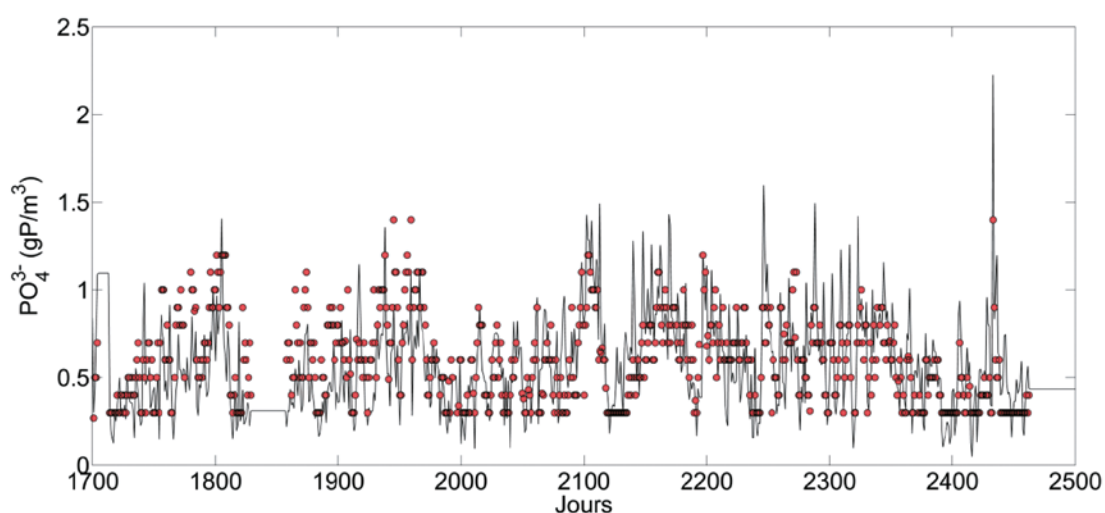


Figure 3 : Résultats partiels de calibration du  $\text{PO}_4^{3-}$  en sortie de décantation primaire en 2000-2008 (points : observations, ligne : simulation)

Le Tableau 1 résume les résultats des différents scores statistiques calculés pour la période de calibration pour toutes les variables simulées. Dans tous les cas, l'erreur moyenne (EM) est très faible, indiquant un biais négligeable du modèle. Les erreurs moyennes absolues (EMA) montrent toutefois que l'ampleur de l'erreur est différente pour chaque variable. L'EMA sur les MeS n'est que de  $7,7 \text{ g/m}^3$ , mais comparativement à la moyenne observée en sortie, ceci demeure relativement élevé (30 %). Il en va de même pour les  $\text{PO}_4^{3-}$ , pour lesquels l'EMA et l'observation moyenne ( $0,34 \text{ gP/m}^3$ ) sont toutes les deux faibles. Le contraire se produit plutôt pour la DCO et la DCOs, pour lesquels l'EMA et la moyenne observée sont plus élevées (EMA formant respectivement 14 et 15 % de la moyenne observée). Les erreurs de simulation sur le NTK sont très faibles, principalement parce que cette variable est très peu affectée par la décantation.

Variable	Calibration			Validation			Janus
	N	EM	EMA	n	EM	EMA	
MeS ( $\text{g/m}^3$ )	1484	0,2	7,7	1376	-1,4	7,8	1,03
DCO ( $\text{gO}_2/\text{m}^3$ )	1486	-1,8	16,3	1386	-8,4	22,6	1,36
DCOs ( $\text{gO}_2/\text{m}^3$ )	1022	3,3	12,1	963	-1,0	15,1	1,26
NTK ( $\text{gN}/\text{m}^3$ )	1025	0	1,2	966	-0,2	1,7	1,47
$\text{PO}_4^{3-}$ ( $\text{gP}/\text{m}^3$ )	1488	-0,1	0,1	1395	0	0,2	1,25

Tableau 1 : Résultats des scores statistiques pour les périodes de calibration et validation pour toutes les variables simulées

Les mécanismes d'enlèvement des phosphates utilisés dans le modèle sont basés sur ceux de HENZE *et al.* (1999), qui ne proposent pas de valeur par défaut pour les constantes de vitesse de réaction. Celles-ci sont par contre réputées se dérouler rapidement (LENTE *et al.*, 2000), donc une valeur relativement élevée de  $400 \text{ m}^3/\text{g.j}$  a été utilisée. Le produit final de réaction entre le fer et les phosphates a été légèrement modifié de sa nature initialement considérée pour calibrer le modèle sur les observations de Seine-Centre. Dans ce cas, 2,3 atomes de  $\text{Fe}^{3+}$  réagissent avec un atome de  $\text{PO}_4^{3-}$ , plutôt que 2,5. Enfin, le facteur d'amplification de la vitesse de chute des particules inorganiques n'est malheureusement pas un paramètre pour lequel des valeurs par défaut ont pu être trouvées dans la littérature. Il a donc été fixé à 2,8 afin d'avoir une correspondance correcte sur la DCO après avoir calibré les MeS et la DCOs.

## 2.2 RÉSULTATS DE VALIDATION

Les résultats partiels de validation sont montrés à la Figure 4 pour les concentrations de  $\text{PO}_4^{3-}$  en sortie. Durant cette période, l'injection de réactifs est mieux contrôlée, du moins du point de vue des phosphates. Les pics en sortie sont en effet d'intensité moindre, et la concentration frôle moins régulièrement la limite de quantification. Le modèle arrive à bien détecter la présence de pics, mais a tendance à sous-estimer un peu leur intensité en début de période, puis à la surestimer vers la fin. Ceci produit une légère augmentation du score d'EMA par rapport à la calibration, pour un coefficient de Janus de 1,25.

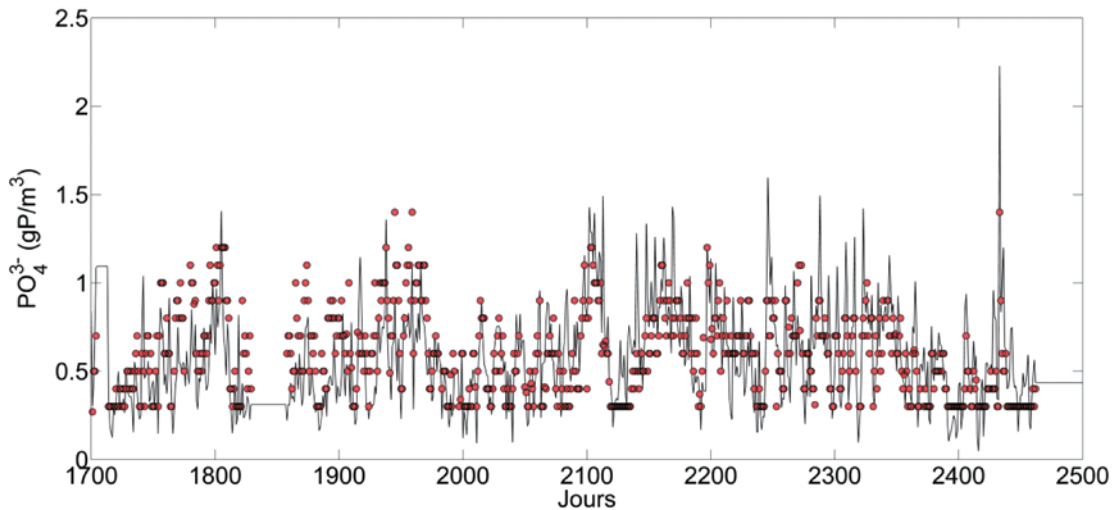


Figure 4 : Résultats partiels de validation du  $\text{PO}_4^{3-}$  en sortie de décantation primaire en 2000-2008 (points : observations, ligne : simulation)

Les résultats de simulation en validation pour les autres variables sont affichés uniquement sous forme de scores au Tableau 1. Les résultats de DCO sont logiquement impactés par ceux en DCOs et sont donc eux-aussi un peu moins bons qu'en calibration. Les résultats en MeS sont très similaires à ceux obtenus en calibration. Pour le NTK, l'EMA augmente légèrement dans l'absolu, mais de manière importante par rapport à la valeur obtenue en calibration. Le coefficient de Janus est donc assez élevé à 1,47.

## Conclusion

Un modèle relativement simple pour simuler le comportement journalier des MeS, de la DCO, la DCOs, le  $\text{PO}_4^{3-}$  et le NTK dans un procédé de décantation physico-chimique primaire à grande échelle a été présenté. Les résultats de calibration montrent que celui-ci est capable de fournir des prédictions proches des concentrations observées en sortie de traitement pour la majorité du jeu de données utilisé. Les résultats de validation sont similaires à ceux de la calibration, et les erreurs de prédiction n'augmentent que peu lors du passage entre les deux périodes. Étant donné l'efficacité d'enlèvement des MeS quasi-constante pour tout le jeu de données disponible, l'effet de la dose de chlorure ferrique injectée n'a pas pu être intégré au modèle. Celui-ci parvient tout de même à faire des prédictions oscillant majoritairement dans le nuage de points formé par les observations. Autrement, l'utilisation de mécanismes de réactions simples parvient à produire des résultats de simulation de précision généralement adéquate sur la DCOs et les  $\text{PO}_4^{3-}$ .

Des travaux visant à améliorer le modèle et à en valider l'utilisation sur davantage de procédés à grande échelle sont engagés dans le cadre de la phase II du programme Mocopée (2018-2022). Ceux-ci devraient inclure l'utilisation de données pendant lesquelles les décanteurs ont des efficacités d'abattement des MeS variables, afin d'ajouter une ou plusieurs équations reliant cette efficacité à la dose de réactifs. De même, l'utilisation de données provenant de sondes (turbidimètres,  $\text{PO}_4^{3-}$ ) devrait permettre de calibrer/valider le modèle sur des dynamiques observées à court terme. Enfin, l'adaptation du modèle à la décantation tertiaire physico-chimique ainsi qu'à l'utilisation d'autres types de produits coagulants, et en particulier l'Alufer qui tend à se substituer au chlorure sur certaines STEP, permettra d'en élargir l'utilité.



## Bibliographie

- › ACOUFORT C., BOUYER D., LINÉ A., HAUT B. (2007) : « Modelling of flocculation using a population balance equation. » *Chemical Engineering and Processing* ; 46 : 1264-73.
- › DE FEO G., DE GISI S., GALASSO M. (2008) : « Definition of a practical multi-criteria procedure for selecting the best coagulant in a chemically assisted primary sedimentation process for the treatment of urban wastewater. » *Desalination* ; 230 : 229-38.
- › EL SAMRANI A.G., LARTIGES B.S., MONTARGÈS-PELLETIER E., KAZPARD V., BARRÈS O., GHANBAJA J. (2004) : « Clarification of municipal sewage with ferric chloride: the nature of coagulant species. » *Water Research* ; 38 : 756-68.
- › FYTIANOS K., VOUDRIAS E., RAIKOS N. (1998) : « Modelling of phosphorus removal from aqueous and wastewater samples using ferric iron. » *Environmental Pollution* ; 101 : 123-30.
- › GERNAEY K., VANROLLEGHEM P.A., LESSARD P. (2001) : « Modeling of a reactive primary clarifier. » *Water Science and Technology* ; 43(7) : 73-81.
- › HAUDUC, H. (2010) : *Modèles biocinétiques de boues activées de type ASM : analyse théorique et fonctionnelle, vers un jeu de paramètres par défaut*. Thèse de doctorat, Université Laval, Québec, Canada.
- › HENZE M., GRADY C.P.L., GUJER W., MARAIS G.V.R., MATSUO, T. (1987) : « A general model for single-sludge wastewater treatment systems. » *Water Research* ; 21(5) : 505-15.
- › HENZE M., GUJER W., TAKAHASHI M., TOMONORI M., WENTZEL M.C., MARAIS G.V.R., VAN LOOSDRECHT C.M. (1999) : « Activated sludge model no.2D, ASM2D. » *Water Science and Technology* ; 39(1) : 165-82.
- › KILANDER J., BLOMSTRÖM S., RASMUSON A. (2006) : « Spatial and temporal evolution of floc size distribution in a stirred square tank investigated using PIV and image analysis. » *Chemical Engineering Science* ; 61 : 7651-67.
- › LENTE G., MAGALHÃES M.E.A., FÁBIÁN I. (2000) : « Kinetics and mechanism of complex formation reactions in the iron(III)-phosphate ion system at large iron(III) excess. Formation of a tetranuclear complex. » *Inorganic Chemistry* ; 39 : 1950-4.
- › METCALF, EDDY (2003) : *Wastewater engineering : treatment and reuse*. 4<sup>th</sup> edition. McGraw-Hill, New York, USA.
- › ØDEGAARD H. (1998) : « Optimised particle separation in the primary step of wastewater treatment. » *Water Science and Technology* ; 37(10) : 43-53.
- › SMITH S., TAKÁCS I., MURTHY S., DAIGGER G.T., SZABÓ A. (2008) : « Phosphate complexation model and its implications for chemical phosphorus removal. » *Water Environment Research* ; 80(5) : 428-38.
- › TAKÁCS I., PATRY G.G., NOLASCO D. (1991) : « A dynamic model of the clarification-thickening process. » *Water Research* ; 10 : 1263-71.
- › TAKÁCS I., MURTHY S., FAIRLAMB P.M. (2006) : « Chemical phosphorus removal model based on equilibrium chemistry. » *Water Science and Technology* ; 52(10) : 549-55.
- › SZABO A., TAKÁCS I., MURTHY S., DAIGGER G.T., LICSKÓ I., SMITH S. (2008) : « Significance of design and operational variables in chemical phosphorus removal. » *Water Environment Research* ; 80(5) : 407-16.
- › TAY J-H A. (1982) : « Development of a settling model for primary settling tanks. » *Water Research* ; 16 : 1413-7.
- › TIK S., LANGLOIS S., VANROLLEGHEM P. (2013) : *Establishment of control strategies for chemically enhanced primary treatment based on online turbidity data*. Proceedings of the 11<sup>th</sup> IWA Conference on Instrumentation, Control and Automation (ICA2013), Narbonne, France, septembre 2013.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- › BERNIER J., GUÉRIN S., AZIMI S., ROCHER V., LESSARD P. (2016) : « Modélisation du fonctionnement des décanteurs physico-chimiques lamellaires - Calibration et validation à l'échelle industrielle d'un modèle simple à une dimension ». *L'Eau, l'Industrie, les Nuisances* ; 391: 75-82.
- › BERNIER J., ROCHER V., LESSARD P. (2015) : *Modélisation d'un procédé de décantation primaire physico-chimique : le cas de Seine-centre (Paris, France)*, Americana 2015, Montréal, Canada.

# Impact des stratégies d'aération sur les performances de filtration et caractérisation hydrodynamique d'un pilote de BaM semi-industriel : apport de la modélisation à la mesure par tomographie de résistivité électrique

## *Impact of aeration strategies on filtration performances and hydrodynamic characterisation of a semi-industrial MBR: contribution of modelling to electrical resistivity tomography measurement*

Elodie Suard<sup>[1]</sup>, Yannick Fayolle<sup>[1]\*</sup>, Rémi Clément<sup>[2]</sup>, Marion Alliet<sup>[3]</sup>, Claire Albasi<sup>[3]</sup>, Sylvie Gillot<sup>[2]</sup>

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

<sup>[2]</sup> Irstea, UR REVERSAAL, Centre de Lyon-Villeurbanne

<sup>[3]</sup> Laboratoire de Génie Chimique, Université de Toulouse, CNRS-INPT-UPS

\* Auteur de correspondance : [yannick.fayolle@irstea.fr](mailto:yannick.fayolle@irstea.fr)



*Les bioréacteurs à membranes se sont largement développés ces dernières années en assainissement domestique urbain. A ce jour, deux installations du Siaap sont équipées de ce procédé (Seine Aval, Seine Morée). Cependant, le colmatage des membranes reste une problématique industrielle importante pouvant entraîner des coûts énergétiques et de remplacement importants. Différentes stratégies de limitation du colmatage sont mises en place, dont l'aération séquencée des membranes à l'aide de grosses bulles. Cependant, les mécanismes d'impact de cette aération restent relativement méconnus. Dans le cadre de l'axe 2 du programme de recherche Mocopée, un pilote semi-industriel de filtration membranaire a été conçu, dimensionné et installé sur l'unité de traitement des jus de Seine Aval. Ce pilote a permis d'étudier l'impact de l'aération sur les performances de filtration. La caractérisation de la dispersion des bulles au sein des réseaux de fibres a été réalisée à l'aide de la tomographie de résistivité électrique, en s'appuyant sur un protocole innovant basé sur la modélisation. Les résultats obtenus mettent en évidence l'impact couplé du débit d'air et de la concentration en matières en suspension sur cette dispersion du gaz. Ces résultats permettent d'envisager la régulation de l'aération en fonction de la concentration en MES dans les procédés industriels.*

## Bioréacteurs à membranes - Colmatage - Aération - Hydrodynamique - Tomographie de résistivité électrique

### Introduction

Les bioréacteurs à membranes (BaM) sont des procédés de traitement biologique des eaux résiduaires, composés d'un réacteur à boues activées couplé à une filtration membranaire. En pleine expansion lors des deux dernières décennies, ce procédé présente l'avantage de produire un effluent de qualité stabilisée, en comparaison d'un procédé conventionnel, mais également d'être particulièrement compact. Les membranes d'ultrafiltration ou de microfiltration employées sont généralement sous forme de fibres ou de plaques, disposées en modules et immergées dans des cellules membranaires pour séparation des boues biologiques et de l'eau traitée. A ce jour, cette technologie est implantée sur deux usines du Siaap : (i) Seine-Aval sur la nouvelle file membranaire dans le cadre de la modernisation du traitement biologique, mais également sur l'unité de traitement des jus de retour issus du traitement des boues (TDJ) et (ii) Seine-Morée.



Le flux de filtration est fixé à un débit de  $1,3 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ . Les séquences de filtration appliquées sont de 480 secondes de filtration, suivies de 90 secondes de rétrolavage.

L'ensemble des mesures associées au suivi du pilote (sondes de mesures, prélèvements ponctuels et moyens 24 h) est regroupé dans le Tableau 1. Les capteurs sont positionnés dans le pilote pour le suivi en continu des propriétés des boues circulant dans celui-ci (oxygène dissous, conductivité, potentiel d'oxydo-reduction, pH, MES), du débit d'air, des débits liquides d'alimentation et de perméat, et de la pression en aval et amont de la membrane pour la détermination de la pression transmembranaire. Des préleveurs automatisés ont également été installés afin de réaliser des échantillons moyennés sur 24 h des boues activées circulant dans le pilote et du perméat.

Localisation	Paramètre	Capteur	Prélèvement moyen 24h	Prélèvement ponctuel	Fréquence
Cuve membranaire	$[\text{O}_2]_{\text{dissous}}$ Conductivité, pH, Température, RedOx, [MES]	X			Minute
	Pression amont des membranes	X			5 secondes
	$\text{DCO}_{\text{surageant}}$ $\text{TAC}_{\text{surageant}}$		X		Journalière
	Rhéologie, MVS			X	Hebdomadaire
Perméat	DCO		X		Journalière
Alimentation en boues	$Q_{\text{alimentation boues}}$	X			5 secondes
Réseau d'air	$Q_{\text{air}}$	X			5 secondes
Réseau de perméat	Pression aval membrane, $Q_{\text{perméat}}$	X			5 secondes

Tableau 1 : Mesures réalisées sur le pilote semi-industriel lors du suivi

## 1.2 STRATÉGIES D'AÉRATION APPLIQUÉES LORS DES CAMPAGNES DE MESURE

L'injection de l'air sous forme de grosses bulles est réalisée au centre de la base de chacun des faisceaux de fibres. Les conditions opératoires de l'aération appliquées sur le pilote semi-industriel sont décrites dans le Tableau 2. Les débits ont été choisis afin de correspondre à la gamme de SADm instantanée (demande spécifique en aération, correspondant au ratio entre le débit d'air et la surface totale de filtration) entre 0,27 et  $0,60 \text{ Nm}^3 \text{ h}^{-1} \text{ m}^{-2}$  fixée par le fabricant de membrane (le débit maximal correspondant à celui appliqué sur l'unité TDJ). Les données présentées dans cet article concernent uniquement le débit d'air total alimentant les modules et le nombre de modules aérés.

Conditions d'aération	Période d'étude	Nombre de modules aérés	Séquence d'aération appliquée	SADm instantanée ( $\text{Nm}^3 \text{ h}^{-1} \text{ m}^{-2}$ )	Qair total ( $\text{Nm}^3 \text{ h}^{-1}$ )	Qair par module ( $\text{Nm}^3 \text{ h}^{-1}$ )
C1	27/10/16 - 14/11/16	3	A = 60 s / NA = 100 s	0,29	30	9,9
C2	14/11/16 - 30/11/16	3	A = 60 s / NA = 100 s	0,41	42	13,9
C3	30/11/16 - 12/12/16	3	A = 60 s / NA = 100 s	0,53	54	18,0
C4	05/01/17 - 18/01/17	3	A = 60 s / NA = 100 s	0,29	30	9,9
C5	09/05/17 - 17/05/17	2 (Module interne non alimenté)	A = 60 s / NA = 100 s	0,35	36	18,0

Avec : A = Aération ; NA = Non aération

Tableau 2 : Conditions d'aération du pilote

## 2. Résultats et discussion

### 2.1 DÉTERMINATION DE LA DISPERSION DE GAZ AU SEIN DES MODULES DE FILTRATION MEMBRANAIRE À L'ÉCHELLE SEMI-INDUSTRIELLE : ADAPTATION MÉTHODOLOGIQUE ET APPLICATION DE LA TOMOGRAPHIE DE RÉSISTIVITÉ ÉLECTRIQUE

#### 2.1.1 Principe de la technique de mesure et mise en œuvre dans le cadre de l'étude

La mesure de tomographie de résistivité électrique (ERT) est une technique de caractérisation de phase au sein d'un système expérimental. Cette mesure est basée sur les propriétés de différence de conductivité des phases en présence (ici liquide [eau, boues activées] et gaz). La mesure consiste à injecter un courant continu sur deux électrodes d'injection A et B ( $I_{AB}$ ) et à mesurer le potentiel résultant sur une seconde paire d'électrodes M et N ( $\Delta V_{MN}$  en Volt), celles-ci étant disposées sur une même hauteur pour réaliser une coupe transversale. L'acquisition se fait sur une séquence de quadripôles (A-B/M-N) afin d'obtenir un jeu de données de résistivités apparentes ( $\rho_{app}$ ).

$$\rho_{app} = \frac{k \times \Delta V_{MN}}{I_{AB}}$$

Le coefficient k dépend de la position des quatre électrodes (A-B/M-N), constituant le quadripôle, et la géométrie du pilote, ainsi que de la taille et la forme des électrodes.

Les valeurs de résistivités apparentes obtenues expérimentalement ne permettent pas d'obtenir directement une cartographie représentative de la distribution des phases à travers cette mesure, du fait de l'hétérogénéité du milieu étudié. Il est donc nécessaire de passer par une étape d'inversion des données. L'inversion est un processus de calcul itératif dont le but est de déterminer les caractéristiques inconnues d'un milieu à partir de résultats de mesure (Figure 2). La géométrie du milieu est créée puis discrétisée (sous le logiciel de simulation COMSOL) et une valeur de résistivité est attribuée à chaque élément. A partir de ce modèle, des données de résistivités apparentes sont déterminées numériquement à partir d'équations de propagation du courant pour ensuite être comparées au jeu de données de résistivités apparentes obtenu par la mesure. De façon itérative, la résistivité attribuée aux éléments va être ajustée de façon à minimiser l'écart entre les résistivités apparentes mesurées et simulées. Ces étapes d'inversion sont réalisées à l'aide du logiciel BERT (GUNTHER *et al.*, 2006). Il est à noter que cette étape de traitement des données engendre une certaine perte d'information et que plusieurs paramètres de calcul intervenant à ce niveau peuvent être modifiés et optimisés pour réduire cette perte d'information. La cartographie des résistivités interprétées obtenue permet ensuite de visualiser la distribution de résistivité au sein de la géométrie étudiée, et ainsi le profil des phases en présence.

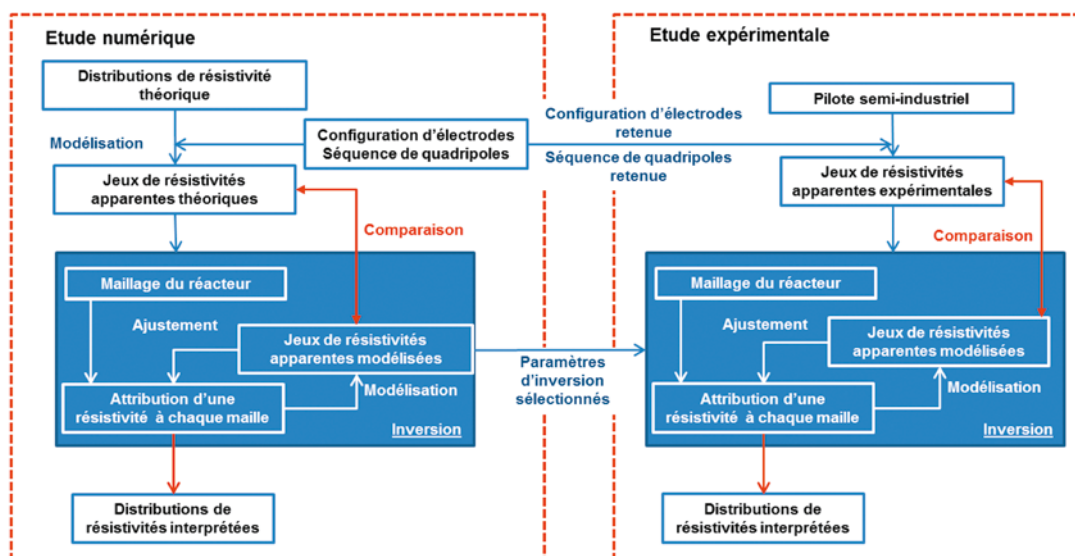


Figure 2 : Synthèse des différentes étapes de mesure par ERT mises en place pour l'étude



Cette technique de mesure est largement appliquée dans le domaine du génie chimique pour l'étude de la distribution de phases dans différents types de réacteurs (colonnes à bulles, lits fluidisés, cuves agitées ou conduites) (SHARIFI et YOUNG, 2013). Cependant, ces études sont généralement réalisées sur des systèmes de taille réduite (diamètres inférieurs à 1 m) et de géométries simples. Aussi, une méthodologie de mesure basée sur la tomographie de résistivité électrique à courant continu, issue de la géophysique, a été adaptée à l'étude de la dispersion des bulles au sein de modules de filtration membranaire.

Pour la réalisation des mesures sur le pilote semi-industriel, un ensemble de 72 électrodes en inox a été réparti sur 3 sections à des distances de 0,42 m, 1,17 m et 1,92 m du fond du pilote, afin de permettre la réalisation de mesures sur ces trois sections (dans la suite du document, uniquement les données obtenues pour 1,17 m sont présentées). Ces électrodes ont été connectées à un résistimètre multi-canal Syscal Pro (IRIS Instrument, Orléans, France), permettant de sélectionner automatiquement les quadripôles autour du réacteur. L'injection du courant est réalisée sur une durée de 250 ms, permettant de réaliser une mesure de tomographie complète d'une durée de 40 s environ (mesure basée sur environ 300 quadripôles).

La complexité du système étudié nécessite de réaliser une étape préliminaire de simulation numérique afin de déterminer la capacité de l'ERT, en lien avec les séquences de quadripôles sélectionnées, à reproduire des distributions de résistivités électriques modèles. Cette approche est basée sur l'utilisation d'outils de modélisation pour définir les stratégies de mesures permettant des temps d'acquisition courts (en adéquation avec la physique du système à étudier) et l'identification des sources d'erreurs potentielles générées par l'outil.

### 2.1.2 Etude numérique pour la validation de la méthodologie et des séquences de quadripôles sélectionnées

L'approche numérique a été menée en trois étapes :

- Etape A : Différentes distributions théoriques de résistivités électriques ont été imposées sur une géométrie simplifiée de dimensions équivalentes à celles du pilote semi-industriel à l'aide du logiciel COMSOL. Les différentes distributions retenues sont présentées sur la Figure 3. Ces distributions ont été définies afin de correspondre à différents cas potentiellement observables expérimentalement. A titre d'exemple, les cas B1 à B3, correspondent à une augmentation progressive et homogène de la distribution de l'air au sein des modules de filtration (en lien avec une évolution du débit d'air). Les cas C1 à C3 correspondent à des augmentations très localisées de la résistivité en lien avec une distribution potentiellement hétérogène des bulles au sein des modules de filtration dans le but de caractériser le potentiel de l'ERT à détecter de telles hétérogénéités ;

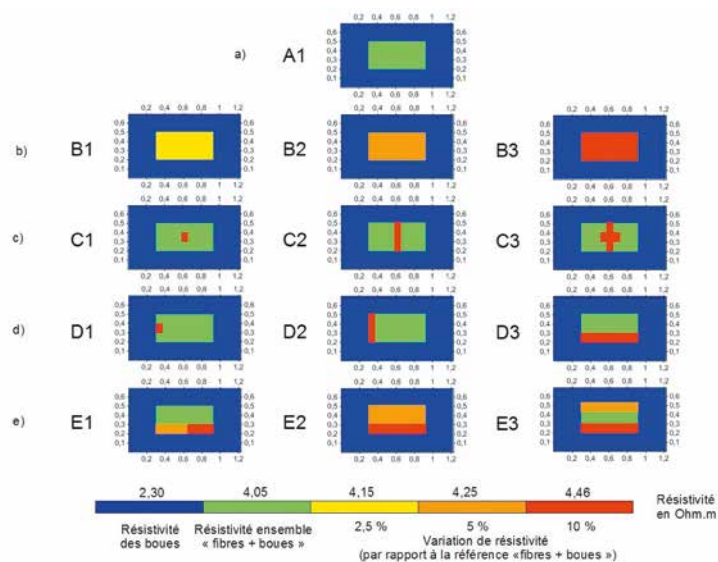


Figure 3 : Distributions de résistivités électriques imposées sur la géométrie simplifiée

- Etape B : Modélisation des distributions de champs électriques sous COMSOL pour différentes séquences de quadripôles en cherchant à minimiser le nombre de quadripôles (et donc le temps d'acquisition associé). Deux séquences de quadripôles ont été évaluées (Figure 4), correspondant à des configurations d'électrodes différentes. Ces deux configurations se distinguent principalement par la position adjacente ou opposée des électrodes d'injection pour les configurations dipôle-dipôle (DD) et gradient (GD) respectivement. A l'issue de cette étape, des bases de données de résistivités apparentes théoriques sont obtenues ;



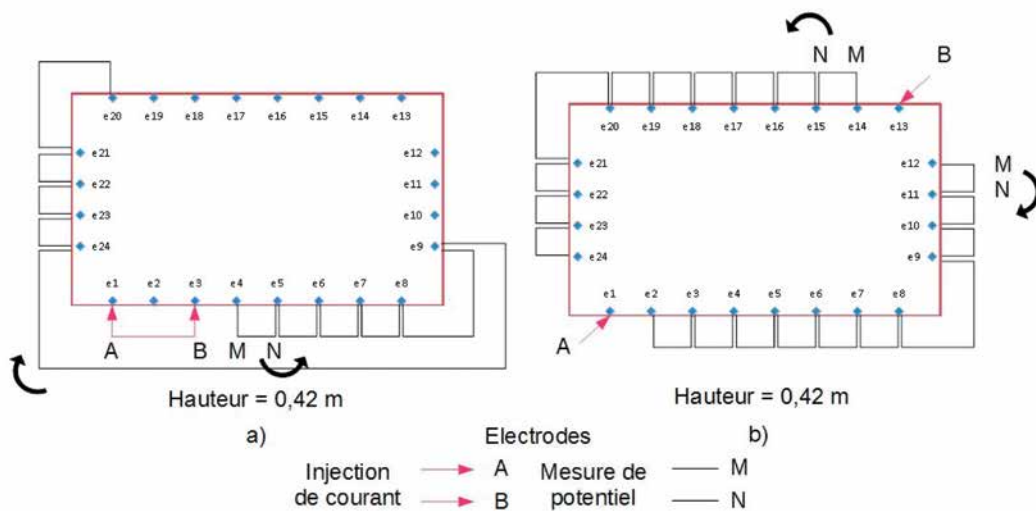
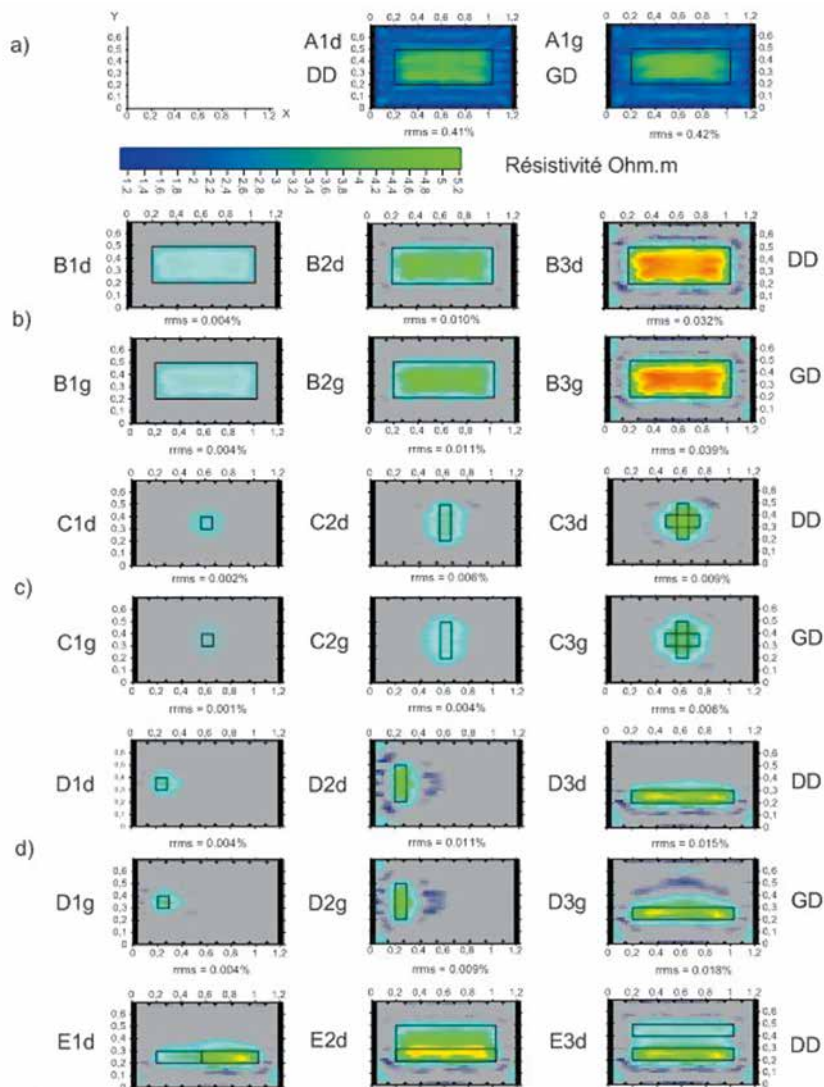


Figure 4 : Séquences de quadripôles testées (a) approche Dipôle-Dipôle [DD] et (b) approche Gradient-Dipole [GD]

- Etape C : Inversion du jeu de données de résistivités apparentes pour construire les champs de résistivités interprétées. L'étape d'inversion est réalisée à l'aide du logiciel BERT. Les champs de résistivités interprétées obtenus sont alors comparés aux champs de résistivités initiaux afin de valider la méthodologie. Une étude de sensibilité des résultats aux paramètres d'inversion a permis de valider un jeu de paramètres permettant de limiter la perte d'information en lien avec l'étape d'inversion.

La Figure 5 présente les champs de résistivités interprétés obtenus pour les différents cas simulés. Ces résultats sont exprimés en variation de résistivité électrique par rapport au cas A1 (modules membranaires sans aération) afin de permettre une meilleure visualisation des variations modélisées sur l'ensemble de la surface.



**Figure 5 : (a) Champs de résistivités interprétés initiaux correspondant aux configurations A1 (sans aération/modules membranaires uniquement) et (b-e) Variations de résistivités par rapport à ces modèles initiaux pour les cas B1 à E3 pour les deux séquences de quadripôles testées (DD et GD)**

Les champs de résistivités obtenus reproduisent de façon satisfaisante les champs de résistivités imposés en termes de position et d'intensité lorsque les augmentations de résistivités sont les plus importantes (cas B et E2). De plus, des augmentations de résistivité sont observées sur les contours des zones délimitées théoriques, indiquant que la méthode employée induit une légère diffusion de l'information, plus marquée dans les zones éloignées des électrodes. Ces phénomènes de diffusion étant plus importants pour la séquence de quadripôles GD, la séquence DD a été retenue à l'issue de cette étude numérique pour être appliquée lors des mesures expérimentales.

## 2.1.2 Caractérisation expérimentale de la dispersion du gaz au sein du pilote semi-industriel

Afin de caractériser l'impact de la concentration en MES et donc de la viscosité des boues sur la dispersion du gaz au sein des modules de filtration, des mesures complémentaires ont été réalisées en eau claire, sur des boues du TDJ, ainsi que pour des boues diluées pour atteindre une concentration intermédiaire de 3 g/L. La Figure 6 présente les distributions de résistivités obtenues après inversion pour les différents débits d'air et concentrations en matières en suspension.

En eau claire ( $[MES] = 0 \text{ g/L}^{-1}$ ), la dispersion du gaz au sein des modules de filtration est homogène sur l'ensemble du module de filtration. De plus, une augmentation du débit d'air se traduit par une augmentation de la résistivité électrique, et donc de la quantité d'air, au sein dans la zone centrale du pilote correspondant à l'emplacement des modules de filtration. A noter que des artefacts de mesures sont observés en périphérie de la zone occupée par les membranes.

En présence de boues activées, et ce dès une concentration de  $3 \text{ g/L}$ , des hétérogénéités sont observées au niveau des augmentations de résistivités au sein des zones occupées par les modules membranaires. Pour un débit d'air donné, des hétérogénéités sont de plus en plus marquées en lien avec une augmentation de la concentration en MES. Ces hétérogénéités sont probablement liées aux propriétés rhéologiques spécifiques des boues activées. Les boues activées sont des fluides non-newtoniens rhéofluidifiants, leur viscosité diminue donc avec une augmentation du cisaillement ce qui est le cas avec l'augmentation de l'intensité de l'aération. Aussi, pour les débits d'air les plus faibles, la boue biologique a une viscosité plus importante qui va impacter fortement les propriétés des bulles d'air et leur évolution au sein du réseau de fibres. Des passages préférentiels vont alors être générés, entraînant une hétérogénéité de l'aération des membranes, d'autant plus marquée que la concentration en MES est grande ( $6$  et  $10 \text{ g/L}$ ). Afin de garantir une aération homogène sur l'ensemble des membranes de filtration, le débit d'air imposé doit donc être d'autant plus fort que la concentration en MES est élevée. De même, le séquençage de l'aération permettrait de modifier les localisations de ces passages préférentiels portant une amélioration par rapport à une aération continue, ce qui expliquerait l'intérêt de ce séquençage trouvé dans la littérature (VAN KAAM *et al.*, 2008).

Les mesures réalisées avec un unique module alimenté en air (Figure 6.e) montrent que le gaz reste très confiné au sein du module sur lequel il est injecté et ne se disperse pas sur la zone environnante de celui-ci, limitant l'impact de l'aération sur les modules à proximité.

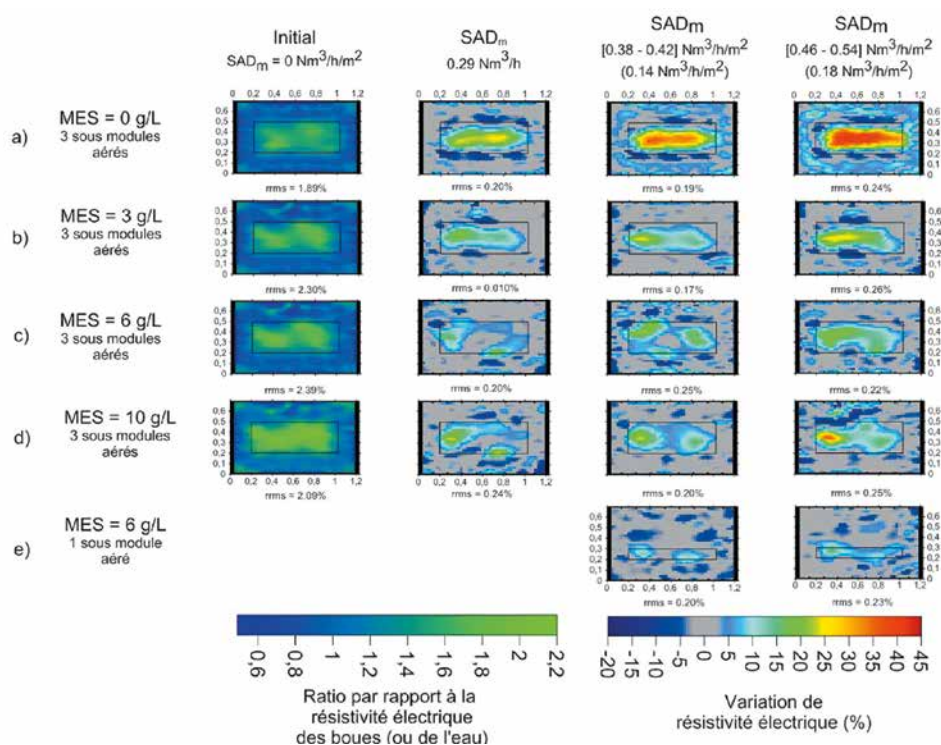


Figure 6 : Champs de résistivités interprétées initiaux sans aération [membranes seules] (1<sup>ère</sup> colonne) et distribution des résistivités électriques (2<sup>e</sup> à 4<sup>e</sup> colonnes) pour les différentes conditions d'aération (SADm), concentrations en MES et nombres de modules aérés

## 2.2 IMPACT DE L'AÉRATION SUR LES PERFORMANCES DE FILTRATION DU PILOTE SEMI-INDUSTRIEL LORS DES PÉRIODES DE SUIVI

En parallèle des mesures ERT visant à caractériser la dispersion de l'air au sein des modules membranaires, le suivi en continu du pilote a été réalisé pour différentes conditions opératoires, se différenciant sur les paramètres d'aération (C1 à C5, cf. Tableau 2). A noter qu'un arrêt du pilote a été réalisé du 19 et 22 novembre 2016 lors des expérimentations correspondant à la condition opératoire C2. Les propriétés des boues ayant fortement

évoluées suite à cet arrêt, il a été décidé d'exploiter cette condition opératoire comme deux conditions distinctes C2' et C2'', correspondant aux périodes avant et après l'arrêt, respectivement.

La Figure 7 présente respectivement le flux de DCO alimentant le TDJ, la concentration en DCO du surnageant dans le pilote et la concentration en DCO dans le perméat. La Figure 8 présente la perméabilité (corrigée à 20 °C) et la concentration en MES dans le pilote lors de la campagne de mesure et pour les différentes conditions opératoires.

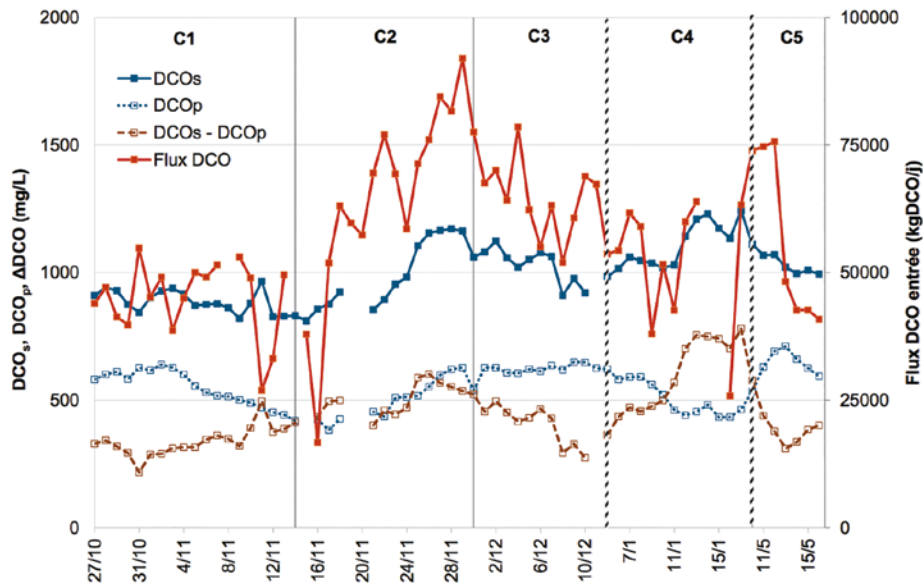


Figure 7 : Flux de DCO en entrée du TDJ, DCO dans le surnageant dans le pilote et DCO du perméat, pour l'ensemble des conditions d'aération

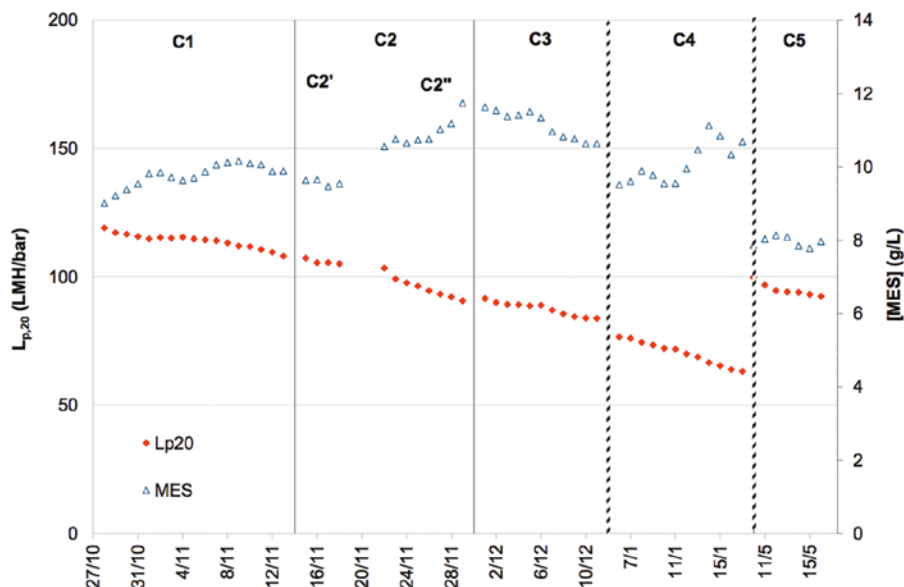


Figure 8 : Perméabilité à 20 °C et concentration en MES pour l'ensemble des conditions d'aération

Lors de la période d'investigation, le flux de DCO alimentant le TDJ a fortement varié lors des différentes conditions opératoires (de 16700 à 92030 kgDCO/j), entraînant une forte hétérogénéité de la concentration en DCO dans le surnageant des boues biologiques alimentant le pilote semi-industriel (d'une concentration moyenne de 872 à 1112 mgDCO/L pour les périodes correspondant aux conditions opératoires C1 et C4 respectivement). Logiquement, ces variations de charge ont conduit à une modification de la concentration en MES dans les boues biologiques, variant de 8,0 à 11,2 g/L pour les périodes correspondant aux conditions opératoires C5 et C3. Dans le même temps, la perte de perméabilité varie de -0,8 à -1,4 LMH/bar/j pour les périodes C3 et C2'' respectivement.

Une certaine stabilité des propriétés des boues est observée pour les périodes C2'' à C4 (MES = [10,1 - 11,1] g/L ; DCOs = [1028 - 1112] mg/L), permettant d'analyser l'impact du débit d'air alimentant les modules de filtration sur les évolutions de perméabilité. Pour une diminution de la  $SAD_m$  de 0,53 à 0,41  $Nm^3 h^{-1} m^{-2}$  (conditions C3 et C2), l'évolution de perméabilité moyenne diminue de -0,8 à -1,4 LMH/bar/j respectivement. Une diminution supplémentaire du débit d'air n'a que peu d'impact sur la diminution de perméabilité (-1,3 LMH/bar/j pour une  $SAD_m$  de 0,29  $Nm^3 h^{-1} m^{-2}$ ). Un impact similaire est observé pour les conditions C1 et C2', pour lesquelles l'évolution de perméabilité augmente uniquement de -0,8 à -0,7 LMH/bar/j pour une augmentation de la  $SAD_m$  de 0,29 à 0,41  $Nm^3 h^{-1} m^{-2}$  (à propriétés de boues également équivalentes). L'analyse de ces observations, au regard des mesures d'ERT présentées ci-dessus, permet de mettre en évidence l'impact de la dispersion de l'air sur ces évolutions de perméabilité. A une concentration en MES supérieure à 10 g/L, les bulles d'air au sein des faisceaux de fibres sont distribuées sur l'ensemble des trois modules uniquement pour le débit d'air le plus élevé. Aussi, l'injection d'air pour cette condition opératoire permet d'avoir un impact efficace et homogène de l'aération sur l'ensemble du réseau de fibres. Pour des débits d'air moins importants, cet impact est plus limité, en lien avec une dispersion beaucoup plus hétérogène des bulles évoluant peu en fonction du débit.

Les mesures complémentaires réalisées avec uniquement deux modules aérés (condition C5) sont difficilement comparables directement avec les autres conditions opératoires du fait d'une concentration en MES très différente (8,0 g/L). La variation de perméabilité mesurée est de -1,1 LMH/bar/j, pour une  $SAD_m$  de 0,35  $Nm^3/h^{-1}/m^{-2}$  répartie sur les deux modules extérieurs seulement (soit un débit d'air par module aéré de 18  $Nm^3 h^{-1}$  correspondant au débit d'air maximal appliqué pour la condition C3). L'aération effectuée uniquement sur deux modules permet cependant de maintenir des performances de filtration satisfaisantes bien que cette valeur soit relativement élevée au regard des débits d'air injectés, en considérant les ordres de grandeurs mesurés pour les autres conditions opératoires pour des concentrations en MES plus élevées. Cette évolution peut être expliquée par la potentielle faible contribution de l'aération des modules externes sur le module central, la dispersion des bulles restant très localisée au niveau des modules aérés comme observé lors des mesures ERT réalisées pour un module unique aéré. De plus, les données recueillies mettent également en évidence une évolution différente de la perméabilité de chacun des modules membranaires, mesurée individuellement, non observée pour les autres conditions opératoires. Ces observations indiquent une perte de perméabilité plus importante pour le module membranaire non aéré en comparaison des deux autres (résultats non présentés).

## Conclusions

Dans l'objectif d'identifier des solutions d'optimisation des bioréacteurs à membranes, un pilote semi-industriel de filtration membranaire équipé de modules membranaires équivalents à ceux équipant les unités industrielles a été conçu, dimensionné et installé sur l'unité de traitement des jus de Seine Aval. Cette étude a permis notamment d'étudier l'impact des stratégies d'aération, et notamment du débit d'air, sur la dispersion du gaz dans le réacteur et sur les propriétés de filtration. Les principaux résultats obtenus sont les suivants :

- Le développement de la méthodologie innovante de caractérisation de la dispersion des bulles d'air au sein des réseaux de fibres à l'aide de la tomographie de résistivité électrique repose sur l'utilisation d'outils de modélisation permettant d'en optimiser la mise en œuvre et l'interprétation des données obtenues ;
- La répartition des bulles d'air au sein des réseaux de fibres est fortement influencée par le débit d'air injecté mais également par la concentration en matières en suspension ;
- Ces données fournissent des éléments d'interprétation aux évolutions de perméabilité observées sur le pilote semi-industriel lors de la période de suivi, en lien avec les conditions d'aération et de fonctionnement. Ces résultats conduisent à expliquer les impacts couplés du débit d'air et de la concentration en MES sur les évolutions des propriétés de filtration. Ces résultats permettent notamment d'envisager une meilleure prise en compte des conditions opératoires sur les débits d'air à injecter au niveau des cellules de filtration industrielle, et du séquençage de cette aération.

## Remerciements

Ces travaux ont été financés par Irstea et le Siaap, via le programme de recherche Mocopée. Les auteurs souhaitent remercier les exploitants de l'usine Seine-Aval et, plus particulièrement les agents en charge de l'exploitation de l'unité de traitement des jus, pour leur disponibilité lors des mesures sur site. Un remerciement particulier est également adressé au personnel technique d'Irstea qui s'est fortement impliqué lors de la conception du pilote semi-industriel et des campagnes de mesure sur site.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- › SUARD E., CLÉMENT R., FAYOLLE Y., ALLIET M., ALBASI C., GILLOT S. (2019) : « Electrical resistivity tomography used to characterize bubble distribution in complex aerated reactors: development of the method and application to a semi-industrial MBR in operation. » *Chemical Engineering Journal* ; 355 : 498-509.
- › SUARD E., FAYOLLE Y., ZHANG L., GUÉRIN S., JONES H., GUILLAUME S., ROCHER V., ALLIET M., ALBASI C., GILLOT S. (2017) : *Statistical interpretation and modelling of daily permeability evolution in full-scale membrane bioreactors using fuzzy inference methods*. 8<sup>th</sup> IWA Specialist Conference on Membrane Technology for Water and Wastewater Treatment.
- › SUARD E., CLÉMENT R., FAYOLLE Y., ALLIET M., ALBASI C., GILLOT S. (2017) : *Characterisation of gas dispersion in filtration modules of a membrane bioreactor using electrical resistivity tomography*. 13<sup>th</sup> International Conference on Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Reactor Engineering (GLS-13).
- › SUARD E., CLÉMENT R., FAYOLLE Y., ALLIET M., ALBASI C., GILLOT S. (2016) : *Evaluation de la tomographie de résistivité électrique pour la visualisation de bulles dans des réacteurs aérés*. 10<sup>e</sup> colloque GEOFCAN.
- › ZHANG L. (2016) : *Modeling of long-term evolution of permeability in a full-scale membrane bioreactor through fuzzy inference system* [rapport de stage de fin d'études].
- › BRUEL MULLER G.A. (2014) : *Etude du colmatage de membranes de filtration de traitement des eaux résiduaires : Analyse de données de fonctionnement d'installations réelles* [rapport de stage de fin d'études].



## Bibliographie

- › BOLTON G., LACASSE D., KURIYEL R. (2006) : « Combined models of membrane fouling: Development and application to microfiltration and ultrafiltration of biological fluids. » *Journal of Membrane Science* ; 277(1-2) : 75-84.
- › BRAAK E., SCHETRITTE S., ANNE-ARCHARD D., ALBASI C., ALLIET M. (2012) : *Aeration for fouling control in submerged membrane bioreactors for wastewater treatment : Shear simulation and experimental validation*. Euromembrane Conference 2012. N. Marsh. Amsterdam, Elsevier Science Bv. ; 44 : 674-677.
- › BUETEHORN S., BRANNOCK M., LE-CLECH P., LESLIE G., VOLMERING D., VOSSENKAUL K., WINTGENS T., WESSLING M., MELIN T. (2012) : « Limitations for transferring lab-scale microfiltration results to large-scale membrane bioreactor (MBR) processes. » *Separation and Purification Technology* ; 95 : 202-215.
- › DUCLOS-ORSELLO C., LI W. Y., HO C. C. (2006) : « A three mechanism model to describe fouling of microfiltration membranes. » *Journal of Membrane Science* ; 280(1-2) : 856-866.
- › GUNTHER T., RUCKER C., SPITZER K. (2006) : « Three-dimensional modelling and inversion of dc resistivity data incorporating topography - II. Inversion. » *Geophysical Journal International* ; 166(2) : 506-517.
- › HERMIA J. (1982) : « Constant pressure blocking filtration laws - Application to power-law non-newtonian fluids. » *Transactions of the Institution of Chemical Engineers* ; 60(3) : 183-187.
- › SHARIFI M. AND YOUNG B. (2013) « Electrical Resistance Tomography (ERT) applications to Chemical Engineering. » *Chemical Engineering Research & Design* ; 91(9) : 1625-1645.
- › VAN KAAM R., ANNE-ARCHARD D., ALLIET GAUBERT M., ALBASI C. (2008) : « Rheological characterization of mixed liquor in a submerged membrane bioreactor: Interest for process management. » *A special Issue on Membrane Reactors & Bioreactors* ; 317(1-2) : 26-33.
- › WU, J., HE C., JIANG X., ZHANG M. (2011) « Modeling of the submerged membrane bioreactor fouling by the combined pore constriction, pore blockage and cake formation mechanisms. » *Desalination* ; 279(1-3) : 127-134.

# 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<sup>[1]</sup>, Ahlem Filali<sup>[1]\*</sup>, Yannick Fayolle<sup>[1]</sup>, Mathieu Spérandio<sup>[2]</sup>, Jean Bernier<sup>[3]</sup>, Vincent Rocher<sup>[3]</sup>, Sylvie Gillot<sup>[4]</sup>

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

<sup>[2]</sup> LISBP, Université de Toulouse, CNRS, INRA, INSA, Toulouse

<sup>[3]</sup> Siaap, Direction Innovation Environnement, Colombes

<sup>[4]</sup> Irstea, UR REVERSAAL, Villeurbanne

\* Auteur de correspondance : [ahlem.filali@irstea.fr](mailto: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 BIOGINÉTIQUE 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  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{NO}_2^-$  par les bactéries nitrifiantes) puis nitrification (oxydation du  $\text{NO}_2^-$  en  $\text{NO}_3^-$  par les bactéries nitrifiantes). La production de  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$ . 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).

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

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

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),  $\alpha$  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  $n$  ( $\text{m}^3$ ),  $k_{L,i}$  le coefficient volumique de transfert du soluté  $i$  ( $\text{j}^{-1}$ ),  $\beta$  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  $n$  ( $\text{g}/\text{m}^3$ ),  $C_{i,L,n}$  la concentration du soluté  $i$  dans la phase liquide du réacteur  $n$  ( $\text{g}/\text{m}^3$ ),  $K_{H,i}$  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 ( $\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ , 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  $\text{NH}_4^+$  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  $\theta$  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  $\text{N}_2\text{O}$ , le NO et le  $\text{N}_2$ . 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 ( $\text{m}^2/\text{j}$ ).

### 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 ( $\epsilon_G$ ), 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  $\epsilon_G$  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  $n$  ( $\text{g}/\text{m}^3$ ), et  $Q_{a,ir}$  le débit d'air injecté ( $\text{Nm}^3/\text{j}$ ).

### 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 <sub>2</sub> seulement	Intégration d'un bilan matière en phase gazeuse sur l'O <sub>2</sub>
#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

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

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 ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$  et  $\text{NO}_2^-$ ) 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  $\text{NH}_4^+$ , -3 % pour  $\text{NO}_3^-$  et +10 % pour  $\text{NO}_2^-$ . 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  $\text{N}_2\text{O}$ , le modèle surestime la production nette de  $\text{N}_2\text{O}$  d'environ 25 %, mais surtout échoue dans la description de la répartition du flux de  $\text{N}_2\text{O}$  entre les phases liquide et gazeuse. En effet, celui-ci surestime la proportion de  $\text{N}_2\text{O}$  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  $91 \text{ h}^{-1}$  pour le modèle initial contre  $64 \text{ h}^{-1}$  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  $21 \text{ m}^3$ . Sa prise en compte réduit le volume liquide et la nitrification d'environ 12 %. Le volume liquide passe de  $161 \text{ m}^3$  à  $140 \text{ m}^3$  ; 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  $444 \text{ m}^3$  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.

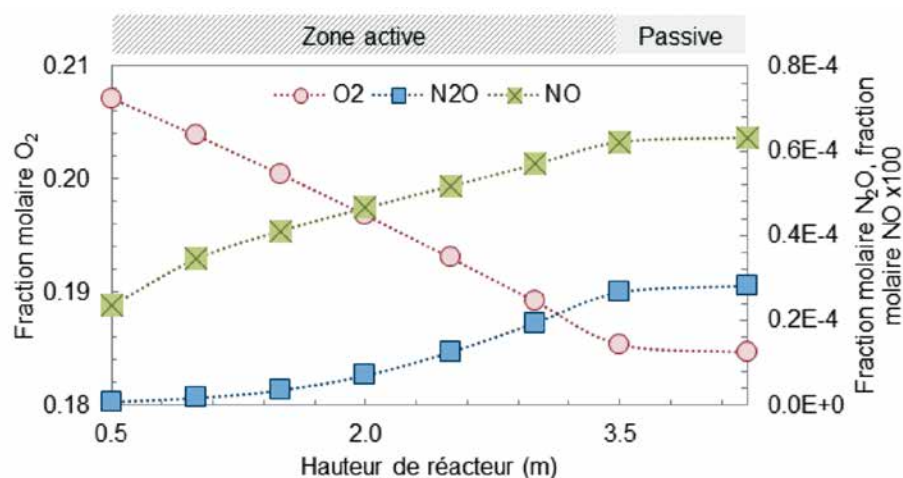


Figure 1. Evolution des fractions molaires de l'oxygène, monoxyde d'azote et protoxyde d'azote dans le gaz sur la hauteur de biofiltre. Chaque point représente la valeur moyenne sur la période étudiée.

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 N<sub>2</sub>O. De plus, à l'inverse de l'oxygène, on observe un enrichissement du gaz en NO et N<sub>2</sub>O sur la hauteur du biofiltre. La concentration moyenne en N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O prédite est plus faible que dans la simulation précédente #4 (25,0 contre 26,4 kgN-N<sub>2</sub>O/j), mais la différence majeure porte sur la répartition gaz/liquide du flux de NO et N<sub>2</sub>O. 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 N<sub>2</sub>O (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 N<sub>2</sub>O émis/N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O. Une prédiction correcte du résiduel de N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O (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<sup>-1</sup> contre 64 h<sup>-1</sup> avant calage. Sa valeur ajustée était d'environ 91 h<sup>-1</sup> dans le modèle d'origine. Le modèle décrit à nouveau correctement l'abattement du NH<sub>4</sub><sup>+</sup> (-4 %) et la production de NO<sub>3</sub><sup>-</sup> (-1 %) et NO<sub>2</sub><sup>-</sup> (+16 %). Sans calage préalable des paramètres des processus de N<sub>2</sub>O, celui-ci la surestime la production de N<sub>2</sub>O de 20 % seulement. Les dynamiques de production du N<sub>2</sub>O

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.

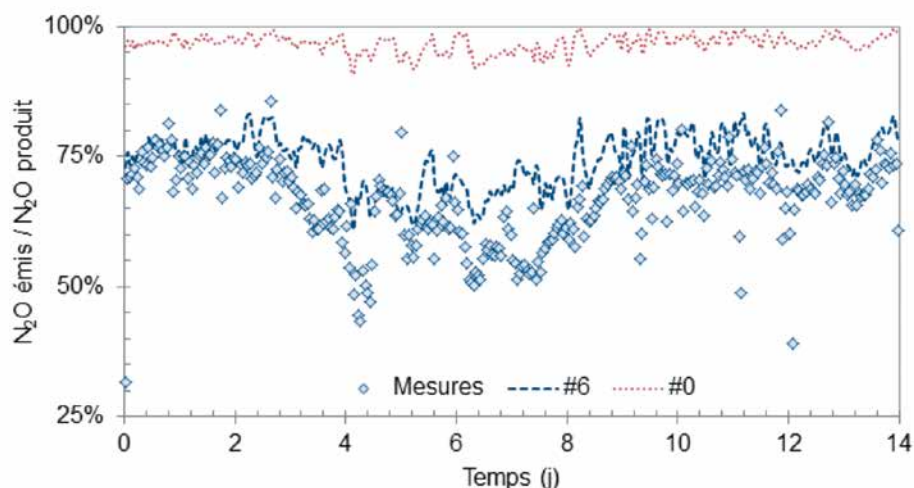


Figure 2 : Évolution du ratio  $N_2O$  émis/total pendant la période étudiée (moyennes horaires). Les pointillés représentent les résultats de simulation, les mesures étant représentées par des cercles.

## 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 N<sub>2</sub>O 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 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.
- 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 (N<sub>2</sub>O) 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 N<sub>2</sub>O emissions by ammonium oxidizing bacteria supported by the NO/N<sub>2</sub>O variation. » *Water Research* ; 88 : 948-959.
- 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.
- 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.



# Calibration et validation d'un modèle de biofiltration de la station Seine Aval (Siaap)

## Calibration and validation of a biofiltration model at the Seine Aval plant (Siaap)

Jialu Zhu<sup>[1,2]</sup>, Jean Bernier<sup>[1]\*</sup>, Sam Azimi<sup>[1]</sup>, André Pauss<sup>[2]</sup>, Peter A. Vanrolleghem<sup>[3]</sup>, Vincent Rocher<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Siaap, Direction Innovation Environnement, Colombes

<sup>[2]</sup> Sorbonne Universités, EA 4297 TIMR UTC/ESCOM, UTC, Compiègne

<sup>[3]</sup> modelEAU, Université Laval, Département de génie civil et de génie des eaux, Québec

\* Auteur de correspondance : [jean.bernier@siaap.fr](mailto:jean.bernier@siaap.fr)



*Cette étude concerne la modélisation de la station complète de Seine Aval (1 500 000 m<sup>3</sup>/j), et plus précisément sur la modélisation de l'étape de nitrification par biofiltration. Un modèle complet a été construit dans le logiciel WEST à partir des travaux de modélisation précédemment effectués au sein du programme de recherche Mocopée. Les phénomènes impliqués dans la production de NO et N<sub>2</sub>O lors du traitement de l'azote y ont été ajoutés, ainsi que des estimations des consommations énergétiques principales. Ces ajouts permettent de prendre en considération les aspects économiques et environnementaux du traitement simulé, en plus de fournir une prédiction de la qualité de l'eau en sortie de procédé. Le modèle a été calibré sur l'étape de nitrification en 2009, dans une configuration boues activées - nitrification, en utilisant autant que possible des données de capteurs récoltées aux 15 minutes. Il a également été validé sur le même procédé en 2017, cette fois-ci exploité dans une configuration largement différente (pré-dénitrification par biofiltration puis nitrification). Les prédictions du modèle sont proches des observations et suivent les tendances observées sur l'eau en sortie du procédé pour la majorité des variables simulées. Les consommations en énergie estimées suivent très bien les variations journalières.*

Biofiltration - Calibration - Consommation énergie - Filière - Validation

## Introduction

Le traitement des eaux usées est à l'origine d'une consommation en énergie et en réactifs chimiques très importante. La consommation électrique importée des STEP (stations d'épuration) du Siaap (Service public de l'assainissement francilien) est par exemple comprise entre 400 et 465 GWh/an, représentant un coût annuel d'environ 26 M€. Une partie importante de cette consommation est liée au fonctionnement des unités de traitement biologique des effluents (>60 %). Pour ces traitements biologiques, la production d'air représente environ 45-55 % de la consommation totale, le reste étant essentiellement imputable au pompage (AZIMI et ROCHER, 2016). Les consommations en réactifs chimiques (chlorure ferrique, méthanol...) dépassent les 110 000 tonnes par an. Le choix de procédés de traitement compacts et réactifs, tels que les décanteurs physico-chimiques ou les biofiltres, nécessaire pour répondre aux contraintes urbaines (surfaces disponibles limitées et maîtrise des nuisances olfactives) explique partiellement ces consommations importantes. Outre l'impact économique considérable, cette consommation a de multiples conséquences environnementales. La production et le transport de ces fluides augmentent fortement l'empreinte environnementale de l'activité de traitement. L'injection de réactif



dans la file de traitement des eaux impacte également la valorisation des sous-produits (digestion, valorisation agricole). La modélisation peut constituer un outil précieux pour assister la tâche d'optimisation d'une STEP à l'échelle globale. En effet, chaque choix d'exploitation local peut impacter les procédés suivants, rendant difficile l'estimation précise des effets sur toute la station. Le problème est notamment rendu plus complexe lorsque des objectifs économiques et environnementaux s'ajoutent aux critères de performance d'épuration déjà en place. Ainsi, les plateformes BSM1 (*Benchmark Simulation Model 1* ; COPP *et al.*, 2002) et surtout BSM2 (JEPPSSON *et al.*, 2006) ont été à l'origine conçus pour simuler le fonctionnement d'une station classique par procédé de boues activées, décantation et digestion anaérobie des boues, dans l'optique de tester et valider différentes stratégies de contrôle à l'échelle de la station. FLORES-ALSINA *et al.* (2014) ont de leur côté ajouté plusieurs éléments au modèle BSM2, et notamment la simulation de production de NO et N<sub>2</sub>O durant le traitement de l'azote, afin d'étendre la possibilité d'optimisation du modèle aux émissions de gaz à effet de serre, en plus des coûts et des performances de traitement des eaux. Ils ont testé plusieurs différents scénarios de modifications des modes d'exploitation de la station simulée, et ont illustré le fait qu'un changement appliqué à un procédé peut avoir des répercussions importantes sur le reste de la filière. D'autres travaux ont également été réalisés sur des stations réelles complètes (CIERKENS *et al.*, 2012).

La biofiltration est un procédé de traitement des eaux usées combinant l'épuration biologique par biofilm et la filtration physique des particules de l'eau (ROCHER *et al.*, 2008). La présence de nombreux phénomènes impactant l'efficacité du traitement (filtration, conversion biologique, croissance du biofilm, aération, lavages...) rend ce procédé relativement complexe à modéliser. HIDAKA et TSUNO (2004) ont proposé un modèle de biofiltre en négligeant la présence d'un biofilm et en considérant chaque type de particules et bactéries en trois classes différentes : en suspension, attachées et capturées. Les premières se trouvent dans le liquide, les autres forment le « biofilm ». Une pénétration complète du « biofilm » est considérée, et la croissance des bactéries est simulée par un modèle de type ASM1.

VIGNE *et al.* (2010) ont quant à eux cherché à valider le modèle de biofiltration disponible à l'époque dans le logiciel GPS-X® (Hydromantis Inc), sur un biofiltre pilote exploité en nitrification tertiaire, en menant plusieurs campagnes de mesure spécifiques. Un modèle de biofilm 1D en plusieurs couches est utilisé, à l'intérieur duquel le modèle ASM1 (HENZE *et al.*, 1987) simule la croissance des biomasses épuratrices. L'aération est simplifiée en fixant manuellement la concentration en oxygène dissout dans le biofilm à une valeur constante. Les résultats de simulation sur le suivi du pilote sont très proches des mesures effectuées en sortie de procédé, mais les auteurs concluent que la filtration des matières en suspension (MES) et l'évolution de la perte de charge sont à revoir. SAMIE *et al.* (2010) ont également réussi à calibrer ce modèle avec succès sur différents types de biofiltres sur la station de Seine Centre, située à Colombes. Enfin, BERNIER *et al.* (2014) ont également travaillé sur la modélisation de la biofiltration en différentes configurations de traitement, et sur différents procédés taille réelle des stations du Siaap.

Dans le cadre d'un projet de recherche appelé Mocopée-NextStep visant à développer des outils de modélisation et d'aide à l'exploitation du système réseau d'assainissement – STEP – rivière en région Parisienne, des travaux sont en cours pour modéliser la station complète de Seine Aval. Cette station, la plus grande du Siaap et traitant environ 1 500 000 m<sup>3</sup> d'eau usée par jour, est composée de plusieurs étapes de traitement en série et en parallèle, dont certaines sont composées de biofiltres. Cet article résume le travail accompli jusqu'à maintenant sur la modélisation de la nitrification par biofiltration à Seine Aval.

## 1. Matériels et méthodes

### 1.1. PRÉSENTATION DU PROCÉDÉ MODÉLISÉ

La partie du travail concernée par cet article a été réalisée sur l'étage de nitrification tertiaire par biofiltration de la station Seine Aval, tant dans sa configuration avant la refonte actuelle que post-refonte (Refonte : travaux engagés sur la station Seine Aval pour atteindre les objectifs de la directive cadre sur l'eau [horizon 2022]). La station avant refonte était composée d'un prétraitement, suivi d'une décantation primaire classique et d'un traitement biologique par boues activées forte charge, traitant la majorité de la DCO des eaux usées (Figure 1). Ces boues activées étaient suivies d'une décantation secondaire, puis d'une décantation physico-chimique tertiaire sur micro-sable visant à minimiser davantage les charges en MES en entrée de biofiltration. L'étage de nitrification était placé à la suite de cette double étape de décantation. Une post-dénitrification sur méthanol était enfin réalisée sur une partie des eaux nitrifiées avant rejet en Seine. La configuration post-refonte quant à

elle remplace la décantation primaire classique et le traitement par boues activées par une décantation primaire physico-chimique et une étape de traitement du carbone et des nitrates par pré-dénitrification sur biofiltres. L'étage de nitrification se retrouve à la suite de la pré-dénitrification, et est donc soumis à des concentrations en  $\text{NH}_4^+$  et des débits largement différents par rapport à l'ancienne configuration. Bien que la station soit toujours en cours de refonte, la configuration finale de la nitrification est déjà en œuvre depuis début 2017. Enfin, une ligne de traitement par bioréacteurs à membranes est également opérée en parallèle de la biofiltration.

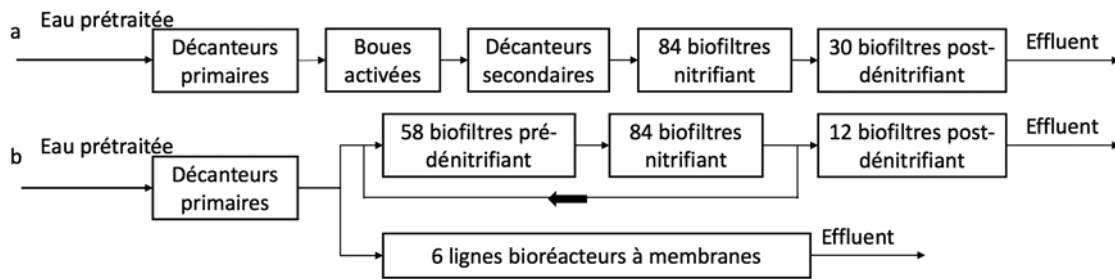


Figure 1 : Schéma fonctionnel de la station SAV avant refonte (a) et après refonte (b)

Plus précisément, l'étage de nitrification est composé de 84 biofiltres de type Biostyr® (OTV), chacun constitué de  $173 \text{ m}^3$  de surface et contenant un garnissage de 3,5 m de hauteur, composé de billes de polystyrène d'environ 4 mm. L'alimentation en eau et en air se fait par le bas, et le média, plus léger que l'eau, est retenu par une grille placée en sortie d'unité. Les 84 biofiltres sont séparés en trois blocs de 28 filtres, chaque bloc étant lui-même divisé en deux batteries de 14 filtres. Les lavages des biofiltres à Seine Aval sont réalisés à fréquence variable, mais habituellement proche d'une fois par jour.

## 1.2 JEUX DE DONNÉES UTILISÉS

Les jeux de données utilisés pour construire et calibrer le modèle de biofiltration sur la nitrification consistent en un mélange de données de capteurs (moyennes 15 minutes) et de résultats d'analyses laboratoires réalisées sur des échantillons composites 24 h. Les mesures issues de capteurs pour les concentrations en  $\text{NH}_4^+$  en entrée et en sortie de procédé, les MES et le  $\text{PO}_4^{3-}$  en entrée, l'OD et les nitrates en sortie ainsi que la température et les débits d'eau et d'air injectés ont été utilisées. Les autres données utilisées proviennent des analyses laboratoires en entrée et sortie de procédé et concernent la DCO, la DCO filtrée (simplifié en DCOs, uniquement disponible en 2017), les MES en sortie, le  $\text{NO}_3^-$  en entrée, le  $\text{NO}_2^-$ , le NTK et l'alcalinité. Ces mesures sont normalement effectuées de 5 à 7 jours par semaine.

Les mesures d'OD sont, contrairement aux autres données de capteurs utilisées, réalisées uniquement à la sortie de chaque batterie de biofiltres (14 filtres). Une moyenne des données de sonde, après nettoyage des valeurs aberrantes, et pondérée par les débits en sortie de chaque batterie a été calculée pour représenter la concentration moyenne en sortie de traitement. Une différence constante et non-négligeable a également été observée entre les moyennes journalières des données de plusieurs capteurs et les résultats d'analyses laboratoires correspondantes. Afin de corriger les valeurs de capteurs pour les ramener au niveau des résultats laboratoire jugés plus fiables, un ratio des moyennes journalières labo/capteur a été appliqué à toutes les données de capteur récoltées durant la journée concernée. Cette correction concerne les données de MES et  $\text{NH}_4^+$ . Également, afin d'éviter les problèmes de fractionnement causés par les deux différents types de mesures, des données de NTK et de DCO totale 15 minutes sont construites en appliquant le ratio journalier laboratoire  $\text{NTK}/\text{NH}_4^+$  et  $\text{DCO}/\text{MES}$  aux données de capteurs de  $\text{NH}_4^+$  et MES en entrée. Les conditions d'exploitation, comme le nombre de filtres en activité ou de pompes en fonctionnement, et la consommation d'énergie sont aussi collectées à une fréquence de 15 minutes.

## 1.3 DESCRIPTION DU MODÈLE UTILISÉ

Le modèle créé dans le cadre de ce projet a été développé dans le logiciel WEST (DHI, Horsholm, Danemark). Il est inspiré des différents modèles proposés dans le logiciel et du modèle de biofiltration SimBio, développé en première phase du programme Mocopée (BERNIER *et al.*, 2014). La base physique (dimensions, volume des pores, etc.) est reprise de celle du modèle de lit bactérien déjà proposé dans ce logiciel (VANHOOREN *et al.*, 2002). Comme ce modèle considère que l'eau est parfaitement mélangée dans les pores du garnissage, plusieurs réacteurs physiques sont placés en séries pour approximer l'évolution des concentrations de pollution sur la hauteur d'un biofiltre.

Le biofilm dans chacun de ces réacteurs est également simulé à l'aide du modèle de biofilm déjà présent dans le logiciel, dans une version largement modifiée. Celui-ci considère le biofilm comme étant à une dimension et divisé en plusieurs couches (dix par défaut, cinq utilisées) considérées homogènes. Il simule le transport des composants solubles par diffusion (loi de Fick), en prenant pour acquis une diffusion nulle de la couche du fond vers le garnissage, et une épaisseur de liquide stagnante entre la masse d'eau principale et le biofilm qui rajoute une résistance au transfert. Un facteur de réduction du coefficient de diffusion dans le biofilm a également été ajouté, et la variation de l'épaisseur de la couche de liquide stagnant a été ajoutée par le modèle d'OHASHI *et al.* (1981). Le transport des composants particuliers a été fortement modifié par rapport au modèle de base. Celui-ci se fait également par diffusion, mais aussi en plus par filtration des MES du liquide vers le biofilm, et par détachement (biofilm vers liquide). L'épaisseur de chacune des couches est variable et calculée à partir de la masse sèche de particules qu'elle contient. Un certain échange de média entre les réacteurs, et donc du biofilm qui y est attaché, est pris en compte durant le traitement de l'eau. Un second échange, beaucoup plus important, est également considéré durant les lavages.

La filtration, qui remplace le phénomène d'attachement considéré dans le modèle de biofilm de base, est simulée par une combinaison des modèles d'IVES (1970) et HORNER *et al.* (1986), qui sont des modèles de filtration phénoménologiques. Le détachement des particules vers le liquide, contrairement à la version de base du modèle, est considéré ne se produire que dans la couche de surface, hormis lorsque le biofilm a atteint une épaisseur totale limite imposée. Le détachement des autres couches est considéré se faire vers les couches adjacentes. Dans tous les cas, il est modélisé par une cinétique d'ordre un en fonction de l'épaisseur de la couche concernée. Le phénomène des lavages a également été ajouté au modèle de base. Les lavages sont supposés se produire pendant 15 minutes à toutes les 24 heures. Pendant cette période, une fraction fixée par l'utilisateur du biofilm est enlevée. L'enlèvement affecte d'abord la couche de surface. Si son épaisseur est inférieure à l'épaisseur à enlever, l'enlèvement se propage à la couche suivante, jusqu'à atteindre l'enlèvement demandé. Une valeur d'épaisseur minimum est affectée à toutes les couches afin d'éviter des erreurs mathématiques. Enfin, un certain degré de mélange du média, et surtout du biofilm qui y est attaché, est considéré comme possible entre chaque réacteur. L'intensité de ce mélange est faible durant le traitement des eaux, et plus forte durant les lavages. Chacune de ces modifications a pour but de mieux représenter les phénomènes importants se déroulant dans un biofiltre par rapport à un lit filtrant.

Les réactions liées à la croissance des biomasses épuratrices ne sont considérées que dans le biofilm et pas dans la phase liquide directement. Celles-ci sont simulées à l'aide d'une version modifiée de l'ASM1 (HENZE *et al.*, 1987). Cette version intègre l'assimilation des ortho-phosphates et la nitrification et dénitrification en plusieurs étapes, tel que considéré dans le modèle SimBio. Dans ce cas-ci toutefois, la dénitrification complète en quatre étapes proposée par HIATT et GRADY (2008) est intégrée dans le but de simuler les émissions de NO et N<sub>2</sub>O durant le traitement. De même, les étapes de nitrification sont remplacées par le modèle de POCQUET *et al.* (2016), qui simule la production de N<sub>2</sub>O par plusieurs voies en parallèle en fonction des conditions ambiantes. Un flux molaire de gaz est également ajouté au modèle afin de simuler l'enrichissement progressif du gaz en NO et N<sub>2</sub>O lors du traitement. Afin de simplifier ces échanges, le volume occupé par ce gaz n'est pas considéré. De manière parallèle, l'appauvrissement du gaz en O<sub>2</sub> est pris en compte. L'effet de l'intensité de l'aération sur les échanges gaz-liquide est pris en compte par une loi de puissance décrivant l'évolution des coefficients d'échange  $k_L a$  en fonction du débit d'air injecté (USEPA, 1989).

Enfin, la consommation d'énergie liée au pompage de l'eau dans les biofiltres, ainsi qu'à la production et à l'injection d'air dans le procédé, est simulée par des versions simplifiées des équations proposées par GERNAEY *et al.* (2006) et WU *et al.* (2005). Ces équations estiment les consommations à partir des débits d'eau ou d'air concernés, et de paramètres techniques fixes et déterminés à partir de la documentation des fabricants des équipements concernés.

## 1.4 STRATÉGIE DE CALIBRATION ET VALIDATION

Le modèle a été calibré à l'aide des résultats d'une analyse de sensibilité globale sur le modèle en nitrification (SIN *et al.*, 2011), à partir autant que possible des valeurs de paramètres proposées par les modèles de référence utilisés (BERNIER *et al.*, 2014 ; HIATT et GRADY, 2008 ; POCQUET *et al.*, 2016). Cette analyse a permis d'identifier des sous-groupes de paramètres particulièrement influents sur chaque variable ou groupe de variables importantes à simuler précisément. La calibration du modèle a ensuite été faite par la réalisation de simulations Monte Carlo sur chaque sous-groupe de paramètres identifié (SIN *et al.*, 2008), pour trouver la meilleure combinaison possible produisant des résultats similaires aux mesures disponibles en sortie de procédé sur les variables suivantes :

DCO/MES,  $\text{NH}_4^+/\text{NO}_3^-/\text{OD}$ ,  $\text{NO}_2^-$ , et  $\text{PO}_4^{3-}$ . Cette première série de simulations Monte Carlo a été réalisée sur une période de 30 jours, allant de mi-juillet à mi-août. Deux périodes supplémentaires ont été simulées afin de vérifier le jeu de paramètres sur les phénomènes à dynamique lente, notamment l'effet de la température. Il s'agit d'abord de mi-août à mi-octobre 2009, puis de l'année 2009 complète. Les paramètres issus de la calibration ont été modifiés manuellement au besoin.

La validation du modèle a été réalisée sur la période de mi-avril à mi-octobre 2017, sur un fonctionnement de la nitrification selon la nouvelle configuration de la station. Le fractionnement de l'affluent a été modifié par rapport à la calibration de la période 2009, afin de prendre en compte le changement important de nature des eaux issues de la pré-dénitrification. La précision du modèle a été évaluée de manière qualitative et quantitative durant la calibration et la validation, en utilisant des scores statistiques décrivant l'importance des erreurs de prédiction. L'erreur moyenne et l'erreur moyenne absolue sont appliquées dans cette étude. (HAUDUC *et al.*, 2015).

## 2. Résultats et discussion

### 2.1 RÉSULTATS DE CALIBRATION-VALIDATION AVANT LA MODERNISATION (ANNÉE 2009)

Les résultats de simulation du modèle calibré (année 2009 au complet) sont présentés à la Figure 2 pour l'azote ammoniacal. Aux fins de clarté, seule la sortie des biofiltres pour une partie de la période simulée est présentée. Tel qu'illustré en Figure 2, les prédictions collent généralement bien aux observations du capteur en sortie de procédé. Le modèle alterne entre légère surestimation ou sous-estimation des mesures sur certaines périodes, mais les dynamiques de variation rapides observées sont pour la plupart bien suivies. Bien que peu visible sur la Figure 2 directement, les variations saisonnières légères, qu'elles soient dues aux températures ou aux périodes de vacances importantes, sont également bien reproduites. Les résultats des scores statistiques (Tableau 1) montrent toutefois qu'il y a globalement une légère sous-estimation du  $\text{NH}_4^+$  en sortie de traitement, la valeur de l'erreur moyenne (EM) étant de -1,43 mgN/L.

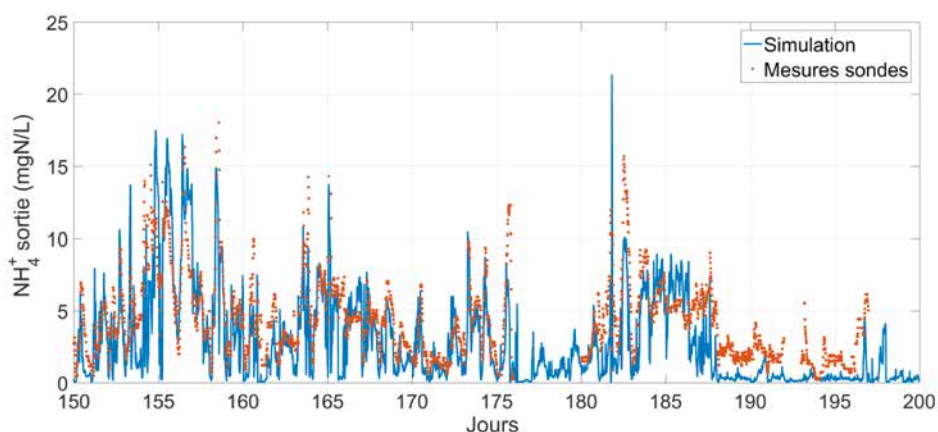


Figure 2 : Résultats partiels de simulation du  $\text{NH}_4^+$  en sortie de nitrification en 2009 (points : observations, ligne: simulation)

Le Tableau 1 résume les résultats de la simulation sur les autres variables d'intérêt en sortie de nitrification. La légère surestimation de la nitrification pour l'année 2009 est confirmée sur le score d'erreur moyenne sur les nitrates (3,23 mgN/L) qui est positif. Les autres résultats de score, que ce soit pour l'EM ou l'EMA (erreur moyenne absolue), sont également faibles. Les résultats sur les MES et la DCO sont toutefois un peu plus élevés que pour le reste des variables, la filtration physique des particules étant un processus assez difficile à simuler précisément.

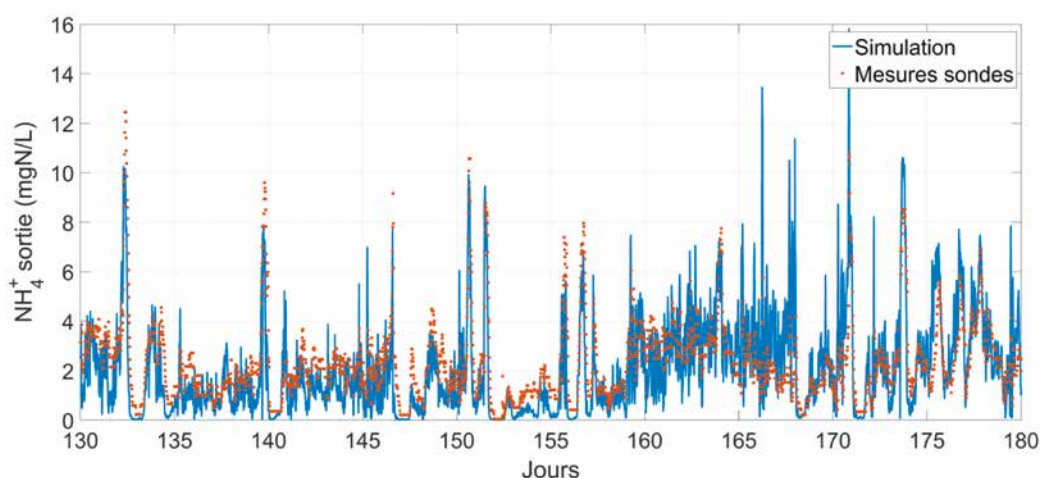
Variable	Année 2009			Année 2017				
	n	Moyenne observée	EM	EMA	n	Moyenne observée	EM	EMA
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (gN/m <sup>3</sup> )	27048	5,55	-1,43	2,68	14841	2,30	-0,44	1,05
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (gN/m <sup>3</sup> )	34272	34,04	3,23	4,35	14841	19,12	1,31	2,44
OD (gO <sub>2</sub> /m <sup>3</sup> )	33313	6,63	0,06	0,69	17226	6,40	-0,75	1,02
NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> (gN/m <sup>3</sup> )	329	0,78	-0,18	0,36	178	0,77	0,31	0,56
DCO (gO <sub>2</sub> /m <sup>3</sup> )	331	62,30	-2,90	10,50	180	41,50	-0,20	4,20
MES (g/m <sup>3</sup> )	332	21,60	3,80	8,50	180	10,70	-0,30	2,50
PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> (gP/m <sup>3</sup> )	329	0,39	0,07	0,12	180	0,76	-0,13	0,15

**Tableau 1 : Résultats des scores statistiques pour les périodes de calibration et validation pour toutes les variables simulées (n : nombre de données, EM : Erreur moyenne, EMA : Erreur moyenne absolue)**

Les paramètres modifiés durant la calibration par rapport aux valeurs par défaut trouvées dans la littérature concernent principalement la filtration (facteur d'empilement de média, coefficient de filtration sur filtre propre et les coefficients pour l'équation d'Ives) et les paramètres cinétiques des biomasses nitritantes et nitrifiantes.

## 2.2 RÉSULTATS DE VALIDATION FINALE APRÈS LA MODERNISATION (2017)

Les résultats partiels de validation finale (de mi-avril à mi-octobre 2017) sont montrés à la Figure 3 pour les concentrations de NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en sortie. Pour rappel, la validation a été faite sur des données acquises alors que la nitrification fonctionne dans une configuration pré-dénitrification + nitrification. La recirculation des eaux nitrifiées à l'étage de biofiltration précédent produit donc des données en azote ammoniacal en entrée, et par conséquent en sortie de procédé inférieures à l'ancienne configuration (Tableau 1). De même, les nitrates en entrée sont plus élevés qu'initialement, mais tout de même plus faibles en sortie de nitrification. Enfin, les charges en MES et DCO totale en entrée de nitrification sont plus faibles qu'en 2009, l'étage de pré-dénitrification se chargeant d'éliminer la majorité des particules qui n'ont pas été décantées auparavant. Tel qu'illustré en Figure 3, la qualité de prédiction du modèle n'est pas affectée négativement par ce changement important de configuration. Au contraire, les prédictions sont globalement légèrement plus proches des observations. Ceci est confirmé par les résultats de scores statistiques (Tableau 1) qui sont près de deux fois inférieurs en 2017 qu'en 2009 pour le NH<sub>4</sub><sup>+</sup>. En outre, l'erreur moyenne sur l'azote ammoniacal et sur les nitrates est ramenée à -0,44 et 1,31 mgN/L respectivement, signe que les taux de nitrification ne sont plus surestimés de manière notable.



**Figure 3 : Résultats partiels de simulation du NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en sortie de nitrification en 2017 (points : observations, ligne : simulation)**



Les résultats de simulation en validation finale pour les autres variables sont affichés uniquement sous forme de scores au Tableau 1. L'erreur de prédiction moyenne pour le  $\text{NO}_2^-$  (EMA de 0,56 vs 0,36 mgN/L) et pour l'OD (1,02 vs 0,69 mgO<sub>2</sub>/L) est légèrement plus élevée pour 2017 que 2009. Au contraire, les résultats pour la DCO et les MES sont plutôt améliorés (EMA de 4,20 mgO<sub>2</sub>/L et 2,50 mg/L respectivement, vs 10,50 mgO<sub>2</sub>/L et 8,50 mg/L). Outre l'erreur moyenne, les résultats d'EMA pour le  $\text{NO}_3^-$  sont aussi améliorés. Enfin, l'erreur demeure du même niveau qu'en 2009 pour le  $\text{PO}_4^{3-}$ . En sus des modifications apportées au fractionnement de l'entrée en nitrification en 2017, une diminution de 15% du coefficient de transfert de l'oxygène gaz-liquide ( $k_L a$ ) a été appliquée par rapport à la période de calibration. Cette correction a été appliquée pour corriger une sous-estimation constante du  $\text{NH}_4^+$  en sortie. Elle est toutefois cohérente avec le vieillissement probable du dispositif d'aération, et donc sa baisse d'efficacité, pendant les 8 années séparant les deux périodes simulées.

Enfin, les résultats d'estimation des consommations en énergie liées au pompage des eaux vers l'étage complet de nitrification, ainsi qu'à la production et l'injection d'air dans le procédé, sont présentés en Figure 4 pour la période de validation finale du modèle. Dans les deux cas, il s'agit de consommations journalières. Bien que les équations utilisées soient relativement simples, les tendances observées sont bien reproduites par la simulation, tant pour le pompage que l'aération. Dans le second cas, même si quelques mesures sont surestimées ou sous-estimées, l'ampleur des fortes variations saisonnières et inter-journalières est bien reproduite.

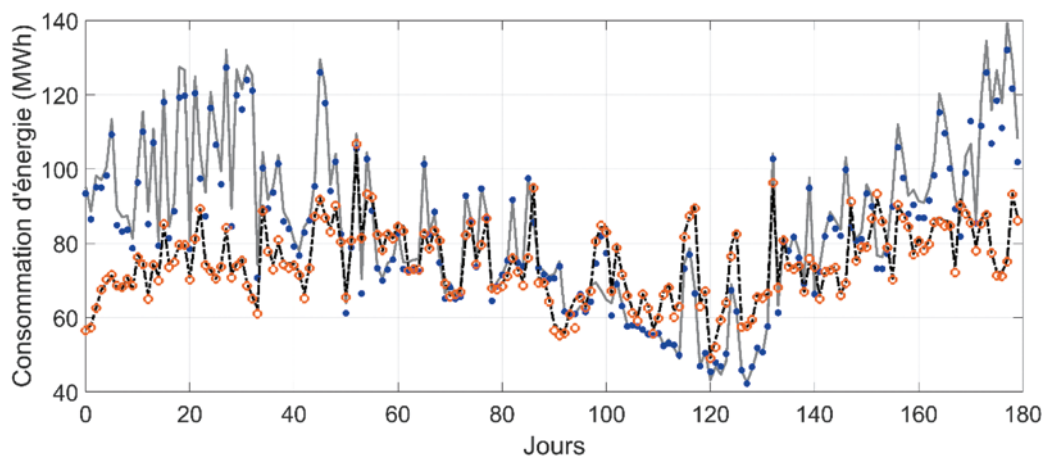


Figure 4 : Résultats de simulation des consommations énergétiques de l'étage de nitrification en 2017 (points bleus : observations aération, ligne grise: simulation aération, cercles oranges : observations pompage, pointillé noir : simulation pompage)

## Conclusion

Un modèle de biofiltration basé sur les modèles offerts dans le logiciel WEST et sur les travaux antérieurs menés dans le cadre du programme Mocopée a été proposé. Ce modèle intègre, en plus des phénomènes physiques et biologiques classiquement considérés, la production de nitrites, monoxyde et protoxyde d'azote, ainsi que l'estimation des consommations énergétiques liées au pompage et à l'aération dans le procédé. Celui-ci a été pour l'instant calibré sur l'étage de nitrification de la station Seine Aval dans l'ancienne configuration de la station. Il a également été validé sur la configuration actuelle de la nitrification, sur un fonctionnement largement différent de la période de calibration. Les résultats de prédiction sur l'azote ammoniacal, l'oxygène dissout et les nitrates en sortie de procédé sont similaires aux observations issues des capteurs placés aux mêmes endroits. Les autres variables simulées (DCO, MES,  $\text{PO}_4^{3-}$ ...) sont également proches des observations moyennes journalières issues des analyses laboratoire. Les estimations des consommations énergétiques suivent très bien les variations observées, tant pour le pompage que l'aération.

Ce modèle compréhensif de biofiltration est en cours de calibration sur les traitements de pré- et post-dénitrification sur biofiltre au Siap. Une fois ce travail de calibration finalisé, la jonction des modèles représentant chacune des trois étapes d'épuration permettra d'évaluer l'impact de différents modes d'exploitation (taux de recirculation, débits de méthanol injectés, intensité de l'aération...) sur toute la file de traitement par biofiltration sur la station de Seine Aval. Les impacts pris en compte seront tant au niveau des performances d'abattement de la pollution,



qu'économiques (utilisation de réactifs) et environnementaux (équivalents CO<sub>2</sub>). Ce travail permettra donc de faciliter la prise de décision quant au choix des modes d'exploitation à privilégier en fonction des conditions en entrée de traitement et des objectifs de performance à atteindre.

## Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier le programme de recherche Mocopée pour le financement de ce travail, ainsi que Madame Geneviève Bord pour l'apport de plusieurs informations techniques.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- › 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.
- › ROCHER V. BERNIER J. GUERIN-RECHDAOUI S., LESSARD P. (2014) : « Modélisation du fonctionnement des biofiltres nitrifiants de la station Seine Aval (Siaap). 1. Cas des performances épuratoires. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 11 : 85-104
- › ROCHER V. BERNIER J. GUERIN-RECHDAOUI S., LESSARD P. (2014) : « Modélisation du fonctionnement des biofiltres nitrifiants de la station Seine Aval (Siaap). 1. Cas de l'encrassement et des pertes de charge. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 11 : 106-118

## Bibliographie

- AZIMI S., ROCHER V. (2016) : « Stratégie d'optimisation énergétique au sein d'une station d'épuration. Cas du Siaap. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 5 : 17-31.
- 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.
- CIERKENS K., NOPENS I., DE KEYSER W., VAN HULLE S., PLANO S., TORFS E., AMERLINCK Y., BENEDETTI L., VAN NIEUWENHUIJZEN A., WEIJERS S., DE JONGE J. (2012) : « Integrated model-based optimisation at the WWTP of Eindhoven. » *Water Practice and Technology* ; 7(2) : 9 p.
- COPP JB. (2002) : *The COST Simulation Benchmark. Description and Simulator Manual*. Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg.
- FLORES-ALSINA X., ARNELL M., AMERLINK Y., COROMINAS L., GERNAEY K.V., GUO L., LINDBLOM E., NOPENS I., PORRO J., SHAW A., SNIP L., VANROLLEGHEM P.A., JEPSSON U. (2014) : « Balancing effluent quality, economic cost and greenhouse gas emissions during the evaluation of (plant-wide) control/operational strategies in WWTPs. » *Science of the Total Environment* ; 466-467 : 616-624.
- GERNAEY K., NOPENS I., VRECKO D., ALEX J., DUDLEY J. (2006) : *An updated proposal for including further detail in the BSM2 PE calculation*. Internal IWA BSM2 Task Group document.
- HAUDUC H., NEUMANN M.B., MUSCHALLA D., GAMERITH V., GILLOT S., VANROLLEGHEM P.A. (2015) : « Efficiency criteria for environmental model quality assessment: A review and its application to wastewater treatment. » *Environmental Modelling & Software* ; 68 : 196-204.
- HENZE M., GRADY C.P.L., GUJER W., MARAIS G.V.R, MATSUO, T. (1987) : « A general model for single-sludge wastewater treatment systems. » *Water Research* ; 21(5) : 505-515.
- HIATT W.C., GRADY C.P. (2008) : « An updated process model for carbon oxidation, nitrification, and denitrification. » *Water Environment Research* ; 80(11) : 2145-2156.
- HIDAKA T., TSUNO H. (2004) « Development of a biological filtration model applied for advanced treatment of sewage. » *Water Research* ; 38(2) : 335-346.
- HORNER R.M.W., JARVIS R.J., MACKIE R.I. (1986) : « Deep bed filtration - a new look at the basic equations ». *Water Research*, 20 : 215-220.
- IVES K.J. (1970) : « Rapid filtration. » *Water Research*, 4 : 201-223.
- JEPSSON U., ROSEN C., ALEX J., COPP J., GERNAEAY KV., PONS M-N., VANROLLEGHEM PA. (2006) : « Towards a benchmark simulation model for plant-wide control strategy performance evaluation of WWTPs. » *Water Science and Technology* ; 53(1) : 287-295.
- OHASHI H., SUGAWARA T., KIKUCHI K.I., KONNO H. (1981) : « Correlation of liquid-side mass transfer coefficient for single particles and fixed beds. » *Journal of Chemical Engineering of Japan* ; 14(6) : 433-438.
- POCQUET M., WU Z., QUEINNEC I., SPÉRANDIO M. (2016) : « A two pathway model for N<sub>2</sub>O emissions by ammonium oxidizing bacteria supported by the NO/N<sub>2</sub>O variation. » *Water Research* ; 88 : 948-959.
- ROCHER V., PAFFONI C., GONCALVES A., AZIMI S., GOUSAILLES M. (2008) : « La biofiltration des eaux résiduaires urbaines: Retour d'expérience du Siaap. » *Revue des Sciences de l'Eau* ; 21(4) : 475-485.
- SAMIE G., LESSARD P., ROCHER V. (2010) : « Simulation du comportement d'unités de biofiltration des eaux usées. » *Techniques Sciences Méthodes* ; 11 : 85-108.
- SIN G., DE PAUW D.J., WEIJERS S., VANROLLEGHEM P.A. (2008) : « An efficient approach to automate the manual trial and error calibration of activated sludge models. » *Biotechnology and Bioengineering* ; 100(3) : 516-528.

- SIN G., GERNAEY K.V., NEUMANN M.B., VAN LOOSDRECHT M.C., GUJER W. (2011) : « Global sensitivity analysis in wastewater treatment plant model applications: prioritizing sources of uncertainty. » *Water Research* ; 45(2) : 639-651.
- US EPA (1989) : *Design manual fine pore aeration systems*. US EPA, Cincinnati.
- VANHOOREN H., VAN HULLE S., DE PAUW D, VANROLLEGHEM P.A. (2002) : « Monitoring and modelling a pilot-scale trickling filter using on-line off-gas analysis. » *Proceedings of the International Specialized Conference on Biofilm Monitoring, Porto* : 17-20.
- VIGNE E., CHOUBERT J.M., CANLER J.P., HEDUIT A., SORENSEN K., LESSARD P. (2010) : « A biofiltration model for tertiary nitrification of municipal wastewaters. » *Water Research* ; 44(15) : 4399-4410.
- WU Y., CHEN Q., LIU S. (2005) : *Fans and Compressors (first edition)*. Tsinghua University Press, Beijing, China (en Chinois).

# Modélisation et régulation multi-variables d'un four d'incinération des boues à lit fluidisé

## Multi-variable modeling and regulation of a bubbling fluidized bed incinerator

Souad Rabah<sup>[1,2]</sup>, Hervé Coppier<sup>[1,2]\*</sup>, Mohammed Chadli<sup>[2]</sup>, Didier Escalon<sup>[3]</sup>

<sup>[1]</sup> ESIEE, Amiens

<sup>[2]</sup> UPJV, Laboratoire MIS, Amiens

<sup>[3]</sup> Siaap, Seine Center, Colombes

\* Auteur de correspondance : [coppier@esiee-amiens.fr](mailto:coppier@esiee-amiens.fr)



*La loi de transition énergétique pour la croissance verte a orienté et fixé les grands objectifs du nouveau modèle énergétique français à l'horizon 2050. Plus sobre, le système prévoit, entre autres, une réduction des consommations énergétiques et la promotion des énergies renouvelables et de récupération (EnRR). Considérant les boues d'épuration, si la valorisation matière est la principale voie de traitement, leur incinération permet de récupérer une EnRR, sous forme de chaleur. Bien que cette voie de traitement par incinération soit un moyen efficace de produire de la chaleur, il est essentiel de maîtriser son fonctionnement pour permettre une production optimale et continue. Pour cela, le développement d'un modèle sous forme d'un système multi-variable (MISO) a été imaginé permettant, par la suite, de définir et tester un régulateur afin d'optimiser les injections de réactifs et donc, de fiabiliser le fonctionnement de l'incinération.*

## Sous-espaces d'état - MIMO - Commande prédictive

### Introduction

La loi de transition énergétique pour la croissance verte a orienté et fixé les grands objectifs du nouveau modèle énergétique français à l'horizon 2050. Plus sobre, le système prévoit, entre autres, une réduction des consommations énergétiques et la promotion des énergies renouvelables et de récupération (EnRR). Dans ce dernier cas, l'ambition est d'atteindre 32 % de la consommation d'énergie brute dès 2030. Aussi, les industriels et collectivités recherchent des sources d'énergie alternatives aux énergies fossiles. Dans le domaine du traitement des eaux usées, les boues, résidus de l'épuration des eaux usées, ont une valeur énergétique non négligeable. Si la valorisation matière est la principale voie de traitement de ces résidus, leur incinération permet de récupérer une EnRR, sous forme de chaleur, utilisable au sein ou en dehors de la station d'épuration (réseau de chauffage, boucle de chaleur, etc.).

Bien que cette voie de traitement par incinération soit un moyen efficace de produire de la chaleur, il est essentiel de maîtriser son fonctionnement pour permettre une production optimale et continue. Une des principales clés pour maintenir ce fonctionnement stable et constant réside dans la maîtrise de la température au sein du réacteur. Cette température est, bien évidemment, dépendante de la qualité et de la quantité de boues au sein de la chambre de combustion. Si la quantité de boue injectée reste un paramètre maîtrisable en temps réel, les informations sur sa qualité et donc les leviers à disposition pour en maîtriser les impacts sur la température au sein de la chambre de combustion ne sont pas disponibles dans un délai suffisant en termes d'exploitation. Aussi,

afin de maintenir une température stabilisée, il est nécessaire de réaliser des ajustements par injection de fioul. Ces injections doivent ainsi permettre de maintenir une température de combustion aux alentours de 850 °C sans descendre en dessous, ce qui en arrête le fonctionnement. Or, sur la station Seine Centre du Siaap (Service Public de l'Assainissement Francilien) (800 000 eq.hab., Colombes), du fait de la loi de commande actuellement en place, les injections de fioul ne se font pas dans un délai adapté aux variations de température. Ce retard de réponse provoque une baisse de la température dans le réacteur (inférieure à 850 °C) et provoque l'arrêt des fours.

L'objectif du présent travail est donc d'élaborer un modèle multi-variable permettant de simuler le fonctionnement du four d'incinération à lit fluidisé de la station Seine Centre. Une fois le modèle calibré et validé, il sera possible de tester différents régulateurs, prédictifs ou non, commandant les injections de fioul dans l'objectif de les optimiser et de permettre le maintien de la température de consigne dans le réacteur. Ce travail s'intègre dans le cadre du programme de recherche Mocopée (MODélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux), au sein de l'axe 3 portant sur le contrôle-commande des procédés de traitement.

Après un bref rappel du mode de fonctionnement d'un four à lit fluidisé, ce document s'attèle à présenter le développement du modèle sous forme d'un système multi-variables et le choix des données d'entrée. Suite à quoi, les principaux résultats de la modélisation sont présentés.

## 1. Matériels et méthodes

### 1.1. SITE D'ÉTUDE

Les 2,5 millions de mètres cubes d'eau usée générés chaque jour sur le bassin versant francilien sont acheminés vers des usines d'épuration du Siaap qui disposent de filières de traitement complètes (Figure 1).

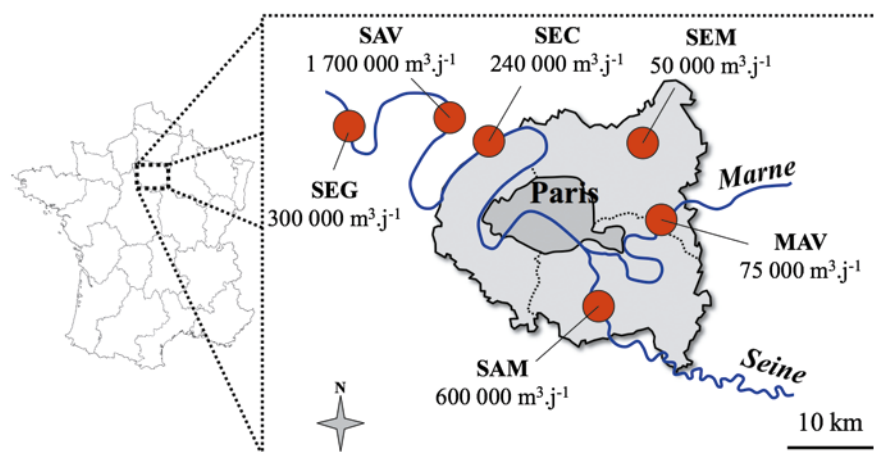


Figure 1 : Stations d'épuration du Siaap

Les stations sont réparties d'amont en aval de l'agglomération parisienne et traitent des débits compris entre 50 000 et 1 700 000 m³ par jour. Différentes technologies sont utilisées pour le traitement des eaux et des boues. La station Seine aval (SAV), associe une filière de traitement biologique classique et une filière de biofiltration pour traiter les eaux et la file boue comprend un traitement thermique à haute pression. Les usines Seine Grésillons (SEG), Seine Centre (SEC) et Marne aval (MAV) utilisent le procédé de biofiltration pour le traitement des eaux. Pour le traitement des boues, SEC et MAV incinèrent les boues déshydratées et SEG utilise le séchage thermique. L'usine Seine Amont (SAM) utilise un traitement par boues activées pour les eaux et différentes filières pour les boues (séchage, incinération, pyrolyse). Enfin, la station Seine Morée (SEM), mise en route fin 2013, utilise la filtration membranaire pour le traitement des eaux. Le présent travail a été mené sur les fours d'incinération de l'usine SEC (800 000 eq.hab, Colombes).

## 1.2. L'INCINÉRATION PAR FOUR À LIT FLUIDISÉ

### 1.2.1. Description du four d'incinération des boues de Sjaap

Le four est composé de deux cylindres coaxiaux superposés, reliés par deux parties tronconiques. Le cylindre inférieur constitue la boîte à vent et est séparé du lit de sable (M1) par une voûte en briques réfractaires appelée « voûte de fluidisation ». Au-dessus du lit se trouve le réacteur (M2). La partie tronconique est constituée par le lit de sable et par une jonction entre le lit et le réacteur (Figure 2).

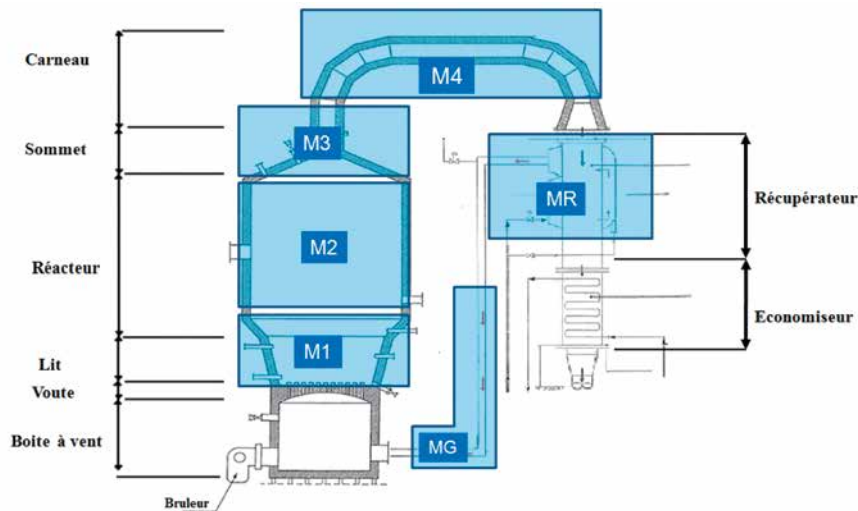


Figure 2 : Schéma du four à lit fluidisé de l'usine SEC

Les briques réfractaires de la voûte sont percées sur toute leur hauteur de manière à permettre le scellement de tuyères. Ces tuyères, par la perte de charge qu'elles génèrent, permettent l'équipartition de l'air sur toute la section du lit de sable supporté par la voûte. Le dôme (M3), de forme cylindro-conique, canalise les gaz de combustion vers l'exutoire au sommet du four. Ces fumées sont évacuées par un carneau (M4) vers l'échangeur fumées/air (MR), appelé récupérateur. La fluidisation est réalisée à l'aide d'air extérieur, réchauffé à l'aide de l'échangeur (MG).

### 1.2.2. Principe de fonctionnement

Le fonctionnement d'un four à lit fluidisé peut être décrit sur la base de trois modules décrivant respectivement son état, sa phase et son mode (Figure 3).

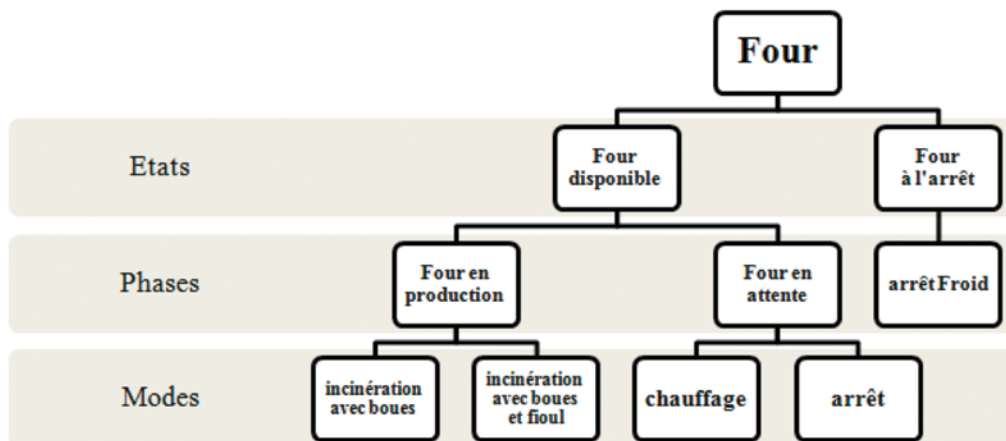


Figure 3 : Diagramme de classification des modes de fonctionnement du four.



Le module « état » définit la disponibilité du four et de toutes les utilités qui y sont rattachées. Ainsi, un four est en état disponible ou indisponible. Dans le cas d'un four disponible, le module « phase » définit si le four est en production ou s'il est en attente de mise en production. Enfin, dans le module « mode », un four en production peut être en production avec incinération de boue ou en incinération de boue avec fioul. L'objectif de cette étude est de déterminer un modèle mathématique qui décrive la phase « Four en Production » dans les modes avec et sans fioul.

Les boues déshydratées sont poussées par des pompes à piston dans le lit de sable en suspension (fluidisé) et maintenu à température en respectant la règle des « 3 T » :

#### › Turbulence grâce au lit de sable en mouvement

Dans la phase production, l'air de fluidisation est admis dans la boîte à vent après avoir subi un préchauffage (à 600 °C environ) grâce au récupérateur (échangeur fumées-air). Il passe alors à travers les tuyères en dessous du lit de sable, qui est ainsi en état de fluidisation. Les grandes vitesses à la sortie des tuyères assurent une bonne répartition de l'air dans le lit.

#### › T° > 850 °C dans le réacteur

Le maintien de la température dans le réacteur est assuré par un réseau d'injection de fioul et de cannes d'injection (T2S). En effet, l'arrêt du 20 septembre 2002 impose que les fumées soient maintenues à 850 °C pendant au moins 2 secondes, dans le but de s'assurer que la combustion des boues soit complète et réduire ainsi la production de monoxyde de carbone (CO).

#### › Temps de séjour dans le réacteur > 2 secondes

Le volume du réacteur permet, grâce à un temps de séjour de plusieurs secondes, de compléter la combustion des matières organiques et de séparer les particules de sable. Les cendres, résidus minéraux de la combustion, sont alors entraînés par les gaz.

## 2. Modélisation de four d'incinération à lit fluidisé

### 2.1. CHOIX DU MODÈLE

Nombreuses sont les productions scientifiques qui ont proposé des modèles de connaissances basés sur les lois de la physique et de la chimie de différents types d'incinérateurs en régime permanent en tenant compte principalement des émissions polluantes. Ces modèles vont du modèle 1-D à des modèles plus ou moins complexes 2-D, modifiés et optimisés pour obtenir des modèles plus complexes 3-D (YANG *et al.*, 2002 ; MARIAS, 2003 ; ASTHANA, 2008). Ce type de modèle nécessite de définir l'ensemble des phénomènes physiques afin de les intégrer dans la mise en équation (CHADLI et COPPIER, 2013). Sur le plan pratique, cela revient à choisir les variables représentatives du processus et les classer selon leur pertinence et leur fonction. Les fonctions préalablement définies sont alors : variables d'état, variables d'entrées (manipulées) ou de sortie (mesurables ou non mesurables) et variables de perturbations (mesurables ou non mesurables). Du point de vue de la commande, on peut remarquer que ces modèles représentent le régime permanent et que très peu d'auteurs ont étudié les problèmes dynamiques. Aussi, il n'existe pas ou pratiquement pas de modèle de connaissance dynamique disponible (CORRIOU, 2010). Enfin, les phases de traitement des fumées ne sont pas considérées dans ces études. Dans le cas du fonctionnement des fours d'incinération, la détermination d'un modèle détaillé qui prend en considération tous les processus impliqués est très complexe. Cette difficulté est liée d'une part, à l'absence d'information quant à la composition des intrants qui sont complexes et instables et, d'autre part, à l'absence de données sur les bilans massiques et énergétiques liées à la combustion des boues au sein du réacteur.

Aussi, pour atteindre les objectifs, c'est un modèle statistique de type MISO (*Multi Input - Single Output*) qui a été considéré dans ce travail par la méthode d'indentification. Cette méthode permet d'obtenir un modèle expliquant les valeurs de sortie à partir de la connaissance des valeurs d'entrée. Cela nécessite de minimiser une « erreur de prédiction ». En d'autres termes, ces techniques établissent un modèle qui donne une erreur minimale (suivant un critère déterminé) dans la prédiction des sorties futures, sachant que les sorties passées et/ou les entrées sont connues. La stratégie d'indentification définie est basée sur la méthode de sous-espaces d'état. Il s'agit de faire une relation matricielle exprimant les sorties en fonction de l'état et des entrées en se basant sur des outils de l'algèbre linéaire, notamment les projections matricielles.

Pour cela, le système Linéaire à Temps Invariant (LTI) discret suivant est considéré :

$$\begin{aligned}x_{k+1} &= A x_k + B u_k + v_k \\y_k &= C x_k + D u_k + w_k\end{aligned}$$

Avec  $x_k$  est l'état,  $u_k$  est l'entrée,  $y_k$  représente la sortie,  $v_k$  et  $w_k$  sont respectivement des bruits d'état et de sortie du système et sont supposés stationnaires, blancs. On supposera en plus que les entrées sont déterministes et non corrélées avec les bruits de sortie et d'état.

L'objectif est de déterminer l'ordre  $n$  du système et d'obtenir une réalisation  $(A, B, C, D)$  du système, et ceci à partir de la seule connaissance d'un nombre fini  $q$  de mesures des entrées  $u_1, u_2, \dots, u_q$  et des sorties  $y_1, y_2, \dots, y_q$  (PEKPE, 2004). Le but recherché n'est pas de déterminer les matrices  $A, B, C$  et  $D$  du système, mais une réalisation équivalente  $(T^{-1}AT, T^{-1}B, CT, D)$  où  $T$  est une matrice inversible. Cela implique qu'on ne peut obtenir, à partir de la seule connaissance des entrées et des sorties, qu'un système  $(T^{-1}AT, T^{-1}B, CT, D)$  équivalent au système  $(A, B, C, D)$  de départ.

Ce modèle sera élaboré en considérant que le four d'incinération est structurellement composé de deux parties principales séparées : le lit de sable et le lit post combustible. De plus, il faudra admettre les hypothèses que les réacteurs étudiés sont parfaitement agités et que les étapes de séchage et de volatilisation sont instantanées, sous une température uniforme.

## 2.2. HYPOTHÈSES PRISES EN COMPTE

Face à la complexité du système d'incinération et le grand nombre de facteurs qui interviennent dans l'incinération, plusieurs hypothèses sont à prendre en considération.

### › Siccité de boue constante

À la suite du traitement des eaux, une étape de déshydratation des boues précède la phase d'incinération, les boues récupérées sont épaissies par des centrifugeuses, avec une injection de polymères. La siccité obtenue par ce traitement varie entre 22 % et 27 %.

Selon une étude sur la composition des boues, une variation de cette siccité est constatée sur 2 ans, représentée par le taux des matières sèches (MS) et matières volatiles (MV). Les MS évoluent entre 21,70 et 26,90 %, avec une moyenne de 24,38 % et les MV fluctuent entre 76,80 % et 82,20 %, pour une moyenne de 78,54 %. Dans le cadre de ce travail, la valeur de siccité est considérée comme stable et égale à la valeur moyenne.

### › Débit de boue constant

Les pompes acheminant les boues ne possèdent pas de débitmètres. Il n'y a pas donc de mesure de débit de boues ; cependant, ce débit peut être estimé par le temps de fonctionnement des machines. Le débit de boue a été considéré comme étant constant durant toute la phase de production.

### › Quantité de sable dans le four constante

La fluidisation au sein du réacteur nécessite la présence de sable. La hauteur nominale du lit de sable en fluidisation est de 1,5 m (17 tonnes) et ce niveau est déterminé grâce à une mesure de pression différentielle (80 mbar). Lorsque le niveau du lit de sable atteint un seuil bas ( $\leq 70$  mBar), une addition de sable est nécessaire. Dans cette étude, nous avons considéré que la quantité de sable restait constante.

### › Définition de sous modèles du four

Un four d'incinération est présenté comme étant un système à multi-entrées et multi-sorties (MIMO). Afin de prendre en compte un système MISO, des sous-ensembles ont été définis (Figure 2). La ligne d'incinération a ainsi été décomposée en six sous-modèles interconnectés entre eux. Le diagramme synoptique résultant de la phase d'incinération des boues représente les différentes interactions entre les six modèles (Figure 4).

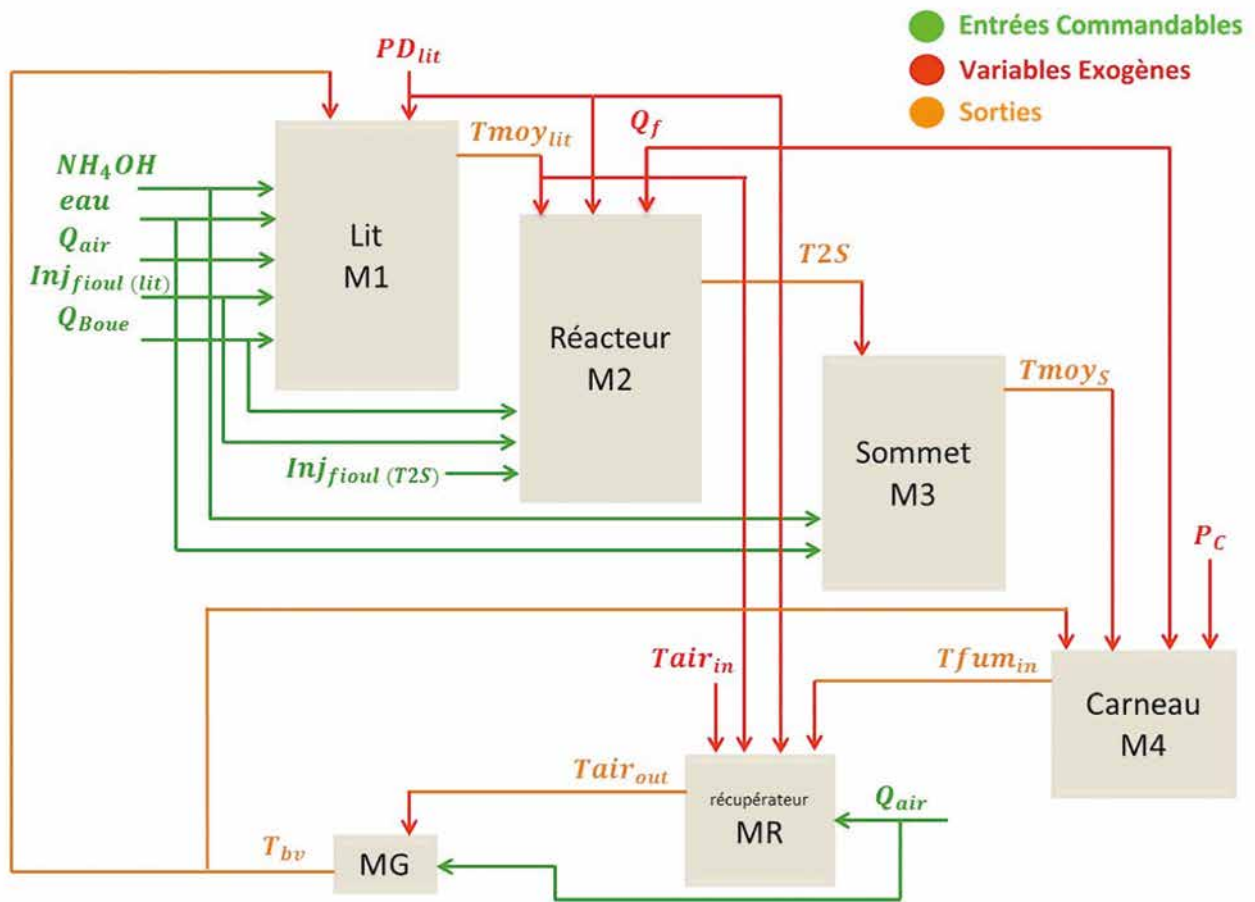


Figure 4 : Diagramme synoptique des Sous-modèles de la ligne d'incinération

Ainsi, ces six sous-modèles sont interconnectés entre eux par la mesure de la température à la sortie de chaque bloc.

Le sous-modèle M1 représente la partie inférieure du four, c'est-à-dire, la voûte et le lit de sable. Outre les injecteurs de boues ( $Q_{boue}$ ), une première injection de fioul ( $inj_{fioul(lit)}$ ) est placée au milieu de ce lit de sable. Ce modèle est un système MISO, avec trois autres entrées commandables :

- une injection d'eau ammoniaquée ( $NH_4OH$ ) permettant la régulation de la qualité de la fumée ;
- une injection d'eau ( $H_2O$ ) permettant la régulation de la température ;
- une injection d'air ( $Q_{air}$ ) pour la fluidisation et la combustion.

Deux entrées exogènes sont également à considérer :

- la température de l'air de fluidisation ( $T_{bv}$ ) ;
- la pression différentielle ( $PD_{lit}$ ).

Le paramètre de sortie de ce sous-modèle est la température du lit ( $T_{moy_{lit}}$ ).

Le sous-modèle M2 représente la partie du réacteur : le cœur du four. Dans le réacteur se produit la combustion et, afin de respecter le maintien de température à  $850\text{ }^{\circ}C$ , des injections de fioul sont aussi réalisées. Les 3 entrées commandable de ce système sont :

- une injection de boue ( $Q_{boue}$ ) ;
- une injection de fioul ( $inj_{fioul(lit)}$ ) dans le lit ;
- une injection de fioul ( $inj_{fioul(T2S)}$ ) pour réguler la température.

Trois entrées exogènes sont également à considérées :

- le débit de fioul ( $Q_f$ ) ;
- la température du lit ( $T_{mov_{lit}}$ ) ;
- la pression différentielle ( $PD_{lit}$ ).

Le paramètre de sortie de ce sous-modèle est la température du réacteur ( $T_{2S}$ ).

Le sous-modèle M3 représente la partie supérieure du réacteur: le dôme. Les injecteurs d'eau adoucie ou potable sont placés dans la partie médiane. Les deux entrées commandables de ce système sont :

- une injection d'eau ammoniaquée ( $NH_4OH$ ) permettant la régulation de la qualité de la fumée ;
- une injection d'eau ( $H_2O$ ) permettant la régulation de la température.

Une entrée exogène est à considérer :

- la température du réacteur ( $T_{2S}$ ).

Le paramètre de sortie de ce sous-modèle est la température au sommet ( $T_{moy_s}$ ). Cette valeur est composée de la moyenne des valeurs de trois sondes de température situées au sommet.

Le sous-modèle M4 représente le carneau, par où les fumées issues de la combustion sont évacuées vers le récupérateur. A ce niveau le taux d'oxygène dans les fumées est mesuré et une dépression est réalisée (valeur seuil fixée).

Ce modèle est un système MISO, sans entrées commandables. Les quatre sorties exogènes sont :

- la température de l'air de fluidisation ( $T_{bv}$ ) ;
- le débit de fioul ( $Q_f$ ) ;
- la pression du carneau ( $P_c$ ) ;
- la température au sommet ( $T_{moy_s}$ ).

Le paramètre de sortie de ce sous-modèle est la température des fumées en entrée récupérateur ( $T_{fum_{in}}$ ).

Le sous-modèle MR représente le récupérateur ; il assure le refroidissement des fumées et le réchauffage de l'air de fluidisation par échange de chaleur entre ces deux fluides. Il sera décomposé en deux sous-modèles couplés : MRA et MRF; autrement dit, MR de l'air et MR des fumées.

Le modèle MR est un système MIMO, avec une entrée commandable :

- une injection d'air ( $Q_{air}$ ) pour la fluidisation et la combustion.

Quatre entrées exogènes sont à considérées :

- la température des fumées en entrée récupérateur ( $T_{fum_{in}}$ ) ;
- la température de l'air extérieure ( $T_{air_{in}}$ ) ;
- la température du lit ( $T_{mov_{lit}}$ ) ;
- la pression différentielle ( $PD_{lit}$ ).

Les deux sorties sont :

- la température de l'air sortant ( $T_{air_{out}}$ ) ;
- la température des fumées sortant ( $T_{fum_{out}}$ ).

Le sous-modèle MG représente la variation de température entre le récupérateur et le four. La dissipation d'énergie qui se produit, lorsque l'air de fluidisation chaud est envoyé vers la boîte à vent à travers une canalisation d'air.

Ce modèle est un système SISO, avec une entrée commandable :

- une injection d'air ( $Q_{air}$ ) pour la fluidisation et la combustion.

Une entrée exogène est à considérer :

➤ la température de l'air sortant ( $T_{air\_out}$ ).

Le paramètre de sortie de ce sous-modèle est la température de l'air de fluidisation ( $T_{bv}$ ).

### 3. Résultats

La description de fonctionnement du four pour la phase de production englobe les deux modes de fonctionnement de four :

- mode incinération avec boues et sans fioul ;
- mode incinération avec boues et avec fioul.

Les résultats présentés ci-dessus prennent en considération le mode incinération avec boues et avec fioul. La Figure 5 présente les valeurs de température en sortie des blocs M1, M2, M3, M4, Mg obtenues par modélisation et par mesures expérimentales et la Figure 6 présente les valeurs de température obtenues par modélisation et par mesures expérimentales en sortie du récupérateur (qui est décomposé en deux sous-modèles couplés : MRA et MRF).

De manière générale, les valeurs de température simulées, obtenues en sortie de chaque bloc, sont proches des valeurs mesurées par les sondes. Cependant, dans le cas du bloc M2, si la tendance est bien suivie par le modèle, la forte variabilité de la mesure n'est en revanche pas très bien simulée.

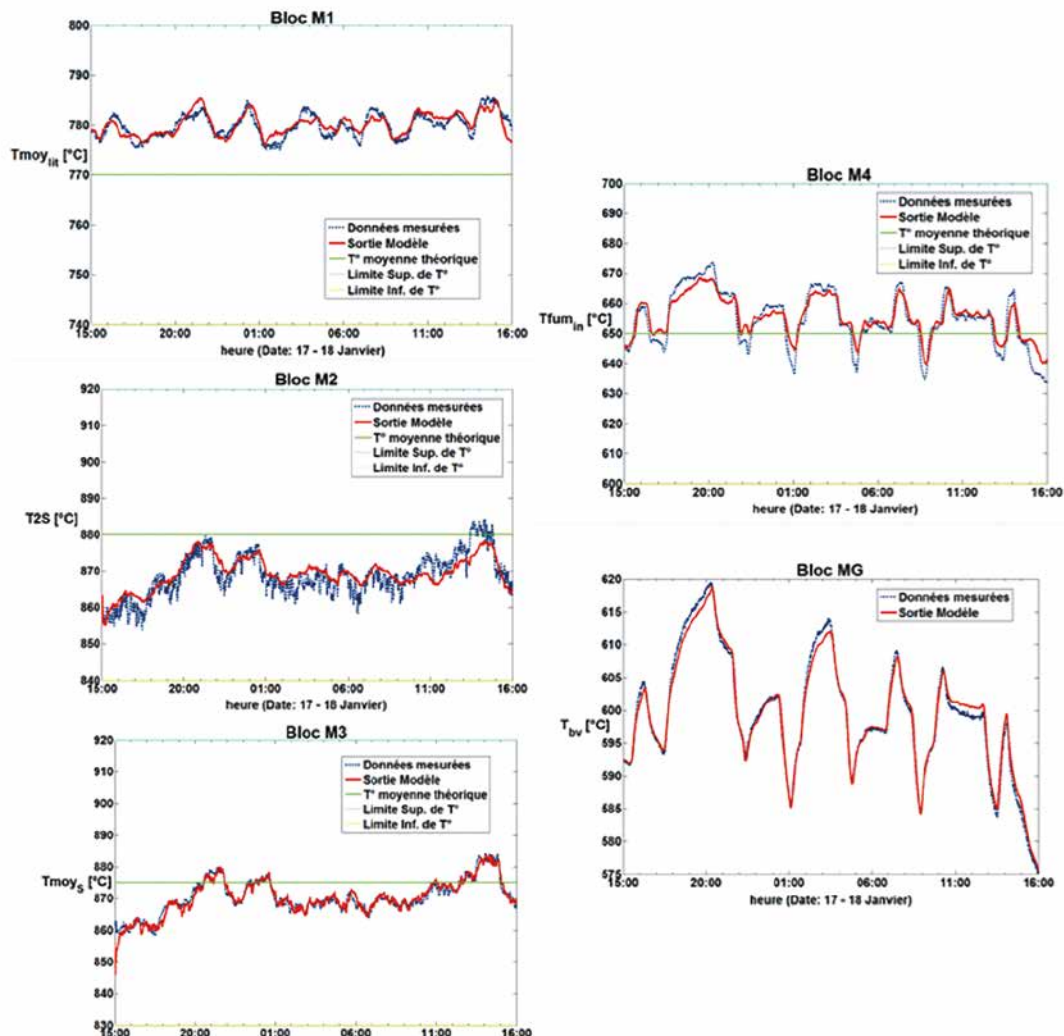


Figure 5 : Résultats des valeurs de température en sortie des blocs M1, M2, M3, M4, Mg obtenus par modélisation et par mesures expérimentales

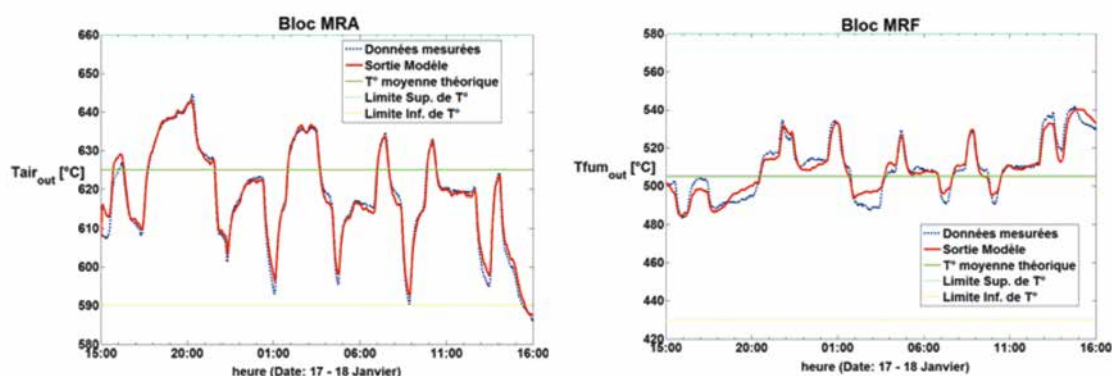


Figure 6 : Résultats des valeurs de température en sortie des blocs MRA et MRF obtenus par modélisation et par mesures expérimentales

Afin d'étudier la précision des modèles, l'erreur absolue maximale (AME), l'erreur quadratique moyenne (MSE) et l'erreur quadratique moyenne dérivée (MSDE) ont été calculées. En fonction des blocs considérés, les valeurs obtenues sont variables mais montrent une bonne représentation des valeurs simulées par rapport aux mesures.

## Conclusion

L'objectif du présent travail était de modéliser le fonctionnement des fours d'incinération de boue à lit fluidisé de la station Seine Centre afin de proposer un régulateur d'injection de fioul permettant un fonctionnement stable et continu. Vu la complexité des processus impliqués et l'absence de données d'entrées (capteurs), une approche d'identification pour les systèmes MISO a été adoptée. Le système d'incinération a été décomposé en six sous-modèles. Le modèle numérique qui se base sur la méthode de sous-espaces d'état a permis ensuite, pour chaque bloc, de définir les matrices de corrélation entre les valeurs d'entrées et les valeurs de sortie. De manière générale, les valeurs de température simulées, obtenues en sortie de chaque bloc, sont proches des valeurs mesurées par les sondes. Cependant, dans le cas du réacteur, si la tendance est bien suivie par le modèle, la forte variabilité de la mesure n'est en revanche pas très bien simulée. Le présent travail a été réalisé en condition de fonctionnement stabilisé, soit sur une courte période. Il reste nécessaire de valider ces mêmes matrices sur des périodes plus longues.

## Remerciements

Cette étude est menée dans le cadre de l'axe 3 du programme Mocopée (phase I. 2014 - 2017). Les auteurs tiennent à remercier le programme Mocopée pour son soutien financier. Nous adressons nos remerciements à toutes les personnes de l'usine Seine Centre et aux équipes du service expertise de la Direction Innovation et Environnement du Siaap pour leur soutien technique et leur participation active dans les campagnes des mesures et l'orientation du travail.



## Bibliographie

- › ASTHANA A. (2008) : *Modélisation mathématique de la formation des NOx et de la volatilisation des métaux lourds lors de l'incinération sur grille d'ordures ménagères* [doctoral dissertation]. Institut National Polytechnique de Lorraine-INPL.
- › CHADLI M., COPPIER H. (Eds.) (2013) : *Command-control for Real-time Systems*. John Wiley & Sons, 380 p.
- › CORRIOU J. (2010) : *Etat de l'art des nouvelles méthodes de conduite pour le contrôle primaire des émissions et l'amélioration du rendement des installations de traitement thermique des déchets*. Rapport - RECORD 08-0229/1A, 98 p.
- › MARIAS F. (2003) : « A model of a rotary kiln incinerator including processes occurring within the solid and the gaseous phases. » *Computers & Chemical Engineering* ; 27(6) : 813-825.
- › PEKPE K.M. (2004) : *Identification par les techniques des sous-espaces-application au diagnostic* [thèse]. Institut National Polytechnique de Lorraine-INPL.
- › YANG Y.B., GOH Y.R., ZAKARIA R., NASSERZADEH V., SWITHENBANK J. (2002) : « Mathematical modelling of MSW incineration on a travelling bed. » *Waste management* ; 22(4) : 369-380.

### POUR EN SAVOIR PLUS

- › BALVES DOS SANTOS M., RABAH S., CHADLI M., COPPIER H. (2014) : *Circulating Fluidized Bed Boiler Control : Design of a PID Based on Theory of PFC Controllers*. The Second International Conference on Electrical Engineering and Control Applications (ICEECA'14), Constantine, Algérie, 18-20 novembre 2014.
- › OLIVEIRA V., RABAH S., COPPIER H., CHADLI M., ESCALON D. (2018) : *Preliminary study of numerical corrector for modeling control*, *International Conference on Control, Decision and Information Technologies(CoDIT)*, Thessaloniki, Greece, 10-13 avril 2018.
- › RABAH S., BROCHADO R.O, COPPIER H., CHADLI M., AZIMI S., ROCHER V., ZOGHLAMI N., NACEUR M.S. (2016) : *Industrial Model Validation of a WWT Bubbling Fluidized Bed Incinerator*, The 9<sup>th</sup> Eurosim Congress on Modelling and Simulation (EUROSIM 2016), Oulu, Finlande, 12-16 septembre 2016.
- › RABAH S., COPPIER H., CHADLI M. (2017) : *Régulation de la température lit d'un four d'incinération à lit fluidisé circulant : approche LMI*, 26<sup>e</sup> Rencontres Francophones sur la Logique Floue et ses Applications (LFA), Amiens, France, 19-20 octobre 2017.
- › RABAH S., COPPIER H., CHADLI M., AZIMI S., ROCHER V., ESCALON D., ZOGHLAMI N., NACEUR M.S (2016) : *Multi-variable industrial processes identification: Case of bubbling fluidized bed sewage sludge incinerator*, The 24<sup>th</sup> Mediterranean Conference on Control and Automation (MED 2016), Athènes, Grèce, 21-24 juin 2016.
- › RABAH S., COPPIER H., CHADLI M., ZOGHLAMI N., NACEUR M.S. (2015) : *Régulation multi-variable pour un incinérateur à lit fluidisé circulant : approche LMI*, 6<sup>e</sup> Journées Doctorales/Journées Nationales MACS, Bourges, France, 18-19 juin 2015.



## CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES



# Mocopée demain, les grandes orientations de la phase II (2018-2022)

## Mocopée tomorrow, scientific orientations of the second phase (2018-2022)

Vincent Rocher<sup>[1]\*</sup>, André Pauss<sup>[2]</sup>, Yannick Fayolle<sup>[3]</sup>, Sabrina Guérin-Rechdaoui<sup>[1]</sup>, Gilles Varrault<sup>[4]</sup>, Jean Bernier<sup>[1]</sup>, Romain Mailler<sup>[1]</sup>, Mathieu Spérandio<sup>[5]</sup>, Sam Azimi<sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> Siaap, Direction Innovation Environnement, Colombes

<sup>[2]</sup> Université de Technologie de Compiègne, TIMR (EA 4297), Compiègne

<sup>[3]</sup> Irstea, UR HBAN, Antony

<sup>[4]</sup> UPEC-Leesu, Créteil

<sup>[5]</sup> INSA-LISBP, Toulouse

\* Auteur de correspondance : [vincent.rocher@siaap.fr](mailto:vincent.rocher@siaap.fr)



*La dernière année de la phase I du programme a été mise à profit pour synthétiser les principaux résultats obtenus dans le cadre des actions de recherche menées entre 2014 et 2017. Ce travail de synthèse a permis la rédaction du dossier technique de ce présent ouvrage qui, nous l'espérons, a répondu à vos attentes. Mais, au-delà de l'intérêt scientifique et opérationnel des résultats, cette première phase de recherche a mis en exergue l'intérêt du rapprochement entre des acteurs de l'eau venant d'horizons différents mais partageant la conviction que le domaine de l'assainissement a besoin d'une recherche appliquée dynamique. Nous avons donc décidé de poursuivre l'aventure et de préparer un nouveau voyage dans la constellation Mocopée. Un nouveau départ pour poursuivre et intensifier le travail engagé en phase I sur les questions de métrologie et de modélisation mais également pour élargir le champ de prospection aux questions de vieillissement des ouvrages et de valorisation matière. L'objectif de ce chapitre conclusif est de vous apporter une vision d'ensemble de la feuille de route envisagée pour ce deuxième voyage. Nous espérons que cet éclairage vous donnera envie d'y participer. Nous aurons bien entendu de nombreuses occasions de discuter ensemble de chacun de ces projets et de chacune de ces actions durant ces cinq prochaines années.*

## Contexte - Périmètre - Objectifs - Programme scientifique

### 1. Contexte technique et réglementaire de la phase II de Mocopée

La réglementation encadrant le traitement des eaux résiduaires urbaines (ERU) a évolué ces deux dernières décennies. L'application de la **Directive Cadre sur l'Eau (2000)** a notamment conduit à un accroissement des exigences sur la qualité des eaux rendues au milieu récepteur. Pour répondre à cette évolution, les agglomérations françaises et européennes ont conduit une politique de modernisation des ouvrages d'assainissement. Des technologies compactes et performantes pour le traitement des ERU et des sous-produits ont été intégrées dans la plupart des stations d'épuration, notamment celles implantées dans les agglomérations urbaines.

Aujourd'hui, le défi est d'être capable d'exprimer tout le potentiel de ces pôles de traitement. Premièrement, il s'agit de définir les modes d'exploitation permettant de maîtriser en toutes circonstances les performances épuratoires des systèmes de traitement. Ces performances concernent les paramètres de qualité actuellement assujettis à la réglementation mais également les espèces impactantes d'un point de vue environnemental, non intégrées à ce jour dans la réglementation opposable aux exploitants (gaz à effet de serre, notamment). Deuxièmement, il s'agit de proposer des modes d'exploitation permettant de limiter les coûts d'exploitation des pôles de traitement ; les technologies compactes déployées dans la plupart des agglomérations urbaines étant intrinsèquement consommatrices en énergie et en réactifs chimiques. Troisièmement, il s'agit de proposer



des pratiques de maintenance équilibrées, c'est-à-dire des pratiques permettant d'assurer le maintien de la performance industrielle tout en limitant les coûts de maintenance et de renouvellement au sein des installations. Le référentiel réglementaire du secteur de l'assainissement a également évolué récemment avec la promulgation en 2015 de la **loi de transition énergétique pour la croissance verte**. Cette loi réaffirme la nécessité de réduire la consommation énergétique des installations industrielles mais souligne également la nécessité de favoriser l'économie circulaire et de promouvoir une meilleure gestion des déchets. Cette loi pose notamment l'utilisation des énergies renouvelables et la valorisation de la « matière » présente dans les eaux usées comme les grands enjeux de demain. Ainsi, aux objectifs d'optimisation de l'exploitation et de la maintenance des ouvrages de traitement s'ajoute celui de l'accompagnement du changement de rôle des stations d'épuration, aujourd'hui pôle de dépollution, demain pôle de transformation et de valorisation de matière.

## 2. Equipes scientifiques et techniques impliquées dans la phase II de Mocopée

La première phase du programme (2014-2017) a rassemblé dix équipes de scientifiques et cinq entreprises innovantes. L'élargissement du périmètre du programme et l'accroissement des moyens disponibles ont permis de densifier le consortium du programme pour sa deuxième phase (2018-2022). Au moment du lancement de la deuxième phase, le programme intègre une vingtaine d'équipes de recherche et une dizaine d'entreprises innovantes et interagit avec trois associations partenaires (Figure 1).



Figure 1 : Equipes de recherche (universités et centres de recherche), entreprises innovantes et associations impliquées dans la phase II du programme de recherche (2018-2022)

## 2.1. PARTENAIRES SCIENTIFIQUES IMPLIQUÉS DANS LE PROGRAMME MOCOPEE

- › **Siaap** (Direction innovation environnement [Colombes]),
- › **Irstea - Institut national de Recherche en Sciences et Technologies pour l'Environnement et l'Agriculture** (Unité de recherche hydrosystèmes et bioprocédés [Antony]/Unité de recherche milieux aquatiques, écologie et pollutions [Lyon- Villeurbanne]),
- › **UTC - Université de Technologie de Compiègne** (Laboratoire transformations intégrées de la matière renouvelable [Compiègne]),
- › **UPEC - Université Paris-Est-Créteil** (Laboratoire eau, environnement et systèmes urbains [Créteil]/Laboratoire d'analyse et de mathématiques appliquées [Créteil]/Institut de chimie et des matériaux Paris-Est [Thiais]),
- › **UPMC - Université Pierre et Marie Curie** (Laboratoire milieux environnementaux, transferts et interactions dans les hydrosystèmes et les sols/Laboratoire interfaces et systèmes électrochimiques [Paris]),
- › **Université de Rennes 1** (Ecobio, Ecosystèmes, biodiversité, évolution [Rennes]),
- › **Université de Toulouse** (Laboratoire de génie chimique [Toulouse]),
- › **Esiee - Ecole Supérieure d'Ingénieurs en Electrotechnique et Electronique** (Amiens),
- › **INSA - Institut National des Sciences Appliquées** (Laboratoire d'ingénierie des systèmes biologiques et des procédés [Toulouse]/Laboratoire matériaux et durabilité des constructions [Toulouse]),
- › **INRA - Institut National de la Recherche Agronomique** (Laboratoire de biotechnologie de l'environnement [Narbonne]),
- › **IFTS - Institut de la Filtration et des Techniques Séparatives** (Foulayronnes),
- › **IFSTTAR - Institut Français des Sciences et Technologies des Transports, de l'Aménagement et des Réseaux (Laboratoire comportement physico-chimique et durabilité des matériaux** [Champs-sur-Marne]),
- › **Unilasalle** (Département sciences et techniques agro-industrielles [Beauvais]),
- › **Berliner Wasserbetriebe** (Berlin).
- › **Université Laval** (Département de génie civil et de génie des eaux [Canada, Québec]),
- › **Ecole Polytechnique de Louvain** (Institute of information and communication technologies, electronics and applied mathematics [Belgique, Louvain-la-Neuve]),
- › **LIST - Luxembourg Institute of Science and Technology** (ERIN, Environmental research and innovation department [Luxembourg]),
- › **Université de Santiago de Compostela** (Biogroup, Département de génie des procédés [Espagne, Santiago de Compostela]),
- › **Eawag - Institut fédéral suisse des sciences et technologies aquatiques** (Aquatic research [Suisse, Dübendorf]).

## 2.2. PARTENAIRES INDUSTRIELS IMPLIQUÉS DANS LE PROGRAMME MOCOPEE

- › **AMS-Envolure**, Solutions innovantes pour l'analyse des bioprocédés environnementaux (Montpellier),
- › **Fluidion**, Développement de systèmes autonomes *in situ* d'échantillonnage et de mesure de la qualité des eaux (Créteil),
- › **Watchfrog**, Laboratoire spécialiste des tests perturbateurs endocriniens (Evry),
- › **Aquassay**, Data driven water efficiency (Limoges),
- › **3D-Eau**, Modélisation 3D au service de l'environnement (Strasbourg)
- › **Enoveo**, Microbiologie, chimie et biotechnologies appliquées à l'environnement (Lyon)
- › **LaboM Solution** (Beauvais)



- › **Alien-SAS**, Algèbre pour identification et estimation numériques (Nancy),
- › **Scanae**, Laboratoire expert en biodégradabilité (Montpellier).

### 2.3. ASSOCIATIONS PARTENAIRES DU PROGRAMME MOCOPEE

Le programme s'appuie sur trois associations du monde de l'eau et de l'environnement à l'échelle régionale et nationale : **Arceau Ile-de-France** (Association Recherche Collectivités dans le domaine de l'Eau en Ile-de-France), **Cluster Eau-Milieus-Sol** (association aux services des territoires pour construire une dynamique de l'innovation) et l'**Astee** (Association Scientifique et Technique pour l'Eau et l'Environnement).

## 3. Périmètre et objectifs de la phase II du programme (2018-2022)

Ces trente dernières années, la recherche prolifique menée en génie des procédés a permis d'accompagner l'évolution des outils industriels de transport et de traitement des eaux de la plupart des grandes agglomérations. L'effort d'innovation doit aujourd'hui être porté sur les pratiques d'exploitation et de maintenance des systèmes industriels. Plus précisément, les fruits de la R&D doivent permettre (1) **d'accroître la maîtrise et le niveau d'optimisation des filières de traitement** en construisant l'usine dite « intelligente », (2) de progresser sur les questions relatives au **vieillissement des ouvrages** et (3) **d'accompagner le changement de rôle de la station d'épuration**, aujourd'hui pôle de dépollution, demain pôle de transformation de matière.

Créé pour répondre à ces trois grands objectifs, le programme Mocopée est construit autour de quatre axes de recherche dédiés (1) à la construction d'outils métrologiques innovants (mesure en continu et méthodes de caractérisation des matrices), (2) à la modélisation et à la commande des procédés de traitement des eaux et des boues, (3) à l'intégrité des systèmes de transport et de traitement des eaux usées et (4) aux concepts innovants (recherche amont et valorisation matière).

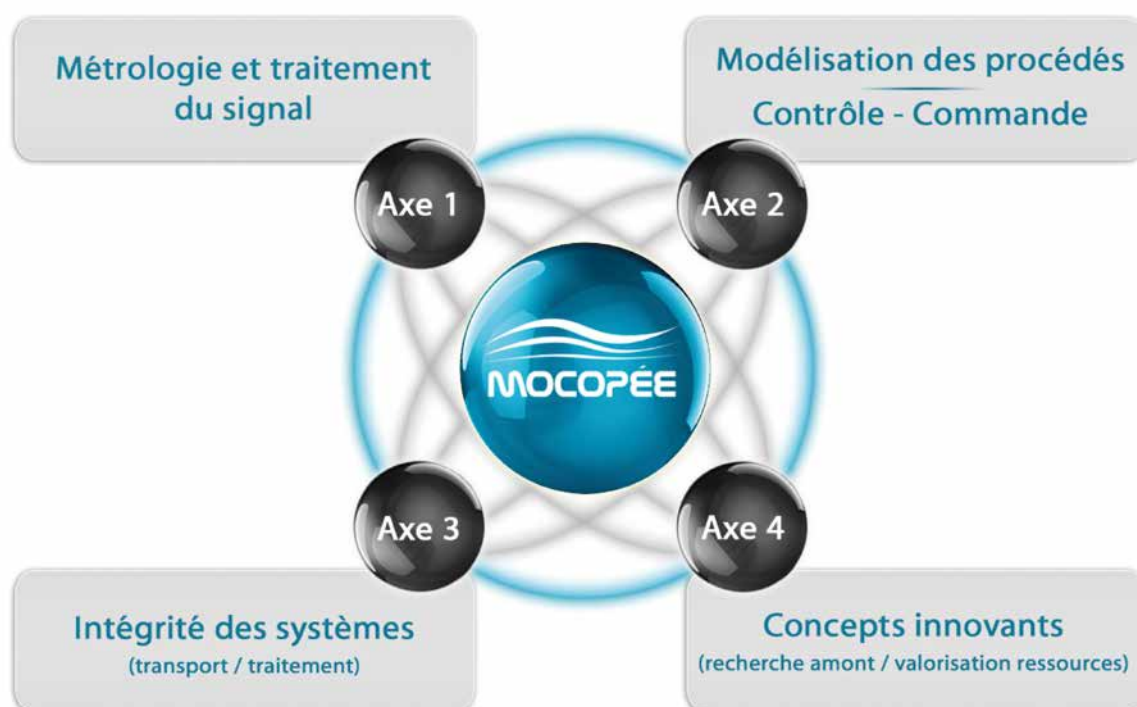


Figure 2 : Axes de recherche de la phase II du programme Mocopée (2018-2022)

## 4. Le programme scientifique de la phase II en quelques mots...

### 4.1. L'AXE 1, MÉTROLOGIE ET TRAITEMENT DU SIGNAL

#### Présentation générale de l'axe

Des technologies performantes pour le traitement des eaux résiduaires et des sous-produits sont désormais utilisées dans les usines d'épuration. Ces technologies intensives permettent d'atteindre une haute qualité de traitement mais leur pilotage nécessite un haut niveau d'expertise technico-scientifique et une métrologie adaptée. Une meilleure caractérisation des eaux usées et des matrices solides (boues, graisses, etc.) fait partie des voies envisagées pour optimiser le contrôle et le pilotage des installations. Cet axe de recherche du programme Mocopée vise à développer des méthodes innovantes dans ce cadre. Il s'agit donc de stimuler la recherche appliquée dans le domaine de l'analyse physique, chimique et biologique afin de développer des méthodes de caractérisation fiables, robustes, rapides et si possible en ligne. Mais il s'agit également, une fois ces développements effectués, de favoriser le passage du laboratoire à l'industriel et donc à l'exploitant. En effet, afin qu'une innovation puisse essaimer dans l'industrie, il est nécessaire de transformer une idée scientifique (la preuve de concept) en une technologie ayant une valeur opérationnelle. Cette étape de transfert industriel des découvertes issues des laboratoires est un enjeu majeur du programme Mocopée. Deux objectifs sont visés dans cet axe. Le premier est de disposer de méthodes de caractérisation *in situ* et en temps réel des matrices (solides et liquides) transportées dans les systèmes d'assainissement afin d'optimiser le traitement des eaux usées dans sa globalité tout en réduisant les consommations en réactifs et en énergie. Le second objectif est d'acquérir des outils d'expertise permettant d'aller plus loin que les paramètres classiquement suivis en stations d'épuration.

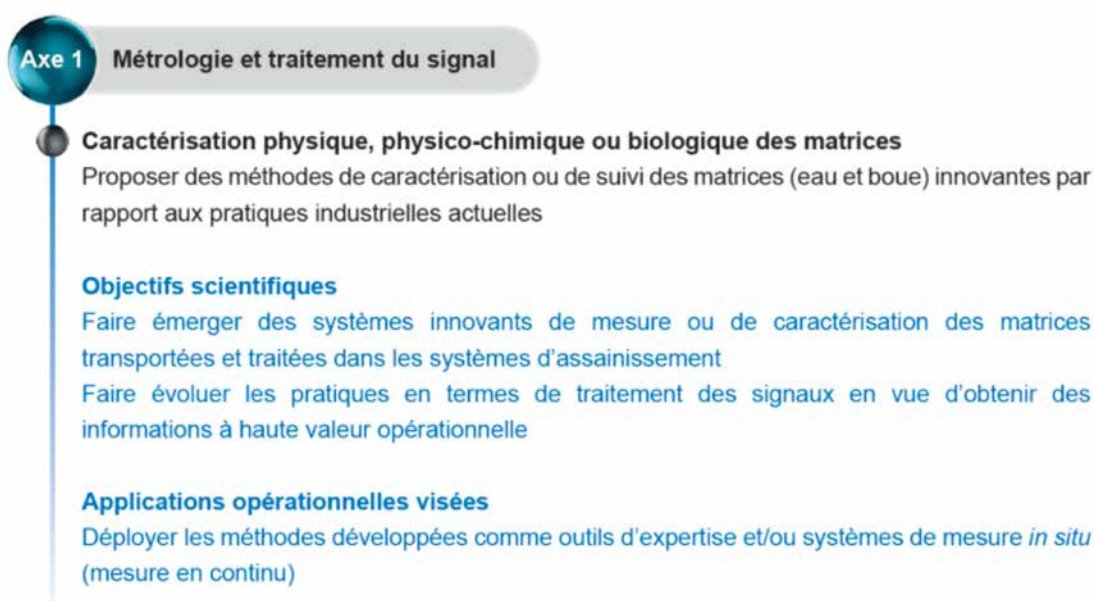


Figure 3 : Objectifs scientifiques et applications opérationnelles visées dans l'axe 1

#### Présentation des actions engagées

Onze actions de recherche sont déjà prévues au sein de l'axe 1. Elles sont pour certaines déjà engagées et pour d'autres en cours de lancement. Ces onze actions peuvent se répartir en deux blocs et visent d'une part (i) à accéder plus rapidement et plus facilement aux paramètres classiquement suivis en STEP et d'autre part (ii) à développer des méthodes de caractérisation fine des matrices afin d'anticiper leur comportement durant les différentes étapes du traitement.

- Dans le cadre du premier bloc, des capteurs chimiques, physiques et biologiques sont à différents stades de développement dans le but de faciliter et de rendre plus rapide la mesure de certains paramètres classiquement utilisés en épuration. On retrouve par exemple la mesure en ligne des fractions solubles de la DCO et de la DBO<sub>5</sub> par les méthodes spectroscopiques de fluorescence 3D ou bien le recours à la technologie micro-fluidique pour prélever et analyser *in situ* l'azote et le phosphore dans les effluents.

Des méthodes chimiques innovantes par microplaques sont également développées pour déterminer rapidement et à haut débit et sans dichromate de potassium, la DCO dans les effluents de STEP ou pour évaluer rapidement un potentiel inhibiteur d'effluents industriels vis-à-vis des biomasses épuratrices. D'autres approches plus innovantes et multi-réponses seront également à l'étude telle que l'évaluation de la charge organique des effluents et de leur potentiel toxique par le déploiement de biocapteurs. L'objectif étant de remplacer des méthodologies lentes et coûteuses habituellement utilisées par des mesures rapides, simples et efficaces potentiellement utilisables en ligne autorisant ainsi un meilleur pilotage des ouvrages d'épuration.

- › Dans le cadre du second bloc, l'objectif est de caractériser finement les matrices solides et liquides des stations d'épuration afin d'obtenir des informations non disponibles classiquement dans le domaine de l'épuration. Il s'agit par exemple de caractériser les boues d'épuration via des mesures rhéologiques pour mieux appréhender leur comportement dans les systèmes de traitement et de transport. Des méthodes spectroscopiques sont également explorées sur les matrices solides pour une meilleure gestion des méthaniseurs industriels avec notamment l'objectif de mettre en place une méthodologie rapide et fiable de détermination du potentiel énergétique et de la matière organique de manière générale. Des méthodes physiques basées sur des mesures à l'interface eau/air sont également employées pour anticiper le potentiel moussant des effluents alors que des méthodes éco-toxicologiques sont déployées pour caractériser *in situ* la perturbation endocrinienne dans les eaux de surface et les eaux usées afin d'aboutir à un référentiel global d'aide à l'interprétation. On retrouve également des outils de biologie moléculaire pour caractériser la diversité microbienne au sein des procédés de traitement de la file « boue » pour optimiser la conduite des procédés industriels mais également au sein des procédés de traitement de la file « eau ». L'objectif étant d'acquérir une cartographie de la diversité microbienne selon les différents types de traitement biologique des effluents. Enfin, des mesures du protoxyde d'azote *in situ* continuent à être réalisées sur les différents systèmes de traitements biologiques intensifs ou spécifiques pour une meilleure compréhension des dynamiques d'émission de ce gaz à effet de serre au sein des stations d'épuration.

## 4.2. L'AXE 2, MODÉLISATION DES PROCÉDÉS ET CONTRÔLE-COMMANDE

### Présentation générale de l'axe

L'utilisation de systèmes et procédés de traitement de plus en plus performants pour répondre aux évolutions réglementaires entraîne de manière générale une augmentation de leur complexité d'exploitation. Les technologies récentes intègrent en effet de multiples leviers sur lesquels il est possible d'agir afin d'optimiser le traitement dans un sens ou dans l'autre, comme par exemple l'aération, l'injection de réactifs, le routage des débits, les modes de lavage/rétrolavage, etc. Il devient donc de plus en plus ardu d'estimer quel sera l'impact d'une modification de ces leviers et donc de maîtriser pleinement les procédés utilisés. En parallèle, le déplacement progressif du centre d'intérêt de la réglementation de la sortie du réseau d'assainissement et de la STEP vers le milieu naturel récepteur entraîne de nouveaux défis pour le monde de l'assainissement européen, puisqu'il entraîne des cibles de performances variables en fonction de la « capacité d'absorption » de la rivière. Ces nouveaux défis nécessitent d'avoir des outils d'aide à la décision et de contrôle performants.

L'objectif général de l'axe 2 du programme Mocopée comporte deux grandes thématiques en ce sens. La première concerne la modélisation du fonctionnement des systèmes réseau d'assainissement - station d'épuration - rivière. Cette thématique vise à améliorer les modèles mathématiques disponibles dans la littérature scientifique capables de simuler le fonctionnement des procédés unitaires de traitement des eaux usées et des boues d'épuration, ainsi que des systèmes d'assainissement globaux en couplant les modèles associés. Ces modèles, une fois correctement calibrés et validés sur les procédés et systèmes industriels étudiés, sont des outils intéressants pour l'analyse de scénarios d'exploitation, l'aide à la décision ainsi que la compréhension des systèmes manipulés.

La seconde thématique concerne quant à elle le développement de boucles de contrôle des procédés et des systèmes en assainissement. Il s'agit de revisiter les algorithmes et stratégies de contrôle couramment employés sur les procédés en épuration et de les faire évoluer pour améliorer le niveau de maîtrise de leur exploitation. Il s'agit également d'envisager des stratégies de contrôle plus globales des stations d'épuration et du système d'assainissement au complet.

## Axe 2 Modélisation des procédés – Contrôle-commande

### Modélisation du fonctionnement des systèmes RA-STEP-rivière

Simuler le fonctionnement des procédés de traitement des eaux et des boues et combiner les modèles (modèles filières, couplage des systèmes)

### Développement de boucles de contrôle-commande

Revisiter les modes de régulation des fluides (air et réactifs) au sein des systèmes de transport et de traitement des eaux usées

#### Objectifs scientifiques

Améliorer les modèles phénoménologiques ou statistiques proposés dans la communauté scientifique pour simuler le fonctionnement des procédés industriels

Faire évoluer les outils mathématiques intégrés dans les boucles de commande des fluides (air - réactifs)

#### Applications opérationnelles visées

Déployer les modèles comme outils d'expertise et/ou d'aide à la décision et proposer les bases des systèmes d'exploitation intelligents de demain (couplage modèles)

Proposer des modifications des pratiques actuelles en termes de régulation et contrôle des procédés de traitement

Figure 4 : Objectifs scientifiques et applications opérationnelles visées dans l'axe 2

## Présentation des actions engagées

L'axe 2 du programme Mocopée compte, en ce début de deuxième phase, quatorze actions, lancées ou en cours de lancement et classées sous trois « sous-axes » différents. Le premier et le plus important aujourd'hui concerne la modélisation phénoménologique des procédés de traitement des eaux et des boues ; il vise à produire et à améliorer les modèles existants sur le sujet. Le second concerne le contrôle et l'optimisation des procédés et des stations/systèmes d'épuration. Enfin, le troisième concerne le développement d'outils mathématiques de traitement et valorisation des données en assainissement et la modélisation statistique des procédés de traitement des eaux et des boues.

- › Le premier « sous-axe » est dédié à la modélisation phénoménologique des procédés. Au sein de ce sous-axe, une action concernant la modélisation de la STEP entière de Seine Aval, la plus grosse en France, a été démarrée en 2017 et se poursuit lors de la seconde phase du programme. Elle vise à produire des premiers outils d'analyse de scénarios pour l'optimisation d'une STEP complexe en prenant compte des impacts d'un levier d'exploitation sur toute la filière de traitement. Une action concernant la modélisation « simplifiée » de la Seine et de la Marne est également en cours de lancement. Celle-ci vise à étendre le périmètre des modèles procédés et stations en simulant leur impact sur la qualité de la rivière réceptrice, qui devient le centre de la réglementation européenne aujourd'hui. Trois actions sur la modélisation des bioréacteurs à membranes, technologie de plus en plus répandue en assainissement, sont également lancées ou en cours de lancement. Plus précisément, ces actions visent à modéliser les performances d'épuration et surtout l'évolution du colmatage des membranes au cours du traitement, afin de proposer des stratégies d'exploitation optimales en termes de temps de filtration et d'énergie de lavage et aération. Elles concernent les trois traitements par bioréacteurs à membranes au Siap aujourd'hui. Une action concernant l'amélioration du modèle de décantation physico-chimique développé dans la première phase du programme est également en cours de lancement, afin d'en améliorer l'assimilation de l'effet des réactifs sur les vitesses de chute des particules et donc d'en améliorer les performances de prédiction sur l'enlèvement des matières en suspension. Le développement de modèles adaptés à la co-digestion des boues d'épuration et de différents déchets externes à la STEP fait également l'objet d'une action. Le travail initié en phase I du programme sur la mesure et la modélisation des émissions gazeuses et liquides du NO<sub>2</sub> et du NO, gaz à effet de serre important, est poursuivi en phase II au travers d'une action dédiée. Enfin, une dernière action concerne le déploiement des



modèles développés sur la station d'épuration, pour une utilisation en temps réel en tant qu'outil d'aide à l'exploitation.

- › Le deuxième « sous-axe » est dédié au contrôle et à l'optimisation des procédés et des stations/systèmes d'épuration. Ce sous-axe comprend d'abord une action sur le développement d'outils de contrôle de systèmes globaux et complexes : d'abord les stations d'épuration de taille importante puis le système complet réseau d'assainissement - station d'épuration - milieu naturel. Deux autres actions concernent le recensement et la proposition d'améliorations sur les boucles de contrôle actuellement utilisées sur les différents procédés d'épuration en station, respectivement pour les procédés physico-chimiques et biologiques.
- › Le troisième « sous-axe » est dédié au développement d'outils mathématiques de traitement et valorisation des données en assainissement et la modélisation statistique des procédés de traitement des eaux et des boues. Ce sous-axe intègre aujourd'hui deux actions. La première vise le développement et l'application d'algorithmes de qualification automatique des données mesurées et récoltées à haute fréquence. Cette qualification automatique vise à simplifier le travail de nettoyage des données de capteurs et surtout à augmenter la confiance envers les mesures effectuées pour leur utilisation et valorisation. La seconde action vise la modélisation statistique des séries environnementales, notamment les débits et qualités des eaux en entrée de systèmes, afin entre autres d'étendre la portée et l'horizon de prédiction des modèles phénoménologiques simulant le comportement de ces systèmes.

### 4.3. L'AXE 3, INTÉGRITÉ DES SYSTÈMES DE TRANSPORT ET DE TRAITEMENT

#### Présentation générale de l'axe

L'exploitation des systèmes d'assainissement est confrontée au phénomène de vieillissement progressif des ouvrages de transport et de traitement/valorisation. Cette évolution des systèmes est liée à des mécanismes complexes couplant processus chimiques, biologiques, électrochimiques et/ou mécaniques induisant une détérioration des matériaux à moyen ou long termes. Afin de maintenir la fiabilité des systèmes d'assainissement, des opérations de maintenance ou de remplacement/réhabilitation sont nécessaires et conduisent à des coûts importants. Aussi, des efforts de recherche doivent être menés afin d'améliorer la compréhension des mécanismes mis en jeu et de définir des pratiques et des outils permettant d'anticiper, voire de limiter, la détérioration du patrimoine industriel.

Axe de recherche nouvellement intégré à Mocopée en phase II, cet axe vise à comprendre, quantifier et modéliser les processus impliqués dans le vieillissement des ouvrages de transport, de stockage et de traitement/valorisation des eaux usées et des boues urbaines.

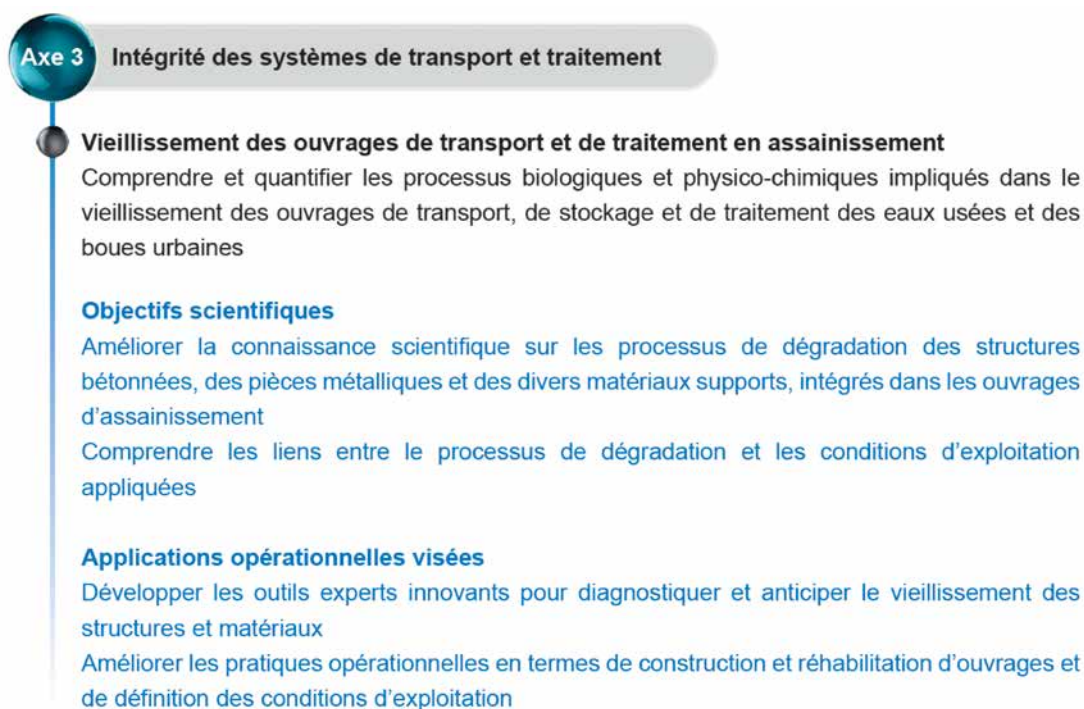


Figure 5 : Objectifs scientifiques et applications opérationnelles visées dans l'axe 3

Cet axe vise à améliorer les connaissances sur les processus de dégradation des principaux matériaux utilisés aux seins des installations de transport et de traitement (bétons, métaux, membranes) ainsi qu'à cerner les liens existant entre les processus de dégradation et les conditions d'exploitation appliquées. Ces recherches devront permettre d'aboutir à la définition et au développement d'outils experts innovants permettant de diagnostiquer, suivre et anticiper le vieillissement des matériaux au sein des ouvrages de traitement. De plus, l'acquisition de connaissances nouvelles devra permettre d'améliorer les pratiques de conception et de réhabilitation mais également de définir des conditions d'exploitation permettant une gestion durable des ouvrages.

### Présentation des actions engagées

Au moment du lancement de la phase II, l'axe 3 est composé de trois actions scientifiques.

- › Etude des mécanismes de vieillissement des matériaux membranaires et développement d'outils experts pour suivre, anticiper et limiter leur vieillissement. Il s'agit d'étudier les processus de vieillissement chimiques et mécaniques des membranes en bioréacteur à membranes à différentes échelles. Les objectifs sont (i) de déterminer les mécanismes à l'origine du vieillissement des membranes en assainissement, ainsi que le rôle que joue la présence de colmatant sur ces processus (protection ou intensification), (ii) de définir les indicateurs du vieillissement les plus pertinents et (iii) d'étudier l'influence des paramètres opératoires du bioréacteur sur le vieillissement. Des expérimentations en laboratoire permettront de mieux cerner les mécanismes de vieillissement chimiques des membranes au contact des solutions oxydantes utilisées lors des étapes de nettoyage. Ensuite, des expérimentations à l'échelle d'un pilote semi-industriel seront réalisées afin de suivre l'évolution de l'intégrité des membranes dans des conditions contrôlées proches de l'échelle industrielle. Enfin, une confrontation avec les données issues de la caractérisation de fibres prélevées sur des sites opérationnels sera réalisée afin de comparer les dégradations obtenues en vieillissement accéléré et celles résultant d'une utilisation de la membrane sur le long terme.
- › Etude des mécanismes de vieillissement des structures bétonnées en assainissement et développement d'outils experts pour suivre, anticiper et limiter leur vieillissement. Il s'agit d'étudier les processus de dégradation des bétons au sein du système d'assainissement. L'objectif est d'identifier les mécanismes de dégradation en jeu et les paramètres d'influence pour les différentes applications en assainissement. Le premier volet concerne la détérioration des bétons en réseau d'assainissement et le second s'intéresse à la détérioration des bétons au sein des ouvrages de traitement biologique. Dans les deux cas, les mécanismes de dégradation et les paramètres environnementaux les influençant seront étudiés par la réalisation d'essais de vieillissement accéléré en laboratoire et par le suivi *in situ* de sites industriels (mise en place et suivi d'échantillons de béton sur sites notamment).
- › Etude des mécanismes de vieillissement des structures métalliques en assainissement et définition des stratégies de limitation de la corrosion. Il s'agit d'étudier les processus de dégradation des pièces métalliques au sein du système d'assainissement. L'objectif est d'identifier les mécanismes de dégradation en jeu et les paramètres d'influence pour les différentes applications en assainissement. Un état des lieux précis des métaux utilisés et des problèmes de corrosion rencontrés sera tout d'abord réalisé à l'échelle du Siaap. Il s'agira ensuite d'identifier le ou les cas les plus pertinents de corrosion métallique à étudier ainsi que les verrous et questionnements scientifiques à traiter dans le cadre de la phase II du programme.

## 4.4. L'AXE 4, CONCEPTS INNOVANTS (RECHERCHE AMONT ET VALORISATION RESSOURCES)

La philosophie de l'axe 4 est sensiblement différente des autres axes du programme. Plus prospectif et moins appliqué, il intègre une vision à moyen ou long termes permettant d'étudier des procédés ou des concepts en rupture par rapport aux méthodes plus conventionnelles. Le contenu de l'axe 4 peut être scindé en deux blocs : un premier bloc concernant la récupération des ressources du cycle de l'eau et un second bloc portant sur l'évaluation de méthodes innovantes pour le traitement des effluents.



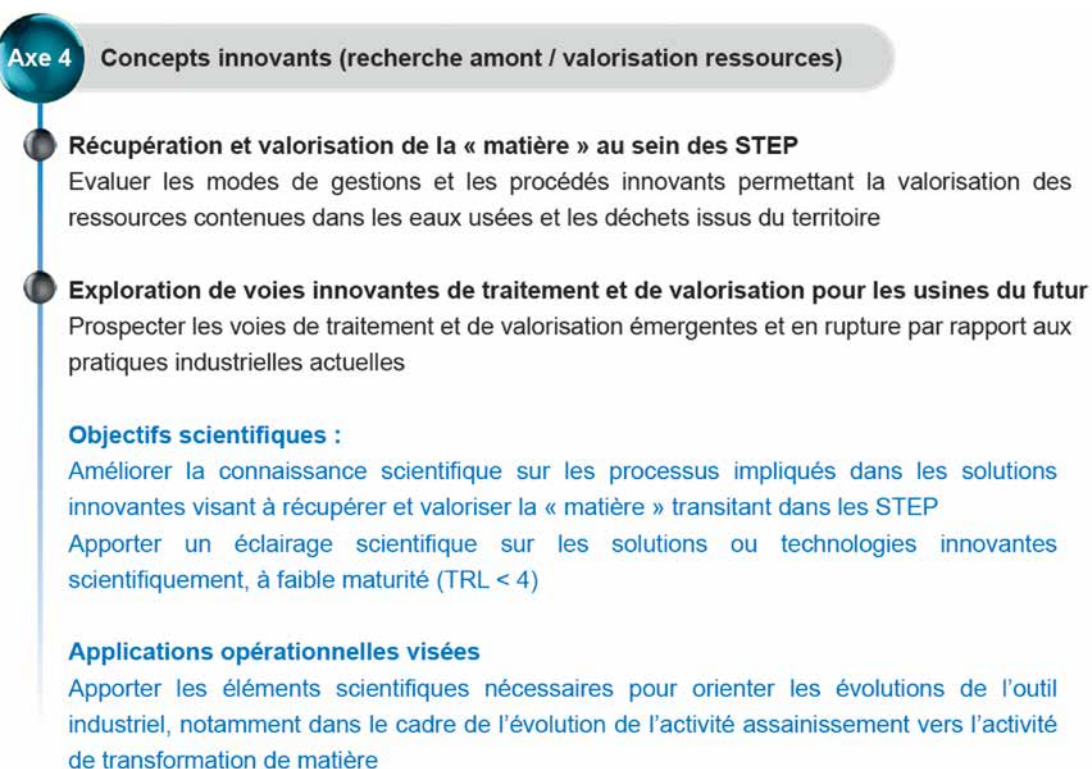


Figure 6 : Objectifs scientifiques et applications opérationnelles visées dans l'axe 4

Le premier bloc se consacre à l'étude des modes d'exploitation et des technologies alliant l'optimisation de fonctionnement et la valorisation des ressources des eaux usées et des boues. Cela passe par l'évaluation intégrée des modes de gestion et des stratégies permettant de faciliter la récupération de matière et d'énergie. Ainsi, les trois champs couverts par ce bloc sont (i) la récupération de la matière, (ii) la production d'énergie et en dernier lieu (iii) l'évaluation de modes d'exploitation sur la qualité des boues utilisés en valorisation agricole.

- Parlant de valorisation matière, le premier objectif est de se focaliser sur la récupération des nutriments présents dans les eaux et les boues. Deux actions ont été engagées dans ce contexte. Une première action est consacrée à la collecte et au traitement sélectif des urines adaptés à la ville de Paris. Il s'agit d'une part d'évaluer les bénéfices de différents scénarios de séparation pour orienter les choix stratégiques. D'autre part, le projet a pour but de comparer les technologies de traitement de l'urine et de participer à leur évolution, de l'échelle pilote à la preuve de concept. La deuxième action concerne plus particulièrement l'étude du devenir du phosphore dans les boues issues de traitement combinant traitement physico-chimique et biologique. L'enjeu est de prédire le devenir des phosphates combinés avec les sels métalliques pour produire des formes minérales valorisables.
- Le second objectif est de favoriser la production d'énergie de récupération dans un objectif de réduction de l'empreinte carbone du traitement des eaux usées. Ainsi, les deux actions engagées portent sur les leviers permettant d'augmenter la production de biogaz issu de la digestion des boues d'épuration, à l'aide de la co-digestion de boues et de produits ligno-cellulosiques. L'une d'entre-elles est orientée sur les fumiers de type équin et l'autre sur le mélange de boues et de sous-produits agricoles. Dans les deux cas, l'approche concerne l'étude des voies sèches et humides et les enjeux sont de déterminer les paramètres opératoires optimaux et l'influence de ces paramètres sur la qualité du biogaz.
- Enfin, une dernière action est consacrée à l'étude de la valorisation agricole des digestats de méthanisation. L'objectif est d'évaluer l'influence des modes d'exploitation sur la qualité agronomique des boues, voie prépondérante de valorisation actuellement déployée à l'échelle de l'agglomération parisienne.

Le second bloc de l'axe 4 concerne l'étude des technologies innovantes pour le traitement des eaux et la récupération des ressources. L'enjeu est notamment de privilégier des méthodes en rupture par rapport aux techniques plus conventionnelles, cela afin de développer des technologies moins énergivores. Les deux approches qui ont été privilégiées sont les voies biologique et électrochimique. Pour le premier cas, une action est consacrée au procédé de nitrification partielle couplée au procédé Anammox. Cette technologie bien que mature pour le traitement des jus de méthanisation est encore peu déployée. Les enjeux sont aujourd'hui de développer des approches de contrôle permettant de minimiser les émissions de protoxyde d'azote, et à terme de rendre la technique utilisable sur différents effluents (*Side stream/Main stream*). Pour l'étude des voies électrochimiques, deux actions ont été engagées. L'une d'elles est ciblée sur la technique des tubes électro-microbiens qui se distinguent des autres approches électrochimiques par une mise en œuvre simple avec comme principaux objectifs de réduire la quantité de matière organique et de favoriser la production d'électricité. Enfin, la dernière action concerne un procédé photo-électrochimique très innovant, capable de dégrader l'urée en produisant un vecteur d'énergie propre, le dihydrogène. A moyen terme, les avancées de ces actions permettraient d'envisager l'application des procédés électrochimiques dans les filières de traitement des stations d'épuration. L'évolution des stations d'épuration, pôles de traitement aujourd'hui, vers des pôles de récupération des ressources demain est en marche...

## POUR EN SAVOIR PLUS

- › Site web : [www.mocopee.com](http://www.mocopee.com)
- › Messagerie électronique du comité de pilotage et de coordination élargi : [cpc\\_elargi@mocopee.com](mailto:cpc_elargi@mocopee.com)



# LE MOT DE LA FIN par la Présidente du comité de la recherche de l'Astee

Voici la première phase du programme Mocopée arrivée à son terme. Ce programme a permis pendant quatre ans de fédérer autour d'un service public d'assainissement des partenaires académiques et industriels dans le but d'améliorer le fonctionnement des stations d'épuration urbaines.

Le développement de l'urbanisation au XIX<sup>e</sup> siècle a induit des crises sanitaires liées à un assainissement très déficient, que les premières stations d'épuration des eaux résiduaires urbaines ont progressivement contribué à résoudre. Les progrès constants réalisés sur ces stations ont permis de fiabiliser leur fonctionnement ainsi que d'améliorer la qualité des milieux récepteurs.

L'urbanisation toujours croissante, que ce soit en France ou dans le monde, va de pair avec une augmentation de la population mondiale urbaine. Il en résulte une pression grandissante sur les installations de traitement des eaux résiduaires urbaines qui doivent également composer avec l'optimisation énergétique et la diminution des rejets de gaz à effet de serre, en réponse au combat visant à limiter le réchauffement climatique. Ce réchauffement climatique a des effets sur la disponibilité des ressources aquatiques avec comme conséquence la nécessité de plus en plus évidente de recourir à la réutilisation des eaux résiduaires urbaines traitées.

Le développement d'une métrologie performante permettant d'apprécier plus rapidement les variations des charges polluantes entrantes ou circulantes ainsi que des progrès sur l'évaluation de l'écotoxicité et de la toxicité des effluents, une meilleure compréhension du cycle de l'azote et une amélioration de la modélisation des procédés de traitement constituent le premier apport de Mocopée aux acteurs de l'assainissement. Cet apport s'est traduit par des mémoires de thèse et des publications dans des médias destinés à un public scientifique ou professionnel. Certes quatre années, c'est court pour faire accepter pleinement de nouveaux outils métrologiques ou de nouvelles stratégies de pilotage d'installation. La seconde phase de Mocopée devrait permettre de consolider les acquis.

Un second apport réside dans l'organisation même du programme qui a su lier les intérêts des différents partenaires, lesquels ont compris les attentes des uns et des autres. Mocopée a montré qu'une telle synergie est possible. Et elle est certainement généralisable ! Si les liens entre les milieux académique et industriel sont assez classiques, ceux avec les acteurs des territoires sont parfois plus difficiles à établir. Au-delà des apports directs, l'exemple de Mocopée devrait pouvoir inciter d'autres territoires à développer des programmes partenariaux du même type.

Tel est le vœu du comité de la recherche de l'Astee qui remercie tous les acteurs de Mocopée pour leur travail durant ces quatre années et leur souhaite beaucoup de succès pour la seconde phase du programme.

**Marie-Noëlle Pons**

*Présidente du comité de la recherche de l'Astee*

## Un consortium construit pour dynamiser la recherche appliquée et l'innovation industrielle

Le programme de recherche Mocopée est coordonné par une équipe impliquant des chercheurs exerçant au sein de laboratoires universitaires et des ingénieurs experts du Siaap. A ce jour, le comité de pilotage et de coordination du programme est composé de neuf membres, dont quatre chercheurs et cinq ingénieurs experts du Siaap.

Au sein de ce comité, un bureau exécutif assure la cohérence globale de la programmation scientifique et la gestion administrative et budgétaire du programme. Ce bureau exécutif est composé de Vincent Rocher (Siaap), André Pauss (UTC-LTIM) et Yannick Fayolle (Irstea). Outre les membres du bureau exécutif, le comité de pilotage est composé de chercheurs et ingénieurs experts en charge de l'animation des axes de recherche du programme. Ainsi, ce seront à terme quatre binômes chercheurs/ingénieurs experts qui seront constitués pour assurer l'animation scientifique des axes. A ce jour, l'axe 1, dédié à la métrologie et au traitement du signal, est animé par Gilles Varrault (UPEC-Leesu) et Sabrina Guérin-Rechdaoui (Siaap). Les axes 2 et 3, dédiés à la modélisation/commande des procédés et à l'intégrité des systèmes de transport et de traitement, sont respectivement animés par Jean Bernier (Siaap) et Romain Mailler (Siaap). Des chercheurs spécialisés en modélisation et en résistance des matériaux viendront prochainement renforcer le pilotage de ces deux axes. L'axe 4, dédié aux concepts innovants (recherche amont/valorisation ressources), est animé par Mathieu Spérandio (INSA-LISBP) et Sam Azimi (Siaap).



Comité de pilotage et de coordination du programme Mocopée (de gauche à droite) :  
 Mathieu Spérandio (LISBP), Alain Grasmick (Polytech-Montpellier - Président de la phase I),  
 Gilles Varrault (Leesu), Sabrina Guérin-Rechdaoui (Siaap), Vincent Rocher (Siaap), Sam Azimi (Siaap),  
 Jean Bernier (Siaap), André Pauss (UTC), Yannick Fayolle (Irstea) et Romain Mailler (Siaap)



## UN GRAND MERCI À ALAIN GRASMICK, PRÉSIDENT DU PROGRAMME MOCOPEE ENTRE 2014 ET 2018

La première phase du programme de recherche a été présidée par Alain Grasmick. Riche d'une expérience de plus de 40 ans sur le fonctionnement des stations d'épuration et notamment des systèmes de filtration membranaire, il a activement participé à la construction et à l'orientation du programme de la phase I. Ses qualités humaines ont également contribué à la création d'une atmosphère propice à l'installation de collaboration synergique entre les différents acteurs du programme.



**Alain Grasmick, Polytech Montpellier**  
*Président du Comité Scientifique d'Orientation Stratégique du programme Mocopée*

Alain Grasmick a été Professeur des Universités à Polytech Montpellier. Son domaine scientifique et pédagogique est le Génie des Procédés appliqué au traitement des eaux. Ses recherches ont principalement concerné l'étude des biofiltres, des procédés physico-chimiques et des procédés membranaires, notamment les bioréacteurs à membranes.

Son rôle dans le programme Mocopée a été de présider, pendant sa première phase (2014-2017), le Conseil Scientifique d'Orientation Stratégique où étaient présentés et discutés les principaux axes et actions de recherches appliquées ciblées par les membres du comité de pilotage. Il a par ailleurs animé, avec Olivier Rousselot, les séminaires annuels qui se sont déroulés tous les ans à la Cité de l'Eau et de l'Assainissement à Colombes.







# Table des matières détaillée

## AVANT-PROPOS

- › **Jacques Olivier**, Directeur Général du Siaap page 4
- › **Marc Michel**, Président d'Irstea page 5
- › **Philippe Courtier**, Directeur Général de l'UTC page 6

## SOMMAIRE

page 7

## VISIONS D'ACTEURS EXTÉRIEURS

page 9

### VUES DE L'INTERNATIONAL

- › **Diane d'Arras**, *International Water Association* page 10
- › **Régina Gnirss**, *Berliner Wasserbetrieb* page 12

### VUES DE COLLECTIVITÉS FRANÇAISES

- › **Nicolas Gendreau**, *Bordeaux-Métropole*, *Président de l'Astee Sud-Ouest* page 14
- › **Denis Guilbert**, *Nantes Métropole*, *Vice-Président de l'Astee chargé des collectivités territoriales* et **Philippe Marest**, *Nantes Métropole* page 16
- › **Laurence Lupin**, *Métropole de Lyon* page 18

### VUES D'EXPLOITANTS DE STATIONS D'ÉPURATION URBAINES

- › **Jean-François Bulteau**, *OTV Grand Paris* page 19
- › **Alexandre Gonçalves**, *Siaap* page 21
- › **Baptiste Julien**, *Métropole de Lyon* page 23
- › **Thierry Lebrun**, *SUEZ Eau France* page 24
- › **Fabrice Nauleau**, *SAUR* page 26

### VUES DE CHERCHEURS

- › **Christophe Dagot**, *Université de Limoges* page 28
- › **Jean-Marie Mouchel**, *Université de la Sorbonne* page 30
- › **Bruno Tassin**, *École des ponts ParisTech* page 32

### VUE D'UNE AGENCE DE L'EAU

- › **Agence de l'eau Seine Normandie** page 34

### VUE D'UN ÉDITEUR SCIENTIFIQUE ET TECHNIQUE

- › **Muriel Auriol**, *Techniques Sciences Méthodes* page 36

## DOSSIER SCIENTIFIQUE

page 39

## PARTIE INTRODUCTIVE

page 41

› **Le programme de recherche Mocopée à l'interface entre recherche et industrie - Contexte, périmètre et objectifs de la phase I du programme (2014-2017)**

*Vincent Rocher, André Pauss, Yannick Fayolle, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Sam Azimi*

page 43

## MÉTROLOGIE INNOVANTE APPLIQUÉE À LA FILE DE TRAITEMENT DES EAUX

page 49

› **Développement et validation d'une méthode alternative pour la mesure rapide de la Demande Biochimique en oxygène des eaux résiduaires urbaines - Enverdi® DBO**

*Mathieu Muller, Yoris Alison, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Solenn Bellaton, Vincent Rocher*

page 51

› **Caractérisation des eaux résiduaires urbaines par fractionnement biologique de la matière organique : inter-comparaison de différentes approches analytiques**

*Solenn Bellaton, Jialu Zhu, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Jean Bernier, Vincent Rocher, Mathieu Muller*

page 63

› **Utilisation de la spectrométrie de fluorescence 3D pour une mesure rapide de la DBO<sub>5</sub> et de la DCO en station de traitement des eaux usées**

*Angélique Goffin, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Vincent Rocher, Gilles Varrault*

page 77

› **Utilisation des mesures interfaciales pour anticiper la formation de mousse lors du traitement des eaux usées et des jus de digestion**

*Manel Larachiche, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Vincent Rocher, Alla Nesterenko, Isabelle Pezron, André Pauss, Audrey Drelich*

page 93

› **Mesure *in situ* et en semi continu de la qualité bactériologique d'effluents de stations d'épuration - retour sur les essais du système « ALERT » de Fluidion**

*Sabrina Guérin-Rechdaoui, Vaizanne Huynh, Elise Alibert, Andreas Hausot, David Abi-Saab, Dan Angelescu, Sam Azimi, Vincent Rocher*

page 105

› **Evolution de la perturbation endocrinienne des eaux usées lors de leur traitement en STEP - Utilisation des modèles WATCHFROG**

*David Du Pasquier, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Sam Azimi, Anne Féraudet, Grégory Lemkine, Vincent Rocher*

page 117

## MÉTROLOGIE INNOVANTE APPLIQUÉE À LA FILE DE TRAITEMENT DES BOUES

page 129

› **Développement et validation d'une méthode alternative pour l'estimation rapide du potentiel méthane des boues d'épuration urbaine**

*Solenn Bellaton, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Nathalie Pautremat, Mathieu Muller, Sam Azimi, André Pauss, Vincent Rocher*

page 131

› **Couplage « mesure en réacteur - modélisation » pour une estimation rapide du potentiel méthanogène des boues**

*Stéphane Mottelet, Jean Bernier, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Sam Azimi, Vincent Rocher, André Pauss*

page 143

› **Potentiel méthanogène des déchets valorisables en STEP : focus sur les boues urbaines**

*Sabrina Guérin-Rechdaoui, Stéphane Mottelet, Sam Azimi, Jean Bernier, Thierry Ribeiro, André Pauss, Vincent Rocher*

page 151

## ESPÈCES INTERMÉDIAIRES DU CYCLE DE L'AZOTE EN STATION D'ÉPURATION

page 159

› **Evaluation simultanée des concentrations résiduelles de nitrites et nitrates en sortie de dénitrification biologique**

*Stéphane Mottelet, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Ahlem Filali, Vincent Rocher, Sam Azimi, André Pauss*

page 161

<p>› <b>La production de nitrites lors de la dénitrification des eaux usées par biofiltration - Stratégie de contrôle des concentrations résiduelles</b>  <i>Vincent Rocher, Cédric Join, Stéphane Mottelet, Jean Bernier, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Sam Azimi, Paul Lessard, André Pauss, Michel Fliess</i></p>	page 171
<p>› <b>Emissions de protoxyde d'azote des unités de biofiltration de la station de Seine Aval</b>  <i>Ahlem Filali, Julien Bollon, Yannick Fayolle, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Vincent Rocher, Sylvie Gillot</i></p>	page 181
<p>› <b>Traitement des jus de digestion par le procédé SHARON® : shunt des nitrates et dénitrification</b>  <i>Jean-Marc Perret, Olivier Garcia, Céline Roose-Amsaleg, Annet Laverman, Sébastien Pichon, Sam Azimi, Vincent Rocher, Jean-Pierre Canler</i></p>	page 189
<p><b>MODÉLISATION DES PROCÉDÉS DE TRAITEMENT EN STATION D'ÉPURATION</b></p>	page 199
<p>› <b>Calibration et validation d'un modèle de décantation physico-chimique à l'échelle industrielle, le modèle SimDec</b>  <i>Jean Bernier, Paul Lessard, Vincent Rocher</i></p>	page 201
<p>› <b>Impact des stratégies d'aération sur les performances de filtration et caractérisation hydrodynamique d'un pilote de BaM semi-industriel : apport de la modélisation à la mesure par tomographie de résistivité électrique</b>  <i>Elodie Suard, Yannick Fayolle, Rémi Clément, Marion Alliet, Claire Albasi, Sylvie Gillot</i></p>	page 209
<p>› <b>Modélisation des émissions de protoxyde d'azote par biofiltration nitrifiante : importance des hypothèses liées au transfert gaz/liquide</b>  <i>Justine Fiat, Ahlem Filali, Yannick Fayolle, Mathieu Spérandio, Jean Bernier, Vincent Rocher, Sylvie Gillot</i></p>	page 221
<p>› <b>Calibration et validation d'un modèle de biofiltration de la station Seine Aval (Siaap)</b>  <i>Jialu Zhu, Jen Bernier, Sam Azimi, André Pauss, Peter A. Vanrolleghem, Vincent Rocher</i></p>	page 231
<p>› <b>Modélisation et régulation multi-variables d'un four d'incinération des boues à lit fluidisé</b>  <i>Souad Rabah, Hervé Coppier, Mohammed Chadli, Didier Escalon</i></p>	page 241
<p><b>CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES</b></p>	page 251
<p>› <b>Mocopée demain : les grandes orientations de la phase II (2018-2022)</b>  <i>Vincent Rocher, André Pauss, Yannick Fayolle, Sabrina Guérin-Rechdaoui, Gilles Varrault, Jean Bernier, Romain Mailler, Mathieu Spérandio, Sam Azimi</i></p>	page 253
<p>› <b>Le mot de la fin par la Présidente du comité de la recherche de l'Astee</b>  <i>Marie-Noëlle Pons, Présidente du comité de la recherche de l'Astee</i></p>	page 264
<p><b>UN MOT SUR LE COMITÉ DE PILOTAGE ET DE COORDINATION DU PROGRAMME</b></p>	page 265
<p><b>TABLE DES MATIÈRES DÉTAILLÉE</b></p>	page 268



---

## ASTE

### Association Scientifique et Technique pour l'Eau et l'Environnement



Moderne, d'envergure nationale et ancrée dans les territoires, l'Astee est l'association française des professionnels de l'eau et des déchets. Professionnels d'aujourd'hui et de demain, issus de structures publiques comme privées, ils sont près de 4 000 à adhérer à l'Astee.

Depuis plus d'un siècle les membres reconnaissent la force de construire du consensus scientifique et technique avec la diversité des acteurs que rassemble la profession. Ils bénéficient des productions et des échanges au sein du réseau de l'Astee.

## TSM

### Techniques Sciences Méthodes



*TSM*, plus de 100 ans d'expertises, mêlant compétences, sérieux et modernité. Véritable vivier d'études scientifiques et techniques, d'actualités de l'environnement, *TSM* propose à ses lecteurs de parfaire leur connaissance du monde de l'eau et des déchets. Le comité de lecture apporte l'assurance d'une qualité des articles publiés. Revue à portée technique et opérationnelle, *TSM* permet aux spécialistes de l'environnement de diffuser et valoriser, auprès d'un large lectorat, leurs travaux et expériences.

## SIAAP

### Syndicat interdépartemental pour l'assainissement de l'agglomération parisienne



Depuis 1970, le Siaap transporte et dépollue les eaux usées et pluviales de l'agglomération parisienne, métropole parmi les plus denses d'Europe. Service public de l'assainissement francilien et acteur majeur de la protection du milieu naturel et de la biodiversité en Ile-de-France, il contribue 7 jours sur 7 grâce à l'action de ses 1 928 agents et l'activité de ses six usines d'épuration, à l'équilibre écologique de la Seine et de la Marne et à la préservation de l'environnement pour 9 millions de franciliens. Acteur du développement durable, le Siaap conçoit et met en œuvre avec ses partenaires institutionnels et industriels une stratégie d'assainissement qui intègre la nouvelle donne environnementale liée à la croissance démographique et au développement urbain. Premier producteur de biogaz en France, il favorise la mise en œuvre concrète des principes de l'économie circulaire, contribuant ainsi aux objectifs de transition énergétique et à la construction pour demain de villes à faible empreinte carbone. En mettant en œuvre son plan stratégique « Siaap 2030 », le Siaap construit l'avenir de l'assainissement pour garantir aux générations futures l'équilibre environnemental de tous les territoires et du Grand Paris pour rendre aux franciliens le meilleur service au meilleur coût

---



Ces trente dernières années, la recherche prolifique menée en génie des procédés a permis d'accompagner l'évolution des outils industriels de transport et de traitement des eaux de la plupart des grandes agglomérations. L'effort d'innovation doit aujourd'hui être porté sur les pratiques d'exploitation et de maintenance des systèmes industriels. Les fruits de la R&D doivent notamment permettre d'accroître la maîtrise et le niveau d'optimisation des filières de traitement, de progresser sur les questions relatives au

vieillesse des ouvrages et d'accompagner le changement de rôle de la station d'épuration, aujourd'hui pôle de dépollution, demain pôle de transformation de matière.

Pour répondre à ces grands enjeux, le Siaap\*, l'Irstea\*\* et l'UTC\*\*\* se sont rapprochés pour construire le programme Mocopée\*\*\*\*. Né en 2014, Mocopée se veut être un espace de travail et d'échange pérenne entre scientifiques et acteurs opérationnels exerçant dans le domaine du traitement des eaux urbaines. Ce programme de recherche appliquée rassemble aujourd'hui une vingtaine d'équipes de recherche, une dizaine d'entreprises innovantes et interagit avec trois associations partenaires. L'Astee, conformément aux engagements qu'elle a pris en 2014<sup>1</sup> de mettre en place les moyens pour rendre accessibles les résultats de la recherche financée par des fonds publics et ceux de la recherche action et de promouvoir la diffusion des connaissances scientifiques et techniques, accompagne, à travers sa section territoriale Ile-de-France, ce consortium depuis la création du programme

La première phase de ce programme (2014-2017) s'est donné comme objectif de faire évoluer les pratiques d'exploitation et de proposer des outils de suivi et de pilotage innovants (capteurs, méthodes de caractérisation des matrices, modèles d'aide à la décision), dans le but d'accroître le niveau d'optimisation des stations d'épuration. Cette phase a conduit à des avancées significatives dans trois champs principaux : (1) la métrologie appliquée au suivi des matrices eau/boue dans les stations d'épuration, (2) la compréhension des mécanismes d'apparition, le suivi et le contrôle des espèces intermédiaires du cycle de l'azote (protoxyde d'azote, nitrite) et (3) la modélisation des procédés de traitement.

Cet ouvrage technique intitulé « Innover dans les pratiques de monitoring et d'exploitation des stations d'épuration » présente l'initiative Mocopée, notamment à travers le regard de grands acteurs du monde de l'eau, synthétise les principaux résultats scientifiques et techniques obtenus lors de la phase I du programme et présente les grandes orientations de la prochaine phase du programme.

Nous espérons que vous prendrez autant de plaisir à découvrir cet ouvrage que nous en avons eu à faire vivre cette première phase du programme Mocopée.

### Vincent ROCHER

*Siaap, Responsable du comité de pilotage du programme Mocopée*

### Christophe PERROD

*Astee, Président*

\* Syndicat interdépartemental pour l'assainissement de l'agglomération parisienne

\*\* Institut national de recherche en sciences et technologies pour l'environnement et l'agriculture

\*\*\* Université de Technologie de Compiègne

\*\*\*\* MOdélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux

1 Position de l'Astee sur l'innovation en matière de services d'eau et de déchets

Organismes de coordination du programme

