



Schweizerische Eidgenossenschaft
Confédération suisse
Confederazione Svizzera
Confederaziun svizra

Département fédéral de l'environnement,
des transports, de l'énergie et de la communication DETEC
Office fédéral de l'énergie OFEN

DÉVELOPPEMENT D'UN CONCEPT COMBINÉ DE PRODUCTION DE BIOGAZ ET D'ÉLIMINATION DE L'AMMONIAC APPLIQUÉ AUX EFFLUENTS AGRICOLES

Rapport final

Élaboré par :

Hélène Fruteau, Yves Membrez, Julien Dovat, Caroline Tacchini, EREP SA
Ch. du Coteau 28, 1123 Aclens, info@erep.ch , www.erep.ch

Juan Villegas, Christof Holliger, Laboratoire de Biotechnologie Environnementale, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne
CH C3 425, Station 6, 1015 Lausanne, christof.holliger@epfl.ch , www.epfl.ch

Impressum

Date : 28 septembre 2007

Sur mandat de l'Office fédéral de l'énergie

Mühlestrasse 4, CH - 3063 Ittigen

Adresse postale : CH - 3003 Berne

tél. +41 31 322 56 11, fax +41 31 323 25 00

www.bfe.admin.ch

Responsable du domaine à l'OFEN : Bruno Guggisberg, bruno.guggisberg@bfe.admin.ch

Numéro OFEN du projet : 101290

Source d'acquisition de cette publication : www.recherche-energetique.ch

Le ou les auteurs sont seuls responsables du contenu et des conclusions de ce rapport.

Table des matières

Rappel des objectifs	III
Résumé.....	IV
Zusammenfassung.....	V
Abstract	VI
Liste des figures	1
Liste des tableaux	2
1. Situation initiale.....	3
1.1 Production de biogaz à partir des effluents agricoles	3
1.2 Les émissions d'ammoniac.....	4
1.3 Point sur la législation	5
1.4 Les différentes approches pour réduire les émissions d'ammoniac.....	6
1.4.1 Problématique	6
1.4.2 Limitation des émissions	6
1.4.3 L'épuration physico-chimique	8
1.4.4 La nitrification et la dénitrification.....	8
1.4.5 La séparation liquide / solide	9
1.5 Les récents développements dans le métabolisme de l'ammonium	10
1.5.1 La nitrification / dénitrification partielle (ou nitrification / dénitrification)	10
1.5.2 Dénitrification couplée à la digestion	10
1.5.3 L'oxydation anaérobie de l'ammoniac : ANAMMOX.....	11
1.5.4 Couplage nitrification – ANAMMOX	11
1.5.5 La dénitrification aérobie	11
1.5.6 Problématique des émissions de N ₂ O	12
1.6 Conclusion	12
2. Partie expérimentale : la digestion anaérobie.....	14
2.1 Description de l'installation	14
2.1.1 Les substrats et co-substrats.....	14
2.1.2 Le digesteur	15
2.1.3 Utilisation du biogaz.....	15
2.1.4 Traitement du digestat	15
2.2 Résultats de fonctionnement	16
2.2.1 Caractérisation des produits entrants	16
2.2.2 Fonctionnement du digesteur	17
2.2.3 Utilisation du biogaz.....	17
2.2.4 Caractérisation des produits sortants	17

3. Etude expérimentale : traitement de l'ammonium à l'échelle laboratoire	19
3.1 Introduction	19
3.2 Matériel et méthodes	20
3.2.1 Le digestat liquide	20
3.2.2 Phase aérobie : « nitrification partielle » ou nitrification	20
3.2.3 Phase anaérobie : dénitrification et ANAMMOX.....	21
3.3 Résultats expérimentaux	22
3.3.1 Réacteur aérobie	22
3.3.2 Réacteur anaérobie	27
3.4 Conclusion de la première phase d'expérimentation.....	29
4. Etude expérimentale : traitement de l'ammonium à l'échelle pilote	30
4.1 Introduction	30
4.2 Matériel et méthodes	30
4.2.1 Préparation de l'effluent pour l'expérimentation	30
4.2.2 Le réacteur	31
4.2.3 Les analyses	32
4.2.4 Le support pour le biofilm	32
4.3 Résultats expérimentaux	33
4.3.1 Expérimentation en biomasse libre.....	33
4.3.2 Expérimentation avec biomasse fixée	35
4.3.3. Mesures du N ₂ O	38
4.4 Conclusion de la deuxième phase d'expérimentation	39
5. Bilan azote et énergie	40
5.1 Bilan global de l'azote	40
5.2 Bilan énergétique.....	42
6. Eléments de faisabilité technico-économique	43
6.1 Dimensionnement	43
6.2 Estimation des investissements.....	44
7. Conclusion générale et perspectives.....	45
Répertoire des symboles et abréviations	48
Références	49

Rappel des objectifs

L'émission de composés azotés dans l'environnement est principalement due aux activités agricoles. Plus de la moitié de l'azote est émis dans l'air sous forme d'ammoniac. En Suisse, 90% des émissions atmosphériques d'ammoniac proviennent de l'agriculture, principalement lors du stockage et de l'utilisation des engrais de ferme. L'ammoniac dans l'air est une source d'acidification et d'eutrophisation. Il contribue également activement à la formation d'aérosols secondaires. Un certain nombre de mesures ont été étudiées afin de diminuer ces émissions, dont la couverture des stocks et l'amélioration des conditions d'épandage. Divers traitements mécaniques (traitement membranaire par exemple) ont également été étudiés.

La méthanisation des déjections animales permet de produire de l'énergie renouvelable sous forme de biogaz. Elle permet également de stabiliser et de désodoriser ces effluents. Toutefois, la méthanisation ne résout pas le problème de l'ammoniac. Au contraire, pendant la méthanisation, une grande partie de l'azote organique est minéralisé en ammonium. Ceci constitue un désavantage relatif aux émissions potentielles d'ammoniac et réduit l'attrait de la méthanisation d'un point de vue environnemental.

Ce projet se propose de développer un concept intégré de production de biogaz et d'élimination biologique de l'ammoniac, appliqué à du lisier.

Le traitement biologique de l'ammoniac par le procédé classique de nitrification / dénitrification, bien que commercialisé par plusieurs firmes pour le traitement des lisiers, se heurte à deux problèmes majeurs : le coût et la complexité. En effet, il requiert des besoins en aération importants (processus très demandeur en énergie) et le plus souvent l'addition d'une source externe de carbone organique soluble. Enfin, il demande une alternance de phases aérobies et anoxygènes, réalisés soit dans des cuves en série avec recirculation, soit dans une cuve à fonctionnement batch séquentiel (SBR).

Le but de ce projet est de tirer parti des nouvelles recherches en matière de traitement biologique de l'azote afin de mettre au point un concept qui permette de limiter les besoins d'aération, la consommation d'une source externe de carbone et de simplifier l'exploitation. Dans tous les cas, la digestion est la partie centrale du traitement pour la production d'énergie renouvelable.

Résumé

Le traitement biologique de l'ammoniac par le procédé classique de nitrification / dénitrification se heurte à deux problèmes majeurs : le coût et la complexité.

Ce projet a développé un concept intégré de production de biogaz et d'élimination biologique de l'ammoniac contenu dans le lisier en tirant parti des nouvelles recherches dans ce domaine afin de limiter les besoins d'aération, la consommation d'une source externe de carbone et de simplifier l'exploitation.

Une étude expérimentale, menée sur l'effluent de l'installation de biogaz de la famille Martin à Puidoux, a été réalisée au Laboratoire de Biotechnologie Environnementale de l'EPFL et a montré que :

- Le processus de nitrification est obtenu avec cet effluent dans un réacteur aérobie.
- Le processus de dénitrification est aussi obtenu dans le réacteur aérobie en utilisant un support mobile fixant la biomasse. Les rendements obtenus sont très élevés : 90% de l'ammonium est transformé et 80% est éliminé sous forme de N_2 .
- Le processus ANAMMOX peut également être obtenu, mais est instable et n'est donc pas recommandé.

L'énorme avantage de cette nouvelle méthode est que l'ensemble des réactions se déroulent dans un seul réacteur, sans modifier le fonctionnement du digesteur.

Le bilan d'azote montre que, si la totalité de l'effluent est traité dans le réacteur aérobie, l'élimination de l'azote total initial dans la configuration retenue est de 50%. L'élimination d'une partie seulement de l'azote peut être obtenue en ne traitant qu'une partie de l'effluent. Au niveau du bilan énergétique, le concept n'a pas d'incidence sur la production de biogaz.

Un dimensionnement du réacteur aérobie a été proposé en fonction du débit journalier d'entrée et du temps de résidence hydraulique. Le volume utile du réacteur de nitrification / dénitrification devrait être de 30 m^3 pour un digesteur de 400 m^3 . Le dimensionnement du système d'aération en vraie grandeur ne peut pas être défini précisément à partir de la présente étude, ni la consommation énergétique associée. La construction d'une installation pilote / démonstration permettrait de répondre à ces points.

Zusammenfassung

Die biologische Verarbeitung des Ammoniaks mit dem klassischen Verfahren Nitrifikation / Denitrifikation stösst auf zwei Hauptprobleme : Preis und Komplexität.

Dieses Projekt hat ein integriertes Konzept der Biogas Produktion und des biologischen Abbaus des Ammoniaks, das in der Gülle enthalten ist, entwickelt. Das Projekt stützt sich auf die letzten Forschungen auf diesem Gebiet und versucht, das Bedürfnis an Lüftung und den Verbrauch einer externen Karbonzulieferung zu begrenzen und die Nutzung zu vereinfachen.

Eine experimentale Studie, durchgeführt an das Abwasser der Biogas Anlage der Familie Martin in Puidoux, wurde durch das Labor von umweltrechtlicher Biotechnologie der ETH-Lausanne gemacht und hat gezeigt, dass :

- Der Nitritation Prozess wird mit der vergorenen Gülle in einem aeroben Reaktor erzielt.
- Der Denitritation Prozess wird auch im aeroben Reaktor erzielt indem ein mobiler Support, der die Biomass fixiert, verwendet wird. Die erhaltenen Leistungsfähigkeiten sind sehr hoch: 90% des Ammonium ist verarbeitet und 80% in Form von N_2 beseitigt werden.
- Der ANAMMOX Prozess kann auch erhalten werden, ist aber unbeständig und ist demzufolge nicht zu empfehlen.

Der riesige Vorteil dieser neuen Methode ergibt sich dadurch, dass alle Reaktionen im gleichen Reaktor erzielt werden, ohne den Betrieb des Faulbehälters zu ändern.

Die Bilanz des Stickstoffes zeigt, wenn das ganze Abwasser im aerobe Reaktor bearbeitet ist, dass die Beseitigung des ganzen anfänglichen Stickstoffes in dieser Konfiguration 50% ist. Die Beseitigung eines Teiles des Stickstoffes kann auch erzielt werden indem man nur einen Teil des Abwassers verarbeitet. Auf der Ebene der energetischen Bilanz hat dieses Konzept keinen Einfluss auf die Produktion des Biogases.

Eine Bemessung des aeroben Reaktors wurde vorgeschlagen abhängig vom täglichen Eintrittsvolumen und der hydraulische Aufenthaltszeit. Das nützliche Volumen des Nitritation / Denitritation Reaktors müsste 30 m^3 für einen Faulbehälter von 400 m^3 sein. Weder die Bemessung des Lüftungssystem in richtiger Grösse noch dessen energetischen Verbrauchs können anhand dieser Studie nicht genau definiert werden. Der Bau einer Pilot- und Demonstrationanlage würde diese Punkte klären.

Abstract

The biological treatment of ammonia via the classical procedures of nitrification/denitrification faces two major problems: costs and complexity

In this project a concept has been developed integrating biogas production and ammonia removal from manure, which makes use of recent research results in this field, in order to minimise the use of aeration, the consumption of an external carbon source and to simplify the exploitation.

An experimental research, conducted at the Environmental Biotechnology Laboratory of the Swiss Federal Polytechnic School of Lausanne on the digested effluent of a biogas installation at the Martin family at Puidoux showed the following results :

- The process of nitrification has been obtained with this effluent in an aerobic reactor.
- The process of denitrification has also been obtained in the aerobic reactor using a mobile support for fixing the biomass. The removal efficiencies found are very high : 90% of the ammonium is transformed and 80% is removed as N₂-gas.
- The Anammox process can also be obtained, but the process is very unstable and therefore not recommended.

The great advantage of this new method is that all reactions take place in only one reactor, without modifying the functioning of the existing digester.

The nitrogen balance shows that if all the effluent is treated in an aerobic reactor, the total Nitrogen removal in the applied configuration is 50% of the initial concentration. A partial removal of Nitrogen can be obtained by just partially treating the effluent. At energy balance level, the concept does not have a consequence on the biogas production.

A design has been proposed based on the daily incoming flow and hydraulic residence time. The net volume of the nitrification / denitrification reactor should be 30 m³ for a 400 m³ digester. The full-scale aeration system cannot be designed exactly based on the results found in this study, neither the energy consumption associated with it. The construction of a pilot installation / demonstration allows to respond at these points.

Liste des figures

Figure 1 : Evolution des installations agricoles de biogaz et production d'électricité et de chaleur associée (¹).....	3
Figure 2 : Potentiel en biogaz de différents déchets et co-produits utilisés en co-digestion (²).....	4
Figure 3 : Les principales sources d'émission ammoniacale dans le domaine agricole (⁵).....	5
Figure 4 : Vue du digesteur et ses périphériques	15
Figure 5 : Composition du mélange introduit dans le digesteur en poids brut.....	16
Figure 6 : Contribution de chaque substrat à la production de biogaz.....	17
Figure 7 : Synoptique de l'étude expérimentale.....	19
Figure 8 : Méthodologie d'expérimentation pour la nitrification	20
Figure 9 : Méthodologie d'expérimentation pour la dénitrification / ANAMMOX.....	21
Figure 10 : Rendement de dégradation de l'ammonium et charge spécifique – période de démarrage et stabilisation.....	22
Figure 11 : Produits de transformation de l'ammonium – période de démarrage et stabilisation.....	23
Figure 12 : Rendement de dégradation de l'ammonium et charge spécifique – période d'optimisation	24
Figure 13 : Produits de transformation de l'ammonium – période d'optimisation	24
Figure 14 : Bilan entrée-sortie sur l'azote dissous	25
Figure 15 : Bilan entrée-sortie sur l'azote total.....	25
Figure 16 : Rendement de dégradation de l'ammonium et des nitrites – période de démarrage.....	27
Figure 17 : Rendement de dégradation de l'ammonium et des nitrites – période d'optimisation	28
Figure 18 : Concept testé pendant la deuxième phase du projet	30
Figure 19 : Vue du réacteur pilote vide avec son système de mélange et d'aération	31
Figure 20 : Dispositif expérimental utilisé pendant la deuxième phase du projet	31
Figure 21 : Le support Kaldnes ®	32
Figure 22 : Démarrage du réacteur en mode batch	33
Figure 23 : a) Evolution du temps de rétention hydraulique et de la charge spécifique en ammonium ; débit d'air = 100 ml/mn ; [N-NH ₄ ⁺] _{in} = 490 mg/l b) Rendements de conversion de l'azote	34
Figure 24 : a) Evolution de l'aération et de la charge spécifique en ammonium ; TRH = 48 h ; [N-NH ₄ ⁺] _{in} =490 mg/l b) Rendements de conversion de l'azote	35
Figure 25 : a) Evolution du temps de rétention hydraulique et de la charge spécifique en ammonium ; [N-NH ₄ ⁺] _{in} = 400 mg/l b) Rendements de nitrification et dénitrification.....	36
Figure 26 : a) Evolution de la concentration en N-NH ₄ ⁺ à l'entrée et de la charge spécifique en ammonium ; TRH = 50 h b) Evolution des rendements de conversion de l'azote.....	37
Figure 27 : Biofilm sur le support Kaldnes ® en fin d'expérimentation	38
Figure 28 : Débit de N-N ₂ O mesuré par rapport au débit total de N-gazeux	38
Figure 29 : Bilan de l'azote. Unités en [%].	41
Figure 30 : Schéma du réacteur aérobie.....	44
Figure 31 : Concept testé dans la première partie de l'étude	45
Figure 32 : Concept final	46
Figure 33 : Bilan de l'azote. Unité en %	46

Liste des tableaux

Tableau 1 : Mesures pour la réduction de la formation ou de l'émission d'ammoniac.....	7
Tableau 2 : Composition du mélange traité en co-digestion	15
Tableau 3 : Composition des différents constituants du mélange.....	16
Tableau 4 : Composition des produits après digestion et pressage.....	18
Tableau 5 : Composition moyenne du digestat liquide.....	20
Tableau 6 : Récapitulatif des résultats de l'optimisation de l'étape de nitrification	26
Tableau 7 : Analyse du gaz sortant	29
Tableau 8 : Concentration en azote dans l'influent et l'effluent durant la dernière période d'expérimentation	37
Tableau 9 : Emission de N ₂ O, en ppm massique du gaz émis, en fonction des conditions de fonctionnement	38
Tableau 10 : Différences du « Design Project »	43
Tableau 11 : Investissements	44
Tableau 12 : Comparaison des méthodes.....	45

1. Situation initiale

1.1 Production de biogaz à partir des effluents agricoles

Depuis 1990, le nombre des installations de biogaz en Suisse a diminué, passant de 102 à 58 unités. Grâce à des actions volontaristes d'information, les agriculteurs, depuis la fin des années 90, commencent à s'intéresser de nouveau au biogaz. L'évolution technique, la promotion des énergies renouvelables et le développement de la co-digestion ont joué dans ce renouveau un rôle prépondérant. De nos jours, en Suisse, quelques mille exploitations agricoles possèdent le potentiel pour une installation de biogaz ⁽¹⁾. Depuis l'an 2000, malgré une baisse des subventions, le marché du biogaz ne cesse d'augmenter. On remarque également sur la figure 1 une diminution de la production de chaleur par rapport à celle de l'électricité. En effet, le biogaz peut être converti en électricité grâce à une installation de couplage chaleur-force (CCF) et la chaleur dégagée récupérée pour le chauffage du digesteur et d'autres besoins de l'exploitation. Ainsi, le propriétaire de l'exploitation agricole subvient à ses propres besoins énergétiques et peut également vendre son excédant électrique sur le marché, en expansion, des énergies vertes.

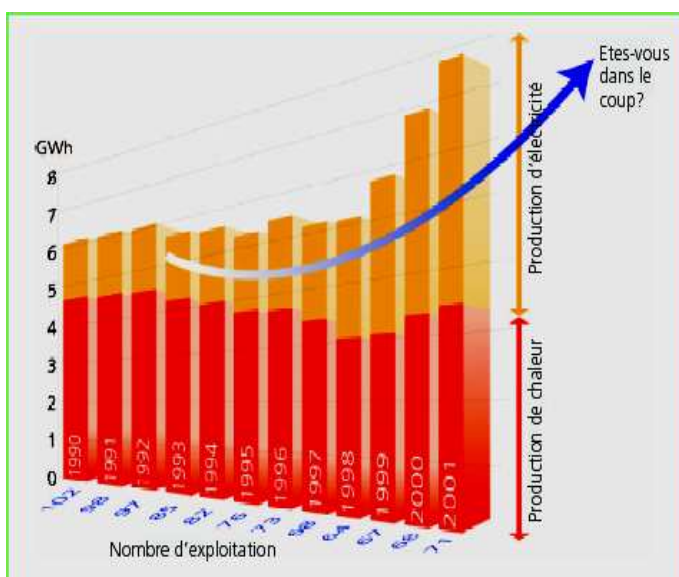


Figure 1 : Evolution des installations agricoles de biogaz et production d'électricité et de chaleur associée ⁽¹⁾

La productivité en biogaz des effluents agricoles est faible du fait d'une teneur en eau de 90 à 95% pour les lisiers et de la présence de composés ligneux récalcitrants pour les fumiers. L'addition dans les installations de biogaz d'autres sous-produits à potentiel énergétique plus élevé, soit provenant de l'exploitation, soit dans la plupart des cas extérieurs à l'exploitation, permet de récupérer une production de biogaz plus importante.

La figure 2 reprend le potentiel de biogaz de plusieurs sous-produits agricoles, agro-industriels ou alimentaires. On voit que les lisiers et fumiers apparaissent tout en bas de l'échelle.

Productivité en biogaz de différents déchets et co-produits

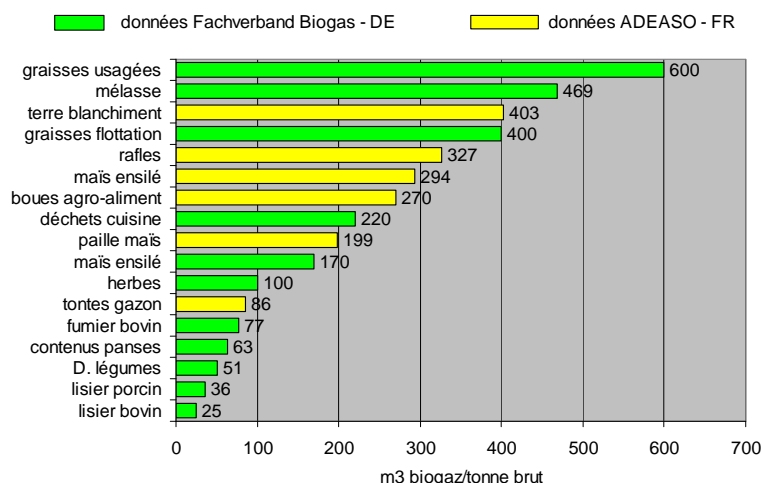


Figure 2 : Potentiel en biogaz de différents déchets et co-produits utilisés en co-digestion (²)

Les produits provenant de l'extérieur de l'exploitation sont, selon le type de matières organiques fermentescibles présentes, différents dans chaque région (³). L'incorporation de ces sous-produits permet de rentabiliser l'installation agricole de biogaz grâce aux recettes énergétiques. De plus, le traitement de déchets organiques extérieurs à l'exploitation agricole permet à l'exploitant de percevoir des recettes supplémentaires (taxe d'élimination).

Outre l'aspect purement énergétique, la digestion des effluents agricoles permet :

- la destruction de germes pathogènes majeurs
- la diminution des odeurs
- la diminution et limitation des émissions de gaz à effet de serre (méthane) à travers le captage du biogaz produit
- la diminution des risques de pollution
- l'amélioration des composantes du lisier (lixiviation réduite des nitrates, dosage plus facile)
- à travers le biogaz, une revalorisation de la situation du paysan (⁴)

1.2 Les émissions d'ammoniac

Les émissions d'ammoniac entraînent une acidification de l'atmosphère, ainsi que la surfertilisation des champs et des écosystèmes fragiles (forêts, marais), provoquant une diminution de la biodiversité et du rendement de la végétation. L'ammoniac est également un précurseur d'aérosols (PM10) qui, à hautes doses, ont des effets néfastes sur la santé de l'homme.

L'agriculture est responsable de 92% des rejets d'ammoniac dans l'atmosphère, soit l'équivalent de 46'000 tonnes par année. Les principales sources d'émission d'ammoniac sont, en ordre décroissant d'importance (voir figure 3) :

- l'épandage du lisier (56%)
- les étables et les différents types de stabulation (33%)
- le stockage du lisier (8%)

Principales sources d'émission d'ammoniac par l'agriculture

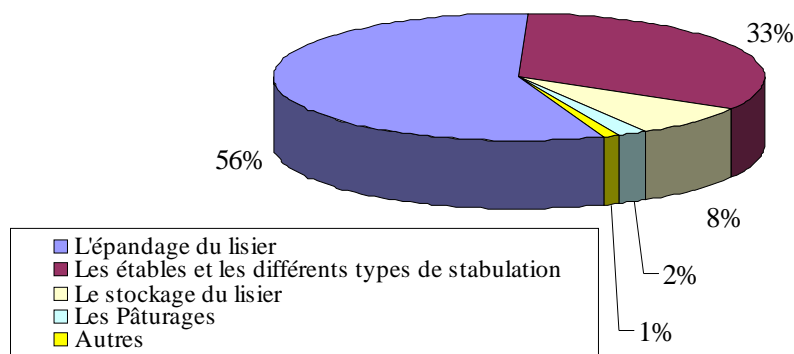


Figure 3 : Les principales sources d'émission ammoniacale dans le domaine agricole ⁽⁵⁾

L'azote dans les déjections animales se trouve majoritairement sous deux formes :

- les protéines et l'urée constituant la fraction organique de l'azote
- les sels dissous, sous forme d'ion ammonium (NH_4^+), qui constituent la fraction minérale

Pour devenir volatil et être émis dans l'atmosphère, l'ammonium doit être transformé en ammoniac gazeux (NH_3) d'après l'équilibre chimique (1) suivant :



Cet équilibre est influencé par plusieurs facteurs :

- Premièrement, une hausse de pH pousse l'équilibre chimique (1) à droite, produisant ainsi de l'ammoniac gazeux.
- Une augmentation de température provoque une hausse du coefficient de dissociation de NH_4^+ vers NH_3 .
- Mentionnons encore que l'air et sa circulation dans les bâtiments ou à la surface des lisiers augmente les émissions de gaz ⁽⁶⁾. Lorsque le lisier est stocké dans des fosses, l'émission d'ammoniac est proportionnelle à la surface de contact air – lisier ⁽⁷⁾.

Malgré des avantages évidents comme la production d'énergie et l'amélioration des composantes du lisier, la digestion présente l'inconvénient d'augmenter significativement les émissions d'ammoniac. Ainsi, on estime à 14-17% l'augmentation des émissions dues à la minéralisation de l'azote organique en ammonium et à sa plus forte volatilisation consécutive à l'élévation de pH ^(8,9).

1.3 Point sur la législation

La Loi sur la Protection de l'Environnement (LPE) propose une protection en deux étapes face aux immissions (art. 11, al. 2 et al. 3, LPE). Celles-ci doivent bien sûr être prises en compte lors de la construction d'un bâtiment ou de l'exploitation d'une installation agricole ⁽¹⁰⁾. Il faut distinguer deux sources d'émissions : les stationnaires et les non-stationnaires. Les sources d'émissions stationnaires (art. 2, al. 1., OPair) sont, par exemple, les étables, les constructions pour le stockage du lisier et les appareils pour l'épandage du lisier. Les non-stationnaires sont représentées par les herbages et les terres arables auxquels les limitations d'émission ne sont pas applicables ⁽¹⁰⁾.

L'Ordonnance sur la Protection de l'air (OPair) fait la distinction (art. 2, al. 1 et 3, OPair) entre les étables fermées dans lesquelles l'air est capté puis évacué (ventilation mécanique) et d'autres qui le rejettent dans l'environnement sans le capter (stabulations libres, installations de stockage de lisier non couvertes). Les annexes 1 à 4 de l'OPair ne peuvent être appliquées qu'aux installations dont les émissions sont captées et évacuées. Les installations de stockage de lisier fermées doivent être évaluées en fonction des annexes mentionnées de l'OPair ⁽¹⁰⁾. Les installations non couvertes sont régies par l'article 4 de l'OPair et doivent être aussi limitées.

Même si les émissions d'ammoniac sont sujettes à une diminution, la loi ne donne aucune valeur limite d'émission. On se référera donc à l'article 2, alinéa 5 de l'OPair.

Les émissions sont à limiter dans la mesure du techniquement (art. 4, al. 2, OPair) et économiquement (art. 4, al. 3, OPair) supportable pour l'exploitation agricole.

Un délai d'assainissement ou d'adaptation est donné aux installations stationnaires existantes par une autorité compétente (art. 8, al. 1 et 2, OPair).

Selon la recommandation 21A de Cercl'Air ⁽¹⁰⁾, la couverture des nouvelles installations de stockage du lisier (silo à lisier) est obligatoire afin de limiter les émissions d'ammoniac. Les délais d'assainissement pour les silos déjà existants sont de 4 ans pour un volume supérieur à 500 m³, de 5 ans pour un volume se situant entre 200 et 500 m³ et enfin de 6 ans pour un volume inférieur à 200 m³. Les croûtes flottantes naturelles sont jugées comme des mesures de protections insuffisantes. Un des problèmes dans l'application des recommandations de Cercl'Air réside dans son application. En effet, bien que l'OFEV les ait acceptées, leur application diffère d'un canton à l'autre. Les silos ouverts ne sont maintenant plus construits.

En comparaison avec d'autres pays européens, la Suisse est en retard. En Hollande, par exemple, la couverture des silos à lisier est obligatoire et subventionnée depuis 1991. En Belgique, la couverture de paille est tolérée et il y a obligation de couvrir les silos à lisier depuis 1996. En Allemagne, la croûte flottante et la couverture de paille sont tolérées. Seules la France et l'Autriche n'ont pas de législation à ce propos.

1.4 Les différentes approches pour réduire les émissions d'ammoniac

1.4.1 Problématique

On distingue plusieurs approches pour gérer le problème des émissions d'ammoniac, dont notamment :

- la limitation des émissions avec conservation de l'azote
- l'élimination totale ou partielle de l'azote

Selon le contexte, chaque technique peut présenter des intérêts et des inconvénients. Dans le présent projet, l'objectif principal est la production d'énergie renouvelable et on se placera dans le cadre de la dernière approche, à savoir l'épuration de l'ammoniac. Ceci se justifie par le fait que les installations de biogaz agricole sont souvent situées dans des zones à forte concentration d'élevage et donc dans des zones de fertilisation azotée excédentaire.

1.4.2 Limitation des émissions

- **Au niveau du stockage du lisier**

Les pertes liées au stockage du lisier ne représentent que 8% des pertes totales en ammoniac. Le tableau 1, figurant à la page suivante, présente un aperçu des mesures permettant de réduire la formation ou l'émission d'ammoniac.

pH : L'équilibre entre l'ammoniac et l'ammonium (1) varie en fonction de l'acidité du lisier. Plus un lisier est acide et plus cet équilibre est dirigé vers la gauche et donc plus il y a formation de ions ammonium (Principes de Le Châtelier). Berg (1998) a démontré qu'à pH=5 les émissions d'ammoniac sont réduites de 90%. Malheureusement, le contrôle du pH est coûteux et dangereux (corrosion du béton et de l'acier, travail avec des acides forts) ⁽¹¹⁾.

Quantité de lisier et température : L'eau de pluie et l'eau de nettoyage augmentent le volume de lisier. Son évacuation limite donc considérablement le volume de lisier. L'évaporation du lisier provoque la transformation des ions ammonium en ammoniac gazeux.

Forme du réservoir : Afin de réduire les émissions d'ammoniac, la surface au sol du réservoir doit être diminuée et sa hauteur augmentée à volume égal. Le rendement de la pompe pour le prélèvement limite la hauteur maximale possible. La hauteur maximale peut être limitée soit par des facteurs physiques soit pour des questions d'esthétique.

Paramètres	Mesures
Teneur en NH ₃ /NH ₄ ⁺	Optimiser le fourrage
pH	Abaisser le pH
Volume de lisier	Pâturer
Durée de stockage	Réduire
Fréquence de brassage	Réduire
Surface de contact entre lisier et air	Minimiser / augmenter la surface utile
Température	Abaisser la température
Mouvements d'air à la surface du lisier	Couverture naturelle ou artificielle

Tableau 1 : Mesures pour la réduction de la formation ou de l'émission d'ammoniac

Echanges d'air en surface du lisier :

La réduction du passage de l'air au-dessus du lisier peut être effective soit à l'aide de couvertures naturelles, soit par l'intermédiaire de couvertures artificielles. Des protections contre le vent et le soleil peuvent aussi être introduites pour limiter et freiner le transport par convection de l'ammoniac.

a) Les couvertures naturelles

Les mouvements d'air à la surface du lisier engendrent la libération d'ammoniac. Une croûte flottante importante et homogène est la condition sine qua non pour une réduction effective des émissions d'ammoniac. Leur rendement peut être amélioré grâce à l'ajout de produits comme de l'huile de colza, des billes d'argiles expansées ou encore de la perlite⁽¹¹⁾. Malgré une bonne limitation des échanges gazeux, les croûtes flottantes naturelles et les couvertures artificielles subissent considérablement les influences atmosphériques et le brassage du lisier. Par conséquent, les couvertures en croûte flottante naturelle sont à éviter lors de la construction de nouveaux silos à lisier en Suisse⁽¹⁰⁾.

b) Les couvertures artificielles

Les nouveaux silos doivent être dotés d'une couverture artificielle (flottante ou non-flottante). Il existe différents types de couvertures artificielles :

- Les matériaux biologiques (copeaux de bois, argile expansée, huile de colza, paille) ; leur potentiel de réduction oscille entre 70 et 90% en fonction de leur épaisseur (>140 mm) et de leur homogénéité.
- Les couvertures flottantes (bâche simple / sandwich, perforée, non perforée).
- Les couvertures fixes (toit conique en membrane, éléments en béton, panneaux en acier inoxydable, panneaux en polyester, bois, filets brise-vent).

- **Au niveau de l'épandage**

L'épandage est responsable des principaux rejets agricoles d'ammoniac dans l'atmosphère.

La volatilisation de l'ammoniac représente la principale perte d'azote en ce qui concerne les fumiers et les lisiers. Selon l'Office Fédéral de l'Agriculture et celui de l'Environnement (2004), différentes techniques peuvent limiter les pertes ammoniacales lors de l'épandage du lisier :

Les rampes d'épandages

Les rampes d'épandage permettent de travailler le lisier à une pression plus faible. Elles réduisent les pertes atmosphériques et les odeurs. Pour plus d'efficacité, les buses peuvent être remplacées par des tuyaux pendillards. Le lisier est ainsi déposé directement sur le sol, ce qui limite considérablement le temps pendant lequel le lisier se retrouve en contact avec l'atmosphère.

L'enfouisseur

Cette méthode est beaucoup plus chère, mais réduit considérablement les pertes en ammoniac. Ces machines sont plutôt spécifiques à la géographie du champs ou à la texture du sol. L'incorporation

immédiate est sujette à différents facteurs tels que l'efficacité fertilisante. L'injection du lisier doit donc avoir lieu à une certaine profondeur, propice aux plantes et à la réduction des rejets d'ammoniac (¹²).

1.4.3 L'épuration physico-chimique

Ces procédés, technologiquement plus évolués, posent certains problèmes quant à la gestion et à la manutention de l'installation par l'exploitant agricole. Les coûts sont donc plus élevés dus à l'emploi d'une main d'œuvre spécialisée et à un outillage plus sophistiqué.

- **Extraction d'ammoniac par élimination en phase gazeuse (stripping)**

En faisant varier différentes combinaisons d'agitation, d'aération, de pH ou de température, une quantité déterminée d'ammoniac peut être extraite du lisier. Deux procédés industriels sont commercialisés :

- *Amolis* : L'ammoniac extrait (agitation / aération du lisier) est ensuite détruit par nitrification / dénitrification biologique en phase gazeuse.
- *Smelox* : L'ammoniac extrait est ensuite détruit par combustion catalytique à haute température (¹³).

- **Les autres procédés**

Parmi les principaux procédés industriels, citons :

- *Sirven* : évaporation puis épuration-condensation de vapeur (séchage thermique)
- *Lisikit* : ultra-filtration puis osmose inverse, coagulation / floculation puis séparation de phase.
- *AVDA, Kaltenbach-Thuring* : précipitation chimique de l'azote ammoniacal en phase liquide.
- *Balcopure®* : extraction de l'azote ammoniacal sous forme gazeuse puis concentration par lavage acide.

1.4.4 La nitrification et la dénitrification

- **La nitrification**

Elle consiste à oxyder biologiquement l'ammonium en nitrates.

Elle est réalisée par des bactéries aérobies principalement autotrophes, qui nécessitent de l'oxygène (comme accepteur final d'e⁻) et du carbone inorganique (CO₂ ou HCO₃) comme source de carbone.

Les réactions en jeu sont les suivantes :



La consommation d'oxygène est chiffrée à : 4.6 g / g de N nitrifié (sans dénitrification)

On voit que la réaction consomme beaucoup d'oxygène (2 moles d'O₂ pour 1 mole d'NH₄⁺ transformé) et produit des H⁺.

Ces bactéries ont une croissance lente, la vitesse limitante est représentée par la réaction (2). Elles ne croissent pratiquement plus au dessous de 10°C et ont un pH optimal élevé (8 à 9). Comme la réaction produit de l'acide, le maintien de l'activité nitrifiante nécessite un fort pouvoir tampon.

En présence de carbone organique, les bactéries hétérotrophes présentes entrent en compétition pour la consommation d'oxygène. Comme ces dernières ont une croissance plus rapide, les bactéries nitrifiantes sont limitées en oxygène. La poursuite de la nitrification demande alors une aération prolongée de façon à permettre la consommation du carbone organique, puis l'oxydation de l'ammonium.

La nitrification de l'azote ammoniacal dans un lisier digéré est favorisée par rapport à un lisier brut car une grande partie du carbone organique soluble a déjà été consommée au cours de la digestion.

La nitrification peut être un traitement en soi puisqu'elle conduit à la conservation de l'azote sous une forme non volatile. Mais dès que l'on recherche une élimination de l'azote, elle doit être suivie d'une

dénitrification. De plus, la nitrification seule entraîne des consommations importantes de base ou de sels tampons.

- **La dénitrification**

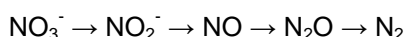
Elle consiste à réduire biologiquement les nitrates en azote moléculaire.

Elle est réalisée par des bactéries anaérobies facultatives, c'est à dire qui peuvent utiliser l'O₂ ou le NO₃⁻. Si l'oxygène est présent, c'est lui qui sera utilisé préférentiellement. La réduction des nitrates se fait donc en conditions anoxiques. Les bactéries sont principalement hétérotrophes et utilisent du carbone organique comme donneur d'électron (DCO soluble).

La réaction globale est la suivante :

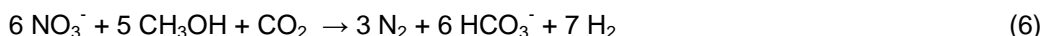


Elle procède également par étapes successives :



La consommation de H⁺ fait que la dénitrification couplée à la nitrification présente un avantage considérable pour la consommation du pouvoir tampon.

Par contre, le besoin en DCO soluble suppose soit que l'on en ajoute après l'étape de nitrification, soit que les deux réactions fonctionnent en boucle, ce qui est souvent le cas car la DCO soluble est alors fournie par l'effluent brut. Toutefois, on peut avoir recours à l'addition de DCO soluble si l'effluent brut (avant nitrification) n'en contient pas suffisamment, ce qui est généralement le cas d'un effluent digéré.



En pratique, on considère que le ratio nécessaire DCO/ N-NO₃⁻ = 4.6.

La température optimale de dénitrification est comprise entre 35 et 50°C. La dénitrification est globalement plus rapide que la nitrification si la température est élevée.

La dénitrification permet, dans le processus global (nitrification / dénitrification et oxydation du carbone) d'économiser de l'oxygène car une partie du « pouvoir oxydant » nécessaire à l'oxydation du carbone est couverte par les nitrates (utilisés comme accepteur d'e⁻ à la place de l'oxygène). Le gain d'oxygène correspond à 2.9 g O₂/g N-NO₃⁻ dénitrifié.

Soit globalement une consommation de O₂ de 1.7 g/g de N nitrifié et dénitrifié.

La nitrification / dénitrification est appliquée en vraie grandeur en France sur du lisier brut ou filtré. On a listé quelques procédés ci-dessous :

- *Agrifiltre*® (nécessite un pré-traitement de l'azote ; filtration sur paille).
- *BioArmor* (nécessite un pré-traitement de l'azote ; séparation mécanique de phase).
- *EuroBiosor* (nécessite un pré-traitement de l'azote ; décantation).
- *Dénitral* (nécessite un pré-traitement de l'azote ; séparation mécanique de phase).

1.4.5 La séparation liquide / solide

Elle concerne principalement les exploitations de grande taille ou les effluents issus d'une digestion. Elle permet de gérer séparément la partie liquide, utilisable sur l'exploitation, et la partie solide, plus facilement exportable. En permettant une meilleure gestion des sous-produits fertilisants, la séparation des phases participe à une meilleure utilisation de l'azote ⁽¹⁴⁾.

La séparation de phases est d'autant plus utile que l'installation traite des co-produits solides et produit un digestat épais et difficilement épanachable en l'état.

Le produit solide résultant contient de 70 à 75% d'eau. Il peut éventuellement faire l'objet d'une étape de maturation aérobie afin de donner un produit fini assimilable à un compost. Dans ce cas l'ammoniac qu'il contient, sous forme d'ammonium, est oxydé biologiquement en nitrate par des bactéries aérobies.

Il existe trois différents systèmes principaux de séparation, comme nous le montre une étude de l'Office Fédéral de l'Energie (2004) :

- les séparateurs à vis
- les centrifugeuses à axe vertical ou à axe horizontal
- les presses à bandes

1.5 Les récents développements dans le métabolisme de l'ammonium

1.5.1 La nitrification / dénitrification partielle (ou nitritation / dénitrification)

Il s'agit d'arrêter le processus de nitrification à la première étape, c'est à dire à la formation de nitrites (NO_2^-). Ceci permet de limiter la consommation d'oxygène de 25% et donc de réaliser une réelle économie.

Pour cela, il faut favoriser la croissance des bactéries type *Nitrosomonas* aux dépens de *Nitrobacter*. Pour la mettre en œuvre, on tire parti des différences de conditions optimales de croissance entre les deux genres de bactéries, à savoir :

- la température
- la concentration en O_2 dissous

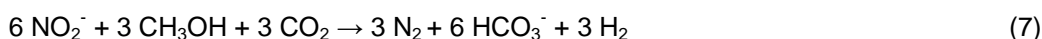
Cette réaction partielle est intéressante si elle est suivie soit d'une dénitrification à partir des nitrites, soit d'une oxydation anaérobie de l'ammonium par les nitrites.

Le procédé industriel SHARON (Single Reactor for High activity Ammonia Removal Over Nitrite), développé en 1998 ⁽¹⁵⁾, est basé sur le principe que, au dessus de 20°C, la croissance des bactéries oxydant l'ammoniac est plus rapide que celle des bactéries oxydant les nitrites. Ce procédé est appliqué au traitement des eaux usées.

Suite à une nitrification « partielle » en nitrites, une dénitrification classique peut être envisagée. Cela est appliqué industriellement sur des eaux usées en Hollande.

Le processus de nitrification « partielle » est de plus en plus étudié sur divers effluents azotés synthétiques ⁽¹⁶⁾ ou réels comme les effluents d'abattoir ⁽¹⁷⁾. Il a été réalisé avec succès en laboratoire en utilisant une oxygénation limitée.

La réaction de dénitrification à partir de NO_2^- nécessite moins de DCO soluble qu'à partir des NO_3^- .



Ceci est particulièrement intéressant pour les effluents digérés qui contiennent peu de DCO soluble.

1.5.2 Dénitrification couplée à la digestion

Puisque les principales bactéries dénitrifiantes sont actives en conditions anoxiques, on peut imaginer réaliser la dénitrification au sein d'un digesteur. Ce processus a été étudié par Akunna et col ⁽¹⁸⁾. Les premiers tests ont montré que le ratio DCO/N est primordial :

- si $\text{DCO/N-NO}_x < 10$, il n'y a que de la dénitrification
- si DCO/N-NO_x entre 10 et 50, il y a production de CH_4 et dénitrification
- si $\text{DCO/N-NO}_x > 50$, il n'y a que formation de CH_4

Par la suite, ils ont aussi montré en réacteurs batchs que ⁽¹⁹⁾ :

- Les nitrates sont inhibiteurs de la méthanisation : il faut donc limiter la concentration globale.
- La réduction des NO_3^- demande des ratios C/N dans une fourchette bien définie. La nature de la source de carbone est importante.
- La réduction des NO_2^- est réalisée dans une large gamme de conditions.

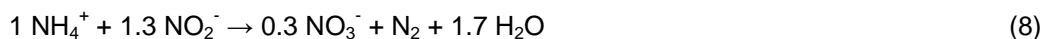
Ainsi, avec le glucose, environ 50% des nitrates (ou des nitrites) sont réduits en NH_4 (ammonification). Avec l'acide acétique, on ne détecte pas de NH_4 . On peut donc envisager une nitrification « partielle » suivi d'une dénitrification en digesteur.

Le couplage nitrification / dénitrification est souvent réalisé avec la technologie SBR.

1.5.3 L'oxydation anaérobie de l'ammoniac : ANAMMOX

Dans les années 1990, on a isolé des bactéries capables d'oxyder l'ammonium en conditions anaérobies en utilisant les nitrites comme accepteur préférentiel d'électron^(20, 21, 22). Le processus a été baptisé « ANAMMOX ».

La réaction globale est la suivante⁽²³⁾ :



Les bactéries ANAMMOX sont anaérobies strictes et ont une croissance très lente (environ 10 jours à 30°C), mais finalement du même ordre de grandeur que celles des bactéries méthanogènes. Elles sont autotrophes : en présence de DCO_{sol} , les nitrites sont utilisés préférentiellement par les bactéries dénitrifiantes aux dépens des ANAMMOX.

L'oxydation anaérobie de l'ammoniac se fait sans oxygène et sans DCO soluble, d'où l'énorme intérêt que ce nouveau procédé a suscité pour une élimination « écologique et économique » de l'azote, particulièrement pour les effluents présentant un ratio DCO/N-am défavorable comme les effluents de digestion.

Cependant, il faut au préalable oxyder en aérobiose une partie de l'ammonium pour obtenir les nitrites nécessaires à la réaction. Pour une élimination complète de l'ammonium, il faut ainsi en oxyder plus de la moitié.

1.5.4 Couplage nitritation – ANAMMOX

C'est actuellement un procédé très prometteur car nécessitant un minimum d'oxygène et pas de DCO additionnelle⁽²⁴⁾. Globalement, la réaction est la suivante :



Le couplage Sharon-ANAMMOX a été appliqué en laboratoire à des nombreux effluents et notamment au traitement d'effluents de porcherie⁽²⁵⁾. Dans ce cas, on a utilisé un UASB comme réacteur ANAMMOX. Le rendement d'élimination de N soluble était de 50%. L'azote restant est sous forme NH_4 (60%) et NO_2 (40%).

La première application industrielle du procédé a démarré en 2002 en Hollande sur des eaux usées. Toutefois, en 2003, les résultats étaient plutôt mitigés.

Le développement de cette technologie est aujourd'hui limité par la difficulté d'obtenir de façon fiable et durable l'activité ANAMMOX.

1.5.5 La dénitrification aérobie

Depuis 1993, on a décrit des bactéries capables de nitrifier et dénitrifier en conditions aérobies⁽²⁶⁾. Ce sont des bactéries hétérotrophes qui réalisent une nitrification hétérotrophe et une dénitrification. De fait, elles sont difficiles à mettre en évidence.

La bactérie la plus étudiée est *Thiosphera pantotropha*. Elle est cultivée à 30°C et en l'absence de lumière⁽²⁷⁾. Les facteurs qui favorisent sa croissance, aux dépens des nitrifiantes autotrophes de type *Nitrosomonas*, sont⁽²⁸⁾ :

- Un rapport carbone soluble / azote élevé : pour un C/N > 10, *Nitrosomonas* ne pousse plus et *T. pantotropha* devient prépondérante
- Une concentration en O_2 dissous faible : *T. pantotropha* possède une affinité pour l'oxygène bien supérieure à *Nitrosomonas* (K_S environ 10 fois inférieure)

Les bactéries aérobies dénitrifiantes utilisent NO_2^- de préférence à NO_3^- ⁽²⁹⁾.

Cependant, l'activité de ces bactéries a été très controversée, car la dénitrification observée peut être le résultat de conditions anoxiques localisées au niveau de biofilms qui se développent dans le réacteur.

1.5.6 Problématique des émissions de N₂O

Au cours de la nitrification / dénitrification anaérobie comme aérobie, on a pu mettre en évidence une production de N₂O. Or ce gaz possède un potentiel d'effet de serre 10 fois plus élevé que celui du CH₄.

Tallec et al (2006) ⁽³⁰⁾ ont rapporté des résultats obtenus à l'échelle laboratoire pour différents niveaux d'oxygénation et différentes sources de carbone. Ils ont trouvé une corrélation entre l'oxygénation et la production de N₂O lors de la nitrification : le ratio N-N₂O⁻ produit / N-NH₄⁺ nitrifié est plus élevé, jusqu'à 1%, pour les bas niveaux d'oxygénation. Concernant la dénitrification, les mêmes auteurs ont trouvé des émissions plus faibles de N₂O lorsqu'une source de carbone est ajoutée en quantité suffisante pour avoir 100% de dénitrification : le ratio N-N₂O/N-NO₃⁻ est de 0.1 à 0.8%.

Kichida et al (2004) ont évalué l'émission de N₂O lors du traitement de lisier de porc dans des SBR à différents ratios C/N. Ils ont trouvé que la production de N₂O est largement influencée par le ratio C/N lors de la phase d'anoxie, les émissions étant d'autant plus grandes que le ratio C/N est bas. Ils ont mesuré des ratios N-N₂O/N-NO₃⁻ variant de 0.06% à 43.4%. Lors de la phase de nitrification, ils ont trouvé des ratios N-N₂O/ N-NH₄⁺ de 1.5% à 1.8%.

Certaines bactéries nitrifiantes hétérotrophes comme *Alcaligenes faecalis* produisent du N₂O en proportions quelquefois importantes en conditions aérobies : 10 à 50% de l'azote dénitrifié ^(27, 31).

Selon les Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories (IPCC, 1997), les émissions de N₂O sont mieux estimées sur les installations en vraie grandeur de traitement d'eau, les installations pilotes donnant en général des estimations plus élevées. Ils proposent un ratio N-N₂O/N-influent entre 0.005% et 0.06%.

1.6 Conclusion

La production de biogaz à partir des sous-produits agricoles est un enjeu important dans la production d'énergie renouvelable.

La digestion dépasse aujourd'hui le cercle de l'exploitation agricole. Pour avoir une rentabilité économique, une installation de production de biogaz doit traiter des co-produits qui garantiront une production de biogaz et donc une recette suffisante. Toutes les installations agricoles construites en Suisse ces quinze dernières années font de la co-digestion.

Les émissions d'ammoniac dans l'atmosphère sont imputables pour 90% à l'agriculture. Or la digestion des effluents d'élevage a tendance à augmenter les émissions d'ammoniac. Aussi la réduction de ces émissions est devenue aujourd'hui une priorité.

Les différentes techniques employées consistent à :

- limiter les émissions en conservant la valeur azotée. Il s'agit de :
 - limiter physiquement la volatilisation de l'ammoniac en interposant des barrières entre le lisier et l'atmosphère lors du stockage (couvertures) ou en limitant le trajet du lisier entre le système de distribution et le sol (épandeurs spécifiques)
 - rendre l'ammoniac moins volatil ou le transformer en un composé non volatil : abaissement du pH et techniques de nitrification

Ces techniques sont utilisées couramment sur le lisier non digéré, dans le cadre de l'utilisation des engrais de ferme sur une installation agricole.

- diminuer la charge en azote de l'effluent, c'est-à-dire dégrader l'ammoniac en un composé inerte (azote moléculaire). Dans ce cas, il s'agit :
 - des techniques biologiques classiques de nitrification / dénitrification, qui présentent l'inconvénient de la complexité et du coût élevé
 - les techniques biologiques nouvelles : nitrification et dénitrification ou oxydation anaérobie de l'ammoniac, ou encore dénitrification aérobie

L'intérêt de ces derniers développements réside dans la limitation des besoins d'aération, des besoins d'addition de source carbonée ou la simplification des techniques. Par ailleurs, elles sont mieux adaptées aux contraintes spécifiques des effluents digérés. Ces nouvelles techniques sont

quelquefois déjà appliquées à grande échelle, mais pas sur des effluents d'élevage digérés. D'autres en sont encore à l'échelle du laboratoire. Il reste à transposer l'application sur un effluent de co-digestion agricole.

2. Partie expérimentale : la digestion anaérobie

On rappelle que le but de cette étude est de développer un concept intégré permettant de produire du biogaz, donc de l'énergie renouvelable à partir de sous-produits agricoles comme substrats de base, sans pénaliser le bilan environnemental par l'émission d'ammoniac. La première phase incontournable du concept est une digestion anaérobie avec production de biogaz.

Cette étape est réalisée en vraie grandeur sur l'exploitation agricole de la famille Martin à Puidoux. Ils y élèvent des bovins pour la production de viande, des porcs et des poules pondeuses. L'effectif est en moyenne de 200 bovins, 30 porcs et 250 poules, soit 80 UGB. Ils possèdent également 53 ha de culture fourragère et une boucherie de campagne dans laquelle ils vendent la viande produite.

Afin de pourvoir en partie à la consommation d'énergie nécessaire à la boucherie, M. Martin a construit une installation de production de biogaz en 2000. Cette installation, de type compact, a été fournie par la société GENESYS BIOGAS AG, autre partenaire du projet.

Le fonctionnement de cette installation de digestion a été analysé finement dans un travail de Master en Sciences Naturelles de l'Environnement, réalisé par C. Büchelin pour l'Université de Genève⁽³²⁾. Des analyses ont été réalisées sur les intrants et les sortants de l'installation afin de déterminer les bilans de matières, d'énergie et d'éléments fertilisants. Un suivi en continu du couplage chaleur-force a également été effectué. Nous disposons donc là de données fiables et récentes que nous utiliserons pour la réalisation des bilans de masse et d'énergie de l'ensemble de la filière.

2.1 Description de l'installation

2.1.1 Les substrats et co-substrats

- Engrais de ferme

Ils proviennent exclusivement des 80 UGB de l'exploitation et sont constitués par un mélange de $\frac{3}{4}$ de lisier et $\frac{1}{4}$ de fumiers pailleux.

- Contenus de panse

Ce sont les fourrages partiellement digérés contenus dans la panse des ruminants et récupérés lors de l'abattage. Elles proviennent en majorité de l'abattoir de Clarens.

- Poussières de moulin

Ce sont les résidus de grains de céréales : orge, colza et blé principalement.

- Tontes de gazon

Elles proviennent d'un golf proche et sont produites de mai à septembre.

- Déchets gras

Il s'agit d'huile comestible usagée provenant d'un restaurant pour $\frac{1}{4}$, et de glycérol brut provenant de la fabrication de bio-diesel d'Eco Energie Etoy pour $\frac{3}{4}$.

- Mélange intrant

Le lisier et les co-substrats, à l'exception des déchets gras qui sont introduits séparément, sont mélangés dans une pré-fosse de 100 m^3 d'où ils sont pompés dans le digesteur. Le fumier pailleux est introduit à l'aide d'une pompe à piston. La constitution du mélange introduit dans le digesteur est rapportée dans le tableau 2 .

Substrats et co-substrats	tonnes/an moyen
Engrais de ferme	1990
Contenus de panse	200
Poussières de moulin	115
Tonte de gazon	30
Déchets gras	20
Mélange total	2355

Tableau 2 : Composition du mélange traité en co-digestion

2.1.2 Le digesteur

Le digesteur est de type infiniment mélangé avec un stockage de biogaz dans un ballon sur le dessus du digesteur. Le volume utile est de 400 m³ et le stockage gaz de 100 m³. L'agitation est mécanique avec des brasseurs à hélices à axes coulissants. Le digesteur est alimenté deux fois par jour. Le digesteur et le bâtiment qui abrite les périphériques sont illustrés sur la figure 4.

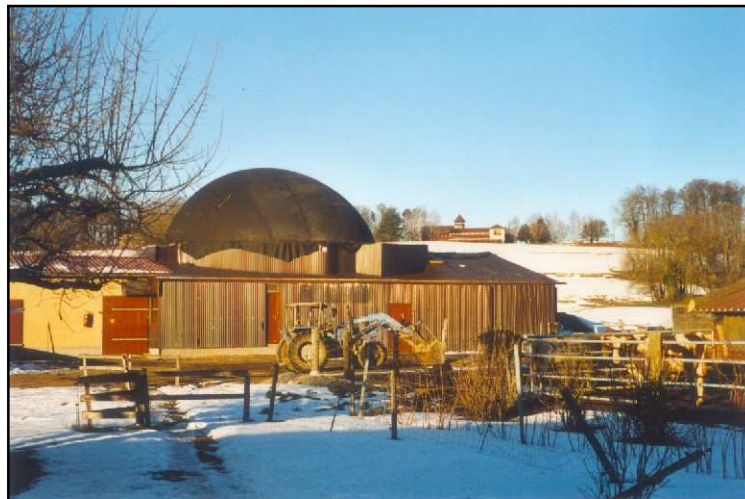


Figure 4 : Vue du digesteur et ses périphériques

2.1.3 Utilisation du biogaz

Le biogaz est utilisé pour faire de l'électricité verte et de la chaleur. Durant les 6 premières années de fonctionnement, le moteur utilisé était de type dual-fuel avec une puissance de 55 kW_{elec}. L'installation est aujourd'hui équipée d'un nouveau moteur à allumage commandé alimenté uniquement au biogaz, d'une puissance nominale de 110 kW_{elec}. L'électricité est utilisée sur site pour le fonctionnement du digesteur, mais aussi pour les besoins de l'exploitation dont un abattoir et une boucherie artisanale ; la majeure partie est injectée dans le réseau.

La chaleur est utilisée pour le chauffage de la maison d'habitation, du digesteur et les besoins de l'abattoir et de la boucherie artisanale. En été, la chaleur est moins utilisée. Cela limite le fonctionnement du co-générateur.

2.1.4 Traitement du digestat

Dans la configuration initiale, le digestat était stocké en l'état dans un stockeur de 600 m³, avant d'être épandu. Par la suite, l'exploitant a souhaité apporter une modification et a installé une presse à vis pour séparer les fractions liquide et solide :

- La partie solide est à environ 25% MS, se rapprochant d'un compost. Une partie de ce compost est valorisée hors de l'exploitation.

- La partie liquide est à environ 5% MS. Le digestat liquide est aujourd'hui épandu en totalité sur les 60 hectares de l'exploitation.

2.2 Résultats de fonctionnement

Les résultats sont repris d'une part de différents rapports du bureau EREP (¹⁴) et d'autre part du mémoire de Master (³²) qui ont été consacrés à cette installation.

Les rendements en biogaz de chaque substrat séparément, ainsi que les teneurs en azote des co-produits, sont repris de la littérature (¹⁴).

2.2.1 Caractérisation des produits entrants

La composition du mélange entrant est représenté, en % du poids brut, sur la figure 5. Le mélange a une teneur en matière sèche de 15%, ce qui est élevé pour un digesteur agricole.

Les teneurs en matière sèche, organique et azote sont reportées dans le tableau 3.

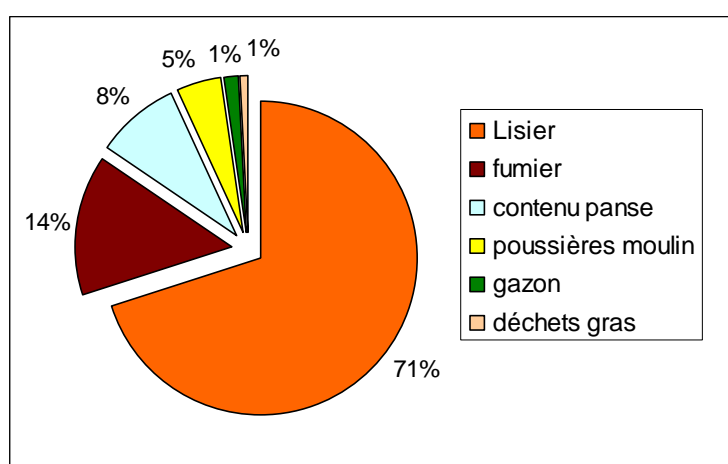


Figure 5 : Composition du mélange introduit dans le digesteur en poids brut

Substrats et co-substrats	Matière sèche [%/ PF]	Matière volatile [%/ PS]	NTK (i) [%/ PS]	dont N-am (ii)
Lisier	8.0	80.0	4.7	50%
Fumier	19.7	75.5	2.4	30%
Contenus panse	18.3	92.2	3.0	10%
Poussières moulin	86.2	94.1	0.1	0
Gazon	16.5	90.0	2.0	0
Déchets gras	95.0	95.0	0.0	0

(i) Azote total Kjehldal, (ii) Azote ammoniacal

Tableau 3 : Composition des différents constituants du mélange

Remarque : les teneurs en NTK des engrais de ferme ont été recalculées à partir des valeurs mesurées par Büchelin (³²), en considérant que l'azote ammoniacal avait été perdu en grande partie lors du séchage. On a fait pour cela l'hypothèse que la mesure de NTK – N-am = Norg. était correcte, et que la proportion de N-am/NTK était de 30% pour le fumier et 50% pour le lisier.

2.2.2 Fonctionnement du digesteur

Le temps de séjour dans le digesteur est en moyenne de 42 jours et la charge organique volumique de $2.3 \text{ kg}_{\text{MSV}}/\text{m}^3.\text{j}$. Le digesteur n'est pas encore à sa capacité maximale de traitement, qui est estimée dans la littérature ⁽³³⁾ entre 5 et $7 \text{ kg}_{\text{MSV}}/\text{m}^3.\text{j}$.

La production de biogaz s'élève à $161'000 \text{ Nm}^3/\text{an}$ environ avec une proportion de 60% de méthane en moyenne, soit un rendement en biogaz de $68 \text{ Nm}^3/\text{t}$ de mélange introduit (hors digestat recirculé).

La contribution de chaque substrat à la production de biogaz est représentée figure 6. On voit ainsi que, bien que les engrais de ferme représentent 84% des produits traités, ils interviennent pour seulement 50% dans la production de biogaz. La moitié de l'énergie est donc apportée par les co-produits.

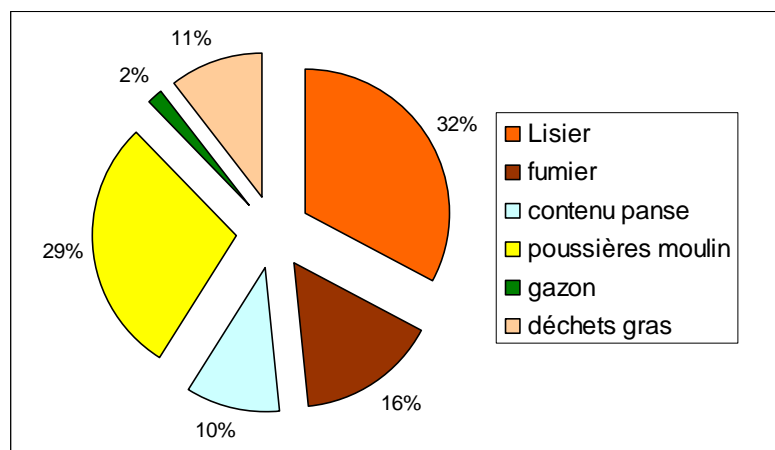


Figure 6 : Contribution de chaque substrat à la production de biogaz

2.2.3 Utilisation du biogaz

L'étude réalisée sur le CCF ⁽³²⁾ a montré que le rendement électrique effectif est de 34% et le rendement thermique de 31%. Ce rendement plutôt bas est attribué au fait que le groupe ne fonctionne pas encore à son régime nominal.

Sur la base des $161'000 \text{ Nm}^3$ de biogaz à 60% de CH_4 produits en moyenne, on aurait donc sur une base annuelle une production de :

- 328'440 kWh d'électricité
- 299'460 kWh d'énergie thermique

2.2.4 Caractérisation des produits sortants

Les matières digérées sont traitées dans une presse à vis pour séparer une partie solide, appelée compost, et une partie liquide. C'est cette dernière qui est utilisée dans l'expérimentation en laboratoire.

Les produits sortants ont été analysés quant à leur teneur en matière sèche, organique et en azote. Là encore, l'analyse de NTK et N-am ayant été réalisée sur des produits préalablement séchés, seules les teneurs en Norg. sont considérées comme exactes. Les teneurs respectives des formes de l'azote dans les produits sont recalculées sur la base des informations suivantes :

- la teneur en NTK et N-am dans le produit entrant
- la conservation de l'azote total durant la digestion
- un taux de minéralisation du Norg., défini comme la différence entre le NTK et le N-am, de 50% au cours de la digestion
- une répartition au pressage du Norg. proportionnelle à la répartition de la matière sèche (Norg. insoluble)

- une répartition au pressage du N-am proportionnelle à la répartition de la phase liquide (N-am soluble)

Le résultat obtenu est reporté dans le tableau 4 :

	Proportion	Teneur en MS [% du poids brut]	Teneur en NTK [g/kg brut]	Teneur en N-am [g/kg brut]
Digestat brut	100.0%	7.5	4.2	2.9
Compost	12.6%	25.2	6.6	2.4
Digestat liquide	87.4%	5.0	3.9	3.0

Tableau 4 : Composition des produits après digestion et pressage

3. Etude expérimentale : traitement de l'ammonium à l'échelle laboratoire

3.1 Introduction

Dans cette phase, on cherche à éliminer l'ammonium dans l'effluent digéré. Pour cela, on se propose d'utiliser les nouveaux développements de la recherche fondamentale sur le métabolisme de l'ammoniac en conditions aérobies ou aérobies limitées ou anoxiques ou anaérobies.

Dans une première étape, on a cherché à valider les processus biologiques décrits dans la littérature sur des eaux usées, voire des effluents synthétiques, pour l'application sur des effluents agricoles digérés.

En effet, les effluents agricoles digérés présentent des différences fondamentales avec les eaux usées usuelles :

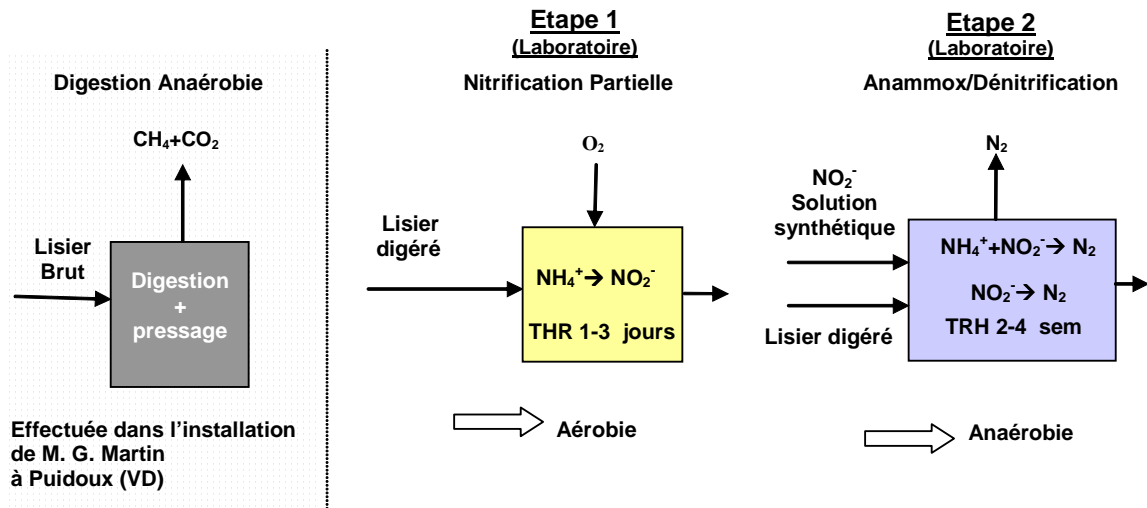
- Ils sont beaucoup plus concentrés, de l'ordre de 100 fois plus.
- Ils présentent un ratio carbone / N-am très défavorable du fait de leur passage dans un digesteur, au cours duquel la plupart du carbone soluble et facilement biodégradable a été consommé et exporté sous forme de biogaz.

On ne pouvait donc pas extrapoler directement à ce substrat particulier les résultats décrits dans la littérature sur d'autres substrats.

Deux types de processus ont été étudiés :

- La nitrification ou nitrification partielle, c'est-à-dire l'oxydation aérobie de l'ammonium limitée à la formation de nitrites (NO_2^-)
- L'oxydation anaérobie de l'ammoniac par les nitrites, connue sous le nom d'ANAMMOX

Cette première étape a été réalisée à petite échelle au Laboratoire de Biotechnologie Environnementale (LBE) de l'EPFL. L'enchaînement des différentes étapes est schématisé sur la figure 7.



3.2 Matériel et méthodes

3.2.1 Le digestat liquide

La composition moyenne du digestat liquide utilisé est reportée dans le tableau 5.

On remarque une teneur en DCO relativement élevée vis-à-vis des exigences rapportées dans la littérature concernant surtout l'activité ANAMMOX⁽³⁴⁾.

La teneur en ammonium est également à souligner. En effet, elle est importante, mais synonyme d'un fonctionnement encore normal de ce type de digestion anaérobie. Jianlong & Ning (2004)⁽³⁵⁾ affirment que des eaux résiduaires riches en azote, comme du lisier digéré et des lixiviats de décharge, sont idéales pour être traitées avec des méthodes combinées de nitrification partielle et ANAMMOX.

Matière sèche	[g/l]	30.0
Matière sèche organique	[g/l]	22.0
DCO totale	[g/l]	5.8
DCO soluble	[g/l]	3.0
Azote total	[g/l]	4.4
Ammonium	[g/l]	2.8

Tableau 5 : Composition moyenne du digestat liquide

3.2.2 Phase aérobie : « nitrification partielle » ou nitritation

- **Le réacteur**

La figure 8 schématise la méthodologie suivie pour l'évaluation du procédé de nitritation.

Un réacteur chemostat avec un volume de liquide total de 1.5 l est alimenté avec le lisier digéré prélevé à la sortie de la presse de l'installation de M. Martin. Ce digestat est centrifugé à 5000 g afin d'éliminer les matières solides les plus importantes et d'éviter le plus possible les problèmes d'obstruction. Il est ensuite, le cas échéant, dilué avec de l'eau. Le flux est descendant et l'alimentation est assurée en continu par une pompe péristaltique. L'effluent est évacué par le bas du réacteur par une autre pompe péristaltique reliée à une bascule qui permet de contrôler le niveau du liquide dans le réacteur. La température et le pH constants sont assurés et régulés en continu. L'aération est mesurée en continu, mais régulée de façon manuelle.

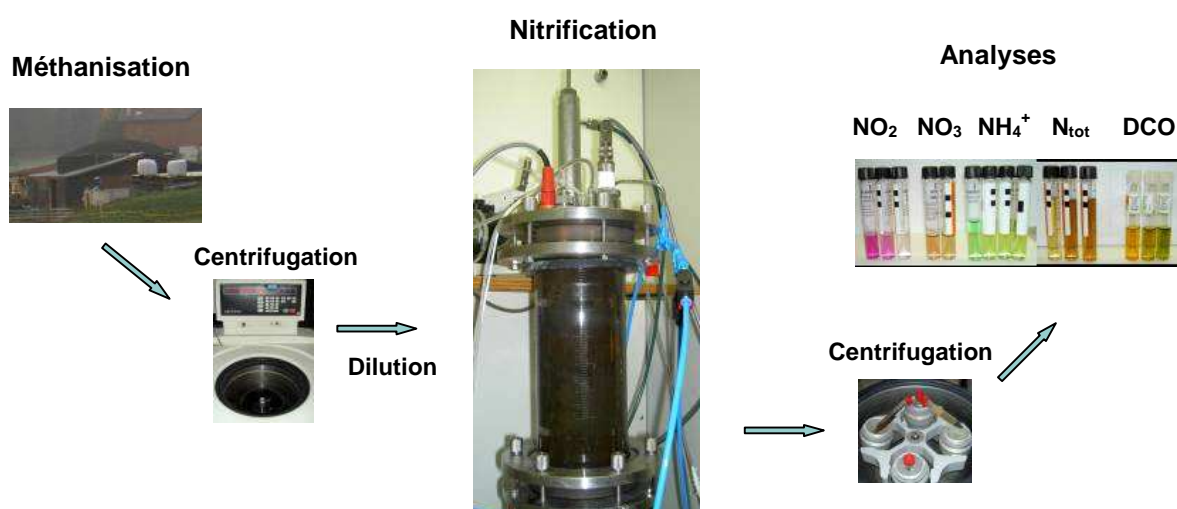


Figure 8 : Méthodologie d'expérimentation pour la nitritation

- **Les analyses**

Sur le substrat et l'effluent traité :

Des échantillons de substrat et d'effluent sont prélevés 3 à 5 fois par semaine et analysés.

Ammonium ($N-NH_4^+$), nitrites ($N-NO_2^-$), nitrates ($N-NO_3^-$) et azote total ($N_{tot.}$, comme la somme des espèces d'azote organiques et solubles) ont été mesurés par colorimétrie (*WTW Photolab S12 Spectrophotometer*). La demande chimique en oxygène (DCO) a été déterminée par spectrophotométrie (*HACH DR/2000 direct reading spectrophotometer*). Le carbone organique (COD) a été mesuré en utilisant un analyseur de carbone organique total *Shimadzu TOC-5050A*.

Sur l'effluent gazeux :

Afin de déterminer les pertes d'azote dues au stripping du NH_3 , on a fait passer dans un premier temps, l'effluent gazeux du réacteur dans une solution de HCl 0.1N puis dans un second temps dans une solution de HCl 0.01N et on a mesuré le débit de gaz (avec un débitmètre *Wohlgroth*). Le changement du pH de la solution permet de quantifier la présence de NH_3 (g) dans la sortie de gaz.

3.2.3 Phase anaérobie : dénitrification et ANAMMOX

- **Le réacteur**

Pour l'évaluation du procédé de dénitrification/ANAMMOX (voir figure 9), on a employé un chemostat de 15 l environ. Le réacteur est alimenté en flux descendant par une pompe péristaltique avec du lisier digéré, dilué et centrifugé. On introduit dans le système un substrat plus dilué par rapport à celui du réacteur aérobie à fin de favoriser le développement de l'activité ANAMMOX (procédé autotrophe) et en tenant compte qu'il s'agit d'un système de post-traitement.

- **Les analyses**

Sur le substrat et l'effluent traité :

Pour le suivi analytique de ce réacteur, la méthodologie est identique à celle du réacteur aérobie.

Sur l'effluent gazeux :

Afin d'établir le bilan de matière du procédé, on a utilisé un micro-chromatographe de gaz *Varian CP 4900* et une colonne *COX Him* avec un détecteur de conductivité thermique pour la détermination de la teneur en N_2 , CO_2 et CH_4 du gaz de sortie. Le débit de gaz a été mesuré grâce à un débit-mètre *Wohlgroth*.

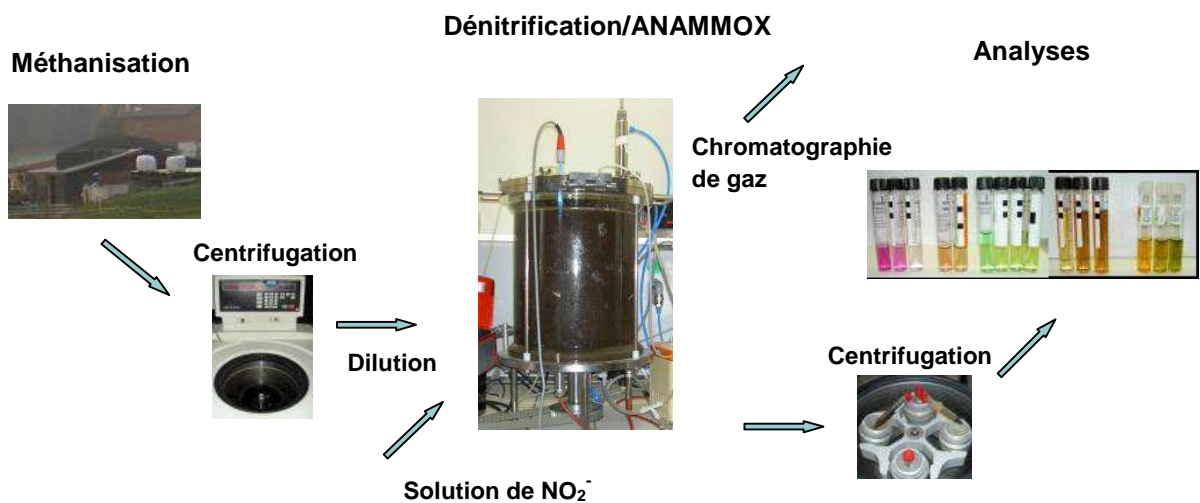


Figure 9 : Méthodologie d'expérimentation pour la dénitrification / ANAMMOX

3.3 Résultats expérimentaux

3.3.1 Réacteur aérobic

- **Ensemencement**

Le réacteur a été inoculé tout d'abord avec des boues activées provenant du bassin de nitrification de la station d'épuration des eaux (STEP) de Fribourg. Toutefois, après quelques problèmes techniques de départ, ces bactéries n'ont pas pu se développer dans le milieu. Ainsi, une seconde inoculation a eu lieu le 17 octobre 2005 avec des boues activées provenant de la STEP de Morges.

- **Démarrage et stabilisation**

Après ensemencement, le digestat est introduit dans le réacteur aérobic avec une charge très faible afin d'acclimater la biocénose de notre réacteur. Le digestat est donc fortement dilué (10 fois) et le TRH est de 10 jours. Pour des raisons pratiques (débit trop faible), l'alimentation a lieu toutes les heures pendant 3.1 minutes.

Puis la charge spécifique en ammonium est augmentée progressivement en diminuant en premier lieu le temps de résidence hydraulique. En effet, l'établissement d'un procédé de type SHARON nécessite un TRH de 1-3 jours.

La figure 10 ci-dessous montre le rendement de dégradation de l'ammonium en fonction du temps.

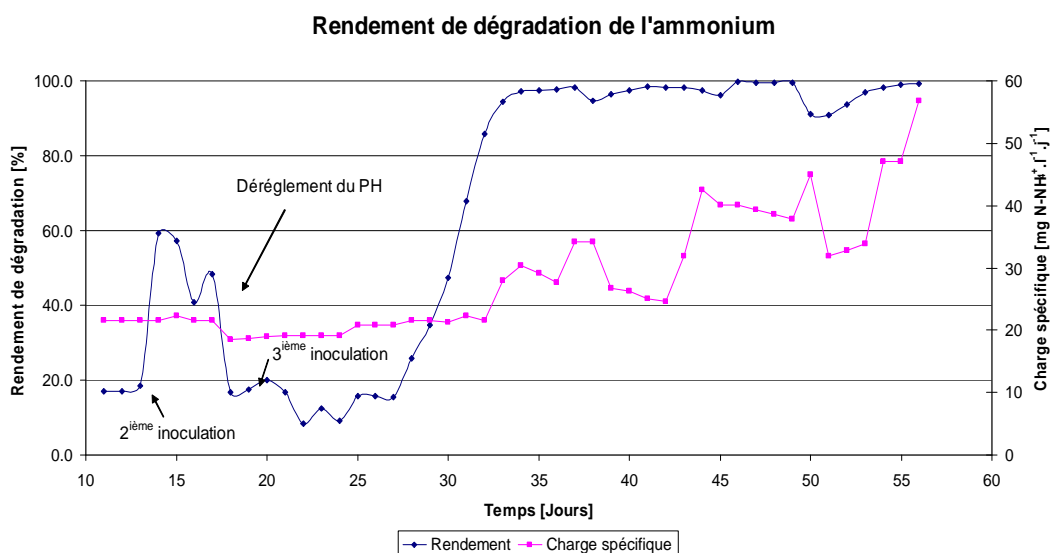


Figure 10 : Rendement de dégradation de l'ammonium et charge spécifique – période de démarrage et stabilisation

Après la deuxième inoculation, un dérèglement du système de contrôle du pH à l'intérieur du réacteur a provoqué la mort des bactéries. Le problème, immédiatement remarqué, a abouti à une réinoculation du réacteur. Après une dizaine de jours, l'activité microbienne a redémarré de manière significative. Dès lors, ce réacteur montre des résultats optimaux et très prometteurs au niveau du rendement de dégradation de l'ammonium.

La figure 11 montre les produits de transformation de l'ammonium. Dans un premier temps, les flores bactériennes se développent successivement avec une accumulation successive de nitrites, puis de nitrates. En effet, on a cherché dans un premier temps à favoriser l'activité de l'ensemble des populations bactériennes impliquées dans l'oxydation de l'ammonium pour ensuite cibler sur la production de nitrites seulement.

Produits de transformation de l'ammonium

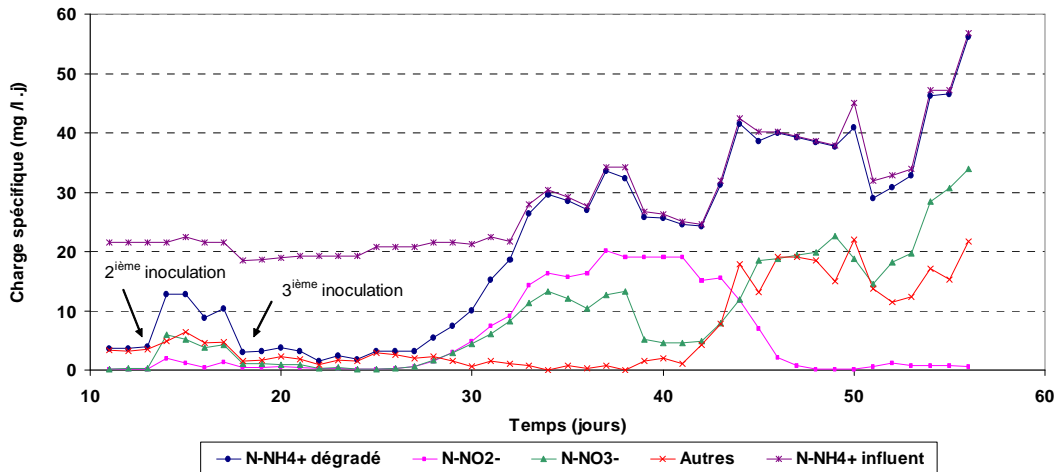


Figure 11 : Produits de transformation de l'ammonium – période de démarrage et stabilisation

• Optimisation du fonctionnement

Il s'agit dans cette étape d'optimiser les différents paramètres pour favoriser la production de nitrites au détriment des nitrates. Trois types de paramètres sont susceptibles d'intervenir : la concentration en O₂ dissous, le TRH et la température.

Au vu des résultats de la littérature, les paramètres optimaux se situent dans les fourchettes suivantes :

- La concentration en O₂ dissous est maintenue entre 1 et 3 mg/l.
- La température du réacteur est réglée un peu au-dessus de 30°C. En effet, pour une température supérieure à 30°C, les bactéries responsables de l'oxydation des nitrites (*Nitrobacter*) ont un taux de croissance remarquablement plus bas que celui des bactéries qui oxydent l'ammonium (*Nitrosomonas*)⁽³⁶⁾.
- Quant au temps de rétention, il faut atteindre un TRH suffisamment bas, de l'ordre de 1 à 3 jours pour favoriser la nitrification. Celui-ci a donc été progressivement diminué de 10 jours (initial) à 1.5-2 jours.

Parallèlement, un autre facteur primordial doit être pris en compte : la concentration en ammonium dans l'alimentation du réacteur. Pour obtenir une augmentation progressive de cette concentration, nous avons initialement dilué 10 fois le purin digéré avec de l'eau. Puis nous avons progressivement diminué cette dilution.

L'optimisation de ces paramètres a abouti à une augmentation progressive de la charge spécifique en ammonium. La figure 12 montre le rendement de dégradation de l'ammonium parallèlement à l'augmentation de charge.

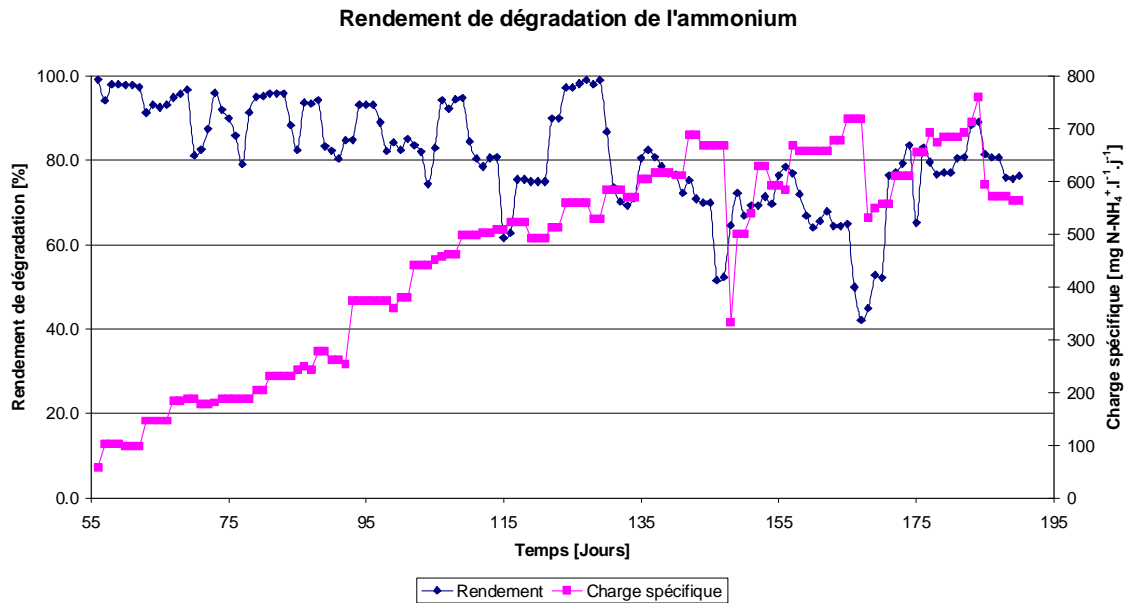


Figure 12 : Rendement de dégradation de l'ammonium et charge spécifique – période d'optimisation

Les résultats obtenus sont très satisfaisants avec des rendements de dégradation de l'ammonium supérieurs à 80% jusqu'à une charge spécifique d'environ 600 mg $\text{NH}_4^+ \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{j}$. Au-delà, on observe une diminution transitoire du rendement de dégradation entre 60% et 80%. Mais on peut voir que celui-ci remonte à sa valeur initiale après un temps d'adaptation.

La figure 13 montre la répartition des produits de transformation de l'ammonium.

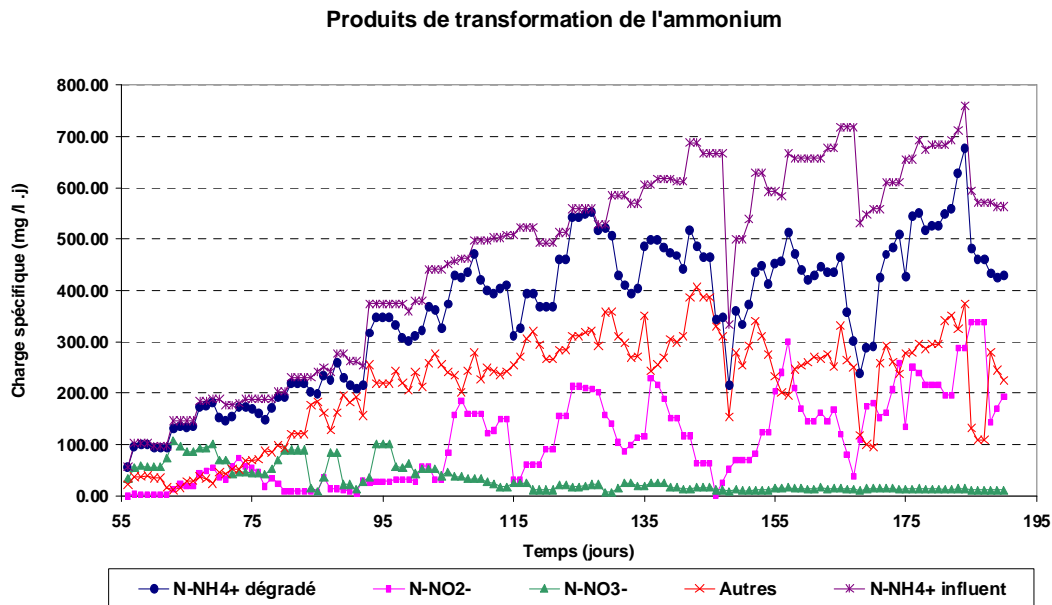


Figure 13 : Produits de transformation de l'ammonium – période d'optimisation

La production spécifique des nitrates est maintenue à des valeurs très basses, alors que la production spécifique en nitrites oscille entre 100 et 200 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{j}$. Le but recherché, nitrification aux dépens de la nitrification, est donc atteint.

On remarque toutefois que le bilan de l'azote est largement déficitaire : on doit donc intégrer la production d'une (ou plusieurs) autre(s) forme(s) de l'azote que nous appellerons pour l'instant « autres ».

Afin de vérifier qu'il ne s'agit pas d'un simple stripping de l'ammoniac, celui-ci est recherché dans les gaz de sortie par la méthode décrite chap. 3.3.2. On ne détecte pas de présence d'ammoniac gazeux.

- **Bilan de l'azote**

Les données pour ce bilan ont été choisies durant la période où le temps de rétention hydraulique était de 3-1.5 jours. Sur les figures 14 et 15, on peut visualiser ces pertes d'azote (total et soluble) que l'on n'attendait pas au début de l'expérience (les barres d'erreur représentent un niveau de confiance de 95%). Les rendements de dégradation de l'azote total et soluble atteignent près de 43% et 48% respectivement.

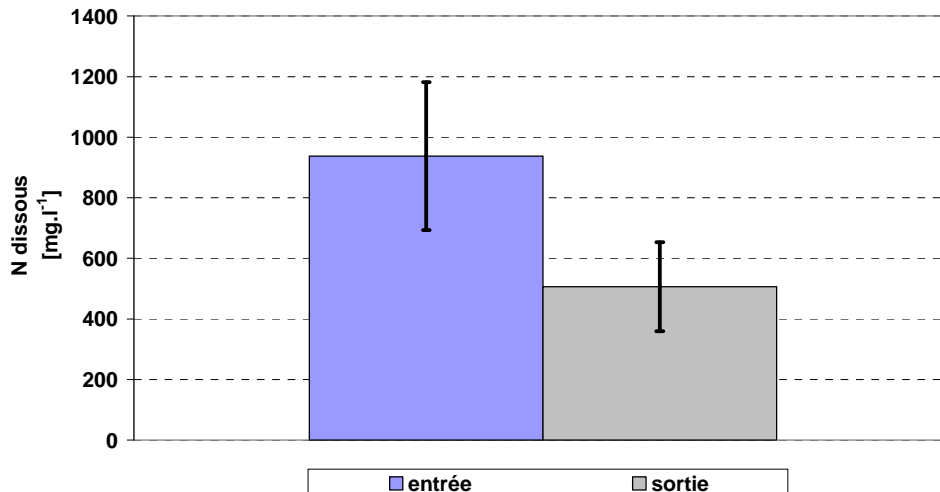


Figure 14 : Bilan entrée-sortie sur l'azote dissous

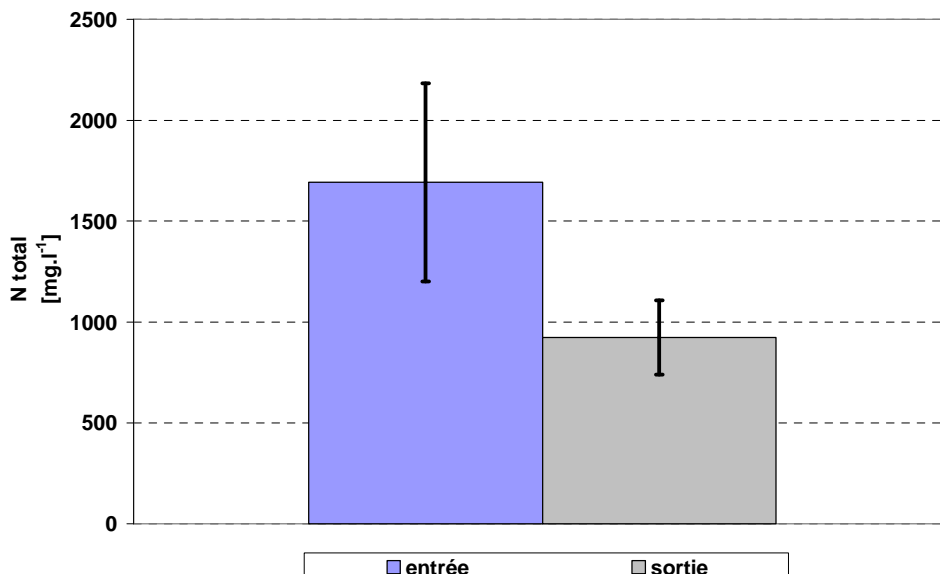


Figure 15 : Bilan entrée-sortie sur l'azote total

Ce phénomène peut s'expliquer par les hypothèses suivantes qui restent à démontrer :

1. Première hypothèse : on a une dénitrification « traditionnelle » par la présence dans le réacteur de zones anaérobies. On aurait donc simultanément deux types de bactéries dans le même réacteur :
 - des bactéries aérobies pour la nitrification
 - des bactéries anaérobies qui pourraient se situer par exemple à l'intérieur de petits flocs ou plus probablement à l'intérieur du biofilm sur la paroi du réacteur.

En effet, on a pu visualiser clairement, lors de la vidange du réacteur, l'existence d'une quantité importante de biomasse fixée sur les parois.

2. Deuxième hypothèse : on aurait en fait une dénitrification aérobie.

Ce phénomène a généré un grand intérêt parmi les chercheurs pendant la dernière décennie. En effet, il permet de réaliser une transformation de l'ammonium en azote gazeux via une seule étape de traitement. Certaines études démontrent l'existence de ce mécanisme en conditions de basse concentration d'oxygène et une haute teneur en matière organique biodégradable. Van Niel et al (1995) ⁽²⁸⁾ suggèrent que les bactéries dénitrifiantes aérobies, qui sont hétérotrophes, ont un avantage compétitif par rapport aux nitrifiantes aérobies lorsque la concentration d'oxygène dissous est basse. Ils ont testé cette hypothèse avec une culture mixte chemostat de *T. pantotropha* avec un ratio C/N de 2.

Il ne nous a pas été possible, compte tenu des moyens disponibles lors de cette première étape, d'identifier formellement la nature de ce(s) composé(s) azoté(s). Toutefois, d'après la littérature, le produit d'une dénitrification anaérobie ou aérobie est quasi systématiquement l'azote gazeux N_2 .

• Conclusion

L'oxydation de l'ammonium au stade de nitrites, ou nitrification, a été obtenue sur le réacteur aérobie après optimisation des paramètres de fonctionnement. Le rendement de transformation de l'ammonium atteint 80%. Cependant, le produit majeur final de la transformation de l'ammonium n'est pas le nitrite, mais vraisemblablement l'azote gazeux. En effet, il semble que les nitrites (ou les nitrates) soient eux-même transformés au fur et à mesure de leur apparition par un processus de dénitrification (ou de dénitrification). Aujourd'hui, on ne peut pas dire si cette transformation implique un processus de dénitrification classique anaérobie, localisée dans un biofilm par exemple, ou un processus de dénitrification aérobie. Ce dernier phénomène avait été démontré par plusieurs auteurs, mais jamais appliqué pour le traitement d'un effluent.

Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau 6.

Paramètres		Conditions initiales	Conditions actuelles
Température	[°C]	26.00	30.5
TRH	[jour]	9.75	2.0
Facteur de dilution	[-]	10.00	2.0
O ₂ dissous	[mg/l]	2.60	2.5
pH	[-]	7.30	7.3
Alcalinité entrée	[g/l CaCO ₃]	1.20	5.1
Alcalinité sortie	[g/l CaCO ₃]	0.10	0.1
DCO (sol.) entrée	[g/l]	2.00	12.8
DCO (sol.) sortie	[g/l]	1.20	5.6
N (sol.) entrée	[mg _N /l]	340.00	1320.0
N (sol.) sortie	[mg _N /l]	300.00	760.0
N-NH ₄ ⁺ entrée	[mg _N /l]	220.00	1217.0
N-NH ₄ ⁺ sortie	[mg _N /l]	94.00	133.0
N-NO ₂ ⁻ sortie	[mg _N /l]	12.40	462.0
N-NO ₃ ⁻ sortie	[mg _N /l]	50.60	23.0

Tableau 6 : Récapitulatif des résultats de l'optimisation de l'étape de nitrification

Dans tous les cas, on peut pressentir l'énorme avantage qu'aurait à terme une application de ce traitement au lisier : il suffirait en effet d'une seule étape en aval du digesteur pour réaliser la transformation biologique de l'ammonium en azote gazeux, sans avoir même besoin de modifier, ni le digesteur, ni son fonctionnement.

3.3.2 Réacteur anaérobie

Cette étape avait pour but de développer une activité pour transformer les nitrites en azote gazeux (N_2). Notons que cette étape a été réalisée parallèlement à la précédente.

Deux processus biologiques sont possibles :

- La dénitrification « traditionnelle » qui transforme les nitrites en utilisant du carbone soluble
- L'oxydation anaérobie de l'ammonium (ANAMMOX), qui utilise les nitrites pour oxyder l'ammonium

On rappelle que l'idée de départ est à terme d'intégrer cette étape anaérobie à l'intérieur du digesteur. Les deux réactions qui précèdent peuvent a priori se dérouler dans un digesteur. Cependant, on recherchera les conditions de fonctionnement qui permettraient de favoriser la réaction ANAMMOX.

- **Ensemencement**

Ce réacteur a été inoculé en novembre 2005 avec des boues provenant de l'installation de traitement des lixiviats de la décharge de Kölliken dans le but d'optimiser le développement, bien que très lent, des bactéries ANAMMOX. Le choix de ces boues a été effectué en se basant sur des études menées par l'EAWAG révélant la présence de bactéries ANAMMOX dans ces dernières ⁽³⁷⁾.

- **Démarrage et stabilisation**

Le même principe de démarrage progressif que sur le réacteur aérobie a été appliqué. Ainsi, après l'ensemencement, le digestat additionné de nitrites est introduit dans le réacteur avec une charge très faible afin d'acclimater la biocénose de notre réacteur. Le digestat est donc fortement dilué (20 fois) et le TRH est de 21 jours. Par son volume plus important, ce réacteur peut être alimenté en continu.

Durant la période de stabilisation, la charge en ammonium est augmentée progressivement par augmentation de la concentration de digestat, en maintenant le temps de résidence hydraulique constant.

La figure 16 montre le rendement de dégradation de l'ammonium en fonction du temps :

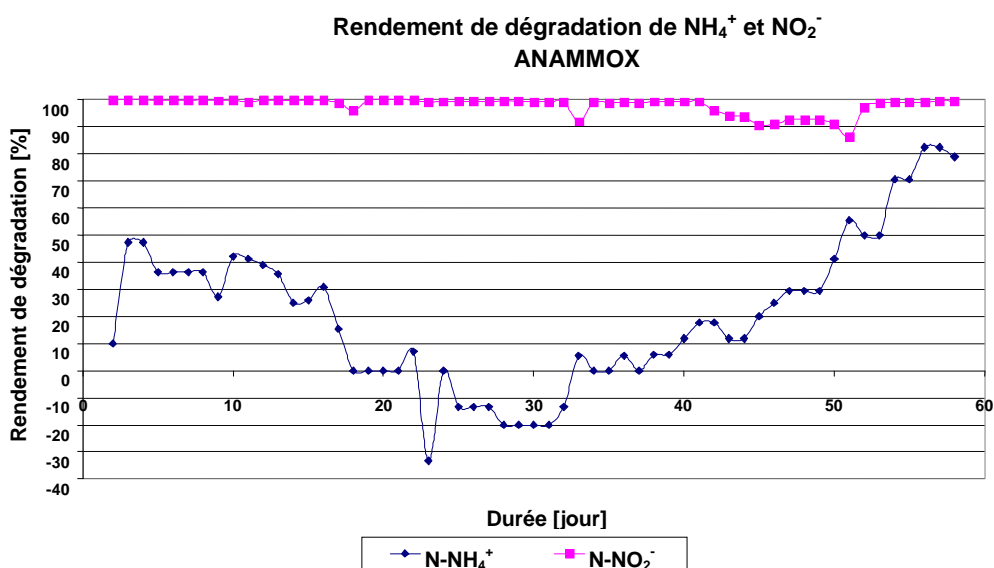


Figure 16 : Rendement de dégradation de l'ammonium et des nitrites – période de démarrage

Durant le premier mois après l'inoculation, des rendements positifs en dégradation d'ammonium, liés à la mise en équilibre du système, sont observés. Après cette courte période, les rendements négatifs observés peuvent être expliqués par les deux hypothèses suivantes :

- Hydrolyse de la matière organique résiduelle présente dans le digestat introduit
- Réduction des nitrites introduits dans l'alimentation.

Ensuite, durant le deuxième mois, l'activité des bactéries ANAMMOX démarre de manière significative et très satisfaisante, avec un rendement de dégradation de l'ammonium atteignant 80%.

La figure 16 montre également un rendement de dégradation de près de 100% des nitrites introduits et cela dès le début. Ceci est dû vraisemblablement à une dénitrification « standard » utilisant le carbone résiduel dissous dans le digestat.

Cette observation soulève un élément important : le phénomène de compétitivité entre les bactéries ANAMMOX et les bactéries dénitrifiantes. Dong & Tollner (2003) ⁽³⁸⁾ suggèrent que, dans des conditions de haute concentration de matière organique, l'oxydation anaérobie de l'ammonium est moins compétitive que la dénitrification classique. Ils affirment aussi que le procédé de nitrification suivi de dénitrification classique offre un support plus robuste vis-à-vis de l'élimination de l'azote des effluents agricoles.

- **Optimisation du fonctionnement**

Durant cette phase d'optimisation, les concentrations en ammonium et en nitrites seront augmentées dans le but de se rapprocher des conditions réelles.

Durant le premier mois de cette phase, les résultats sont très satisfaisants avec des rendements de dégradation supérieurs à 70% pour l'ammonium et de près de 100% pour les nitrites. Par la suite, des problèmes techniques, comme tout d'abord une coupure de courant de plus de 12 heures (maintenance du système électrique du département), puis deux pannes du moteur d'agitation du réacteur, ont causé une déstabilisation du milieu. En effet, dans le cas de la panne de courant, la température et le pH n'étaient plus régulés. Les conséquences ont été accentuées par l'arrêt successif du moteur d'agitation.

Les résultats sont représentés sur la figure 17.

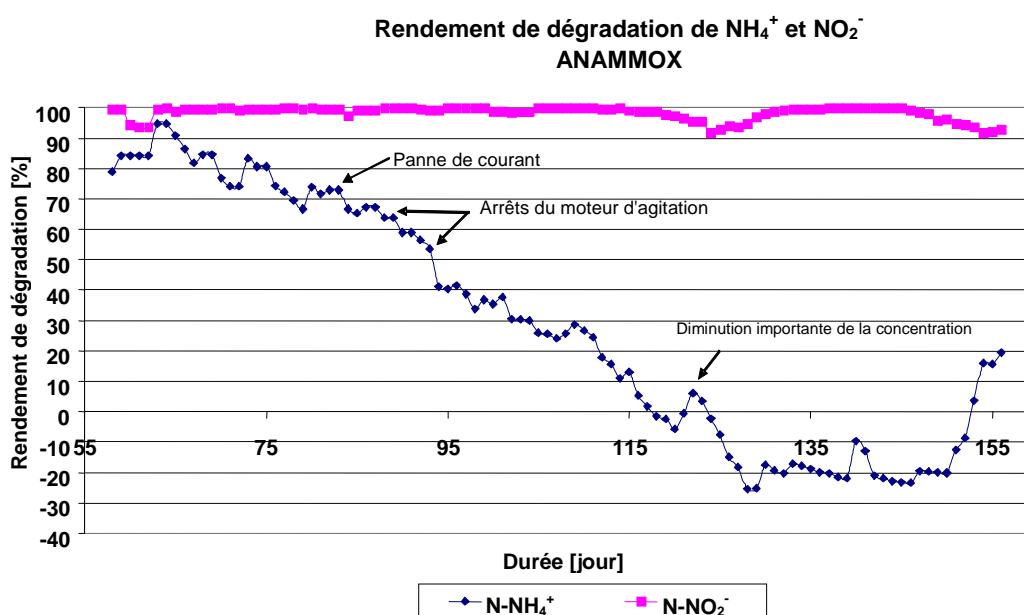


Figure 17 : Rendement de dégradation de l'ammonium et des nitrites – période d'optimisation

On observe une chute irrémédiable de l'activité ANAMMOX. On confirme ainsi la très grande sensibilité de ce type de bactéries due à leur très faible vitesse de croissance et aux exigences élevées du milieu de croissance.

En revanche, la dégradation des nitrites est toujours proche de 100%. Dans notre cas, étant donné que le réacteur est alimenté avec du lisier déjà digéré, on peut dès lors affirmer que la quantité de carbone résiduel (après digestion) est suffisante pour obtenir une dénitrification complète, sans apport exogène.

Le gaz sortant de ce réacteur est quantifié et analysé par chromatographie gazeuse. Les résultats moyennés sur les 30 derniers jours sont illustrés dans le tableau 7.

Volume	[ml]	307.4
N ₂	[%]	90.5
CH ₄	[%]	4.0
CO ₂	[%]	9.5

Tableau 7 : Analyse du gaz sortant

On observe une faible production de biogaz résiduel et une grande quantité d'azote gazeux provenant de la dénitrification.

- **Conclusion**

Après plusieurs semaines d'acclimatation, on a pu observer une activité de dégradation conjointe de l'ammonium et des nitrites qui laisse penser qu'une activité ANAMMOX s'est effectivement développée. Cependant, l'apparition de pannes successives a perturbé cet équilibre fragile et l'activité ANAMMOX n'a pas pu être récupérée après plusieurs mois de fonctionnement. On peut en conclure qu'en l'état actuel ce processus n'est pas le mieux adapté à une application agricole où les procédés se doivent d'être robustes.

En revanche, la transformation des nitrites en azote gazeux a été quasi-totale, montrant que ce processus peut se dérouler grâce au carbone soluble résiduel présent dans le lisier après digestion, et de façon pérenne.

3.4 Conclusion de la première phase d'expérimentation

L'objectif de cette première phase était de démontrer que les processus biologiques nouvellement mis en évidence ces dix dernières années pour la dégradation de l'ammonium étaient compatibles avec une application sur du lisier digéré. L'idée motrice de ce travail était le couplage de ces processus avec la digestion anaérobie.

Une étape aérobie est dans tous les cas et dans un premier temps nécessaire pour l'oxydation de tout ou partie de l'ammonium. On a pu démontrer que, moyennant une optimisation des paramètres de fonctionnement, l'oxydation de l'ammonium en nitrites est techniquement faisable à partir d'un lisier digéré. Les résultats obtenus sont très satisfaisants avec un rendement de dégradation de l'ammonium atteignant 80%.

Un résultat inattendu a été observé au cours de cette étude : la transformation de l'ammonium dans le réacteur aérobie ne s'arrête pas aux nitrites malgré le temps de séjour très court appliqué, mais continue jusqu'à la dénitrification en un composé gazeux, vraisemblablement du N₂.

Deux hypothèses, qui restent à confirmer, peuvent expliquer ce phénomène :

- L'existence d'une dénitrification / dénitrification anaérobie dans une zone localisée du réacteur, vraisemblablement un biofilm
- Le développement d'une flore dénitrifiante aérobie

Dans tous les cas, on voit l'énorme avantage à développer un tel procédé : le traitement biologique de l'ammonium pourrait se faire en une seule étape, dans un réacteur indépendant du digesteur sans modification, ni du design, ni du fonctionnement de celui-ci.

La deuxième étape de ce travail était destinée à démontrer la faisabilité de la dénitrification (transformation des nitrites en N₂) et de l'oxydation anaérobie de l'ammonium (ANAMMOX) sur un lisier digéré. On a démontré que la dénitrification en conditions anaérobies peut être totale avec le carbone soluble restant après la digestion, sans ajout de carbone extérieur. En revanche, on n'a pas pu établir durablement une activité ANAMMOX. La fragilité du système a été mise en évidence après plusieurs pannes successives, suggérant qu'une application agricole serait délicate.

A partir de l'ensemble de ces résultats, la deuxième partie du projet a été focalisée sur le traitement de l'ammonium du lisier digéré dans un seul réacteur aérobie (peut-être localement anaérobie).

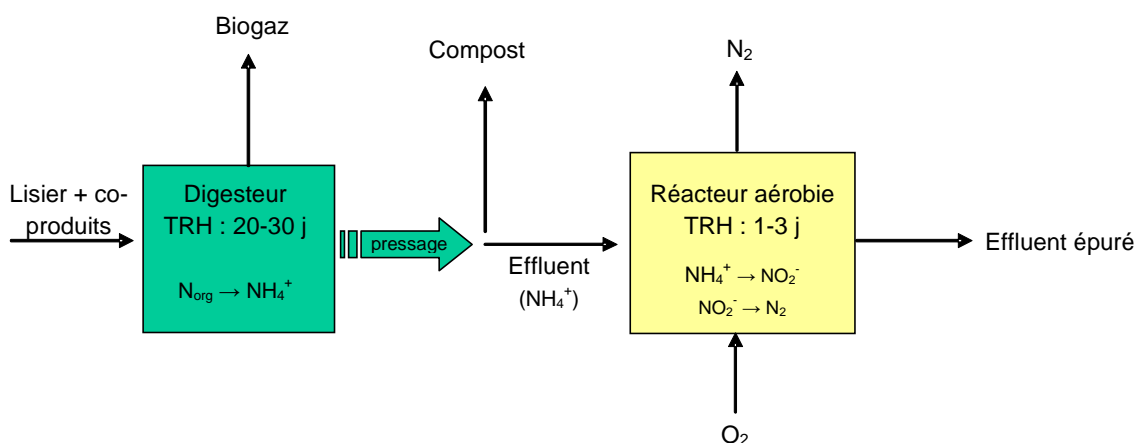
4. Etude expérimentale : traitement de l'ammonium à l'échelle pilote

4.1 Introduction

Compte tenu des résultats obtenus dans la première partie de l'étude, cette deuxième partie a été ciblée sur le développement d'un réacteur aérobique unique pour l'épuration de l'ammonium dans le digestat.

Le concept global est illustré dans la figure 18 :

Figure 18 : Concept testé pendant la deuxième phase du projet



Dans cette deuxième partie, le digestat est toujours issu du digesteur agricole en vraie grandeur de M. Martin. Le matériel mis en place au Laboratoire de Biotechnologie Environnementale de l'EPFL pour l'épuration de l'ammonium est un réacteur de 12 litres utiles permettant de traiter jusqu'à 10 litres par jour d'effluent digéré.

Les deux hypothèses émises à la conclusion de la première partie seront testées lors de cette deuxième partie, à savoir :

- Une nitrification et une dénitrification aérobies réalisées par des bactéries aérobies. Dans ce cas, leur activité doit être favorisée par un fonctionnement en biomasse libre où la diffusion de l'oxygène est optimale.
- Une nitrification aérobie et une dénitrification anaérobie dans le même réacteur, cette dernière étant réalisée à l'intérieur d'un biofilm dans lequel des conditions anoxiques existent localement.

Afin de tester l'hypothèse de dénitrification dans un biofilm, un support spécifique sera ajouté dans le réacteur.

4.2 Matériel et méthodes

4.2.1 Préparation de l'effluent pour l'expérimentation

Le digestat liquide est prélevé chez M. Martin dans des fûts de 60 litres et ramené à l'EPFL.

Compte tenu des quantités à traiter, nous avons dû mettre en place une machine industrielle destinée à filtrer ce digestat avant l'alimentation continue du réacteur.

L'équipement utilisé est un tamis vibrant circulaire SWECO de type LS 18 S33333, équipé d'une grille à maille de 1 mm. Ceci permet de séparer les éléments de grande dimension, peu nombreux mais susceptibles de boucher les tuyauteries.

Après filtration, le digestat est stocké à 4°C en chambre froide.

4.2.2 Le réacteur

Le réacteur est une cuve cylindrique en verre avec un volume utile de 12 litres. Il est muni d'un dispositif d'agitation mécanique avec une hélice située au quart inférieur de la cuve. Afin d'éviter les colmatages, l'aération est assurée par un tuyau de 5 mm de diamètre qui délivre de l'air comprimé juste en dessous de l'hélice. L'air est ainsi distribué dans le réacteur grâce au système d'agitation. Une vue du réacteur est présentée sur la figure 19 :



Figure 19 : Vue du réacteur pilote vide avec son système de mélange et d'aération

L'oxygène dissous, le pH et la température sont mesurés grâce à des sondes en place dans le réacteur. Le pH est régulé à 7.50 par addition de soude ou d'acide chlorhydrique.

Le dispositif expérimental complet est illustré sur le figure 20 :



Figure 20 : Dispositif expérimental utilisé pendant la deuxième phase du projet

4.2.3 Les analyses

- **Sur le substrat et l'effluent traité**

Des échantillons de substrat et d'effluent sont prélevés 3-5 fois par semaine et analysés. Le suivi analytique est visualisé dans le tableau 8 (voir chapitre 4.3.2).

Ammonium (N-NH_4^+), nitrites (N-NO_2^-), nitrates (N-NO_3^-) et azote total (N_{tot} , comme la somme des espèces d'azote organiques et solubles) ont été mesurés par colorimétrie (*WTW Photolab S12 Spectrophotometer*).

La demande chimique en oxygène (DCO) a été déterminée par spectrophotométrie (*HACH DR/2000 direct reading spectrophotometer*).

Le carbone organique (COD) a été mesuré en utilisant un analyseur de carbone organique total *Shimadzu TOC-5050A*.

- **Sur l'effluent gazeux**

La production de N_2O est mesurée dans l'effluent gazeux, par injection dans un chromatographe en phase gazeuse HP 5890 série II, équipé d'un détecteur ECD (Electron Capture Detector). Le gaz vecteur est l'hélium et la température de la colonne est de 40°C .

4.2.4 Le support pour le biofilm

Un support de type Kaldnes® a été choisi sur la base de l'expérience du Laboratoire de Biotechnologie Environnementale de l'EPFL, notre partenaire dans ce projet. Le support a été mis à disposition gratuitement par Holinger SA à Lausanne.

Ce support est constitué de « rondelles » de polyéthylène avec des diverticules vers l'intérieur permettant aux bactéries de se fixer malgré des forces de cisaillement importantes s'exerçant à l'extérieur du fait d'une aération et/ou d'une agitation intensives.

Il est utilisé notamment dans le cadre de la réhabilitation de stations d'épuration urbaines, pour retenir la biomasse dans les bassins biologiques et permettre de traiter des charges élevées sans augmenter le volume des bassins.

De plus, ce support est de petite dimension, de l'ordre de 1 cm, ce qui permet une utilisation aisée dans notre pilote. La surface spécifique est de $500 \text{ m}^2/\text{m}^3$ (39). Une vue du support se trouve sur la figure 21.



Figure 21 : Le support Kaldnes®

4.3 Résultats expérimentaux

4.3.1 Expérimentation en biomasse libre

- **Démarrage du réacteur**

Afin d'assurer la transposition des résultats en vraie grandeur, on a choisi de redémarrer le réacteur avec un ensemencement pris à la station d'épuration de Morges.

Le digestat est introduit dans le réacteur avec l'ensemencement. L'aération est mise en route et le réacteur laissé en mode batch jusqu'à ce que l'ammonium soit oxydé.

Le démarrage est illustré sur la figure 22. Il faut 10 jours pour que la totalité de l'ammonium soit oxydé. On commence alors l'alimentation continue du réacteur avec une faible charge.

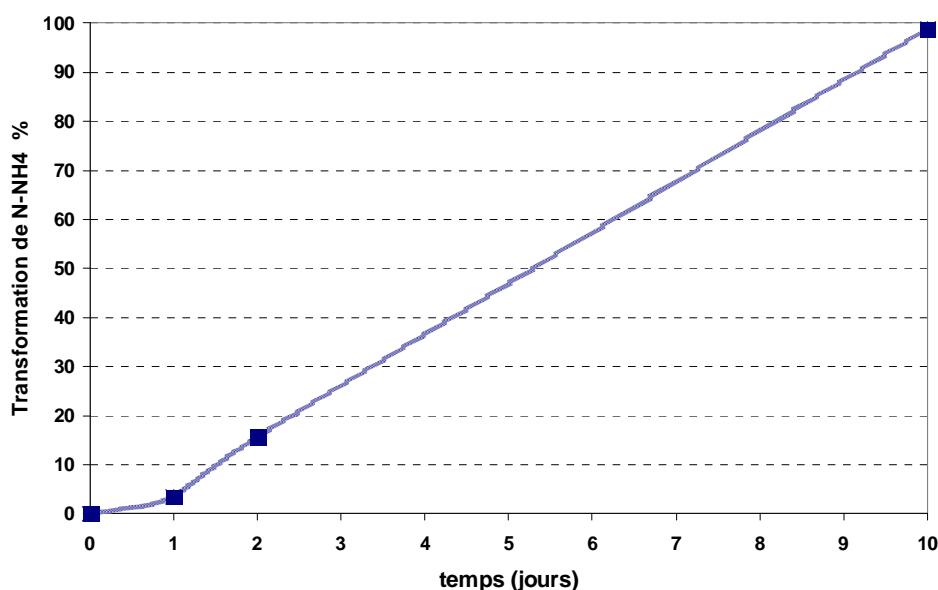


Figure 22 : Démarrage du réacteur en mode batch

- **Diminution du temps de rétention hydraulique (TRH)**

Le digestat est dilué 4 fois à l'eau, avec une concentration finale en ammonium de 500 mg/l environ. La température dans le réacteur est de 30°C. L'aération est fixée à 1000 ml/mn d'air et la concentration en oxygène dissous (OD) mesurée varie de 0.8 à 1.5 mg/l.

Le TRH est fixé dans un premier temps à 72 h, puis diminué à 48 et 36 h. Dans les conditions de l'expérience, ceci revient à augmenter la charge spécifique en ammonium ($CS\ N-NH_4^+$) de 188 à 328 mg/l.j.

Les résultats obtenus sont illustrés sur la figure 23 a) et b).

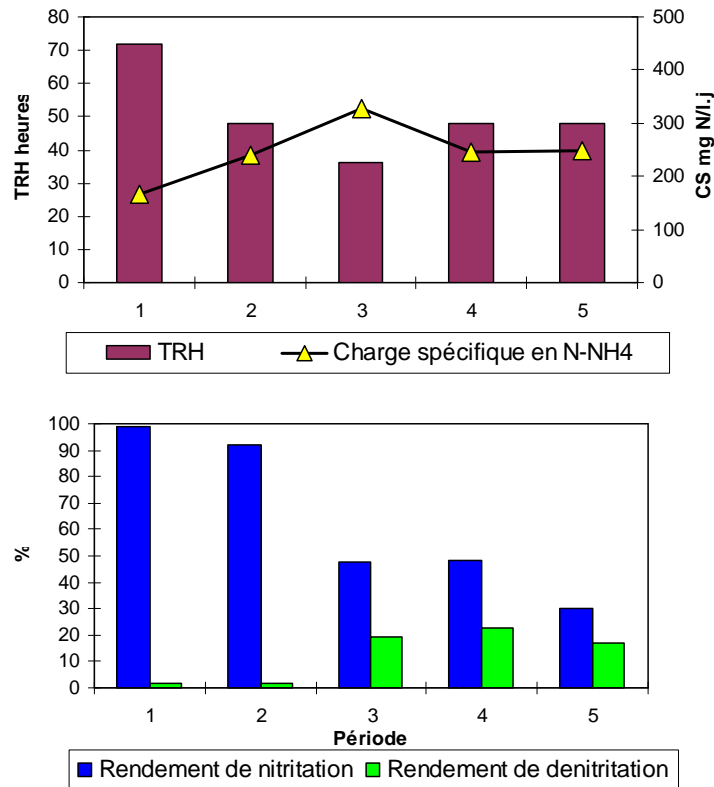


Figure 23 : a) Evolution du temps de rétention hydraulique et de la charge spécifique en ammonium ; débit d'air = 100 ml/mn ; $[N-NH_4^+]_{in} = 490$ mg/l b) Rendements de conversion de l'azote

On observe que le rendement de transformation de l'ammonium diminue de 99% à 48% pour un TRH de 36 h. On en déduit que ce TRH est trop court et que la biomasse est lessivée. On retiendra donc pour la suite un TRH de 48 h.

Il est intéressant de remarquer que le processus de dénitrification se met en place puisque les pertes en N soluble atteignent 20% durant cette période.

- **Optimisation de l'aération**

Le TRH est stabilisé à 48 h. Malgré cela, on observe une diminution progressive du rendement de transformation de l'ammonium jusqu'à 30%. Ceci suggère que l'aération n'est pas satisfaisante.

Une augmentation du débit d'aération à 12000 ml/min et par litre a pour effet immédiat la reprise de l'oxydation et l'augmentation du rendement de transformation de l'ammonium à plus de 90%. On diminue alors le débit d'aération jusqu'à observer une légère baisse du rendement de transformation, signifiant que la limite de l'aération est atteinte.

Les résultats sont illustrés sur la figure 24 a) et b).

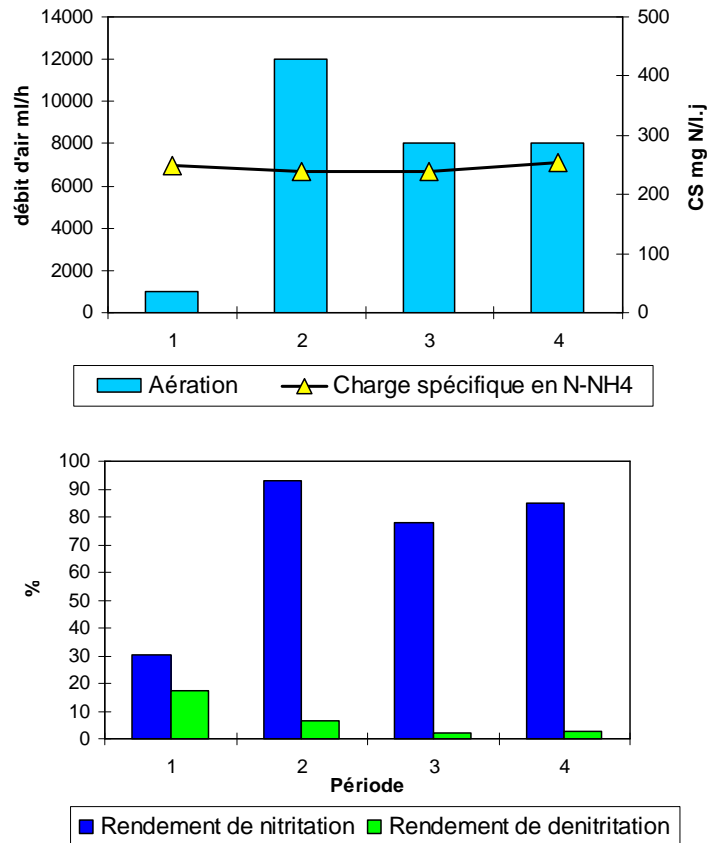


Figure 24 : a) Evolution de l'aération et de la charge spécifique en ammonium ; TRH = 48 h ; $[N-NH_4^+]_{in} = 490 \text{ mg/l}$ b) Rendements de conversion de l'azote

On stabilise pour la suite le débit d'aération à 8000 ml/mn. La concentration mesurée en O_2 dissous est de 3.8 mg/l. Le rendement de transformation de l'ammonium se stabilise à 80 – 85%. Mais on n'observe pas de processus de dénitrification / dénitrification.

- **Conclusion de l'expérience en biomasse libre**

Le but de cette première partie de l'expérimentation était de vérifier si les pertes en azote dans un réacteur aérobique pouvaient être reproduites à plus grande échelle avec de la biomasse libre.

On a constaté que, si on a pu reproduire le processus de nitrification, on n'a pas pu obtenir de dénitrification.

On peut donc en conclure que la dénitrification n'est pas réalisée par de la biomasse libre, ce qui suggère que des deux hypothèses formulées à la fin de la première partie de l'expérimentation, on retient celle d'une dénitrification par de la biomasse fixée.

La suite de l'expérimentation va nous permettre de le confirmer.

4.3.2 Expérimentation avec biomasse fixée

- **Démarrage du réacteur**

Pour cette deuxième étape de l'expérimentation en pilote, on va ajouter dans le bioréacteur un support permettant le développement d'un biofilm. Le support choisi est de type KALDNES (voir figure 21). Il occupe un volume apparent de 50% du volume utile du réacteur et un volume réel de 1.08 litre.

Après l'addition du support, le bioréacteur est laissé en mode batch durant 10 jours pour favoriser le développement du biofilm.

On recommence l'alimentation du bioréacteur avec une faible charge.

- **Diminution du TRH**

L'aération est maintenue à 8000 mml/mn. Le digestat est toujours dilué 4 fois à l'eau du robinet. Le TRH est alors abaissé de 93 à 50 heures. Dans les conditions de l'expérience, cela correspond à une charge spécifique en ammonium qui augmente de 88 à 200 mg/l.j.

Les résultats sont représentés sur la figure 25 a) et b).

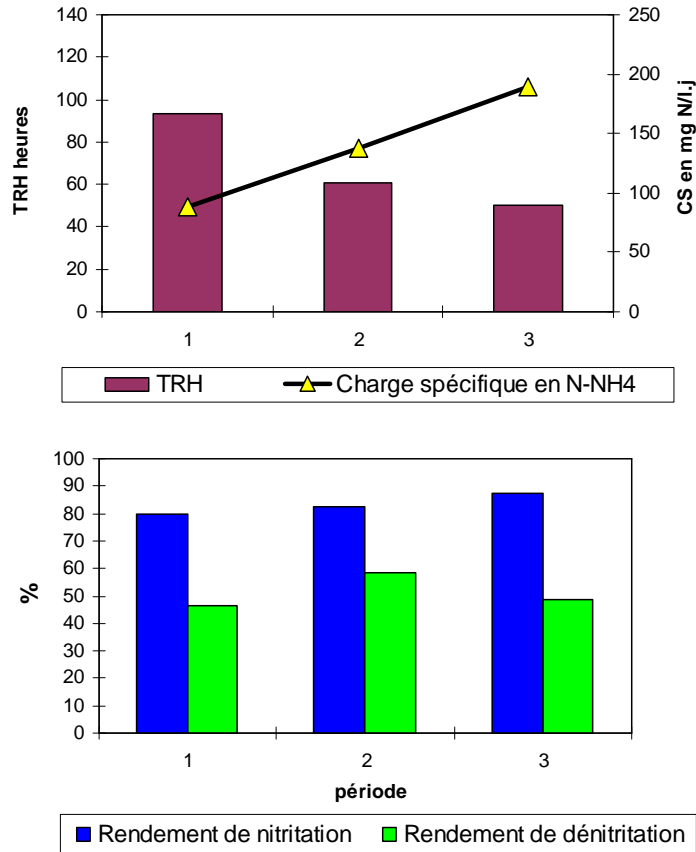


Figure 25 : a) Evolution du temps de rétention hydraulique et de la charge spécifique en ammonium ; $[N-NH_4^+]_{in} = 400 \text{ mg/l}$ b) Rendements de nitrification et dénitrification

Le rendement de transformation de l'ammonium augmente sensiblement de 80% à 87%. Le processus de dénitrification s'établit immédiatement et se monte à 60 – 70% de l'azote transformé, soit 50 à 60% de l'azote introduit.

- **Augmentation de la concentration de l'influent**

On stabilise le TRH à 50 heures et la concentration de l'influent est progressivement augmentée, en diminuant la dilution par l'eau du robinet. La concentration en azote ammoniacal dans l'alimentation du réacteur augmente ainsi de 430 à 920 mg/l. Dans les conditions de l'expérience, cela correspond à une augmentation de la CS $N-NH_4^+$ de 200 à 400 mg/l.j

Les résultats sont représentés sur la figure 26 a) et b).

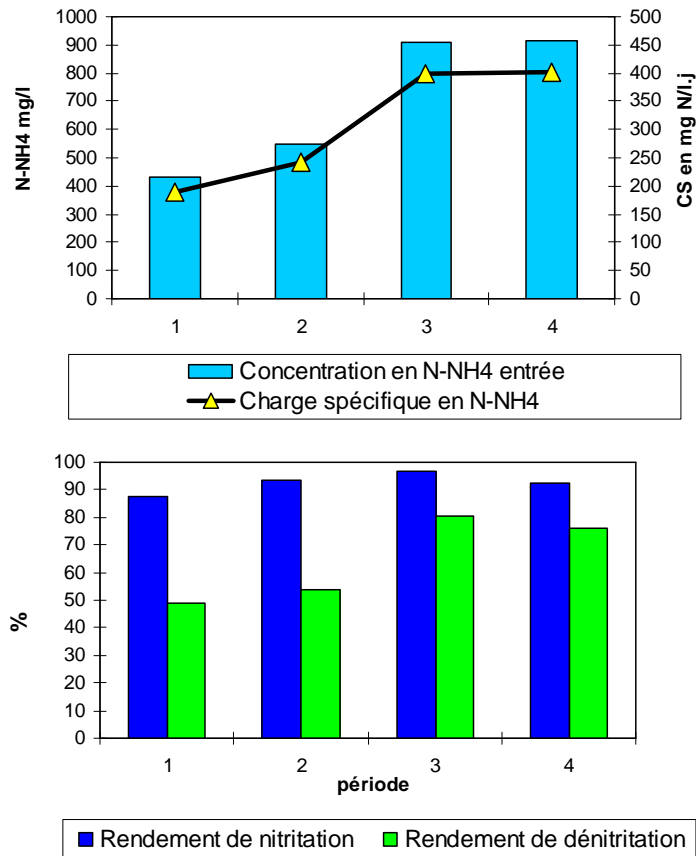


Figure 26 : a) Evolution de la concentration en $N-NH_4^+$ à l'entrée et de la charge spécifique en ammonium ; TRH = 50 h b) Evolution des rendements de conversion de l'azote

Le rendement de transformation de l'ammonium se stabilise autour de 90%. La dénitrification / dénitrification augmente et s'établit à 83% de l'azote transformé, soit 75 à 80% de l'azote introduit. On remarque que l'augmentation de la concentration en ammonium dans l'influent n'a pas d'effet négatif sur les performances du traitement : on observe au contraire une amélioration du rendement de dénitrification / dénitrification qui pourrait être attribuée à des conditions locales d'anoxie plus importantes.

Les concentrations en azote résiduel dans l'effluent sont reportées dans le tableau 8.

	$N-NH_4^+$ [mg/l]	$N-NO_3^-$ [mg/l]	$N-NO_2^-$ [mg/l]
Influent	950	0	0
Effluent	66	93	57

Tableau 8 : Concentration en azote dans l'influent et l'effluent durant la dernière période d'expérimentation

- **Conclusion de l'expérimentation en biomasse fixée**

L'addition du support a eu pour un effet la reprise rapide de l'activité de dénitrification. Ceci montre donc que cette activité est bien liée à une biomasse fixée.

On a cherché ici à obtenir des rendements maximum. En fin d'expérimentation, pour un temps de rétention de 2 jours et une concentration en ammonium dans l'alimentation de près de 1 g/l, le rendement de dégradation de l'ammonium est de 95% avec plus de 80% de l'azote transformé en N_2 .

On peut visualiser le développement du biofilm en fin d'expérimentation sur la figure 27.



Figure 27 : Biofilm sur le support Kaldnes ® en fin d'expérimentation

4.3.3. Mesures du N₂O

Le N₂O a été mesuré dans différentes conditions de fonctionnement, la littérature ayant montré une forte corrélation entre les deux. Le ratio carbone / azote, un des paramètres de fonctionnement le plus influant sur l'émission de N₂O, est cependant resté constant dans tous les cas puisqu'il s'agit de la teneur initiale du digestat.

Les résultats sont représentés sur le tableau 9.

N-NH ₄ ⁺ [mg/l _{influent}]	N-NH ₄ ⁺ [mg/l _{effluent}]	N-NO ₂ ⁻ [mg/l _{effluent}]	N-NO ₃ ⁻ [mg/l _{effluent}]	N-gaz [mg _{émis} /l _{effluent}]	N ₂ O [ppm massique]
2400	1410	160	60	770	0.5
2370	524	880	131	835	38
2340	530	960	123	727	37
2380	398	1020	134	828	46

Tableau 9 : Emission de N₂O, en ppm massique du gaz émis, en fonction des conditions de fonctionnement

On observe que la production de N₂O est plus importante lorsque la nitrification ou la nitrification de l'ammonium est plus élevée, comme illustré sur la figure 28. Cependant la quantité de N₂O émis reste très faible : 0.3% de l'azote gazeux émis pour un système à faible activité et 3% pour un système à plus forte activité, soit dans ce dernier cas 1.3% de l'azote ammoniacal de départ.

A noter que nous ne possédons pas de mesures de référence d'émissions spontanées de N₂O lors du stockage du lisier par exemple.

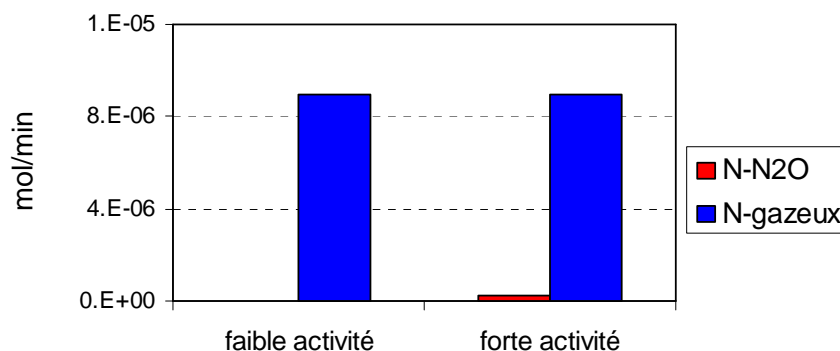


Figure 28 : Débit de N-N₂O mesuré par rapport au débit total de N-gaz

4.4 Conclusion de la deuxième phase d'expérimentation

On a clairement mis en évidence l'impact de l'addition du support sur l'établissement de la dénitrification / dénitrification dans le réacteur aéré. En fin d'expérimentation, pour un temps de rétention de 2 jours et une concentration en ammonium dans l'alimentation de près de 1 g/l, le rendement de dégradation de l'ammonium est de 95% avec plus de 80% de l'azote transformé en N_2 .

Ce résultat nous permet donc de retenir l'hypothèse d'une dénitrification réalisée au niveau d'un biofilm à l'intérieur du réacteur aérobie. Ceci suggère donc que la dénitrification est plus vraisemblablement réalisée en conditions localement anoxiques, puisque les conditions de diffusion de l'oxygène à l'intérieur des biofilms sont défavorables.

La mesure du N_2O dans le gaz produit montre qu'il représente au maximum 1.3% de l'azote initial de l'effluent digéré.

Dans tous les cas, on confirme que l'ensemble des processus de transformation de l'azote ammoniacal en azote moléculaire peut se faire dans un seul réacteur sans avoir besoin d'utiliser le digesteur pour les réactions anoxiques.

5. Bilan azote et énergie

5.1 Bilan global de l'azote

Les données utilisées pour faire le bilan d'azote sont celles :

- de l'installation de M. Martin pour la partie digestion, telles qu'elles sont reportées au chapitre A
- de la dernière période de l'expérimentation à l'échelle pilote et avec le support pour la partie traitement de l'ammonium, telles qu'elles sont reportées au chapitre 4
- Pour la continuité du bilan, les rendements obtenus pour la conversion de l'azote ont été appliqués aux quantités calculées à la sortie de la digestion. On a donc fait l'hypothèse que les résultats obtenus à l'échelle pilote étaient directement transposables à une installation agricole en vraie grandeur, ce qui reste bien sûr à vérifier.

Les bilans effectués lors de la première étape expérimentale ont montré que, dans les conditions finales de l'expérience soit pour un TRH de 2 jours, la perte d'azote total et d'azote dissous était très proche, soit 43% et 48% respectivement. On estime donc que la perte d'azote organique insoluble durant le traitement aérobique s'élève à 10% au maximum.

Le bilan global de l'azote au cours du traitement proposé est reporté sur la figure 29. On voit que 50% de l'azote initial contenu dans les produits de départ est transformé en N_2 , 21% se retrouve dans le compost et 29% dans le liquide traité.

Moins de 5% de l'azote de départ se retrouve sous forme d'ammonium dans le liquide à épandre, soit un abattement de 93% de l'ammonium de la phase liquide du digestat. L'azote restant est principalement sous la forme organique insoluble.

Le compost contient en grande majorité de l'azote organique insoluble. Cette partie pourra plus facilement être exportée de l'installation.

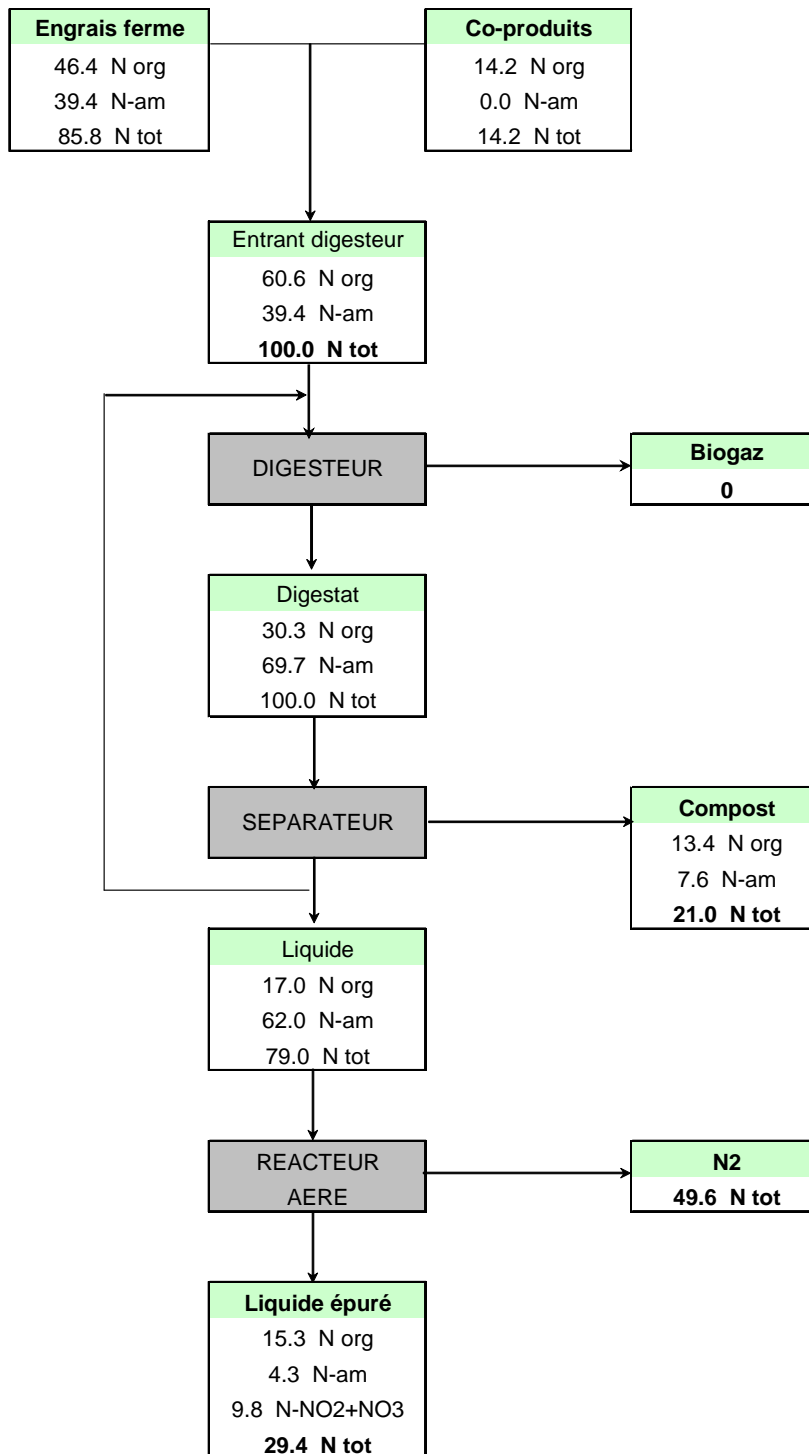


Figure 29 : Bilan de l'azote. Unités en [%].

5.2 Bilan énergétique

Dans le concept initial, l'étape de dénitrification du digestat liquide était envisagée à l'intérieur du digesteur, par recirculation de l'effluent après l'étape d'oxydation de l'ammonium. Ceci supposait de vérifier expérimentalement :

- d'une part une éventuelle inhibition de la méthanogénèse due à la présence des nitrites
- d'autre part la proportion de substrat carboné consommé pour la dénitrification aux dépens de la production de méthane

Compte tenu des résultats obtenus, c'est à dire la confirmation que l'ammonium peut être nitrifié et dénitrifié dans un seul et unique réacteur muni d'un support mobile (« moving bed »), la problématique de la réduction de production de biogaz n'existe plus. Le digesteur continue donc à fonctionner avec strictement les mêmes performances.

Cependant, le traitement de l'ammonium consomme de l'énergie de par le fonctionnement du réacteur aérobie, c'est à dire principalement par l'aération.

Le débit de l'aération appliqué à l'échelle pilote ne peut pas être transposé à l'échelle réelle. En effet, nous avons utilisé pour, aérer le réacteur pilote, un système pas du tout optimisé du point de vue de l'efficacité énergétique puisqu'il s'agissait d'un simple bullage par un tuyau, la répartition de l'air dans le volume du réacteur étant assurée par une agitation mécanique rapide. Il existe fort heureusement des systèmes d'aération beaucoup plus efficaces à l'échelle réelle.

Une étude a été réalisée sur le sujet dans le cadre d'un design project par des étudiants de 1^{ère} année de Master en sciences et ingénierie de l'environnement de l'EPFL (⁴⁰). Elle inclut notamment une étude de la nitrification du lisier digéré produit par l'installation de biogaz de M. Martin. On reprendra donc pour partie des éléments de ce rapport pour établir une consommation énergétique maximale.

Dans ce rapport, l'option étudiée est la nitrification de la totalité de l'ammonium en nitrate, sans dénitrification. Les principales conclusions ont été les suivantes :

- On retient une aération par un diffuseur fines bulles à membrane élastique.
- La quantité d'oxygène nécessaire est de l'ordre de $4.3 \text{ kg}_{\text{O}_2}/\text{h} \cdot \text{kg}_{\text{N-am}}^{-1}$ nitrifié.
- Pour un Kla de 0.5 à 0.6 min^{-1} et pour assurer une concentration en O_2 dissous de 2 mg/l , la consommation de l'aérateur est estimée à $6.7 \text{ kWh/kg}_{\text{N-nitrifié}}$

En se basant sur ces résultats, et en les transposant à notre cas, pour oxyder les 5.7 tonnes de N-am du liquide digéré produit annuellement par l'installation, on aurait donc une consommation électrique de 38'190 kWh par an.

La production d'électricité de l'installation Martin est de 328'440 kWh par an. La nitrification classique de l'ammonium représenterait donc 11.6% de sa production électrique.

La consommation d'énergie que l'on attend dans le cas du procédé développé dans ce projet est inférieure à cette valeur maximale, puisque l'on limite l'aération afin de limiter la formation de nitrates. De plus, le fait de « dénitrifier » amène également une économie d'oxygène puisqu'une partie de la DCO soluble est oxydée par les nitrates (à la place de l'oxygène). Cependant, une appréciation précise du besoin d'aération, et de la consommation électrique, demanderait une expérimentation en vraie grandeur.

6. Eléments de faisabilité technico-économique

L'étude de « Design Project » réalisée par les trois étudiants de l'EPFL ⁽⁴⁰⁾ et accompagnée par nos soins a permis de dégager les premiers éléments de faisabilité d'une unité comportant un réacteur de nitrification, sans recirculation du digestat liquide et avec une dénitrification dans la fosse à purin (stockage final). L'incorporation d'un support mobile pour favoriser le processus de dénitrification n'a pas pu être évalué pour des raisons de calendrier car les deux études ont été menées en parallèle.

Nous nous sommes basés sur cette étude de « Design Project » pour étudier la faisabilité technico-économique du système exposé dans le présent rapport. En effet, les étudiants de l'EPFL se sont basés sur l'installation de la famille Martin à Puidoux pour mener leur « Design Project » ; les données techniques de base sont donc identiques à la présente étude.

Le « Design Project » montre trois différences par rapport au concept testé dans cette étude (tableau 10) :

« Design Project »	Concept testé dans l'étude
Nitrification dans un réacteur aérobic, puis dénitrification dans la fosse à purin	Nitritation et dénitrification dans un seul réacteur aérobic avec ajout d'un support mobile
Taux d'aération calculé pour atteindre une nitrification complète	Même système d'aération, mais à un taux d'aération moins élevé pour effectuer une nitritation
Pas de support mobile dans le réacteur aérobic	Support mobile dans le réacteur aérobic

Tableau 10 : Différences du « Design Project »

Comme nous le verrons dans le chapitre 6.1, ces trois différences n'ont aucune influence sur le dimensionnement du réacteur aérobic.

6.1 Dimensionnement

Le réacteur serait de type infiniment mélangé (CSTR), permettant une alimentation et un soutirage continu, comme pour le digesteur. Les deux paramètres de dimensionnement sont le débit journalier d'entrée et le temps de résidence hydraulique.

Pour le cas de l'installation de la famille Martin à Puidoux (chap. 2.2), le débit de digestat liquide après passage dans le séparateur est de $8.3 \text{ m}^3/\text{j}$. En retenant un temps de résidence de 3 jours (chap. 3.3.2), le volume du réacteur devrait être au minimum de 25 m^3 pour permettre la nitrification. En tenant compte de la rétention de gaz, correspondant au volume gazeux compris dans le liquide suite à l'aération, le volume utile devrait être d'environ 30 m^3 . De forme cylindrique, le réacteur aurait un diamètre intérieur de 2.5 m pour une hauteur de liquide de 5.1 m et une hauteur totale de 6.0 m, ce qui optimiserait le transfert d'oxygène dans le digestat. L'alimentation s'effectuerait par le haut du réacteur et le soutirage par le bas de façon, si nécessaire, à pouvoir vidanger la cuve.

L'aération constituant le paramètre déterminant, l'apport en oxygène doit être suffisant et un système de diffuseur à fines bulles pourrait être préconisé. Les besoins en oxygène nécessaires sont, par contre, difficiles à extrapoler du réacteur pilote construit pour la deuxième phase de l'étude à une installation en vraie grandeur. Des tests en vraie grandeur seraient nécessaires.

Le schéma illustré à la figure 29 reprend les principaux éléments constituant le réacteur proposé, à l'exception du support mobile permettant de fixer la biomasse. La forme du réacteur (rapport de la hauteur vis-à-vis de la largeur) a été défini en fonction du système d'aération. Par conséquent, cette proposition devrait être approfondie en fonction de tests ultérieurs relatifs à l'aération.

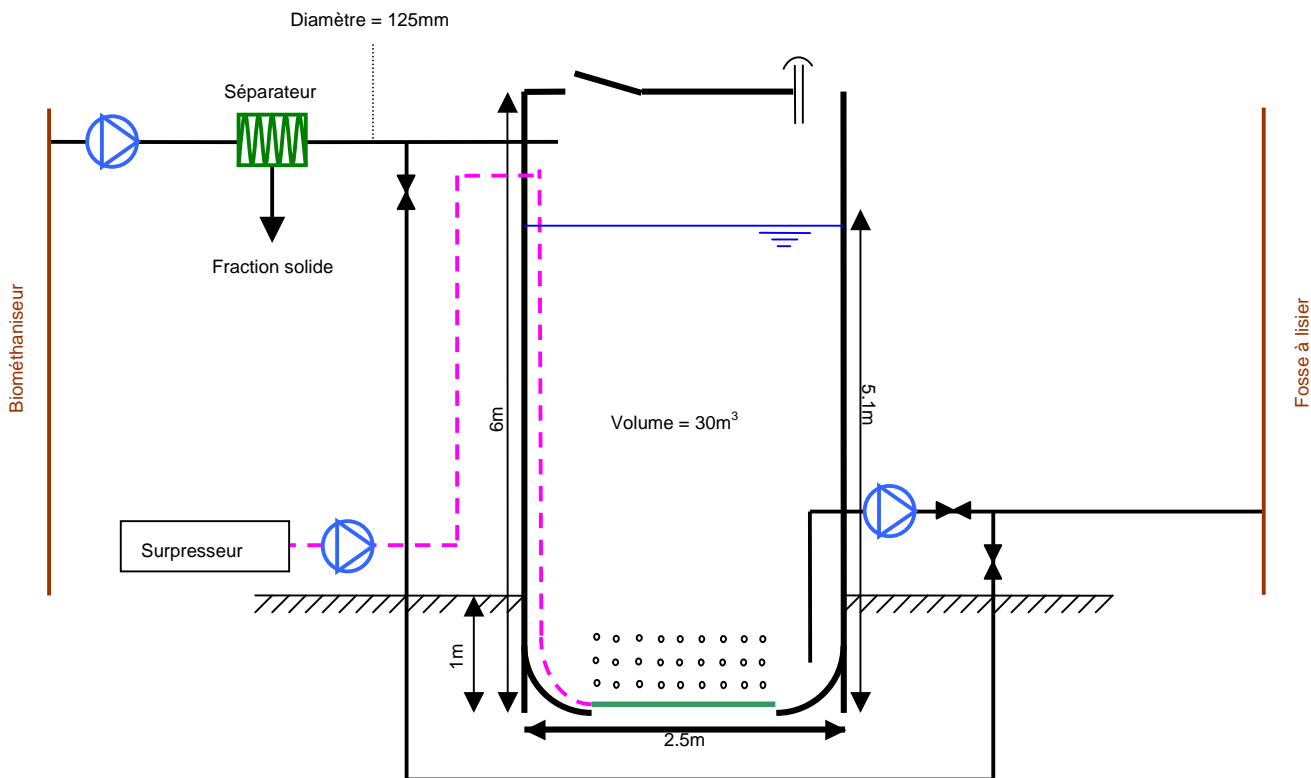


Figure 30 : Schéma du réacteur aérobique

6.2 Estimation des investissements

Les frais d'investissements ont été déterminés sur la base de devis de constructeurs et de prix d'équipements standards. Le tableau 11 présente l'estimation de ces coûts :

Ouvrage / équipement	Coût [CHF]
Réacteur en béton armé	47'850.-
Couverture du réacteur	1'400.-
Conduites isolées	450.-
Pompes et vannes	10'300.-
Equipements électroniques	2'000.-
Système d'aération	22'000.-
Support mobile	non défini
TOTAL	84'000.- (hors support mobile)

Tableau 11 : Investissements

Un tel investissement est à mettre en regard avec le coût d'une installation de biogaz agricole mettant en œuvre un digesteur de l'ordre de 400 m³, qui se situe actuellement entre 800'000 et 1'000'000.- CHF.

7. Conclusion générale et perspectives

La digestion des effluents d'élevage, en mélange avec des co-produits ayant un potentiel de biogaz plus élevé, pourrait permettre de contribuer significativement à la production d'énergie renouvelable.

Cependant, l'intérêt de cette filière est limitée, du point de vue du développement durable, par une émission d'ammoniac accrue. Or la production d'ammoniac par les effluents agricoles représentent déjà plus de 90% des émissions totales. Il est donc important de développer des méthodes pour limiter ces émissions.

Certaines solutions visent à limiter les émissions d'ammoniac en limitant sa volatilisation. D'autres peuvent transformer biologiquement l'ammonium en nitrates non volatils. D'autres enfin visent à une élimination totale ou partielle de l'ammonium. Ces dernières sont intéressantes dans les zones à forte densité d'élevage, donc souvent en excédent azoté, où sont localisés les potentiels de biogaz les plus importants.

La méthode classique d'élimination de l'azote consiste en une nitrification suivie d'une dénitrification. Ce processus est réalisé dans deux réacteurs distincts et demande une forte consommation d'oxygène ainsi que, dans le cas d'effluents de digestion souvent pauvres en carbone soluble résiduel, l'addition d'une source carbonée.

Le projet visait, dans une première étape, à développer un concept permettant d'une part de limiter dans premier réacteur l'oxydation de l'ammonium en nitrites, d'autre part d'utiliser le digesteur comme deuxième réacteur pour mener, soit une dénitrification, soit une oxydation anaérobie de l'ammonium par les nitrites (ANAMMOX).

Ceci est synthétisé dans le tableau 12 et la figure 31.

	Méthode traditionnelle	Concept testé dans la première partie de l'étude
Etape 1	Nitrification (NO_3^-) aérobie $\uparrow\uparrow$ demande en O_2	Nitritation (NO_2^-) aérobie $\downarrow\downarrow$ demande en O_2
Etape 2	Dénitrification (N_2) anaérobie = 2ème réacteur source de carbone	Dénitrification et/ou ANAMMOX anaérobie = digesteur besoin réduit ou nul de source de carbone

Tableau 12 : Comparaison des méthodes

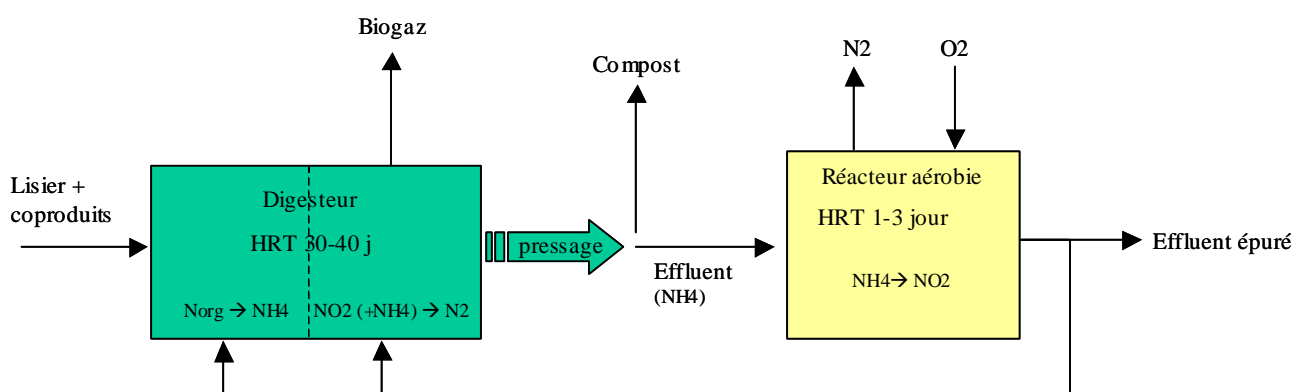


Figure 31 : Concept testé dans la première partie de l'étude

L'étude expérimentale, réalisée durant deux ans au LBE de l'EPFL, a été menée sur un effluent d'une installation de co-digestion en grandeur réelle. Elle a montré que :

- Le processus de nitritation peut être obtenu avec cet effluent dans un réacteur aérobie

- Le processus ANAMMOX peut également être obtenu, mais il est instable et donc peu fiable
- Le processus de dénitrification peut en fait être obtenu dans le réacteur aérobie, en utilisant un support mobile permettant de fixer la biomasse

L'énorme avantage de la méthode développée dans ce projet réside dans le fait que l'ensemble des réactions se déroulent dans un seul réacteur, sans modifier en quoi que ce soit le fonctionnement du digesteur (voir figure 32).

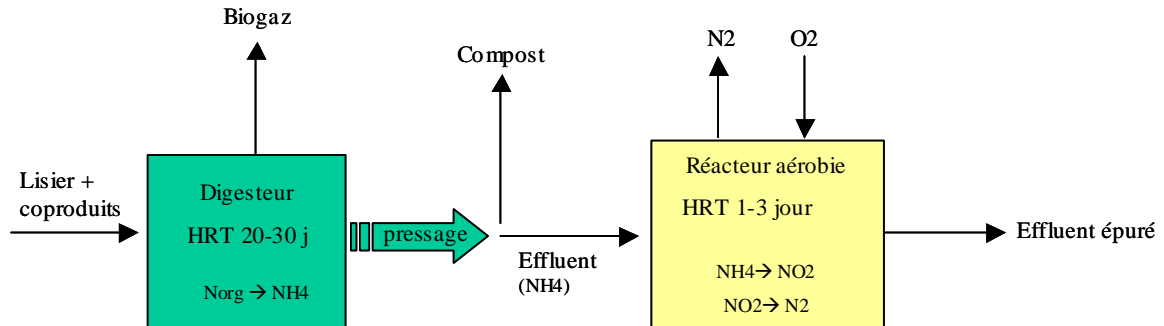


Figure 32 : Concept final

Les rendements obtenus dans le réacteur aérobie sont très élevés : 90% de l'ammonium est transformé et 80% est éliminé sous forme de N_2 .

Le bilan d'azote montre que, si la totalité de l'effluent est traité dans le réacteur aérobie, l'élimination de l'azote total initial dans la configuration retenue est de 50% (cf. figure 33)

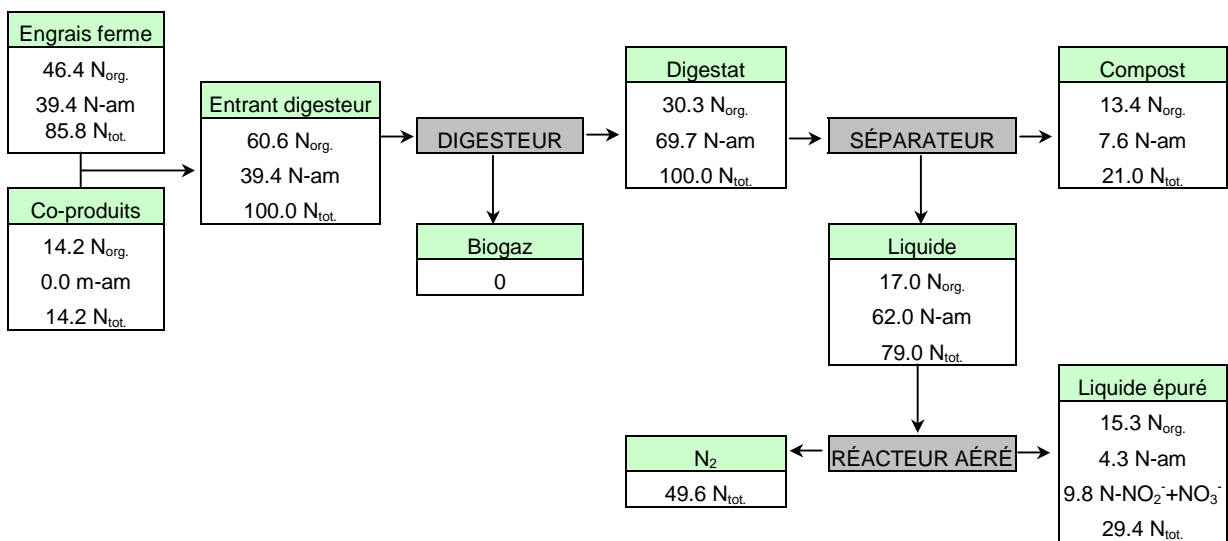


Figure 33 : Bilan de l'azote. Unité en %

L'élimination d'une partie seulement de l'azote, selon les besoins, peut être obtenue tout simplement en traitant une partie seulement de l'effluent.

Au niveau du bilan énergétique, le concept finalement retenu n'a aucune incidence sur la production de biogaz.

Un dimensionnement du réacteur aérobie a été proposé en fonction des deux paramètres que sont le débit journalier d'entrée et le temps de résidence hydraulique. Le volume utile du réacteur proposé devrait être au minimum de 30 m^3 . Sa forme cylindrique permettrait d'optimiser le transfert d'oxygène dans le digestat. La détermination précise de la consommation électrique du réacteur aérobie demanderait un test en vraie grandeur, car on ne peut pas extrapoler le fonctionnement du système d'aération. La construction d'une installation pilote ou de démonstration permettrait de combler ces lacunes.

Les investissements relatifs à une installation de biogaz agricole mettant en œuvre un digesteur de l'ordre de 400 m³ se monteraient à CHF 84'000.-, sans compter le prix du support mobile. Ce montant est à mettre en regard du coût total, compris entre CHF 800'000.- et 1'000'000.-, d'une telle installation.

Répertoire des symboles et abréviations

CCF	Couplage chaleur-force
CS	Charge spécifique [mg/l.j^{-1}]
DCO	Demande chimique en oxygène [g/l]
EAWAG	Institut de recherche de l'eau du domaine des écoles polytechniques fédérales
ECD	Electron capture detector
EPFL	Ecole polytechnique fédérale de Lausanne
K _{la}	Coefficient de transfert d'oxygène [min^{-1}]
LBE	Laboratoire de biotechnologie environnementale
LPE	Loi sur la protection de l'environnement
MS	Matière sèche [%/PF]
MSV	Matière sèche volatile [%/PS]
N-am	Azote ammoniacal
N-NH ₄ ⁺	Ammonium
N-NO ₃ ⁻	Nitrates
N-NO ₂ ⁻	Nitrites
N _{org.}	Azote organique
N _{tot.}	Azote total
NTK	Azote total Kjehldal [g/kg]
OD	Oxygène dissous [mg/l]
OFEV	Office fédéral de l'environnement
OPair	Ordonnance sur la protection de l'air
PF	Poids frais [kg]
Ppm	Partie par million [ppm]
PS	Poids sec [kg]
SHARON	Single reactor for high activity ammonia removal over nitrite
SBR	Sequencing batch reactor
STEP	Station d'épuration des eaux
THR	Temps de résidence hydraulique [jours]
UASB	Upflow anaerobic sludge blanket
UGB	Unité gros bétail [UGB]

Références

- [1] **Werder M.** : Biomasse, les agriculteurs en producteurs d'énergie? Centre d'Information Biomasse, SuisseEnergie, 2003 ;
- [2] **ADEME** : Référentiel technico-économique des unités de méthanisation de produits organiques à petite échelle en Europe, 2004 ;
- [3] **Baserga U.** : Fermentation de déchets organiques dans les installations agricoles de biogaz. Composition des matériaux, techniques de fermentation et bases légales. Station fédérale de recherches en économie et technologie agricoles (FAT), Rapport FAT No 546, 2000 ;
- [4] **Acherman B.** : Die Gülle im Blickfeld der Lufthygiene, Ammoniak-Emissionen. Umwelt, Luftreinhaltung, 2004 ;
- [5] **Lehmann U., Wickli J.** : Ammoniakverluste wirksam reduzieren, Fachstelle Landtechnik, Fachstelle Dëngung. LBBZ Rheinhof, 2004 ;
- [6] **Schulte DD.** : Critical parameters for emissions. In J A M . Voermans, GJ. Monteny. Ammonia and odour control from animal production facilities. Proceedings of the international symposium. Vinkeloord, TheNetherlands, October 6–10, 1997. Rosmalen, the Netherlands: NVTL, p. 23–34 ;
- [7] **Nicks B.** : Facteurs influençant les émissions d'ammoniac en porcherie. AgriBETON 2 (1), 1999, p.12–14 ;
- [8] **Menzi H., Frick R., Kaufmann R.** : Amoniak-Emissionen in der Schweiz–Ausmass und technische Beurteilung des Reduktionspotentials, Eidgenössische Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau (FAL), 1997, Schriftenreihe der FALZürich-Reckenholz, 26, pp. 107 ;
- [9] **KTBL BMBF-Förderschwerpunkt** : Umweltverträgliche Gülleaufbereitung und –verwertung – Zusammenfassung der Ergebnisse und vergleichende Bewertung, Arbeitspapier 272, 1999, Kuratorium für Technik und Beratung in der Landwirtschaft, Darmstadt ;
- [10] **Cercl'air** : Rapport du groupe de travail « Emissions d'ammoniac », Société suisse des responsables de l'hygiène de l'air, Janvier 2002 ;
- [11] Rapports FAT No 631, 2005 : Couvertures pour silos à lisier ;
- [12] **Rochette et al.** : Comment réduire la volatilisation de l'ammoniac des fumiers. Can. J. Soil Sci. 81: 515-523, 2001 ;
- [13] **Farinet J.-L., Hurvois Y., Paillat J.-M.** : Macsizut - un modèle d'aide au choix de techniques de traitement des lisiers de porc. Restitution des travaux de l'Atp 60/99. Montpellier, France, 2003 ;
- [14] **Membrez Y.** : Biogaz agricole - Amélioration de l'épandage de fumier digéré. Projet : n°48174, Contrat n°88314, 2004 ;
- [15] **Hellinga c., Schellen AAJC., Mulder JW., van Loosdercht MCM., Heijnen JJ.** : The Sharon process : an innovative method for nitrogen removal from ammonium-rich wastewater, Water Science Technology, 37, 135-142, 1998 ;
- [16] **Daniel L.M.C., Foresti E.** : Nitrogen removal via nitrites in a sequential immobilized biomass batch reactor, Proceedings of 10th Word Confress on AD, 361-366, Montreal, 2004 ;
- [17] **Castello E., Borzacconi L.** : Post-treatment of a slaughterhouse wastewater – Biological nitrogen removal via nitrite using a SBR, Proceedings of 10th Word Confress on AD, 361-366, Montreal, 2004 ;
- [18] **Akunna J.C., Bizeau C., Moletta R.** : Denitrification in anaerobic digesters : possibilities and influence os wastewater COD/N-NO_{xr} ratio, Environ. Technol., 13, 825-836, 1992 ;
- [19] **Bernet, Delgenes, Moletta** : Dénitrification by anaerobic sludge in piggery wastewater., Environmental Technology 17, 3, 293-300, 1996 ;
- [20] **Van de Grraaf, A., Mulder, A., De Bruijn, P., Jetten, M., Robertson, L., Kuenen, J.** : Anaerobic ammonium oxidation is a biologically mediated process, Applied and Environmental Microbiology 61(4): 1246-1251, 1995 ;
- [21] **Schmidt I.** : Anaerobe Ammoniakoxidation von Nitrosomonas eutropha. Doctoral Thesis, University of Hamburg (abstract), 1997 ;
- [22] **Jetten M., Strous M., Katinka T., van Schoonen P., Schalk J., van Dongen U., van de Graaf A.A., Logemann S., Muyzer G., van Loosdrecht M., Kuenen J. G.** : The anaerobic oxidation of ammonium. FEMS Microbiology Reviews 1999, 22: 421-437 ;
- [23] **Strous, M., Heijnen, J.J., Kuenen, J.G. and Jetten, M.S.M.** : The sequencing batch reactor as a powerful tool to study very slowly growing micro-organisms. Applied Microbiology and Biotechnology, 50 : 589-596, 1998 ;
- [24] **Fux, C., M. Boehler, et al.** : Biological treatment of ammonium-rich wastewater by partial nitritation and subsequent anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX) in a pilot plant, Journal of Biotechnology 99(3): 295, 2002 ;
- [25] **Hwang I.S., Min K.S., Lee Y.O.** : Nitrogen removal from piggery wastewater usinf ANAMMOX reactor, Proceedings of 10th World Congress on AD, 261-266, Montreal, 2004 ;
- [26] **Thomsen, J. K., J. J. Lonsmann Iversen, et al.** : Interactions between respiration and denitrification during growth of Thiosphaera pantotropha in continuous culture, FEMS Microbiology Letters 110(3): 319-324, 1993 ;
- [27] **Joo, H., Hirai, M., Shoda, M.** : Characteristics of ammonium removal by heterotrophic nitrification by Alcaligenes faecalis N°4 n., Journal of Bioscience and Bioengineering. 100(2):184-191 ;
- [28] **Van Niel, E. W. J., P. A. M. Arts, et al.** : Competition between heterotrophic and autotrophic nitrifiers for ammonia in chemostat cultures, FEMS Microbiology Letters 102(2): 109-118,1993 ;
- [29] **Frette L., Gejlsbjerg B, Wetermann P.** : Anaerobic denitrifiers isolated from an alternating activates sludge system, FEMS Microbiology Ecology, 24, 363-370, 1997 ;
- [30] **Tallec G., Garnier J.G., Gousailles M.** : Nitrogen removal in a wastewater treatment plant through biofilters : nitrous oxide emission during nitrification and denitrification, 2006, Bioprocess and Biosystem Engineering, 16, 2006 ;

- [31] **Robertson L. A., Dalsgaard T., Revsbech N-P., Kuenen J.** : Confirmation of 'aerobic denitrification' in batch cultures, using gas chromatography and ¹⁵N mass spectrometry, *FEMS Microbiology Ecology* 18(2): 113, 1995 ;
- [32] **Buchelin C.** : Biogaz et agriculture - étude de cas à Puidoux, Mémoire de Master en Sciences naturelles de l'environnement n°148, Université de Genève, 2007 ;
- [33] **Wellinger A.** : Process design of agricultural digesteur, Publication Nova Energie GmbH, CH, 1999 ;
- [34] **Dong X., Tollner E. W.** : Evaluation of ANAMMOX and denitrification during anaerobic digestion of poultry manure. *Biore-source Technology*, 86: 139–145, 2003 ;
- [35] **Jianlong W., Ning Y.** : Partial nitrification under limited dissolved oxygen conditions. *Process Biochemistry*, 39: 1223–1229, V ;
- [36] **Verstraete W., Philips S.** : Nitrification-denitrification processes and technologies in new contexts, *Environmental Pollution*, 102, SI, 717-726, 1998 ;
- [37] **Fux C., Boehler M., Huber P., Brunner I., Siegrist H. R.** : Biological treatment of ammonium-rich wastewater by partial nitrification and subsequent anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX) in a pilot plant. *Journal of Biotechnology*, 99: 295-306, 2002 ;
- [38] **Dong X., Tollner E.W.** : Evaluation of ANAMMOX and denitrification during anaerobic digestion of poultry manure, *Biore-source Tehcnolby*, 86(2003), 139-145, 2003 ;
- [39] **Rusten B., Eikebrook B., Ulgenes Y., Lygren E.** : Design and operations of Kaldnes moving bed biofilm reactors, *Aqua-cultural Engineering*, 34, 322-331, 2006 ;
- [40] **Brethaut Y., Gremaud D., Margot J.** : Traitement de l'ammonium du lisier digéré après biométhanisation, Rapport final 1^{ère} année de Master en Sciences et Ingénierie de l'Environnement, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Semestre été 2007 ;