

## Traitement simultané des nitrates et du méthane des sites d'enfouissement à l'aide de bactéries méthanotrophes par biofiltration

Mémoire

Julie Doucet

Maîtrise en génie des eaux - avec mémoire Maître ès sciences (M. Sc.)

Québec, Canada

© Julie Doucet, 2022

## Traitement simultané des nitrates et du méthane des sites d'enfouissement à l'aide de bactéries méthanotrophes par biofiltration

Mémoire

Julie Doucet

Sous la supervision de : Paul Lessard, directeur de recherche Rino Dubé, codirecteur de recherche

### Résumé

Au Québec, l'enfouissement est la technique la plus répandue pour l'élimination des matières résiduelles. Bien qu'elle soit simple et économique, elle entraîne différentes problématiques, dont la production de lixiviats, des liquides très chargés en contaminants, et de gaz d'enfouissement contribuant à l'émission de gaz à effet de serre. Chez Investissement Québec – CRIQ (IQ-CRIQ), la biofiltration méthanotrophe a été étudiée dans les dernières années pour le traitement combiné de ces deux sources de polluants. Si cette technologie a montré une bonne capacité à traiter le méthane (CH<sub>4</sub>) présent dans les gaz d'enfouissement, tout en assimilant de l'azote des lixiviats, la capacité du système biologique à résister aux fluctuations saisonnières de température peut être questionnée.

L'objectif principal est donc de vérifier si le caractère exothermique de la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub> par les bactéries méthanotrophes permet de maintenir l'activité biologique au sein du biofiltre et donc la capacité épuratoire du CH<sub>4</sub> et de l'azote nitrate (NO<sub>3</sub>) des lixiviats en période hivernale.

Pour ce faire, un montage expérimental comprenant quatre biofiltres avec un garnissage organique a été alimenté avec des lixiviats prétraités provenant d'un site d'enfouissement et un mélange synthétique de gaz composé de gaz naturel et d'air. Des isolants en uréthane et une chambre réfrigérée ont été utilisés afin de reproduire les conditions hivernales sur le terrain d'un biofiltre enfoui, soit une température avoisinant les 4 °C. En ce sens, la température d'alimentation liquide a aussi été diminuée à 4 °C pour deux des quatre biofiltres. L'effet d'une charge en CH<sub>4</sub> plus importante sur le traitement a aussi été exploré. Durant les expérimentations qui se sont étendues sur environ 300 jours, les gaz (CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O entre autres) et les liquides (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, pH entre autres) ont été analysés deux à trois fois par semaine et la température interne des réacteurs a été suivie en continu à l'aide de capteurs.

Les expérimentations ont permis de montrer que le maintien du traitement était possible même avec une baisse de la température du liquide d'alimentation : une capacité d'élimination de 98 à 112 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j et de 2,6 à 3,2 gN-NO<sub>3</sub>·/m<sup>3</sup>/j a été observée pour le biofiltre à température ambiante (environ 21 °C) alimenté avec un lixiviat à 4 °C alors qu'elle a été de 113 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j et de 4,4 gN-NO<sub>3</sub>·/m<sup>3</sup>/j pour le biofiltre témoin (température ambiante et d'alimentation liquide à environ 21 °C). Cependant, le biofiltre alimenté avec des lixiviats à 4 °C et placé dans un environnement avec une température ambiante à 4 °C a vu ses capacités à traiter le CH<sub>4</sub> et le NO<sub>3</sub><sup>-</sup> devenir nulles lors du changement drastique de température. Finalement, le biofiltre alimenté avec une concentration plus élevée en CH<sub>4</sub> n'a pas été en mesure de traiter davantage de contaminants, ce qui laisse croire qu'il pourrait y avoir un débalancement entre le CH<sub>4</sub>, les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> et les autres nutriments essentiels ou encore la présence d'inhibiteurs au sein du biofiltre. Une difficulté des gaz à pénétrer le biofilm a aussi pu limiter la capacité

d'oxydation et donc l'enlèvement des NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Bien que des incertitudes persistent, les résultats obtenus montrent bien un potentiel de maintien des capacités épuratoires par les méthanotrophes en période froide d'opération.

## Table des matières

Résumé		ii
Table des m	atières	iv
Liste des fig	ures	vi
Liste des tat	pleaux	viii
Liste des ab	réviations, sigles, acronymes	ix
Remercieme	ents	xii
Introduction		1
Chapitre 1	État des connaissances	5
1.1 L	'enfouissement des déchets	5
1.2 L	ixiviats	6
1.2.1	Composition des lixiviats	6
1.2.2	Normes de rejet des lixiviats	8
1.2.3	Traitement des lixiviats	11
1.3 0	Gaz d'enfouissement	13
1.3.1	Formation et composition des gaz d'enfouissement	13
1.3.2	Norme sur le rejet des gaz d'enfouissement	17
1.3.3	Traitement du CH₄ par biofiltration	17
1.4 E	actéries méthanotrophes	18
1.4.1	Besoins nutritionnels et conditions de croissance	20
1.4.2	Influence de la température sur l'oxydation du CH <sub>4</sub> par les méthanotrophes	20
1.4.3	Influence du type d'azote sur l'oxydation du CH4 par les méthanotrophes	22
1.4.4	Réaction exothermique et production de chaleur	23
1.5 E	Biofiltration combinée : lixiviats et CH₄	24
1.6 C	Conclusion de la revue de littérature	25
Chapitre 2	Motivation, question de départ et objectifs du projet de recherche	27
2.1 N	lotivation du projet	27
2.2	Question de départ et objectifs de la recherche	28
Chapitre 3	Matériel et méthodes	29
3.1 N	Iontage expérimental	29
3.1.1	Schéma simplifié du montage expérimental	29
3.1.2	Description des réacteurs et du garnissage	30
3.1.3	Système d'alimentation et de sortie des liquides	33

3.1.4	Système d'alimentation et de sortie des gaz	. 34	
3.1.5	Changement de température des lixiviats à l'entrée de J3 et J4	. 36	
3.2	Protocole expérimental	. 37	
3.2.1	Liquide d'alimentation et conservation	. 37	
3.2.2	Fabrication et mise en place du média filtrant	. 38	
3.2.3	Conditions d'opération du système	. 38	
3.2.4	Paramètres de suivi et échantillonnage	. 40	
3.2.5	Méthode d'échantillonnage	. 43	
Chapitre 4	Résultats et discussion	. 45	
4.1	mpact de la diminution de la température	. 45	
4.1.1	Impact de la diminution de la température des lixiviats	. 45	
4.1.2	Impact de la diminution de la température des lixiviats et de la température ambiante	. 52	
4.2	Bénéfice de l'ajout du CH4 sur le traitement des lixiviats	. 56	
4.3	mpact de l'augmentation de la charge appliquée en CH <sub>4</sub>	. 59	
4.3.1	Performance d'enlèvement du CH <sub>4</sub> et des NO <sub>3</sub>	. 59	
4.3.2	Profil de température du réacteur J1	. 62	
4.4	Ratio de consommation CH <sub>4</sub> /N-NO <sub>3</sub>	. 62	
4.5	Diminution des GES	. 64	
Conclusion		. 66	
Limite du p	ojet	. 69	
Perspective	s pour les recherches futures	. 71	
Bibliograph	ie	. 73	
Annexe A -	Protocole de fabrication de l'inoculum et résultats des tests en « batch »	. 79	
Annexe B – Conditions d'opération, modifications et résultats des jours 0 à 240			
Annexe C – Résultats supplémentaires pour les jours 240 à 295 et résultats des laboratoires accrédités 105			
Annexe D -	- Équations pour le calcul des charges	111	
Annexe E – Données et résultats intermédiaires du calcul des équivalents CO <sub>2</sub> pour le bilan des GES 112			

# Liste des figures

Figure 1 - Cellules d'enfouissement typique et processus observés [traduite et modifiée de Scheutz et al. (2009)]
Figure 2 - Configuration type d'un système d'imperméabilisation et de drainage des lixiviats d'un LET [produite sur la base des informations de WSP (2016) et de Valoris (2020)]
Figure 3 - Évolution de la composition des lixiviats en fonction du temps [traduite et adaptée de Laner (2011), basée sur Kieldsen et al. (2002)]
Figure 4 – Schéma du procédé BIOSOR <sup>MD</sup> 12
Figure 5 – Digestion anaérobie menant à la production de biogaz [traduite et modifiée de Nayono (2010)] 14 Figure 6 - Évolution de la composition des gaz d'enfouissement en fonction du temps [traduite et adaptée de
Laner (2011) basee sur Kjeidsen et al. (2002)]
Figure 7 - Cascade de reactions pour l'oxydation du CH <sub>4</sub> en CO <sub>2</sub> par les bacteries methanotrophes aerobles
[traduite et adaptée de Hanson et Hanson (1996)]
Figure 0 - Schema du montage experimental pour un seur reacteur
Figure 9 - Fhoto du montage experimental (leacteur 51, 52, 55 et 54)
Figure 10 - Repartition du garnissage des reacteurs
d'arrivée des liviviats pour le réacteur. 13
Figure 12 - Position des points d'échantillonnage des réacteurs selon la nature des échantillons 41
Figure 12 - Charges appliquées et éliminées en CH <sub>4</sub> en fonction des jours d'opération nour les réacteurs J2 et
J3
Figure 14 – Charges appliquées et éliminées en N-NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J2 et J3
Figure 15 - Profil de température du réacteur témoin .12 en fonction des jours d'opération (le capteur « B » est
le plus éloigné de la base et le capteur « F » est le plus près de la base)
Figure 16 - Profil de température du réacteur J3 en fonction des jours d'opération (le capteur « B » est le plus
éloigné de la base et le capteur « E » est le plus près de la base)
Figure 17 - Charges appliquées et éliminées en CH <sub>4</sub> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J3 et J4
Figure 18 - Charges appliquées et éliminées en N-NO <sub>3</sub> - en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J3 et J4
Figure 19 - Profil de température du réacteur J4 en fonction des jours d'opération (le capteur « B » est le plus
éloigné de la base et le capteur « E » est le plus près de la base)
Figure 20 - Charges appliquées et éliminées en N-NO3 <sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J2
et J3 : arrêt de l'alimentation en CH <sub>4</sub> sur le réacteur J357
Figure 21 - Profil de température du réacteur J3 en fonction des jours d'opération : arrêt de l'alimentation en
CH <sub>4</sub> (le capteur « B » est le plus éloigné de la base et le capteur « E » est le plus près de la base)
Figure 22 – Charges appliquées et éliminées en CH <sub>4</sub> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J1 et J2
Figure 23 – Charges appliquées et éliminées en N-NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J1 et J2
Figure 24 - Profil de température du réacteur J1 en fonction des jours d'opération (le capteur « B » est le plus
éloigné de la base et le capteur « E » est le plus près de la base)

Figure 25 - Montage expérimental pour la production initiale d'inoculums et pour les tests de consommation CH₄	du 80
Figure 26 - Concentration de CH <sub>4</sub> en fonction du temps pour trois tests consécutifs (avril 2019)	81
Figure 27 - Concentration de CH4 en fonction du temps pour trois tests consécutifs avec média filtrant (octob	ore
2019)	83
Figure 28 - Concentration du CH4 en fonction du temps pour un échantillon témoin avec du média filtrant pou	ur
cinq tests consécutifs (novembre 2019)	84
Figure 29 - Concentration de CH₄ en fonction du temps pour deux échantillons témoins avec du média filtrar sans agitation (janvier 2020)	nt 85
Figure 30 - Pourcentage d'enlèvement du CH4 en fonction des jours d'opération pour les quatre réacteurs	89
Figure 31 - Charges appliquées et éliminées en CH4 en fonction des jours d'opération pour le réacteur J1	
(jours 0 à 240)	90
Figure 32 - Charges appliquées et éliminées en CH₄ en fonction des jours d'opération pour le réacteur J2	
(jours 0 à 240)	91
Figure 33 - Charges appliquées et éliminées en CH4 en fonction des jours d'opération pour le réacteur J3	
(jours 0 à 240)	91
Figure 34 - Charges appliquées et éliminées en CH₄ en fonction des jours d'opération pour le réacteur J4	
(jours 0 à 240)	92
Figure 35 - Pourcentage de N-NO <sub>3</sub> - éliminé en fonction des jours d'opération pour les quatre réacteurs	93
Figure 36 - Charges appliquees et eliminees en N-NO <sub>3</sub> - en fonction des jours d'operation pour le reacteur J1	~ 1
(jours 0 a 240) Finne 27 - Channes and invites at filming for an NINO, an fanation des investigation destinations and the factors 12	94
Figure 37 - Charges appliquees et eliminees en N-INO3° en fonction des jours d'operation pour le reacteur J2	05
(jours 0 d 240)	90
Figure 56 - Charges appliquees et eliminees en $N-NO_3$ en fonction des jours d'operation pour le reacteur 55 (jours 0 à 240)	05
jours 0 a 240) Figure 30 - Charges appliquées et éliminées en NINOc en fonction des jours d'onération nour le réacteur. IA	30
(iours 0 à 240)	96
Figure 40 - Température la plus chaude dans chaque réacteur (toutes positions de canteurs confondues) en	00
fonction des jours d'opération	97
Figure 41 - Profil de température du réacteur J1 (jours 0 à 240)	98
Figure 42 - Profil de température du réacteur J2 (jours 0 à 240)	99
Figure 43 - Profil de température du réacteur J3 (jours 0 à 240)	99
Figure 44 - Profil de température du réacteur J4 (jours 0 à 240)1	00

## Liste des tableaux

Tableau 1 - Gamme de concentrations de différents polluants des lixiviats [traduit et modifié de Christensen et
al. (1994)]6
Tableau 2 - Normes de rejet des lixiviats des sites d'enfouissement au Québec [adapté de MELCC (2020)] 9
Tableau 3 - Normes de rejet des lixiviats traités issus du stockage des déchets non dangereux (sélection de
quelques paramètres d'intérêt) 10
Tableau 4 - Conditions d'opération à partir du jour 251 pour J2, J3 et J4 et à partir du jour 257 pour J1 39
Tableau 5 - Paramètres mesurés, fréquence, points d'échantillonnage et appareils ou méthodes utilisés selon
la nature de l'échantillon
Tableau 6 - Charges appliquées et éliminées pour le présent projet et les travaux antérieurs d'IQ-CRIQ et les
ratios CH <sub>4_oxydé</sub> /N-NO <sub>3</sub> -assimilé
Tableau 7 - Bilan d'équivalent en CO <sub>2</sub> pour la réduction des GES
Tableau 8 - Consommation de CH <sub>4</sub> selon les essais
Tableau 9 - Taux de consommation de CH4 pour cinq tests consécutifs sur un échantillon témoin avec du
média filtrant
Tableau 10 - Paramètres opérationnels du jour 7 au jour 57
Tableau 11 - Changement dans les conditions d'opération du système
Tableau 12 - Données de charges éliminées négatives retirées du graphique du pourcentage de N-NO3 <sup>-</sup> capté
en fonction des jours d'opération pour les quatre réacteurs
Tableau 13 - Suivi du pH des jours 0 à 240 101
Tableau 14 - Suivi des NH4 <sup>+</sup> des jours 0 à 240 102
Tableau 15 - Suivi des NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> des jours 0 à 240 103
Tableau 16 - Suivi de la DCO des jours 0 à 240 104
Tableau 17 - Suivi du pH des jours 240 à 295 105
Tableau 18 - Suivi des NH4+ pour les jours 240 à 295 106
Tableau 19 - Suivi des NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> pour les jours 240 à 295 106
Tableau 20 - Suivi de la DCO pour les jours 240 à 295 107
Tableau 21 - Suivi des pertes de charge pour les jours 240 à 295 107
Tableau 22 – Résultats d'analyse du phosphore total (Pt) par un laboratoire accrédité 108
Tableau 23 - Résultats d'analyse des NH4+ par un laboratoire accrédité 108
Tableau 24 - Résultats d'analyse des NTK par un laboratoire accrédité 108
Tableau 25 - Résultats d'analyse des NO <sub>3</sub> - par un laboratoire accrédité et comparaison avec les résultats
obtenus au hall d'essai 109
Tableau 26 - Pourcentage d'erreur entre les résultats d'analyse du laboratoire accrédité et ceux obtenus au
hall d'essai
Tableau 27 - Résultats d'analyse des NO2 <sup>-</sup> par un laboratoire accrédité
Tableau 28 - Résultats d'analyse du cuivre (Cu) par un laboratoire accrédité 110
Tableau 29 - Données de concentration de CH <sub>4</sub> , débits de gaz (Q <sub>gaz</sub> ) et calculs de charges appliquées (IN) et
de sorties (OUT) 112
Tableau 30 - Données de concentration de N2O, débits de gaz (Qgaz) et calculs de charges appliquées (IN) et
de sorties (OUT) 115
Tableau 31 – Charges éliminées en CH <sub>4</sub> et charges produites en N <sub>2</sub> O 118

## Liste des abréviations, sigles, acronymes

%v/v : concentration des gaz en pourcentages sur une base volumique

- AGV : Acide gras volatile
- CH<sub>4</sub> : Méthane
- CO<sub>2</sub> : Dioxyde de carbone
- COT : Carbone organique total
- Cu : Cuivre
- DBO<sub>5</sub>: Demande biochimique en oxygène 5 jours
- DCO : Demande chimique en oxygène
- DTR : Détecteurs de température à résistance
- EBRT : Temps de résidence en fût vide (traduction de : empty bed residence time)

Fe : Fer

- FEP : Éthylène-propylène fluoré
- FTIR : Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier
- GES : Gaz à effet de serre
- GIEC : Groupe d'expert intergouvernemental sur l'évolution du climat
- H<sub>2</sub>: Hydrogène
- HCHO : Formaldéhyde
- HCOOH : Acide formique
- IQ-CRIQ : Investissement Québec Centre de recherche industrielle du Québec
- K : Potassium
- LET : Lieu d'enfouissement technique
- MELCC : Ministère de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques
- MES : Matières en suspension
- MMO : Enzyme méthane monooxygénase (p : particulaire, s : soluble)
- N<sub>2</sub> : Azote
- N<sub>2</sub>O : Protoxyde d'azote/oxyde nitreux
- NH<sub>2</sub>OH : Hydroxylamine
- NH<sub>3</sub> : Ammoniac (gaz)
- NH4+: Azote ammoniacal (aqueux)
- NO2<sup>-</sup> : Nitrites
- NO3<sup>-</sup> : Nitrates
- Norg : Azote organique
- NTK : Azote total Kjeldahl
- Ntot : Azote total
- O<sub>2</sub> : Oxygène

PEHD : Polyéthylène haute densité

pH : Potentiel hydrogène

ppmv : Parties par million sur une base volumique

PRG : Potentiel de réchauffement global

Ptot : Phosphore total

PVC : Polychlorure de vinyle

PVDF : Polyfluorure de vinylidène

REIMR : Règlement sur l'enfouissement et l'incinération de matières résiduelles (Q-2, r.19)

SPE : Substances polymériques extracellulaires

T<sub>amb</sub> : Température ambiante

Zn : Zinc

 $\mu$ GC-TCD : Chromatographie gazeuse avec détecteur à conductivité thermique

« C'est le courage de nos décisions Qui se veut le moteur de nos actions C'est lui qui nous pousse à franchir le pont Et le fossé de la résignation Mais qu'on soit immobile ou en mouvement Une chose est sûre rien n'arrête le temps »

L'horloge – Les Cowboys Fringants

### Remerciements

Ce mémoire, que j'écris présentement, ne serait pas le même sans l'appui et la collaboration de toutes ces personnes que je tiens à remercier profondément.

Premièrement, merci à mon directeur de recherche, Paul Lessard, pour l'aide, le support et les conseils. Merci de m'avoir rassuré et de m'avoir tendu la main lorsque j'en avais besoin. Ses réflexions posées et son attitude calme m'ont permis de persévérer et tempérer ma nature plus stressée. À la prochaine tarte au sucre comme on dit!

Je tiens à remercier Rino Dubé, mon codirecteur de recherche à IQ-CRIQ, pour m'avoir lancé toutes sortes de défis qui m'ont permis de développer mon esprit créatif pour la recherche de solutions, ce qui m'aura fait dire à quelques reprises : rendu-là, une semaine de plus ou de moins... Merci pour les conseils et le temps investi dans nos rencontres presque hebdomadaires par moment.

Je voudrais aussi remercier Nicolas Turgeon pour sa participation et ses idées dans la réalisation et la mise en place de mon projet. Merci pour les encouragements, pour avoir partagé avec moi ses expériences antérieures et pour m'avoir donné l'opportunité de présenter à la conférence ACE 2019 de l'A&WMA, c'est un accomplissement dont je suis fière.

J'insiste pour souligner la participation active de Yann Le Bihan à mon projet. Merci pour son immense disponibilité, ses précieux conseils, ses encouragements et sa curiosité scientifique qui m'ont motivée et aidée à surmonter les différents (et nombreux) problèmes auxquels j'ai dû faire face au cours de mon projet.

Aussi, je dois remercier les organismes subventionnaires, le FRQNT et l'IQ-CRIQ, qui ont permis la réalisation de ce projet par le soutien financier qu'ils m'ont offert via le programme de Bourses Vertes CRIQ-FRQNT.

Je souhaite également remercier l'équipe d'IQ-CRIQ avec qui j'ai travaillé, entre autres Jean Nadeau, François Tremblay, Mélanie Bouchard, Odette Petitclerc, Louis Harvey, pour ne nommer que ceux-là. Merci pour votre compréhension, votre disponibilité, ainsi que pour les échanges qui animaient mes journées parfois longues au laboratoire. Je ne pourrais faire autrement que de remercier personnellement Jean Nadeau qui m'a épaulé du début à la fin, j'espère qu'il est conscient de la différence qu'il fait dans la réalisation des projets des étudiants, merci énormément. Merci à Marie Moulinier, étudiante à IQ-CRIQ et maintenant amie, qui m'a accompagnée et aidée pour une partie de mes échantillonnages et de mes analyses au laboratoire.

Je souhaite adresser des remerciements particuliers à mes collègues et amis Françoise, Laurence et Benjamin que j'ai connus lors de mon baccalauréat et avec qui j'ai eu la chance de poursuivre aux études graduées. Votre support, votre écoute et votre précieuse amitié ont rendu l'aventure plus agréable. Bien que différent, chaque projet vient avec son lot de réussites et de difficultés, et je savais que vous me compreniez.

Merci à mes parents qui ont toujours su m'encourager et m'appuyer dans tous les aspects qui se rattachent à mes études, c'est le plus beau cadeau que vous pouviez me faire. Merci à mes deux grands frères qui ont toujours été pour moi une grande source d'inspiration. Merci à ma meilleure amie Élisabeth pour son écoute et son support, ainsi qu'à mes amis proches, vous avez fait une différence à votre façon. Le dernier, mais non le moindre, merci à mon amour de tous les jours, Alexandre, pour sa présence, sa grande patience, son écoute et ses encouragements. Merci de toujours croire en moi lorsque je n'y arrive pas moi-même et de me pousser à me dépasser sans cesse.

À tous celles et ceux que j'oublie... merci!

### Introduction

Au Québec, en 2018, 79 sites d'élimination des déchets étaient recensés comme étant actifs : 75 sites étaient des lieux d'enfouissement (lieu d'enfouissement technique (LET), lieu d'enfouissement des débris de construction et de démolition (LEDCD) et lieu d'enfouissement en tranchées (LEET)) et quatre seulement étaient des incinérateurs. Durant cette même année, en excluant les boues (municipales, industrielles et agroalimentaires), ces sites ont accueilli 5 361 000 tonnes de matières résiduelles, dont 96 % ont été enfouies (Recyc-Québec, 2020). Il apparait donc que l'enfouissement des déchets est la technique d'élimination des matières résiduelles la plus utilisée au Québec. Cette donnée est très peu étonnante sachant que cette technique est l'une des plus économiques (Renou *et al.*, 2008).

De ces différents sites, plusieurs problématiques peuvent être dégagées, dont, entre autres, la formation des lixiviats et des gaz d'enfouissement. Ces problématiques sont les conséquences de la dégradation des déchets en condition anaérobie, c'est-à-dire sans oxygène. La Figure 1 montre une cellule d'enfouissement typique et les différents processus dont il est question dans ce projet de recherche : formation des lixiviats, production des gaz d'enfouissement, oxydation biologique du CH<sub>4</sub>.





Les lixiviats sont des liquides contaminés issus de la percolation de l'eau provenant principalement des précipitations (pluie/neige) et de la dégradation de la matière organique à travers l'amas de déchets enfouis. Au

passage, les eaux se chargent en divers contaminants sous formes particulaires et solubles. Ces eaux usées représentent donc des charges polluantes importantes et très complexes et constituent un potentiel de contamination des eaux souterraines et des eaux de surfaces (Renou *et al.*, 2008). La composition des lixiviats est très variable et dépend, entre autres, de l'âge du site, des précipitations, des conditions saisonnières et de la nature des matières enfouies. Selon le Règlement sur l'élimination et l'incinération des matières résiduelles (REIMR, Q-2, r. 19) du Ministère de l'Environnement et de la lutte contre les changements climatiques (MELCC), les lieux d'enfouissement technique (LET) doivent obligatoirement se prévoir un système de captage de tous les lixiviats afin de les acheminer vers un système de traitement, puis en définitive vers un émissaire de rejet (MELCC, 2020).

En ce qui concerne les gaz d'enfouissement, ces derniers sont issus de la dégradation anaérobie par les bactéries méthanogènes des matières organiques enfouies. Les gaz d'enfouissement, aussi appelé biogaz, sont formés principalement de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>, en plus de renfermer divers composés traces. Ils constituent une source importante de gaz à effet de serre d'origine anthropique. Selon le Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC), la concentration atmosphérique en CH<sub>4</sub> aurait augmenté d'un facteur de 2,5 depuis l'ère préindustrielle et tout porte à croire que cette augmentation serait causée par les activités anthropiques : augmentation des élevages de ruminant, extraction et utilisation des combustibles fossiles, intensification de la culture du riz et émissions provenant des sites d'enfouissement et des déchets (IPCC, 2013). Au niveau mondial, les émissions anthropiques représenteraient 50 à 65 % des émissions totales de CH<sub>4</sub> (IPCC, 2013). Considérant l'abondance du CH<sub>4</sub> et son potentiel de réchauffement global (PRG) 21-25 fois plus important que celui du CO<sub>2</sub> sur un horizon de 100 ans (Gouvernement du Canada, 2019a), la réduction des émissions de CH<sub>4</sub> devient primordiale, particulièrement dans le contexte où le réchauffement climatique est de plus en plus préoccupant. À titre d'exemple, en 2017, au Québec, le secteur des déchets était responsable de 5,8 % des GES à l'échelle de la province, dont 94 % étaient attribuables à des émissions de CH<sub>4</sub> (MELCC, 2019). À l'échelle du pays, le secteur des déchets. Au niveau du Canada, le secteur des déchets était responsable de 2,7 % des émissions de GES du pays en 2017 et de 19 % des émissions de CH<sub>4</sub> (Gouvernement du Canada, 2019b).

Dans le secteur des déchets, lorsqu'un système de collecte des biogaz est présent sur le site d'enfouissement, ces derniers peuvent être valorisés pour la production de chaleur ou d'énergie lorsque la concentration en CH<sub>4</sub> est supérieure à 30 - 40 %v/v et que le débit de biogaz est supérieur à 30 - 50 m<sup>3</sup>/h ou encore être éliminés par un système de destruction thermique, communément appelé torchère lorsque la concentration en CH<sub>4</sub> est supérieure à 20 - 25 %v/v et que le débit est supérieur à 10 - 15 m<sup>3</sup>/h. En dehors de ces plages, les biogaz sont considérés comme pauvres et ces techniques ne sont plus viables d'un point de vue technique et économique (Haubrichs et Widmann, 2006). C'est dans cette optique que l'oxydation biologique du CH<sub>4</sub>, comme la

biofiltration par exemple, devient une alternative intéressante pour traiter les émissions de CH<sub>4</sub> pour des sites d'enfouissement plus âgés (concentrations et taux de production de biogaz plus faibles) ou encore pour des petits sites n'étant pas équipés de torchères. Effectivement, certaines bactéries, les méthanotrophes, utilisent le CH<sub>4</sub> comme source de carbone et d'énergie, ce qui permet de transformer le CH<sub>4</sub> en CO<sub>2</sub>. Ce phénomène d'oxydation biologique du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes est d'ailleurs observé naturellement dans les sols de recouvrement des sites d'enfouissement (Nikiema *et al.*, 2007).

Plusieurs expérimentations ont été réalisées sur le traitement des gaz d'enfouissement et des lixiviats par biofiltration de manière individuelle à Investissement Québec – Centre de recherche industrielle du Québec (IQ-CRIQ) et ailleurs (Boucher, 2011; IQ-CRIQ, 2016; Nikiema et al., 2007; Turgeon et al., 2011). Cependant, depuis quelques années, IQ-CRIQ s'intéresse à un traitement simultané de ces deux sources de contaminants : les bactéries méthanotrophes capables d'oxyder le CH<sub>4</sub> ont des besoins en divers nutriments pour leur métabolisme et ces derniers se retrouvent d'ailleurs dans les lixiviats des sites d'enfouissement. Bien que les expérimentations antérieures à IQ-CRIQ aient confirmé le potentiel d'un traitement combiné des lixiviats et du CH<sub>4</sub> par biofiltration sur support organique, plusieurs aspects sont encore à explorer (Dubé et Turgeon, 2014). Afin de continuer les recherches déjà prometteuses, le présent projet porte plus particulièrement sur l'impact de la température sur le procédé de biofiltration méthanotrophe combiné pour le traitement des nitrates (NO<sub>3</sub>) des lixiviats et du CH<sub>4</sub> des sites d'enfouissement. Bien que les lixiviats contiennent à la base de l'azote sous forme d'azote ammoniacal (NH4+), l'objectif serait d'implanter ce système en traitement tertiaire afin d'effectuer l'enlèvement des NO<sub>3</sub>, produits de la nitrification qui se déroule habituellement dans un traitement secondaire biologique aérobie. Les procédés biologiques sont couramment utilisés pour le traitement des lixiviats au Québec (Boucher, 2011). Or, le contexte climatique nordigue du Québec peut représenter une contrainte importante puisque l'efficacité des processus biologiques est grandement affectée par les températures froides. Sachant que l'oxydation du CH<sub>4</sub> est un processus exothermique, c'est-à-dire qu'il y a un dégagement d'énergie/de chaleur lors de la réaction d'oxydation par les méthanotrophes, cet aspect du procédé constitue une opportunité intéressante à saisir afin d'éviter un apport externe d'énergie.

Le premier chapitre du mémoire fait l'objet d'une synthèse de l'état des connaissances sur les différents aspects relatifs au projet : la production de lixiviat et le traitement de ces derniers par biofiltration, la production de CH<sub>4</sub> et le traitement de l'air par biofiltration et finalement les bactéries méthanotrophes comme microorganismes nécessaires au traitement combiné de ces deux sources de polluants. Ensuite, au chapitre 2, les motivations du projet, ainsi que la question de départ et les objectifs spécifiques sont énoncés. Le chapitre 3 porte sur le montage expérimental utilisé, ainsi que le protocole suivi pour la réalisation des expérimentations. Finalement, les résultats sont présentés et discutés au Chapitre 4 : impacts du changement de température d'alimentation

liquide, du changement de température ambiante, de l'arrêt de l'alimentation en CH<sub>4</sub> et de l'augmentation de la charge appliquée en CH<sub>4</sub> sur les biofiltres.

## Chapitre 1 État des connaissances

Le Chapitre 1 présente l'état des connaissances en lien avec le projet, soit l'enfouissement des déchets et ses problématiques, la biofiltration pour le traitement des lixiviats et du méthane, ainsi que les bactéries méthanotrophes.

### 1.1 L'enfouissement des déchets

La Figure 2 montre la configuration type d'un système d'imperméabilisation et de drainage des lixiviats d'un LET suivant les exigences du REIMR (MELCC, 2020). Les couches inférieures des cellules d'enfouissement doivent être pourvues de plusieurs couches de matériaux étanches afin d'éviter la contamination des sols et des eaux souterraines. Un système de drainage et de captage des lixiviats repose sur les matières imperméabilisantes afin d'acheminer tous les liquides contaminés vers un système de traitement permettant d'atteindre les normes de rejet avant qu'ils soient ultimement retournés vers l'environnement.



Figure 2 - Configuration type d'un système d'imperméabilisation et de drainage des lixiviats d'un LET [produite sur la base des informations de WSP (2016) et de Valoris (2020)]

Les matières résiduelles qui ont été étendues et compactées doivent être recouvertes d'une couche de sol ou d'autres matériaux prévus au REIMR, et ce à la fin de chaque journée (MELCC, 2020). Si cette technique ne permet pas d'éviter la production de lixiviat et de gaz d'enfouissement par la dégradation de la matière organique en condition anaérobie, elle permet néanmoins de limiter certaines problématiques, telles que les odeurs désagréables, les risques d'incendie, les problèmes en lien avec les animaux ou les insectes indésirables, ainsi que le déplacement de matières trop légères sous l'effet du vent (MELCC, 2020).

### 1.2 Lixiviats

La formation des lixiviats a lieu principalement lors du contact de l'eau issu des précipitations (pluie/neige) avec les matières résiduelles enfouies. L'eau est aussi un produit de la dégradation de la matière organique présente dans les matières résiduelles. Les différents contaminants qui sont présents sous formes solubles et particulaires se retrouvent dans l'eau et cette dernière représente alors un potentiel important de pollution des nappes d'eau souterraine et de surface. Ils doivent donc être traités afin de diminuer les impacts sur le milieu récepteur.

#### 1.2.1 Composition des lixiviats

Les lixiviats sont des liquides complexes et leur composition, ainsi que le débit de production, sont très variables et influencés par divers paramètres : l'âge du site, les précipitations, les variations météorologiques saisonnières, le type de matières enfouies, les caractéristiques du site, entre autres (Renou *et al.*, 2008). Leur composition peut être divisée en quatre grandes catégories de constituants : les matières organiques dissoutes (exprimées en DCO par exemple), les macro-composés inorganiques (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup>, K<sup>+</sup>, etc.), les métaux lourds (Cu<sup>2+</sup>, Pb<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup>, etc.) et les composés organiques xénobiotiques (carbones aromatiques, pesticides, etc.) (Christensen *et al.*, 1994). Le Tableau 1 présente les gammes de concentration des différents polluants pouvant se retrouver dans les lixiviats. Les concentrations des polluants sont souvent exprimées sous forme d'intervalles puisque leurs valeurs peuvent être très différentes d'un site à l'autre, ainsi qu'au sein d'un même site.

Paramètres	Unités	Gamme de valeurs		
рН	-	4,5 - 9,0		
Solides totaux	mg/L	2 000 – 60 000		
Demande biochimique en oxygène pour 5 jours (DBO₅)	mg/L	20 – 57 000		
Demande chimique en oxygène (DCO)	mg/L	140 – 152 000		
DBO₅/DCO (ratio)	-	0,02 - 0,80		
Azote ammoniacal (N-NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> )	mg/L	50 – 2 200		
Phosphore total (P <sub>total</sub> )	mg/L	0,1 - 23		
Zinc (Zn)	mg/L	0,03 – 1 000		

Tableau 1 - Gamme de concentrations de différents polluants des lixiviats [traduit et modifié de Christensen et al. (1994)]

Comme il a été mentionné précédemment, l'âge du site a un impact considérable sur la composition des lixiviats. La Figure 3 présente l'évolution des concentrations de divers contaminants types des lixiviats en fonction du temps selon les différentes phases pouvant être observées dans les sites d'enfouissement. Il faut savoir que les phases V à VIII sont issues de prédictions qui se basent sur la théorie puisque les sites d'enfouissement qui sont suffisamment documentés étaient âgés de moins de 30 ans ou étaient encore à la phase V, soit la phase de méthanogénèse stable au moment de la publication de la référence.



Figure 3 - Évolution de la composition des lixiviats en fonction du temps [traduite et adaptée de Laner (2011), basée sur Kjeldsen et al. (2002)]

La phase aérobie est rapide et les lixiviats issus de cette étape sont reliés à l'humidité présente dans les déchets qui est extraite lors de la compaction. L'absence d'oxygène mène par la suite à des conditions anaérobies qui favorisent des réactions de fermentation (phase acide), d'où il y aura une diminution du pH (Kjeldsen *et al.*, 2002). À cette étape, les jeunes lixiviats sont caractérisés par des concentrations élevées en matières organiques (Ehrig, 1983), dont majoritairement des acides gras volatiles (Christensen *et al.*, 1994; Harmsen, 1983). Ainsi, une grande partie de la matière organique est facilement biodégradable et un ratio DBO<sub>5</sub>/DCO élevé est observé (Harmsen, 1983). Ce ratio, qui reflète le caractère biodégradable de la matière organique, varie dans la littérature, mais des valeurs supérieures à 0,3 sont répertoriées en général pour de jeunes lixiviats (Kjeldsen *et al.*, 2002; Renou *et al.*, 2008). Durant cette phase, la diminution du pH par la production d'AGV contribue à modifier la spéciation de certains composés (Kjeldsen *et al.*, 2002) : le calcium, le fer et certains métaux, tels que le manganèse et le zinc passeront en phase soluble et se retrouveront dans les lixiviats (Ehrig, 1983). Cependant, lors de la phase méthanogène initiale, où les AGV sont convertis graduellement en produits intermédiaires de la méthanogénèse, le pH augmentera et les composés énoncés précédemment seront à nouveau précipités, d'où la diminution de la concentration des métaux lourds observée à la Figure 3 (Kjeldsen *et al.*, 2002).

Dans la phase méthanogène stable, c'est-à-dire lorsque les lixiviats deviennent plus matures, le pH augmente pour atteindre un état stationnaire et le ratio DBO<sub>5</sub>/DCO diminue (Christensen *et al.*, 1994; Ehrig, 1983). Pour des lixiviats matures, le ratio DBO<sub>5</sub>/DCO se situe habituellement en dessous de 0,1 (Kjeldsen *et al.*, 2002; Renou *et al.*, 2008). Effectivement, à ce stade, les AGV ont été convertis en CH<sub>4</sub> et en CO<sub>2</sub> par les méthanogènes et il ne reste donc que la matière organique difficilement biodégradable, communément appelé matière réfractaire ou matière récalcitrante. Ces produits finaux de dégradation sont en majorité des acides humiques et fulviques (Harmsen, 1983).

#### 1.2.1.1 L'azote des lixiviats

L'azote dans les lixiviats se retrouve majoritairement sous forme NH4\* et se situe habituellement dans une gamme de concentration de 500 à 2000 mgN/L (Kjeldsen et al., 2002). Ce composé est principalement issu de l'ammonification des protéines et acides aminés contenus dans la matière organique. Il s'agit d'un processus qui peut être effectué autant en conditions aérobie et anaérobie (Cossu et Stegmann, 2019) donc durant toutes les phases de dégradation observées. Dans le contexte d'un site d'enfouissement, seulement trois mécanismes permettent de faire l'enlèvement de l'azote sous forme NH<sub>3(g)</sub> - NH<sub>4<sup>+</sup>(aq)</sub>: la volatilisation, la nitrification et la lixiviation (Cossu et Stegmann, 2019). En revanche, des trois mécanismes pouvant agir sur l'azote, seule la lixiviation peut survenir dans des conditions anaérobies (Burton et Watson-Craik, 1998; Cossu et Stegmann, 2019). La formation de NH<sub>3</sub> sous forme de gaz survient à un pH supérieur à 8,5, ce qui signifie donc que la majorité de l'azote est généralement sous sa forme ionisée (Cossu & Stegmann, 2019). Comme il n'y a pas d'aération, les émissions de NH<sub>3</sub> en lien avec la volatilisation sont négligeables (Cossu et Stegmann, 2019). Pour ce qui est de la nitrification, comme cette réaction nécessite la présence d'oxygène en quantité suffisante (Cossu & Stegmann, 2019), elle pourra seulement avoir lieu lorsque le site d'enfouissement deviendra aérobie (Kjeldsen et al., 2002), soit à partir de la phase VI. Ainsi, contrairement à la charge carbonée qui diminue de manière marquée dans le temps, l'azote perdure dans les lixiviats et sa concentration demeure relativement stable pendant longtemps : une étude effectuée sur 50 sites d'enfouissement en Allemagne a montré qu'il n'y a pas eu de diminution significative des concentrations d'azote, et ce même 30 ans après leurs fermetures (Ehrig, 1983; Kjeldsen et al., 2002). L'azote a été qualifié par plusieurs (Burton et Watson-Craik, 1998; Cossu et Stegmann, 2019; Kjeldsen et al., 2002) comme le constituant d'intérêt majeur provenant des lixiviats des sites d'enfouissement sur un horizon à long terme.

#### 1.2.2 Normes de rejet des lixiviats

Le REIMR (Q-2, r. 19) dicte les normes de rejet des lixiviats à l'environnement après traitement au Québec. Ces dernières sont présentées au Tableau 2.

Paramètres – Substances	Unités	Valeurs limites	Valeurs limites moyennes mensuelles*		
Azote ammoniacal (NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> )	mgN/L	25	10		
Coliformes fécaux	U.F.C./100 mL	-	1000		
Composés phénoliques	mg/L	0,085	0,030		
Demande biochimique en oxygène sur 5 jours (DBO₅)	mg/L	150	65		
Matières en suspension (MES)	mg/L	90	35		
Zinc (Zn)	mg/L	0,17	0,07		
рН	-	6,0 < pH < 9,5			

Tableau 2 - Normes de rejet des lixiviats des sites d'enfouissement au Québec [adapté de MELCC (2020)]

\*Moyenne arithmétique, sauf pour les coliformes fécaux (moyenne géométrique)

Considérant les valeurs des différents polluants présentés au Tableau 1, il apparait qu'un travail important est à faire afin de rencontrer les normes du REIMR pour le rejet à l'environnement.

Outre ces normes qui s'appliquent à l'ensemble des sites d'élimination des matières résiduelles régies par le REIMR, différents paramètres ou substances pourraient faire l'objet de mesures ou d'analyses suivant les recommandations du Ministère de l'Environnement et de nouvelles valeurs limites peuvent être implantées ou remplacées celles déjà en place selon la nature des déchets éliminés et les contaminants potentiels qui s'y rattachent (MDDEFP, 2012). Pour tout projet en lien avec l'environnement, des objectifs environnementaux de rejets (OER) sont calculés pour chaque source de contaminants. Le but est de déterminer les concentrations et les charges des divers contaminants pouvant être envoyées à l'environnement en fonction des caractéristiques du milieu récepteur et du niveau de qualité nécessaire au maintien des usages de l'eau. Cet exercice permet de s'assurer que les rejets existants ou prévus ne portent pas préjudice aux usages de l'eau et qu'ils sont acceptables d'un point de vue environnemental : des actions supplémentaires peuvent être apportées ou des projets peuvent être modifiés en ce sens (MDDEP, 2007).

Les normes de rejet pour les lixiviats diffèrent d'un endroit à l'autre. Le Tableau 3 montre les normes de rejet des lixiviats traités issus du stockage des déchets non dangereux. Une sélection de quelques paramètres d'intérêt a été faite.

	États-Unis <sup>(1)</sup>		France <sup>(2)</sup>		Allemagne <sup>(3)</sup>
Paramètres normés	Maximum journalier	Moyenne mensuelle	Flux journalier	Valeur limite	Valeur limite
	mg/L	mg/L	kg/j	mg/L	mg/L
DBO	140	27	< 30	100	20
	140	51	≥ 30	30	
DCO	-	-	< 100	300	200
DCO			≥ 100	125	
СОТ	-	-	-	70	-
MES	88	27	< 15	100	-
ME5			≥ 15	35	
N-NH₄⁺	10	4,9	-	-	-
N-NO <sub>2</sub> -	-	-	-	-	2
Ntot (Norg, NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> )	-	-	> 50	30	-
Ntot (NH4 <sup>+</sup> , NO2 <sup>-</sup> , NO3 <sup>-</sup> )	-	-	-	-	70
Ptot	-	-	> 15	10	3
Phénol	0,026	0,015	-	-	-
Composés phénoliques	-	-	> 0,001	0,1	-
Zinc	0,2	0,11	> 0,005	0,5	2
pH*	6 < pH < 9 *		-	-	-

Tableau 3 - Normes de rejet des lixiviats traités issus du stockage des déchets non dangereux (sélection de quelques paramètres d'intérêt)

\*Le pH ne possède pas d'unités

<sup>(1)</sup> (U.S. Federal Government, 2020)

<sup>(2)</sup> (Ministère de la Transition écologique et solidaire, 2017)

<sup>(3)</sup> (Stegmann *et al.*, 2005) toujours en vigueur selon le site web du Ministère fédéral de la justice et de la protection des consommateurs (Bundesministerium der Justiz und für Verbraucherschutz, 2004)

#### 1.2.2.1 Les rejets d'azote

Comme il est mentionné au Tableau 2, au Québec, le REIMR prévoit une limite de rejet de l'azote basée uniquement sur une concentration en NH<sub>4</sub><sup>+</sup> (MELCC, 2020). Habituellement, le NH<sub>4</sub><sup>+</sup> est éliminé par la réaction de nitrification qui consiste à oxyder le NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en NO<sub>2</sub><sup>-</sup> puis en NO<sub>3</sub><sup>-</sup> en condition aérobie, soit en présence d'oxygène. Bien que les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> soient beaucoup moins toxiques que le NH<sub>4</sub><sup>+</sup> et les NO<sub>2</sub><sup>-</sup> (Conseil canadien des ministres de l'environnement, 2012), il n'en demeure pas moins que les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> restent une source de rejet en azote dans l'environnement et que cela peut causer des effets néfastes. Effectivement, couplé au phosphore, l'azote mène à une eutrophisation accélérée des milieux aquatiques (Elser *et al.*, 2007; MDDELCC, 2017). L'eutrophisation au sein des milieux marins et côtiers est aussi bien documentée (Elser *et al.*, 2007; Howarth, 2008; Rabalais *et al.*, 2009). Cette eutrophisation provoque diverses répercussions, telles que la diminution de l'oxygène disponible (hypoxie et anoxie), la dégradation de l'habitat, la perte de biodiversité et la prolifération d'algues nuisibles entre autres (Howarth, 2008; Rabalais *et al.*, 2009).

Il est possible d'observer au Tableau 3 que tout comme au Québec, la norme de rejet aux États-Unis se base sur le NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, alors que la France et l'Allemagne se basent plutôt sur les rejets en azote total. La norme française se base sur la somme de l'azote organique, du NH<sub>4</sub><sup>+</sup> et de l'azote oxydé (NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>), alors que la norme allemande se base sur la somme du NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, des NO<sub>2</sub><sup>-</sup> et du NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Ainsi, l'azote, sous toutes ses formes, semble être un constituant d'intérêt pour le retour des eaux traitées à l'environnement.

#### 1.2.3 Traitement des lixiviats

Comme mentionné précédemment, les lixiviats sont des liquides très chargés en divers contaminants et nécessitent un traitement avant le rejet à l'environnement. Une option parfois envisagée est l'acheminement des lixiviats vers le réseau d'égout municipal afin que ces derniers soient traités avec les eaux usées municipales. Bien que cette technique ne représente pas en soi un traitement direct des lixiviats, cette option peut s'avérer avantageuse en termes de coût et de maintenance, mais peut aussi représenter des difficultés en raison de la complexité des lixiviats. Outre cette pratique, il est possible de retrouver plusieurs types de traitement in situ pour les lixiviats qui peuvent être classés dans deux grandes catégories : les traitements physico-chimiques et les traitements biologiques. Les traitements physico-chimiques, tels que la flottation, la coagulation-floculation, la précipitation chimique, l'adsorption, l'oxydation chimique et la volatilisation (stripping), permettent le traitement des composés réfractaires et moins biodégradables. Les traitements biologiques séquentiels ou encore la biofiltration, sont de bonnes alternatives pour le traitement des matières facilement biológiquaties ou encore la biofiltration, sont de bonnes alternatives pour le traitement des matières facilement biológiquables, du NH<sub>4</sub>+ et des métaux lourds (Renou *et al.*, 2008).

#### 1.2.3.1 La biofiltration des lixiviats

La biofiltration est un procédé biologique qui permet l'épuration des eaux via un consortium dense de microorganismes, appelé biofilm, fixé à un média filtrant. Dans la biofiltration aérobie, les polluants, tels que la DBO et l'azote, sont éliminés via l'oxydation biologique alors que les particules solides ou colloïdales sont enlevées via des processus physiques d'adsorption et de filtration (Metcalf & Eddy Inc., 2003). La biodégradation des polluants est effectuée via le biofilm, qui est issu de la production de substances polymériques extracellulaires (SPE) par les microorganismes. Durant le passage dans le biofiltre, les polluants contenus dans les eaux usées sont retenus à la surface des SPE et peuvent diffuser à l'intérieur du biofilm, où les bactéries dégraderont la matière biodégradable pour remplir leurs besoins métaboliques. En ce qui concerne les processus physico-chimiques, ces derniers sont plutôt fonction du garnissage utilisé pour le lit filtrant. Les médias organiques (tourbe, compost, charbon actif, etc.) favorisent la rétention des substats via des groupements fonctionnels en surface alors que les médias minéraux ont surtout l'avantage de présenter de grandes surfaces spécifiques permettant au biofilm de se développer (Dia, 2017).

Le système BIOSOR<sup>MD</sup>, système de biofiltration breveté présenté à la Figure 4, a été développé à IQ-CRIQ il y a quelques années déjà. Le montage expérimental du présent projet est d'ailleurs basé sur ce système.



Figure 4 – Schéma du procédé BIOSOR<sup>MD</sup>

Le système est composé d'un bassin contenant un média filtrant fait, entre autres, d'un mélange de tourbe et de copeaux de bois. L'alimentation du biofiltre se fait à contre-courant : les liquides à traiter sont ajoutés au système et percolent par gravité avant d'être captés à la base du biofiltre, alors que les gaz sont injectés à la base du biofiltre et remontent vers la surface. La tourbe permet d'obtenir une assez grande surface spécifique pour l'établissement d'un biofilm et possède une bonne capacité de filtration. Les copeaux de bois quant à eux permettent d'avoir une structure plus solide afin de réduire la compaction et les problèmes de colmatage du biofiltre. Un agent calcifiant est habituellement ajouté au garnissage afin d'augmenter le pouvoir tampon du milieu et éviter les variations de pH au cours du traitement (Dia, 2017).

Le BIOSOR<sup>MD</sup> a été utilisé pour différentes applications, mais les travaux de Boucher (2011) ont pu montrer la capacité du système à traiter les eaux de lixiviation des sites d'enfouissement. Effectivement, les valeurs d'abattement de la DBO<sub>5</sub>, du N-NH<sub>4</sub><sup>+</sup> et des MES ont été de 99 %, 99 % et 95 % respectivement sur une période continue de 300 jours, ce qui permettait d'atteindre les normes de rejet du REIMR de ces paramètres. Pour ce qui est du captage des métaux (zinc), un système de captage subséquent a été envisagé. Le charbon activé et

les coquilles de mollusques sont les deux médias étudiés qui ont montré les meilleures capacités de captage du zinc lors des expérimentations, un des objectifs de l'étude étant l'élimination des métaux dans les lixiviats.

De manière conventionnelle, les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> peuvent être traitées par dénitrification en condition anoxie suivant une cascade de réactions. Les bactéries dénitrifiantes utilisent l'oxygène des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> et des NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, d'où les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> seront réduits en NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, puis en NO. Les NO sont ensuite réduits à leur tour en N<sub>2</sub>O gazeux et finalement en N<sub>2</sub> gazeux. Cette transformation nécessite la présence de carbone organique, qui doit être supplémenté au besoin si la matière organique n'est pas présente en assez grande quantité, et la présence d'une zone anoxie (Metcalf & Eddy Inc., 2003).

#### 1.3 Gaz d'enfouissement

#### 1.3.1 Formation et composition des gaz d'enfouissement

#### 1.3.1.1 Formation des gaz d'enfouissement : digestion anaérobie

Les gaz d'enfouissement, aussi appelés biogaz, sont issus de la dégradation anaérobie de la matière organique présente dans les matières résiduelles enfouies par un grand consortium de bactéries. Quatre grandes phases mènent à la production des biogaz, où différents mécanismes chimiques et biologiques interviennent : l'hydrolyse, l'acidogénèse, l'acétogénèse et la méthanogénèse (Cossu et Stegmann, 2019; Moletta, 2011; Nayono, 2010). La Figure 5 montre un schéma de ce processus, communément appelé digestion anaérobie ou méthanisation.



Figure 5 – Digestion anaérobie menant à la production de biogaz [traduite et modifiée de Nayono (2010)]

La première étape, l'hydrolyse, permet de scinder les polymères, de grosses molécules complexes composant la matière organique, en monomères simples solubles à l'aide d'enzymes hydrolytiques, telles que la protéase, la cellulase, l'amylase et la lipase par exemple (Cossu et Stegmann, 2019; Nayono, 2010).

Ensuite, lors de l'acidogénèse, les microorganismes acidogènes (fermentaires anaérobies ou anaérobies facultatifs) utilisent les produits de l'étape précédente pour former des acides gras volatiles (AGV), des alcools organiques, ainsi que de l'hydrogène (H<sub>2</sub>) et du CO<sub>2</sub> (Cossu et Stegmann, 2019; Moletta, 2011).

L'étape suivante, l'acétogénèse, permet de former de l'acide acétique (acétate), du CO<sub>2</sub> et du H<sub>2</sub> principalement. Elle peut être effectuée par deux types de bactéries : les acétogènes syntrophes, productrices obligées d'H<sub>2</sub>, et les homoacétogènes (Moletta, 2011). Les acétogènes syntrophes produisent de l'acide acétique et de l'H<sub>2</sub> à partir des AGV. Il faut savoir que cette transformation par les bactéries syntrophes nécessite des pressions partielles faibles en H<sub>2</sub> au sein du milieu. Elles doivent donc être en association syntrophique avec d'autres bactéries qui consomment de l'H<sub>2</sub>, dont les méthanogènes hydrogénotrophes, sans quoi la conversion des AGV cesserait (Cossu et Stegmann, 2019; Moletta, 2011). Les homoacétogènes peuvent aussi contribuer à conserver cet équilibre : elles produisent de l'acétate à partir de l'H<sub>2</sub> et du CO<sub>2</sub> (Moletta, 2011). Finalement, la dernière étape, la méthanogénèse, qui mène en définitive à la production de CH<sub>4</sub>, est complétée par des microorganismes opérants dans des conditions d'anaérobie (Cossu et Stegmann, 2019; Metcalf & Eddy Inc., 2003; Moletta, 2011). Deux types de méthanogènes mènent à la production de CH<sub>4</sub> : les méthanogènes hydrogénophiles et les méthanogènes acétoclastes. Les premières utilisent le H<sub>2</sub> et le CO<sub>2</sub> pour former du CH<sub>4</sub> et de l'eau (H<sub>2</sub>O), alors que les deuxièmes utilisent l'acétate pour former du CH<sub>4</sub> et du CO<sub>2</sub> (Cossu et Stegmann, 2019; Moletta, 2011). Il est estimé qu'environ 70 % du CH<sub>4</sub> est produit via les acétoclastes alors que 30 % seraient produits via des hydrogénophiles (Metcalf & Eddy Inc., 2003; Moletta, 2011).

#### 1.3.1.2 Composition des gaz d'enfouissement

Comme il est possible de voir dans le schéma de la Figure 5, les biogaz sont majoritairement formés de CH<sub>4</sub> et de CO<sub>2</sub>, mais contiennent aussi en moindre quantité de l'azote, de l'oxygène, de l'ammoniaque, des composés sulfurés (sulfure d'hydrogène, mercaptans et thiols), de l'hydrogène, du monoxyde de carbone et d'autres composés en traces (Nikiema *et al.*, 2007). La composition des gaz d'enfouissement est variable et dépend principalement du type de déchets enfouis et de l'âge du site selon Nikiema *et al.* (2007). Cette revue de littérature rapporte d'ailleurs des concentrations de CH<sub>4</sub> de 30 à 70 % et des concentrations de CO<sub>2</sub> de 20 à 50 %. Des concentrations variant entre 50 à 55 % de CH<sub>4</sub> et 40 à 45 % de CO<sub>2</sub> sont rapportées par Scheutz *et al.* (2009). La nature des composés en traces dépend grandement du type de déchets enfouis. De 120 à 150 composés en traces sont habituellement contenus dans les gaz d'enfouissement et représentent un total d'environ 1 % en volume de la composition des gaz d'enfouissement (Parker *et al.*, 2002).

La Figure 6 présente l'évolution de la composition des gaz d'enfouissement au fil du temps. Encore une fois, il est à noter que les phases V à VIII sont issues d'hypothèses qui se basent sur la théorie : les sites d'enfouissement qui sont suivis de manière rigoureuse avaient moins de 30 ans ou étaient toujours dans la phase de méthanogénèse stable (phase V) au moment de la publication de la référence.



Figure 6 - Évolution de la composition des gaz d'enfouissement en fonction du temps [traduite et adaptée de Laner (2011) basée sur Kjeldsen et al. (2002)]

La phase aérobie (phase I) s'étend de quelques jours à quelques mois : après que les matières aient été enfouies et recouvertes, le peu d'oxygène emprisonné dans les vides de l'amas de déchet est consommé par les bactéries aérobies qui scindent la matière organique facilement dégradable en composés plus petits, d'où il y a production majoritairement de CO<sub>2</sub> (Cossu et Stegmann, 2019; Kjeldsen *et al.*, 2002). Le CO<sub>2</sub> produit prend alors la place de l'oxygène (O<sub>2</sub>) et de l'azote (N<sub>2</sub>) dans les vides (Cossu et Stegmann, 2019). Dans les phases II et III, la production de gaz d'enfouissement prend place par le processus de méthanisation expliqué à la section 1.3.1.1. À la phase IV, la production de biogaz se stabilise, atteint son maximum et commence par la suite à diminuer en raison de la diminution de la disponibilité des substrats issus de la matière organique (Kjeldsen *et al.*, 2002). Il faudra cependant plusieurs décennies avant que la majorité de la matière organique soit dégradée et que la production de biogaz cesse (Scheutz et al., 2009).

Par la suite, selon des prédictions théoriques, l'oxydation du CH<sub>4</sub> pourrait avoir lieu dans des zones où l'air pourrait pénétrer, c'est-à-dire à la surface ou encore près des systèmes d'extraction des gaz. Ainsi, les concentrations en azote augmenteraient alors que l'oxygène serait consommé rapidement (Kjeldsen *et al.*, 2002). L'intrusion d'air de manière plus étendue serait ensuite rendue possible en raison de la diminution du taux de production de CH<sub>4</sub> et elle s'accentuerait avec le temps. La concentration du CO<sub>2</sub> augmenterait dans la phase VI puisque c'est un produit de l'oxydation du CH<sub>4</sub>. Aussi, des composés issus de la matière organique, qui ne sont pas dégradables de manière anaérobie, seraient oxydés et formeraient du CO<sub>2</sub> (Cossu et Stegmann, 2019; Kjeldsen *et al.*, 2002). Ultimement, c'est-à-dire dans plusieurs centaines d'années, lors de la phase VIII,

la composition de l'air et des gaz d'enfouissement deviendrait similaire (Bozkurt *et al.*, 1999; Cossu et Stegmann, 2019; Kjeldsen *et al.*, 2002).

#### 1.3.2 Norme sur le rejet des gaz d'enfouissement

Au Québec, selon le REIMR, les LET doivent être munis d'un système de captage des biogaz afin que ces derniers soient rejetés à l'environnement ou encore éliminés ou valorisés afin de respecter les valeurs limites. Si le LET qui possède une capacité plus grande ou égale à 1 500 000 m<sup>3</sup> ou si 50 000 tonnes et plus de matières résiduelles par année sont enfouies au LET, ce dernier doit être munis d'un dispositif mécanique d'aspiration (sauf exception) dans l'objectif que les gaz d'enfouissement recueillis soient éliminés ou valorisés. Dans le cas où ces biogaz sont éliminés, un procédé de destruction, souvent thermique, doit être utilisé, tant et aussi longtemps que la concentration en CH<sub>4</sub> des biogaz produits par les matières résiduelles enfouies est supérieure à 25 % en volume (MELCC, 2020). Lorsque la concentration en CH<sub>4</sub> des biogaz chute sous les 25 % en volume, ces derniers peuvent être rejetés directement à l'environnement.

#### **1.3.3 Traitement du CH**<sub>4</sub> par biofiltration

La biofiltration pour le traitement de l'air est un sujet qui a été étudié à maintes reprises. La littérature rapporte un grand nombre de publications sur l'oxydation biologique du CH<sub>4</sub>, soit par biofiltration ou par biorecouvrement d'oxydation passive du CH<sub>4</sub> (La *et al.*, 2018; Nikiema *et al.*, 2007; Scheutz *et al.*, 2009). Chacun d'eux a des avantages et des inconvénients. Bien que les biorecouvrements permettent le traitement des émissions fugitives de CH<sub>4</sub>, peu de paramètres opérationnels peuvent être contrôlés, ce qui limite l'optimisation du procédé qui ne peut être ajusté en fonction des observations et des résultats obtenus (Scheutz *et al.*, 2009).

Le principe de biofiltration pour le traitement du CH<sub>4</sub> demeure semblable à celui pour les lixiviats. Effectivement, l'air contaminé est injecté dans le biofiltre qui contient un média filtrant poreux humide où les microorganismes se développent et sont capables de dégrader divers contaminants. La croissance des microorganismes permet l'établissement d'un biofilm sur la structure du média d'où la biomasse est fixée dans le biofiltre. L'oxygène et le CH<sub>4</sub> sont transportés par diffusion dans le biofilm, où le CH<sub>4</sub> est ultimement oxydé par les bactéries méthanotrophes pour former du CO<sub>2</sub>, de l'eau, des sels et de la biomasse qui sont moins dommageables pour l'environnement. Le temps de résidence en fût vide (EBRT), c'est-à-dire le temps de résidence en absence d'un garnissage, pour un biofiltre traitant le CH<sub>4</sub> varie de quelques minutes à plusieurs heures étant donné la faible solubilité du CH<sub>4</sub> dans l'eau (Nikiema *et al.*, 2007).

Les procédés biologiques d'oxydation du CH<sub>4</sub> utilisent des médias organiques, tels que les composts par exemple, qui contiennent déjà les nutriments nécessaires à la croissance bactérienne ou encore des médias inorganiques auxquels les nutriments sont ajoutés via une solution nutritive. L'avantage des médias organiques

se trouve surtout au niveau du coût et de l'accessibilité, de la possibilité d'avoir une population méthanotrophe déjà présente et de la disponibilité des nutriments à même le garnissage. Cependant, ils peuvent aussi contenir certains inhibiteurs. Les médias inorganiques ont l'avantage d'offrir une distribution plus homogène des gaz, ainsi qu'une résistance mécanique plus grande permettant d'éviter un entassement prématuré du garnissage et d'allonger la durée de vie du biofiltre (Nikiema et Heitz, 2010).

Peu importe le média utilisé, certaines caractéristiques doivent être prises en considération afin d'assurer un fonctionnement plus optimal du biofiltre : capacité à accueillir une communauté microbienne en conservant une structure poreuse permettant la diffusion des gaz, présence d'une grande surface spécifique pour permettre la diffusion des contaminants, des nutriments et de l'oxygène, capacité à retenir l'humidité, capacité de soutient de la structure du biofiltre permettant d'éviter un tassement trop important (Jorio et Heitz, 1999).

L'humidité constitue un paramètre important puisqu'elle est nécessaire au métabolisme des microorganismes. De manière générale, le taux d'humidité du média filtrant devrait être maintenu entre 40 et 60% par rapport à la masse humide (Jorio et Heitz, 1999). Un taux d'humidité trop élevé rend le passage de l'air et le transfert gazeux plus difficile : la porosité du lit filtrant ainsi que la surface disponible pour le transfert des gaz vers le biofilm diminuent. Ce transfert peut être d'autant plus difficile considérant que le CH<sub>4</sub> est peu soluble dans l'eau. Un excès d'humidité peut aussi mener à la création de zones anaérobies. Au contraire, un taux d'humidité trop faible entraîne une réduction considérable de l'activité biologique et donc une réduction du taux d'oxydation. Si l'air n'est pas suffisamment humide, son passage dans le biofiltre peut provoquer un assèchement du milieu filtrant. Il faut donc prévoir une aspersion du lit filtrant ou d'humidification du gaz entrant afin de maintenir un taux d'humidité adéquat (Metcalf & Eddy Inc., 2003; Nikiema *et al.*, 2007; Scheutz *et al.*, 2009).

### 1.4 Bactéries méthanotrophes

Les bactéries méthanotrophes se retrouvent naturellement dans les sites d'enfouissement. En présence d'O<sub>2</sub>, les bactéries méthanotrophes sont capables d'oxyder le CH<sub>4</sub> en CO<sub>2</sub> via une cascade de réactions consécutives.

Les bactéries méthanotrophes font partie du sous-groupe des méthylotrophes. La particularité des méthanotrophes se trouve dans leur capacité à utiliser le CH<sub>4</sub> comme source de carbone et d'énergie. La Figure 7 montre les diverses voies du métabolisme des méthanotrophes aérobies.



Figure 7 - Cascade de réactions pour l'oxydation du CH<sub>4</sub> en CO<sub>2</sub> par les bactéries méthanotrophes aérobies [traduite et adaptée de Hanson et Hanson (1996)]

Premièrement, la production de l'enzyme méthane monooxygénase (MMO), caractéristique propre aux bactéries méthanotrophes aérobies, permet de déclencher la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub> en méthanol (CH<sub>3</sub>OH). L'enzyme MMO peut être retrouvée sous deux formes, la forme particulaire (pMMO) et la forme soluble (sMMO). Excepté les genres Methylocella et Methyloferula qui expriment la MMO seulement sous la forme soluble, toutes les bactéries méthanotrophes aérobies sont capables d'exprimer la forme particulaire de la MMO (Hanson et Hanson, 1996; Vorobev et al., 2011). Certaines bactéries méthanotrophes sont capables d'exprimer les deux formes de la MMO, mais, dans ce cas, la forme soluble ne sera exprimée que lorsqu'une carence en cuivre est présente dans le milieu de culture (Hanson et Hanson, 1996). Par la suite, le méthanol est oxydé en formaldéhyde (HCHO) via l'enzyme méthanol déshydrogénase (MDH). Le HCHO est l'intermédiaire central du métabolisme des méthanotrophes. D'une part, le HCHO peut être oxydé en acide formique (HCOOH) via l'enzyme formaldéhyde déshydrogénase (FADH), avant que le HCOOH soit lui aussi oxydé en CO<sub>2</sub> via la formate déshydrogénase (FDH) pour la production d'énergie (catabolisme). D'une autre part, le HCHO peut être assimilé et ainsi contribuer à la synthèse de matière cellulaire (anabolisme) via deux voies : la voie du ribulose monophosphate (RuMP) ou la voie de la sérine (Hanson et Hanson, 1996; Rosenberg et al., 2013). Les méthanotrophes sont couramment classés en deux sous-groupes, soit les méthanotrophes de type I et les méthanotrophes de type II. La voie métabolique par laquelle l'assimilation du HCHO est effectuée est une des caractéristiques qui distingue les deux grands types de méthanotrophes. De manière générale, le type I utilise la voie du RuMP alors que le type II utilise la voie de la sérine (Hanson et Hanson, 1996).

#### 1.4.1 Besoins nutritionnels et conditions de croissance

La croissance des bactéries méthanotrophes nécessitent du CH<sub>4</sub> et de l'oxygène, mais aussi plusieurs autres nutriments, dont particulièrement de l'azote et du phosphore en raison de leur importance dans la masse cellulaire des microorganismes (Hanson et Hanson, 1996; Jewell *et al.*, 1992; Khabiri *et al.*, 2020). Le cuivre est souvent ajouté à cette liste puisqu'il a une influence sur la synthèse de l'enzyme MMO (Hanson et Hanson, 1996) et sur le cycle d'assimilation du HCHO par les méthanotrophes (Nikiema *et al.*, 2007). Outre ces composés, le soufre, divers éléments minéraux (potassium, calcium, fer) et oligo-éléments sont nécessaires (Metcalf & Eddy Inc., 2003; Nikiema *et al.*, 2005), mais semblent avoir un impact moindre sur la performance d'élimination du CH<sub>4</sub> (Nikiema *et al.*, 2010).

Le pH optimal pour les méthanotrophes se situe en général autour de la neutralité (Scheutz et Kjeldsen, 2004; Wang *et al.*, 2011). Un taux d'oxydation optimal a été observé à un pH entre 6,7 et 7,9 avec une diminution marquée de la capacité d'oxydation pour un pH inférieur à 6,4 ou supérieur à 8,7 dans une étude sur les biorecouvrements (Wang *et al.*, 2011).

En ce qui concerne les besoins en oxygène, Ménard *et al.* (2012) rapportent qu'au-delà d'une concentration de 3 % en  $O_2$  il n'y a pas de différence notable dans le taux d'oxydation du CH<sub>4</sub>, alors que le taux d'oxydation du CH<sub>4</sub> diminue grandement lorsque la concentration en  $O_2$  est inférieure à 3 %. Cependant, plusieurs facteurs peuvent limiter le transfert d'oxygène vers le biofilm, dont l'humidité, comme mentionné dans la section 1.3.3, et la présence de substances polymériques extracellulaires (SPE).

# 1.4.2 Influence de la température sur l'oxydation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes

La température est un des facteurs qui influence grandement l'activité biologique des bactéries : l'oxydation du CH<sub>4</sub> augmente avec la température jusqu'à l'atteinte d'un optimum. Les bactéries méthanotrophes sont majoritairement mésophiles, c'est-à-dire qu'elles ont des températures optimales de croissance qui se situent autour de 25 à 35 °C dans les sols (Hanson et Hanson, 1996). Cependant, certaines bactéries méthanotrophes sont aussi psychrophiles, c'est-à-dire qu'elles ont des optimums de croissance inférieurs à 20 °C (Hanson et Hanson, 1996).

Plusieurs études ont été effectuées quant à l'influence de la température sur l'oxydation du CH<sub>4</sub> particulièrement dans le domaine des biorecouvrements autant sur le terrain qu'en laboratoire. Börjesson *et al.* (2004) rapportaient que tous les organismes méthanotrophes psychrophiles isolés jusqu'à ce jour étaient des méthanotrophes de type I. Lors d'une étude en laboratoire par incubation avec trois sols de recouvrements de

sites d'enfouissement, seuls les méthanotrophes de type I ont été capables de croitre à des températures de 3 à 10 °C, alors que les deux types (I et II) ont été capables de croitre à 20 °C (Börjesson *et al.*, 2004).

Dans les expérimentations de Scheutz et Kjeldsen (2004), l'oxydation du CH<sub>4</sub> a augmenté de manière exponentielle pour des températures variant de 2 à 25 °C, puis a atteint son maximum autour de 30 °C. À partir de 40 °C, le taux d'oxydation du CH<sub>4</sub> a diminué avant de devenir nul à une température de 50 °C. Un constat très semblable a été effectué par Wang *et al.* (2011). Il semble d'ailleurs que la teneur en humidité du sol soit un facteur environnemental important agissant de manière conjointe avec la température sur l'oxydation du CH<sub>4</sub> pour les procédés biologiques (Christopherson *et al.*, 2001; Christopherson *et al.*, 2000; Einola *et al.*, 2007; Scheutz et Kjeldsen, 2004).

L'étude de Christopherson *et al.* (2001) sur un site d'enfouissement au Danemark a montré une variation importante dans l'oxydation du CH<sub>4</sub> en fonction des saisons : des émissions de CH<sub>4</sub> plus importantes ont été enregistrées en hiver, alors qu'elles étaient nulles en été. L'absence d'émissions en été a été attribuée à l'oxydation biologique du CH<sub>4</sub> en raison des températures plus élevées qui favorisent l'activité méthanotrophe. Cependant, même en présence de température hivernale (température minimale de l'air enregistrée de -2 °C), une quantité importante de CH<sub>4</sub> était tout de même oxydée dans le sol. Dans une autre étude du même site, l'oxydation du CH<sub>4</sub> a été enregistrée avec des températures du sol de 2 °C (Christopherson *et al.*, 2000).

Gebert *et al.* (2003) ont observé que la température d'incubation à laquelle un média filtrant était enrichi avait un impact sur la population microbienne de méthanotrophes retrouvée : l'enrichissement du média filtrant à 10 °C a permis d'obtenir une population microbienne mieux adaptée à de basses températures. Il apparait donc justifié de penser que la composition de la population microbienne puisse changer sur le terrain en fonction des variations saisonnières de température et qu'un biofiltre pour le traitement du CH<sub>4</sub> puisse être opéré tout au long de l'année.

Einola *et al.* (2007) ont étudié l'effet de la température et du contenu en eau du sol d'un biorecouvrement. Sur toute la gamme de température qui s'étendait de 1 à 19 °C, l'oxydation du CH<sub>4</sub> a été observée. Une augmentation dans le taux d'oxydation a d'ailleurs été observée lors des incubations consécutives même à une température de 1 °C. Il a donc été conclu que les bactéries pouvaient bien croitre ou être activées même à des températures basses, ce qui semble confirmer la possibilité de réduire les émissions de CH<sub>4</sub> à l'aide des bactéries même dans des climats froids.

Cossu et Stegmann (2019) rapportent d'ailleurs que des études sur les biorecouvrements faits de composts ont permis d'observer des élévations de température significatives dans la couche active où l'oxydation du CH<sub>4</sub> avait

lieu durant des périodes froides. Dans ces conditions, les élévations de température sont bénéfiques pour l'oxydation du CH<sub>4</sub>, sachant que l'activité méthanotrophe augmente avec la température.

Les travaux de Turgeon *et al.* (2011) sur la biofiltration méthanotrophe à l'échelle pilote à IQ-CRIQ ont permis d'observer des températures internes de plus de 60 °C en octobre pour un biofiltre traitant le CH<sub>4</sub>. Au début du mois de novembre, une baisse de la température extérieure jumelée à un manque de solution nutritive a provoqué une diminution de la température interne à 25 °C et donc une diminution de la conversion du CH<sub>4</sub>. Cependant, le traitement a repris par la suite et des températures internes de 40 °C ont pu être observées à la fin du mois de novembre. Aussi, dans le cadre d'un projet pilote en collaboration avec la Ville de Québec (IQ-CRIQ, 2016), qui s'est échelonné sur la période d'octobre 2013 à septembre 2015, les capacités d'oxydation ont été maintenues autant en été qu'en hiver.

En somme, en se référant aux différentes études répertoriées dans la synthèse de Scheutz *et al.* (2009), l'oxydation du CH<sub>4</sub> est bien présente dans les environnements où le climat est froid, cependant, le taux d'oxydation est considérablement réduit en comparaison avec des températures d'un climat d'été. Le même constat a été fait plus récemment par Reddy *et al.* (2019). Les travaux effectués par IQ-CRIQ (2016) semblent, pour leur part, montrer que le traitement serait possible en hiver.

# 1.4.3 Influence du type d'azote sur l'oxydation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes

L'azote est un composé essentiel à la croissance des microorganismes en général et les méthanotrophes n'y font pas exception. Cependant, la littérature varie énormément en ce qui a trait à l'effet des concentrations en azote ainsi que l'effet des différentes formes d'azote (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, N<sub>2</sub>) sur l'oxydation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes.

Premièrement, bien que certaines bactéries méthanotrophes soient capables de fixer le N<sub>2</sub>, ce processus requiert beaucoup plus d'énergie que l'utilisation directe d'une source d'azote inorganique disponible (Anthony, 1982; Bodelier et Laanbroek, 2004; Scheutz *et al.*, 2009). Ainsi, la fixation du N<sub>2</sub> s'effectue seulement en absence d'azote inorganique disponible (Murrell et Dalton, 1983) et est principalement effectuée par les méthanotrophes de type II (Hanson et Hanson, 1996; Scheutz *et al.*, 2009). Pour ce qui est du NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, la littérature montre un effet d'inhibition sur l'oxydation du CH<sub>4</sub> (Hanson et Hanson, 1996; Nyerges et Stein, 2009). Si l'effet d'inhibition des NO<sub>2</sub><sup>-</sup> est clair dans la littérature, plusieurs discordances sont répertoriées quant à l'influence des NH<sub>4</sub><sup>+</sup> et des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> sur l'oxydation du CH<sub>4</sub>. La présence de NH<sub>4</sub><sup>+</sup> et de NO<sub>3</sub><sup>-</sup> peut stimuler ou inhiber le processus d'oxydation du CH<sub>4</sub> (Bodelier et Laanbroek, 2004) selon différents facteurs, tels que la concentration d'azote, la concentration de CH<sub>4</sub>, le pH, le type de méthanotrophes (Scheutz *et al.*, 2009). De manière standard, bien que le NH<sub>4</sub><sup>+</sup> constitue une source d'azote disponible pour les méthanotrophes, le NO<sub>3</sub><sup>-</sup> est souvent utilisé pour le
développement et le maintien des méthanotrophes en raison, entre autres, de l'inhibition compétitive de l'enzyme MMO par le NH<sub>4</sub><sup>+</sup> (Hanson et Hanson, 1996; Scheutz *et al.*, 2009; Whittenbury *et al.*, 1970). Par ailleurs, le NO<sub>2</sub><sup>-</sup> et l'hydroxylamine (NH<sub>2</sub>OH), qui sont des produits de la conversion du NH<sub>4</sub><sup>+</sup> par l'enzyme monooxygénase, peuvent être toxiques pour les bactéries méthanotrophes (Bodelier et Laanbroek, 2004; Nyerges et Stein, 2009).

Une étude de Veillette *et al.* (2011) sur un biofiltre en laboratoire a montré une diminution linéaire de l'efficacité d'enlèvement du CH<sub>4</sub> de 70 à 13 % en faisant varier les concentrations en NH<sub>4</sub>+ dans la solution nutritive de 0,1 à 0,5 gN-NH<sub>4</sub>+/L pour une charge de CH<sub>4</sub> à l'entrée de 20 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/h. Pour les NO<sub>3</sub>-, l'effet d'inhibition semble avoir été observé seulement par des effets osmotiques lorsque les concentrations en azote NO<sub>3</sub>- étaient élevées (Bodelier et Laanbroek, 2004; Scheutz *et al.*, 2009). Lors d'une expérimentation de Nikiema *et al.* (2005) avec un biofiltre à garnissage inorganique, l'augmentation de la concentration d'azote de 0,14 à 0,25 gN-NO<sub>3</sub>-/L dans la solution nutritive (à base de NaNO<sub>3</sub>) a provoqué une augmentation de la capacité d'élimination du CH<sub>4</sub> de 5,4 à 13,3 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/h, alors qu'un passage de 0,25 à 0,75 gN-NO<sub>3</sub>-/L a mené à une augmentation de la capacité d'élimination de la capacité d'élimination de la capacité d'élimination de 13,3 à 29,2 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/h pour une charge à l'entrée d'environ 65 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/h. Avec un garnissage organique à base de compost mature, la capacité d'élimination maximale du CH<sub>4</sub> a été de 12,5 g/m<sup>3</sup>/h avec une charge à l'entrée d'environ 65 g/m<sup>3</sup>/h et une concentration en NO<sub>3</sub><sup>-</sup> de 0,75 gN-NO<sub>3</sub>-/L dans la solution nutritive.

#### 1.4.4 Réaction exothermique et production de chaleur

La réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub> est exothermique, c'est-à-dire qu'elle produit un dégagement d'énergie sous forme de chaleur. L'Équation 1 présente la réaction simplifiée d'oxydation du CH<sub>4</sub> et l'énergie qui y est associée.

$$CH_4 + 2O_2 \rightarrow CO_2 + 2H_2O + Chaleur$$
  $\Delta G^\circ = -780 \frac{kJ}{mol \ CH_4}$  Équation 1

En se servant de la stœchiométrie de l'équation d'oxydation du CH<sub>4</sub>, il est possible de calculer, avec l'Équation 2, la quantité d'énergie potentielle pouvant être dégagée du système par la réaction. L'Équation 3, de la quantité de chaleur, permet ensuite de déterminer l'élévation potentielle de la température ( $\Delta$ T) de la masse liquide injectée (m<sub>eau</sub>) chaque jour en présumant qu'il n'y a aucune perte de chaleur.

$$\begin{aligned} Quantité \, d'énergie &= \ Q_{gaz} \cdot \frac{[CH_4](\% v/v)}{100} \cdot \frac{1}{VM@25^{\circ}C} \cdot \acute{E}_{dégagée} / mol \ CH_4 & \acute{E}quation \ 2 \\ Quantité \, de \ chaleur &= \ m_{H_2O} \cdot c_{eau} \cdot \Delta T & \acute{E}quation \ 3 \end{aligned}$$

Dans les calculs, il est considéré que la capacité thermique massique ( $c_{eau}$ ) des lixiviats est égale à celle de l'eau (4,19 kJ/kg.°C) et que tout le CH<sub>4</sub> injecté dans le réacteur est oxydé. Le volume molaire (VM@25 °C) à 25 °C est de 24,45 L/mol. Un débit de gaz ( $Q_{qaz}$ ) de 0,53 L/min, une concentration en CH<sub>4</sub> de 2 %v/v et un débit

de lixiviat de 1,6 L/j ont été considérés dans les calculs selon les paramètres d'opération présentés à la section 3.2.3.

$$Quantité d'énergie = \frac{0.53 L}{min} \cdot \frac{2 L}{100 L} \cdot \frac{1 mol}{24.45 L} \cdot \frac{780 kJ}{mol CH_4} \cdot \frac{1400 min}{j} = 473 kJ/j$$
$$\Delta T = \frac{473 kJ/j}{\left(\frac{1.6 L H_20}{j} \cdot \frac{1 kg H_20}{1 L H_20}\right) \cdot \frac{4.19 kJ}{kg \cdot °C}} = 71°C$$

Selon les paramètres d'opération, la production de chaleur permettrait de faire augmenter la température de la masse de liquide de 71 °C si tout le CH<sub>4</sub> injecté dans le système est oxydé et qu'il n'y a aucune perte de chaleur.

# 1.5 Biofiltration combinée : lixiviats et CH<sub>4</sub>

Depuis plusieurs années à IQ-CRIQ, la biofiltration est au cœur des travaux de recherche pour le traitement des effluents liquides, gazeux ou pour un traitement simultané des liquides et des gaz issus de différents secteurs : traitement du lisier de porc et de l'air vicié des porcheries, des eaux usées, de rejets industriels, des lixiviats de sites de gestion des matières résiduelles. Si le traitement du lisier est jumelé au traitement de l'air vicié issu de porcheries, le traitement combiné en simultané des lixiviats et des gaz d'enfouissement a été peu étudié. Effectivement, dans le cas des LET la biofiltration a été utilisée soit pour le traitement des eaux usées, soit pour le traitement de l'air. Ainsi, cette option de traitement combiné pour les LET a été envisagée il y a quelques années.

Comme mentionné précédemment, la biofiltration du CH<sub>4</sub> requiert l'ajout d'une solution nutritive pour combler les besoins en éléments essentiels des microorganismes. Cependant, l'ajout de cette solution nutritive fraîche représente un coût important dans l'opération d'un biofiltre, sans compter que les liquides qui sortent du biofiltre contiennent de la biomasse, des sels et une faible concentration en CH<sub>4</sub> et constitue donc un nouveau rejet à traiter (Khabiri *et al.*, 2020). L'utilisation des lixiviats des LET qui contiennent déjà plusieurs nutriments essentiels aux microorganismes, plutôt qu'une solution nutritive synthétique, semble être une option à envisager.

En 2011, des essais ont été réalisés à IQ-CRIQ en laboratoire pour le traitement simultané des lixiviats et du CH₄ au sein d'un même biofiltre avec le média filtrant du système BIOSOR<sup>MD</sup>. Des lixiviats bruts ont été utilisés, c'est-à-dire qu'ils n'ont pas été prétraités et qu'ils contenaient donc de la matière organique, de l'azote ammoniacal, etc. Les expérimentations ont été effectuées à température ambiante et aucun contrôle de température n'a été effectué. Le biofiltre a été inoculé avec un inoculum de bactéries méthanotrophes durant la phase de démarrage. Durant la période où les performances étaient optimales, soit du jour 250 au jour 450 d'opération, un enlèvement moyen de DBO₅ de 90 % a été observé pour une concentration moyenne en sortie

de 16 mg/L. Pour ce qui est des NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, une nitrification importante au sein du biofiltre a permis de faire un abattement de 95 % en moyenne du NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en considérant une concentration à l'entrée de 680 mgN-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>/L. Du jour 0 au jour 200, le biofiltre était supplémenté en NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Après cette période, une diminution progressive de la concentration en NO<sub>3</sub><sup>-</sup> à la sortie jusqu'à une stabilisation à environ 100 mgN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L a été observée. Considérant la concentration importante en NH<sub>4</sub><sup>+</sup> à l'affluent du système et la concentration faible en NH<sub>4</sub><sup>+</sup> à la sortie du biofiltre, il semble que le système présente une consommation accrue de NO<sub>3</sub><sup>-</sup> qui serait attribuable à l'oxydation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes. Pendant toute la durée des expérimentations, soit pendant plus de 600 jours, l'efficacité d'enlèvement moyenne du CH<sub>4</sub> a été de 83 % en considérant une concentration moyenne à l'entrée de 1,06 %v/v. La charge moyenne appliquée au biofiltre durant la période optimale a été de 8,3 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/h. L'augmentation de la température interne du biofiltre de l'ordre de 5 à 10 °C dans les sections centrales et supérieures du biofiltre a d'autant plus confirmé que l'oxydation du CH<sub>4</sub>, qui est une réaction exothermique, avait bel et bien lieu. Le traitement des lixiviats et du CH<sub>4</sub> au sein d'un même biofiltre apparait donc possible (Dubé et Turgeon, 2014; Turgeon *et al.*, 2017). Un brevet a d'ailleurs été obtenu en 2017 à cet effet IQ-CRIQ no. 2,927,328.

Aussi, il faut savoir que malgré l'aération du biofiltre, il pourrait y avoir des zones anoxies qui favorisent la dénitrification conventionnelle. Le N<sub>2</sub>O, un puissant GES ayant un potentiel de réchauffement climatique de 298 sur un horizon de 100 ans, est un produit intermédiaire de la réaction de transformation de l'azote. Une dénitrification conventionnelle incomplète peut donc contribuer à la formation de N<sub>2</sub>O et ainsi, annuler le gain net en termes de diminution des GES en lien avec la transformation du CH<sub>4</sub> en CO<sub>2</sub>. Par ailleurs, certaines bactéries méthanotrophes ont la capacité de réduire les NO<sub>2</sub><sup>-</sup> et les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> en N<sub>2</sub>O (La *et al.*, 2018). Cet aspect est donc à prendre en compte dans l'évaluation de la performance de la technologie.

# 1.6 Conclusion de la revue de littérature

En somme, deux grandes problématiques en lien avec les LET ont été abordées : la production de lixiviats et la production de gaz d'enfouissement.

Les lixiviats contiennent une foule de composés chimiques et leur production persiste pendant plusieurs années après la fermeture du LET. L'azote est d'ailleurs un des composés qui demeure en quantité importante dans les lixiviats au fil du temps. Les traitements biologiques sont couramment utilisés au Québec pour le traitement de ces liquides afin d'abaisser les concentrations à des limites acceptables pour le rejet au milieu récepteur.

En ce qui concerne les gaz d'enfouissement, ces derniers sont principalement composés de CH<sub>4</sub> et de CO<sub>2</sub>. Le CH<sub>4</sub> étant un puissant gaz à effet de serre, sa capture et son traitement (ou son élimination) sont d'autant plus importants afin d'éviter qu'il se retrouve à l'environnement.

La biofiltration sur support organique a été montrée comme une méthode efficace non seulement pour le traitement des lixiviats, mais a aussi montré une capacité à effectuer un traitement simultané des lixiviats et des gaz d'enfouissement via l'utilisation de bactéries méthanotrophes. Effectivement, les bactéries méthanotrophes nécessitent un apport en azote pour compléter l'oxydation du CH<sub>4</sub>. Si les processus biologiques sont influencés par la température, le dégagement de chaleur observé lors de l'oxydation du CH<sub>4</sub> laisse croire qu'il serait possible de compenser la baisse des températures en condition hivernale.

Ces conclusions ont mené à l'élaboration d'une question de départ et à différents objectifs pour la réalisation du projet.

# Chapitre 2 Motivation, question de départ et objectifs du projet de recherche

Le Chapitre 2 présente les impacts et motivations qui ont mené la recherche. L'hypothèse de départ sur laquelle se base le projet et les objectifs qui s'en découlent y sont par ailleurs détaillés.

# 2.1 Motivation du projet

Au Québec, les normes de rejet des lixiviats sont présentement basées sur l'azote ammoniacal. Les systèmes de traitement conventionnels utilisés transforment les NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Ces rejets de NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, bien que moins toxique pour l'environnement que les NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, peuvent entraîner des conséquences sur la vie aquatique et l'eutrophisation des cours d'eau comme mentionné à la section 1.2.2.1.

Lorsque les sites d'enfouissement sont âgés ou petits, les gaz d'enfouissement peuvent être moins concentrés en CH<sub>4</sub> et les taux de production de biogaz sont plus faibles. Les traitements conventionnels pour les gaz d'enfouissement sont peu attrayants et plus difficilement applicables dans ces conditions. Par ailleurs, en suivant la règlementation en vigueur présentée à la section 1.3.2, le CH<sub>4</sub> peut être rejeté à l'environnement selon certains critères, ce qui contribue à augmenter les rejets globaux de gaz à effet de serre.

Ainsi, cette technologie pourrait être une bonne alternative pour le traitement du CH<sub>4</sub> pour des sites où les concentrations en CH<sub>4</sub> sont trop faibles pour être éliminées via un système de destruction thermique conventionnel, c'est-à-dire des sites qui sont considérés comme plus âgés. Des lixiviats prétraités, c'est-à-dire ayant une charge organique facilement biodégradable faible, se rapprochent davantage des lixiviats qui seraient retrouvés dans des sites plus âgés. Aussi, l'utilisation d'un lixiviat prétraité, c'est-à-dire contenant des NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, permet de réduire les interférences avec le NH<sub>4</sub><sup>+</sup> et la matière organique et ainsi, de faciliter la compréhension des différentes réactions dans les biofiltres.

Les sites d'enfouissement au Québec utilisent couramment des traitements biologiques pour traiter les lixiviats. Or, les microorganismes étant assez sensibles aux températures froides, la période hivernale représente un défi particulier pour le traiter et un apport d'énergie pour le chauffage est souvent nécessaire. Comme la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes est exothermique, le traitement du CH<sub>4</sub> combiné au traitement des lixiviats apparait comme une opportunité à explorer. Cette avenue permettrait d'autant plus de diminuer à la fois les rejets de nitrates et les rejets de méthane, un gaz à effet de serre, à l'environnement. Dans le cas où le procédé permet un enlèvement substantiel des deux composés (NO<sub>3</sub><sup>-</sup> et CH<sub>4</sub>), l'installation de cette technologie de biofiltration combinée en complémentarité avec des traitements secondaires existants serait bénéfique pour un site d'enfouissement, d'autant plus que la réduction des GES par la conversion du CH<sub>4</sub> pourrait permettre aux LET d'être éligibles à des crédits compensatoires (crédit-carbone).

C'est dans cet ordre d'idée que les travaux de recherche entamés à IQ-CRIQ dans les dernières années ont été poursuivis dans le cadre de cette maîtrise.

# 2.2 Question de départ et objectifs de la recherche

En tenant compte des connaissances actuelles relatives à la biofiltration et aux bactéries méthanotrophes, il serait possible de se poser la question suivante : sachant que la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub> est exothermique, est-ce que la chaleur générée par les bactéries méthanotrophes peut contribuer à maintenir l'activité biologique dans le biofiltre et donc l'enlèvement des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> et du CH<sub>4</sub> en période hivernale?

De cette hypothèse, trois objectifs principaux ont été définis :

- Déterminer si la chaleur dégagée par les bactéries méthanotrophes permet de maintenir la capacité épuratoire en période hivernale quant à la dénitrification (assimilation des NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) effectuée par les bactéries méthanotrophes et le traitement du CH<sub>4</sub> et évaluer cette capacité épuratoire;
- 2. Démontrer que l'ajout du traitement du CH<sub>4</sub> en simultané avec le traitement des lixiviats des sites d'enfouissement permet d'améliorer la prise en charge de l'azote (NO<sub>3</sub>·) au sein d'un biofiltre;
- Déterminer l'effet de la charge appliquée en CH<sub>4</sub> sur le procédé, particulièrement sur le traitement de l'azote (NO<sub>3</sub>-) des lixiviats.

# Chapitre 3 Matériel et méthodes

Le Chapitre 3 présente le montage expérimental qui a été réalisé et utilisé pour les expérimentations ainsi que le protocole expérimental qui comprend à la fois le déroulement prévu du projet et le plan d'échantillonnage et d'analyse.

En résumé, le projet consiste en l'évaluation du traitement simultané du CH<sub>4</sub> (courant ascendant) et des lixiviats (courant descendant) dans quatre biofiltres selon différentes variables. Ces biofiltres sont aussi appelés réacteurs dans le reste du présent mémoire. Des effluents liquides réels et des effluents gazeux synthétiques ont été utilisés. Considérant que l'objectif est de connaitre si le traitement peut être maintenu en hiver, dans des conditions d'opération en température froide, le montage expérimental a été spécialement construit avec des gaines isolantes afin de tenter de simuler ces conditions. Premièrement, les biofiltres ont permis de traiter les effluents gazeux et liquides à température ambiante, donc à une température plus favorable pour les microorganismes. Au moment d'effectuer les changements pour répondre aux objectifs du projet, la température de l'alimentation liquide a été diminuée pour un des réacteurs (réacteur J3). Celui-ci a aussi permis de vérifier le bénéfice de l'ajout du CH<sub>4</sub> dans le traitement des lixiviats. Un autre réacteur a aussi vu sa température d'alimentation liquide ainsi que sa température ambiante réduites par l'utilisation d'une chambre réfrigérée (réacteur J4). Un troisième réacteur a vu sa concentration en CH<sub>4</sub> augmentée afin de vérifier l'impact sur le traitement (réacteur J1). Finalement, un dernier réacteur a agi à titre de témoin, donc sans changement (réacteur J2).

# 3.1 Montage expérimental

# 3.1.1 Schéma simplifié du montage expérimental

La Figure 8 présente un schéma simplifié du montage expérimental qui a été réalisé afin de répondre aux objectifs du projet. Afin d'alléger l'image, seulement un réacteur est montré sur la Figure 8 puisque la configuration des guatre réacteurs est la même.

Le traitement du liquide et du gaz se fait à contre-courant, c'est-à-dire que le liquide est injecté par l'extrémité supérieure et percole jusqu'au bas du réacteur, alors que le mélange gazeux est injecté à partir de l'extrémité inférieure et se déplace vers le haut du réacteur.



Figure 8 - Schéma du montage expérimental pour un seul réacteur

## 3.1.2 Description des réacteurs et du garnissage

Les quatre réacteurs possédaient la même configuration et le même garnissage. Ces derniers ont été construits à partir de tuyaux de 8" de diamètre en polychlorure de vinyle (PVC) clair série 40 d'environ 1,5 m de hauteur. Des couverts arrondis en PVC blanc ont été placés à chaque extrémité : celui du bas a été collé au tube de PVC alors que celui du haut a été fixé à l'aide d'un joint de caoutchouc et de brides de serrage afin qu'il puisse être retiré lorsque nécessaire. Ces couverts ont été percés afin de permettre les entrées et les sorties du liquide et du mélange de gaz. La Figure 9 montre une photo du montage expérimental des quatre réacteurs dans le hall d'essai. Les gaines isolantes n'étaient pas installées sur les réacteurs J1, J2 et J3 et partiellement installées sur le réacteur J4 qui se trouvait dans une pièce distincte. Par ailleurs, l'alimentation en gaz n'est pas montrée complètement puisqu'elle se situait sous une hotte par mesure de sécurité.



Figure 9 - Photo du montage expérimental (réacteur J1, J2, J3 et J4)

La Figure 10 montre la répartition du garnissage pour une colonne qui consiste en trois couches de copeaux intercalées avec deux couches de média filtrant, ce dernier étant constitué principalement de copeaux de bois, de tourbe de sphaigne et d'un agent adsorbant (coquilles d'huîtres broyées). La composition du média filtrant organique est basée sur le média BIOSOR<sup>MD</sup>, ainsi que sur les expérimentations de Boucher (2011) et d'IQ-CRIQ (2014). Les lettres «B », « C », « D » et « E » montrent la position des capteurs de température.



Figure 10 - Répartition du garnissage des réacteurs

Dans le couvert du bas reposait un support de plastique formé d'une section de tube de PVC de 10 cm de hauteur surmonté d'un grillage en plastique. Le support permettait de soutenir le garnissage en plus de former un plénum qui assurait une répartition plus uniforme du mélange gazeux. Le garnissage totalisait une hauteur de 1,40 m. La première couche de garnissage qui s'installait sur le grillage était constituée de 50 mm de copeaux de bois qui maintenait le média filtrant de la couche supérieure en place, ce dernier étant composé de particules plus fines. Par ailleurs, les copeaux contribuaient à une répartition plus homogène du mélange gazeux vers le reste de la colonne. La deuxième couche était formée de 800 mm de média filtrant. Ce dernier était constitué d'un mélange de copeaux de bois, de tourbe de sphaigne et de coquille d'huîtres broyées. La troisième couche de 200 mm était formée de copeaux de bois. La quatrième couche était formée de milieu filtrant ayant la même composition que la deuxième, mais possédait une hauteur de 300 mm. Finalement, la dernière couche consistait

en 50 mm de copeaux de bois. Cette couche permettait de subdiviser le liquide afin qu'il soit distribué plus uniformément à la surface du média filtrant. La configuration de couches superposées de différentes granulométries permettait de redistribuer les écoulements et donc de diminuer les chemins préférentiels.

Le choix des coquilles d'huîtres dans le média filtrant a été fait en se basant sur les travaux antérieurs (Boucher, 2011) qui ont démontré qu'elles permettaient d'atteindre les normes québécoises de rejet pour le zinc, indicateur de la présence de métaux dans les lixiviats, avec un traitement tertiaire. De plus, étant composées à environ 96 % de CaCO<sub>3</sub> (Yoon *et al.*, 2003), ces coquilles procuraient un pouvoir tampon aux réacteurs afin d'éviter les variations importantes de pH. D'un point de vue environnemental, il apparait intéressant de réutiliser un matériau plutôt que de se servir d'une matière première neuve à utilisation unique. Par ailleurs, ce produit est déjà exploité au Canada et ailleurs dans le monde pour la fabrication d'engrais agricole, l'alimentation des élevages de volailles et le remplacement du sable et de la chaux dans la production de matériaux de construction pour ne nommer que ceux-là (Pêches et Océans Canada, 2014).

Comme montré sur la Figure 10, il est possible de remarquer la présence de sondes de type « Détecteur de température à résistance » (DTR) aux positions B, C, D et E. En effet, comme la réaction qui implique les méthanotrophes est exothermique, un suivi de la température à différents endroits dans la colonne a permis de détecter les zones actives du biofiltre. Ainsi, chaque réacteur possédait quatre sondes RTD placées à 320 mm (position E), 590 mm (position D), 950 mm (position C) et 1200 mm (position B) en plaçant le zéro de référence à la base de la première couche de copeaux de résineux du réacteur. Les sondes ont été installées lors de la mise en place du média filtrant et étaient maintenues grâce à des connecteurs étanches serre-câble fileté en nylon de <sup>3</sup>/<sub>8</sub>". Les sondes étaient reliées à un automate OMROM NX-1 qui permettait de faire l'enregistrement des données à l'intervalle de temps souhaité. L'automate possédait aussi une minuterie qui permettait de faire une succession d'arrêt-départ pour l'alimentation liquide par les pompes.

Finalement, comme des tests au niveau de la température étaient prévus, des isolants entourant les réacteurs ont été mis en place. Ces isolants étaient des demi-coquilles de la compagnie GF Urecon, conçues pour des conduites de PVC. Ils étaient faits de mousse de polyuréthane de 2" d'épaisseur sur lesquels un revêtement de protection en polymère léger noir a été appliqué lors de leur fabrication par la compagnie.

#### 3.1.3 Système d'alimentation et de sortie des liquides

Les réacteurs ont été alimentés via des contenants en polyéthylène haute densité (PEHD) de différentes capacités, variant entre 5 L et 100 L en fonction des différents liquides utilisés (période d'inoculation, période de démarrage, alimentation avec des eaux réelles). Lors de l'alimentation avec des lixiviats réels, le baril de PEHD de 100 L a été placé dans un réfrigérateur afin de permettre la conservation du liquide à une température

avoisinant les 4 °C. Pour s'assurer de l'homogénéité des lixiviats dans le baril d'alimentation, une pompe submersible a été placée dans celui-ci afin de permettre un brassage constant.

Il est à noter que pour l'alimentation en liquide et en gaz (voir section 3.1.4 pour les gaz), les tuyaux souples font référence à des tuyaux de type Nalgène® PVC 180 clair ou l'équivalent, les tuyaux de têtes de pompes (pompe péristaltique de type MasterFlex®) font référence à des tuyaux de type Norprène® de Tygon® en néoprène noir et les tuyaux flexibles font référence à des tuyaux d'éthylène-propylène fluoré (FEP) clair.

Comme tous les réacteurs ont été montés de la même façon et étaient alimentés de manière indépendante les uns des autres, la configuration est décrite pour un seul réacteur. À noter qu'il y avait seulement un automate pour les quatre réacteurs qui permettait de gérer les pompes d'alimentation liquide et d'enregistrer les données de température. Un tuyau souple de 1/4" de diamètre intérieur a été utilisé pour passer du bassin d'alimentation jusqu'à la pompe péristaltique. De là, le tuyau de tête de pompe de diamètre intérieur de 1/4" permettait d'effectuer le pompage. À la sortie de tête de pompe, un tuyau souple de 1/4" de diamètre intérieur faisait le lien avec un tuyau rigide de PVC gris série 80 de 300 mm de longueur et de 1/4" de diamètre intérieur munie d'une buse filetée de 1/8" de diamètre à l'extrémité. Cette conduite était insérée au milieu du couvert et maintenue grâce à un connecteur étanche serre-câble. Celle-ci pouvait être bougée de manière à ajuster sa hauteur afin d'assurer une répartition uniforme du liquide à la surface du garnissage en fonction de la compaction du garnissage et de la forme du jet provoqué par la buse.

Pour ce qui est de la sortie liquide, un raccord fileté en PVC de 1/2" de diamètre, suivi d'une valve à bille en PVC filetée, a été vissé au centre du couvert du bas. À la sortie de la valve, un adaptateur fileté en PVC de 1/2" de diamètre permet de connecter une conduite souple de 5/8" de diamètre intérieur. Cette conduite a été placée de manière à faire un tour sur elle-même avant que le liquide soit dirigé vers l'égout: la présence permanente d'une quantité de liquide à l'intérieur de la conduite évite que le mélange gazeux ne sorte par cet orifice.

#### 3.1.4 Système d'alimentation et de sortie des gaz

Pour ce qui est de l'alimentation en gaz, le système était constitué de deux composantes qui se rejoignent pour former le mélange gazeux à la concentration désirée, soit le réseau de gaz naturel (source de CH<sub>4</sub>) et le réseau d'air comprimé d'IQ-CRIQ. Une nourrice de gaz (une entrée et six sorties) a été branchée au réseau de gaz naturel, d'où les réacteurs ont été alimentés. Une autre nourrice de gaz (une entrée et six sorties) jumelée à des régulateurs de pression a été utilisée pour acheminer l'air du réseau d'air comprimé d'IQ-CRIQ vers les réacteurs. Les réacteurs étaient alimentés de manière individuelle et indépendante à partir de ces deux réseaux communs : afin de simplifier le texte, seulement le montage d'un réacteur est présenté.

L'alimentation en gaz naturel s'est faite via une pompe péristaltique du jour 0 au jour 215. Depuis la nourrice, un tuyau souple en PVC de diamètre intérieur de 1/4" permettait d'acheminer le gaz naturel vers une pompe péristaltique. Le gaz passait à travers la pompe via un tuyau de tête de pompe L/S 16 soit de 1/8" de diamètre intérieur. À la sortie de la pompe, un tuyau souple de 1/4" de diamètre intérieur faisait le lien vers une jonction en « Y » où le système d'alimentation en gaz naturel rejoignait le système d'alimentation en air.

Pour ce qui est du système d'alimentation en air, un tuyau souple de <sup>1</sup>/<sub>4</sub>" de diamètre intérieur acheminait l'air du régulateur de pression vers le rotamètre. À partir du rotamètre, un tuyau souple de <sup>1</sup>/<sub>4</sub>" de diamètre intérieur fait le lien vers une série de connecteurs et de réducteurs qui permettaient de passer d'un tuyau souple à un tuyau flexible de diamètre intérieur <sup>1</sup>/<sub>16</sub>". Au bout du tuyau rigide était installé un filtre à barbotage de phase mobile de porosité 2 µm en acier inoxydable qui jouait le rôle de diffuseur. Ce filtre a été placé dans un barboteur et était maintenu par un connecteur étanche serre-câble. Le barboteur, permettant d'humidifier l'air, était formé d'un tuyau en PVC clair série 40 de 4" de diamètre intérieur et d'environ 50 cm de hauteur auxquels deux couverts en PVC blanc ont été collés. Une valve à bille filetée de <sup>1</sup>/<sub>4</sub>" de diamètre en métal chromé a été fixée sur le couvercle inférieur afin d'ajouter de l'eau au besoin lorsque le niveau baissait : le niveau d'eau était maintenu à environ 35 cm de hauteur à partir de la base du barboteur. Après son passage dans le barboteur, un tuyau souple de <sup>1</sup>/<sub>4</sub>" de diamètre intérieur conduisait l'air jusqu'au lien vers la jonction en « Y ».

De la jonction en « Y », un tuyau souple de 1/4" de diamètre intérieur permettait d'acheminer le mélange gazeux vers un bulleur en verre de 1 L. Ce dispositif a été installé afin de protéger l'appareil d'échantillonnage automatique des gaz dont l'utilisation était prévue au départ, ce dernier ne devant pas recevoir d'eau sous forme liquide. Le bulleur servait donc à recueillir l'eau en cas de condensation et permettait aussi aux gaz de se mélanger. À la sortie du bulleur, un tuyau souple de  $\frac{1}{4}$  de diamètre intérieur rejoignait une jonction en « T », installée en prévision de l'échantillonnage automatique. La sortie vers l'échantillonneur a finalement été bouchée et n'a pas été utilisée. À la sortie de cette jonction en « T », un tuyau souple de 1/4" de diamètre intérieur faisait le lien vers une autre jonction en « T » où une valve à bille en PVC a été installée. Cette valve permettait de purger l'eau au besoin (en présence de condensation par exemple) et de faire l'échantillonnage du mélange gazeux à l'entrée. Un tuyau souple de 1/4" de diamètre intérieur faisait le lien vers une deuxième valve à bille en PVC. Cette deuxième valve était installée directement sur la conduite et permettait de bloquer le passage du gaz vers le réacteur lors de l'échantillonnage. Un tuyau souple de 1/4" de diamètre intérieur acheminait le mélange gazeux vers une autre jonction en « T » où une troisième valve à bille permettait de purger le liquide encore une fois au besoin. Cette valve était aussi utilisée pour la prise de mesures de pertes de charge. A la suite de ce « T », un tuyau souple de 1/4" de diamètre intérieur conduisait le gaz vers un connecteur de laiton placé sur le côté du couvert inférieur du réacteur. Un tuyau flexible a été inséré dans le connecteur de laiton pour amener l'air près du milieu du réacteur en dessous du grillage servant de support au milieu filtrant.

Il est à noter que les pompes péristaltiques pour l'alimentation en gaz naturel, ainsi que les rotamètres pour l'air ont été remplacés par des débitmètres massiques Alicat Scientific à partir du jour 216 jusqu'à la fin des expérimentations afin d'assurer une meilleure stabilité, homogénéité et facilité d'ajustement au niveau des concentrations de gaz injectés dans les réacteurs.

La sortie gazeuse se trouve dans le couvert supérieur du réacteur. Un connecteur vissé dans le couvert permet de maintenir le tuyau flexible de <sup>3</sup>/<sub>16</sub>" de diamètre intérieur. Ce tuyau de sortie se rend vers un ballon de verre à distiller de 125 mL qui possède une entrée et une sortie. Le ballon permettait de retenir l'eau en cas de condensation et avait été installé en prévision de l'utilisation du système d'échantillonnage automatique qui n'a finalement pas été utilisé. Les gaz sont ensuite évacués vers une hotte via un tuyau flexible de <sup>3</sup>/<sub>16</sub>" de diamètre intérieur. À noter que le diamètre intérieur des tuyaux flexibles de sortie pour J4 était de <sup>1</sup>/<sub>4</sub>". La différence de diamètre des tuyaux de sorties est strictement due à la longueur du tuyau d'évacuation de J4 qui était supérieure et qui provoquait ainsi une plus grande résistance à l'évacuation des gaz. Afin de faire l'échantillonnage des gaz en sortie, le tuyau flexible de sortie était retiré du connecteur placé sur le couvert du réacteur et le sac d'échantillonnage était directement placé à cet endroit.

#### 3.1.5 Changement de température des lixiviats à l'entrée de J3 et J4

La Figure 11 montre une représentation simplifiée du montage expérimental modifié permettant d'alimenter les réacteurs J3 et J4 avec des lixiviats à 4 °C en entrée plutôt qu'à la température pièce, soit environ 21 °C.

Pour ce faire, les pompes péristaltiques d'alimentation liquide de J3 et J4 ont été placées dans la chambre réfrigérée (initialement à l'arrêt) et deux nouvelles pompes péristaltiques ont été installées. Ces nouvelles pompes permettent de soutirer le liquide des tuyaux entre les pompages qui ont lieu par intermittence : aucun liquide stagnant pouvant se réchauffer entre les pompages ne demeure dans les tuyaux. Une minuterie, indépendante de l'automate, met en marche les pompes de soutirage après que les pompes d'alimentation se soient arrêtées. Une jonction en « Y » permet de connecter les tuyaux souples des deux pompes.

Pour le réacteur J3, les tuyaux souples partant de la tête de pompe, vers le réacteur, ainsi que le tuyau de soutirage a été remplacé par un tuyau souple de 1/8" de diamètre intérieur. À la sortie de la chambre réfrigérée, le tuyau souple a été connecté à un tuyau flexible de 1/8" de diamètre intérieur. Afin de diminuer le risque de réchauffer le liquide au passage vers le réacteur, le tuyau flexible a été placé à l'intérieur d'un tube réfrigérant relié à un bain thermostaté. Le tube réfrigérant était formé d'un tuyau de PVC de 1-1/2" de diamètre et de deux couverts blancs en PVC qui ont été collés et percés. Un mélange d'éthylène glycol et d'eau (1:1) circule dans le tube réfrigérant, autour du tuyau flexible d'alimentation liquide, afin de conserver la température du tube autour de 4 °C.

Pour le réacteur J4, comme il se trouve déjà dans la chambre réfrigérée, seulement le tuyau souple de 1/4" de diamètre intérieur qui achemine l'eau de la tête de pompe au réacteur a été remplacé pour un tuyau souple de 1/8" de diamètre intérieur.



Figure 11 - Représentation simplifiée du montage expérimentation pour le changement de la température d'arrivée des lixiviats pour le réacteur J3

# 3.2 Protocole expérimental

# 3.2.1 Liquide d'alimentation et conservation

Les liquides d'alimentation, les lixiviats, proviennent d'un LET dont l'identité est gardée confidentielle. Le LET possède une chaîne de traitement assez avancée qui permet la nitrification et donc l'obtention de nitrates (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) au terme du traitement. Comme l'objectif du projet est le traitement des NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, les lixiviats ont été prélevés à l'exutoire de la chaîne de traitement.

Les lixiviats ont été échantillonnés toutes les deux semaines et conservés dans des barils opaques de 200 L à 4 °C dans une chambre réfrigérée. Avant de transférer les lixiviats dans le bassin d'alimentation, ces derniers étaient agités à l'aide d'un tuyau rigide en PVC ou par une série de remplissage et vidange d'une chaudière en PEHD. Le baril d'alimentation a été placé dans un réfrigérateur afin de conserver les lixiviats au frais, lesquels

étaient agités à l'aide d'une pompe submersible dont la sortie se trouvait dans le baril même. Des lixiviats étaient ajoutés au besoin dans le baril d'alimentation et ce dernier était vidangé toutes les deux semaines pour laisser place aux lixiviats frais. Cette façon de procéder a été effectuée du début de l'alimentation avec les lixiviats au jour d'opération 125 jusqu'au jour d'opération 230. Par la suite, afin d'éviter les variations de charge à l'entrée du système en raison de la concentration en NO<sub>3</sub><sup>-</sup> qui était instable d'un échantillonnage de lixiviat à l'autre, ceux-ci ont été conservés plus longtemps : les mêmes lixiviats ont alimenté les réacteurs du jour 230 jusqu'au jour 292. À partir du jour 292, les nouveaux lixiviats étaient supplémentés avec une solution de KNO<sub>3</sub> afin de maintenir constante la concentration en NO<sub>3</sub><sup>-</sup> entre les changements de lixiviats pour l'alimentation.

#### 3.2.2 Fabrication et mise en place du média filtrant

Comme il a été expliqué à la section 3.1.2, le média filtrant a été fabriqué au hall d'essai d'IQ-CRIQ à l'aide de copeaux de bois, de tourbe de sphaigne et de coquilles d'huîtres concassées. Les proportions et la composition se basent sur les expérimentations précédentes d'IQ-CRIQ sur la biofiltration méthanotrophe (IQ-CRIQ, 2014).

Pour ce faire, la quantité de médias filtrants fabriquée a été calculée en fonction de la hauteur du garnissage et du diamètre du réacteur. Les copeaux ont été mesurés à partir de chaudières de 10 L et 25 L et étendus sur le sol préalablement lavé. Ils ont ensuite été aspergés d'eau, puis mélangés à l'aide d'une pelle et étendus à nouveau. Par la suite, la tourbe a été ajoutée : elle a été mesurée avec des béchers de 5 L en plastique et saupoudrée sur les copeaux. Le mélange a par la suite été brassé à l'aide d'une pelle jusqu'à ce que le tout soit homogène. Trois échantillons ont été prélevés et tamisés afin de vérifier que le ratio tourbe-copeaux souhaité était respecté. Les coquilles d'huîtres ont ensuite été ajoutées au mélange, puis ce dernier a été brassé pour l'homogénéiser.

La mise en place du garnissage s'est faite graduellement en fonction des différentes couches. Premièrement, le support en plastique a été placé au fond du réacteur. Ensuite, un sac muni de cordes aux extrémités était rempli de média filtrant ou de copeaux de bois, descendu dans le réacteur, puis retourné afin de déposer son contenu sur la couche précédente. Après chaque ajout de média filtrant ou de copeaux de bois, une tige de métal était utilisée pour répartir le matériel et pour effectuer une légère compression afin d'éviter la présence de vide et de chemin préférentiel dans le garnissage du réacteur. Les sondes DTR étaient insérées aux endroits prévus au fur et à mesure du remplissage.

#### 3.2.3 Conditions d'opération du système

Avant le début des expérimentations, c'est-à-dire juste après avoir fait la mise en place du milieu filtrant dans les quatre réacteurs, de l'eau potable déchlorée a été recirculée pendant 7 jours à un débit de 6,3 L/j afin d'humidifier le média (jour d'opération 0 au jour 7) par des séries d'arrêts/départs (44 mL à toutes les

10 minutes). Par la suite, les réacteurs ont été inoculés avec un inoculum développé à IQ-CRIQ à partir de la boue d'un étang et d'une solution minérale. L'Annexe A présente le protocole pour la réalisation de l'inoculum et divers tests qui ont été faits avec ces inoculums.

Au cours des expérimentations, les conditions d'opération du système ont été modifiées à plusieurs reprises en fonction des différents résultats obtenus et des différentes observations effectuées. Effectivement, les jours 0 à 166 ont permis de tenter d'optimiser le procédé et de mieux comprendre les phénomènes et les réactions des processus biologiques face aux différents paramètres d'opération.

Du jour d'opération 166 au jour 237, les mêmes conditions d'opération ont été implantées pour tenter de stabiliser les réacteurs : alimentation en CH<sub>4</sub> à 2 %v/v, débit de gaz de 0,53 L/min, débit liquide de 3,2 L/j, température d'alimentation des liquides et température ambiante d'environ 21 °C (température non contrôlée). À noter que durant cette période, entre les jours 225 et 230, les débits liquides ont dû être diminués à 1,6 L/j en raison d'un problème d'approvisionnement des lixiviats au LET avant d'être réajustés à 3,2 L/j.

Ensuite, au jour 237, les débits de tous les réacteurs ont été diminués à nouveau à 1,6 L/j afin de tenter d'augmenter les températures internes avant d'entamer les modifications en lien avec les objectifs du projet : un débit liquide plus faible semblait favoriser l'augmentation des températures internes dans les réacteurs. L'Annexe B présente les conditions d'opération initiales, les différents changements qui ont été effectués durant les jours 0 à 240 et les résultats qui ont été obtenus.

À partir du jour 251, les températures d'alimentation du réacteur J3 et J4, ainsi que la température ambiante de J4 ont été diminuées. La charge appliquée en CH<sub>4</sub> a aussi été augmentée au jour 257 sur le réacteur J1. Ces conditions ont par la suite été maintenues constantes afin de répondre aux différents objectifs de la recherche et sont présentées au Tableau 4.

Paramètres	Réacteurs			
d'opération	J1	J2	J3	J4
[CH <sub>4</sub> ] (%)	3*	2	2	2
Q <sub>gaz</sub> (L/min)	0,53	0,53	0,53	0,53
Q <sub>liquide</sub> (L/j)	1,6	1,6	1,6	1,6
Tliquide alimentation (°C)	≈ 21	≈ 21	≈ 4	≈ 4
Tambiante (°C)	≈ 21	≈ 21	≈ 21	≈ 4

Tableau 4 - Conditions d'opération à partir du jour 251 pour J2, J3 et J4 et à partir du jour 257 pour J1

Le réacteur J2 a servi de témoin et donc aucun changement de condition d'opération n'a été effectué après le jour 237. Le réacteur J3 a permis de tester l'effet du changement de température du liquide afin d'induire des conditions d'alimentation qui s'apparentent à l'hiver. Les conditions d'opération sont donc les mêmes que pour

J2, mais le liquide d'alimentation a été ajusté à 4 °C à l'entrée du réacteur au jour 251. Le réacteur J4 a permis de tester l'effet de l'isolant entre autres : comme ce dernier a été placé dans une chambre réfrigérée, la température du liquide d'alimentation ainsi que la température ambiante ont été diminuées à 4 °C au jour 251. Finalement, le réacteur J1 a permis de vérifier l'effet de l'augmentation de la charge en CH<sub>4</sub> sur le procédé. Ce dernier a donc été opéré dans les mêmes conditions que J2, mais avec une concentration en CH<sub>4</sub> à l'entrée qui a été augmentée à 3 % au jour 257.

En hiver, les lixiviats sont froids, d'où une température d'alimentation à 4 °C a été choisie en considérant les contraintes techniques de changement de température. Les gaz d'enfouissement peuvent aussi être plus froids, cependant, la température de l'eau est souvent celle qui dicte la température que devrait avoir le média filtrant. Un logiciel de thermodynamique développé à IQ-CRIQ a permis de calculer la température qui devrait être observée dans un biofiltre conventionnel, sans réaction d'exothermie (Groupe Conseil Technosim inc., 2007). Ce logiciel a été utilisé afin de valider que la température du mélange gazeux avait peu d'influence sur la température globale du média filtrant avec une température des lixiviats à 4 °C en tenant compte du débit liquide, du débit de gaz et de la température du mélange gazeux. Aussi, lors d'un projet pilote sur le terrain pour le traitement du CH<sub>4</sub> d'un LET via la biofiltration méthanotrophe, IQ-CRIQ (2016) a enregistré des températures variant de 18 °C (hiver) à 43 °C (été) pour les gaz d'enfouissement. Ainsi, il apparait que la diminution de température du mélange gazeux n'était pas nécessaire, ce dernier étant à température ambiante.

Il est à noter que l'alimentation des réacteurs s'est faite via une succession d'arrêt-départ des pompes. Effectivement, le débit étant trop faible pour permettre à la pompe une alimentation en continu, une minuterie a été installée à même l'automate. Durant les jours d'opération 166 à 251, les pompes étaient mises en marche à un intervalle régulier, soit pendant 5 secondes et arrêtées pour une durée variable selon le débit souhaité (arrêt de 20 minutes pour débit liquide de 3,15 L/j ou arrêt de 40 minutes pour un débit de 1,6 L/j). À partir du moment où la température a été diminuée, c'est-à-dire au jour d'opération 251, la durée du pompage pour l'alimentation liquide a été augmentée à 10 secondes afin d'avoir plus de stabilité. Un pompage permettait d'alimenter le réacteur d'environ 44 mL de liquide en tout temps, peu importe la durée du pompage.

#### 3.2.4 Paramètres de suivi et échantillonnage

Plusieurs paramètres ont été suivis tout au long des expérimentations afin de déterminer l'efficacité du procédé. Des données ont été recueillies au niveau du média filtrant, des liquides et des gaz. La Figure 12 montre un schéma simplifié du montage d'un réacteur indiquant les emplacements des différents points d'échantillonnage et de collecte de données.





Le Tableau 5 montre les différents paramètres mesurés, la fréquence, les points d'échantillonnage, ainsi que les appareils ou la méthode utilisés selon le type d'échantillon.

Nature de l'échantillon	Paramètre mesuré	Fréquence	Points d'échantillonnage	Appareil ou méthode d'analyse utilisé
Liquide	NO <sub>2</sub> -	1x par semaine	L <sub>in</sub> · L <sub>out</sub> J1, L <sub>out</sub> J2, L <sub>out</sub> J3,L <sub>out</sub> J4	Colorimètre DR890 : 10019 HACH
	NH4+			Colorimètre DR890 : 10031 HACH
	DCO			Colorimètre DR890 : 8000 HACH
	NO <sub>3</sub> -	2x par semaine		Colorimètre DR890 : 10020 HACH
	рН			pH-mètre: Thermo Scientific Orion Star™ A221
	Débit		Lin_J1, Lin_J2, Lin_J3, Lin_J4	Cylindre gradué à l'entrée
Gaz	CH₄	2x par semaine	G <sub>in</sub> _J1, G <sub>in</sub> _J2, G <sub>in</sub> _J3, G <sub>in</sub> _J4 G <sub>out</sub> _J1, G <sub>out</sub> _J2, G <sub>out</sub> _J3,G <sub>out</sub> _J4	µGC-TCD*
	CO <sub>2</sub>			µGC-TCD*
	<b>O</b> <sub>2</sub>			µGC-TCD*
	N <sub>2</sub> O			FTIR**
	NH <sub>3</sub>			FTIR**
	Débit		Gin_J1, Gin_J2, Gin_J3, Gin_J4	Débitmètre à bulle
Média filtrant	Perte de charge	1x par semaine	P <sub>in</sub> _J1 - P <sub>out</sub> _J1, P <sub>in</sub> _J2 - P <sub>out</sub> _J2, P <sub>in</sub> _J3 - P <sub>out</sub> _J3, P <sub>in</sub> _J4 - P <sub>out</sub> _J4	Anémomètre : TSI VELOCICALC PLUS
	Température	1x par heure	B, C, D, E : J1, J2, J3, J4	Sondes DTR et automate OMRON NX-1

Tableau 5 - Paramètres mesurés, fréquence, points d'échantillonnage et appareils ou méthodes utilisés selon la nature de l'échantillon

\* µGC-TCD : Chromatographie en phase gazeuse avec détecteur de conductivité thermique
\*\* FTIR : Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier

En plus des températures dans le média filtrant, la température des lixiviats (Lin) et les températures ambiantes du hall d'essai (HE) et de la chambre réfrigérée (CF) étaient enregistrées toutes les heures.

Des analyses sur les liquides ont aussi été effectuées en externe par des laboratoires en sous-traitance ou à IQ-CRIQ par des techniciens selon des méthodes standardisées afin de confirmer certaines données ou d'obtenir des données supplémentaires : phosphore total (Pt), nitrites (NO<sub>2</sub><sup>-</sup>), nitrates (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>), azote ammoniacal (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>), azote total Kjeldahl (NTK), pH, cuivre et zinc. Il est à noter cependant que ces analyses n'ont pas été faites à un intervalle régulier et sont présentées uniquement à l'Annexe C. Les données de perte de charge sont aussi présentées à l'Annexe C.

#### 3.2.5 Méthode d'échantillonnage

#### 3.2.5.1 Mesures relatives aux gaz

L'échantillonnage des gaz était effectué à l'aide de sacs de prélèvement de gaz de 10 L à une valve avec enveloppe multicouches (nylon (extérieur), polyéthylène, film aluminium et polyéthylène (intérieur)). Les sacs étaient initialement placés à la sortie des réacteurs (G<sub>out</sub>), puis lorsqu'ils étaient pleins, ces derniers étaient retirés et de nouveaux sacs étaient placés à l'entrée (G<sub>in</sub>) afin d'être remplis.

Le débit de gaz était mesuré à l'aide d'un débitmètre à bulle placé à la position G<sub>in</sub>, soit à l'entrée du réacteur. Cinq mesures étaient effectuées pour en faire une moyenne. Le débit de chaque réacteur était mesuré de cette façon.

#### 3.2.5.2 Mesures relatives aux liquides

Pour ce qui est de l'échantillonnage des liquides pour les tests au laboratoire du hall d'essai, les échantillons de sortie étaient récoltés à la position L<sub>out</sub> pour chaque réacteur à l'aide de béchers de verre de 50 mL sur une période de 30 à 60 minutes environ. En raison de la présence de particules dans les tuyaux de sortie des réacteurs, ces derniers étaient purgés le jour précédent l'échantillonnage. Pour l'entrée, un seul échantillon était récolté : celui-ci était échantillonné à même le bassin d'alimentation liquide (position L<sub>in</sub>) à l'aide d'un bécher de 50 mL. Lorsque des échantillons étaient envoyés à des laboratoires accrédités, ceux-ci pouvaient être récoltés sur une période plus longue en fonction du débit liquide du réacteur. Ainsi, des contenants de plastique de 2L étaient placés dans des chaudières de 5 L dans lesquelles de la glace était ajoutée afin de maintenir une température froide. Les échantillons étaient par la suite homogénéisés avant d'être transférés dans les contenants prévus pour l'envoi aux laboratoires accrédités.

Le débit liquide était mesuré à l'aide d'un cylindre gradué placé à l'entrée à la position L<sub>in</sub>. Chaque réacteur avait son cylindre gradué rempli et les pompes étaient activées automatiquement dans le mode d'opération normal. Ainsi, entre trois et six pompages étaient effectués selon la durée et le nombre d'arrêts-départs programmé et le volume restant dans le cylindre était mesuré, d'où le débit était calculé.

Il est à noter que pour le réacteur J3, la température de l'alimentation liquide a été mesurée lors du changement de température. Pour ce faire, au moment du démarrage de la pompe, le tube d'alimentation de PVC était retiré du réacteur et un bécher était mis à la sortie de la buse.

#### 3.2.5.3 Mesures relatives au média filtrant

Pour la prise de données de pertes de charge, l'anémomètre était branché au bas du réacteur à la position P<sub>in</sub> tout en laissant la sortie de gaz G<sub>out</sub> ouverte. Pour connaitre les pertes de charge sur tout le biofiltre,

l'anémomètre était ensuite branché à P<sub>in</sub> et P<sub>out</sub> tout en laissant la sortie de gaz G<sub>out</sub> ouverte. Ces données permettaient de suivre l'évolution de la colonisation bactérienne et donc le colmatage des réacteurs.

Finalement, la prise de données de température avec les sondes DTR (positions B, C, D et E) était effectuée de manière automatique par l'automate OMROM NX-1. Une moyenne était calculée toutes les heures en considérant une mesure de température chaque minute. Ces données étaient enregistrées en continu. Lors des échantillonnages, la prise de données de température était faite sur l'interface d'affichage de l'automate. Trois sondes permettaient aussi d'enregistrer les données de température extérieures: température ambiante du hall d'essai, température ambiante dans la chambre réfrigérée et température des lixiviats dans le baril de 100 L pour l'alimentation des réacteurs.

# Chapitre 4 Résultats et discussion

Le Chapitre 4 présente les résultats et les conclusions qui sont ressortis de l'étude afin de répondre aux trois grands objectifs de la recherche.

# 4.1 Impact de la diminution de la température

# 4.1.1 Impact de la diminution de la température des lixiviats

Afin d'étudier l'impact de la diminution de la température d'arrivée d'eau, le réacteur J3 devait être alimenté avec des lixiviats à 4 °C, d'où la configuration du montage expérimental a été modifiée (voir Figure 11, section 3.1.5). Le réacteur témoin J2, avec lequel les comparaisons sont effectuées, était alimenté à l'aide de lixiviats à température ambiante, soit autour de 21 °C.

# 4.1.1.1 Température réelle de l'alimentation liquide

Après avoir commencé l'alimentation du réacteur à température froide, une mesure de température de l'arrivée d'eau a été effectuée. C'est en réalité des lixiviats à environ 8 °C qui alimentaient le réacteur. Quelques hypothèses pourraient expliquer le fait qu'il n'ait pas été possible d'obtenir une température d'alimentation à 4 °C tel qu'espéré.

À la sortie du tube réfrigérant, le liquide était dirigé vers le tube gris en PVC de 30 cm de longueur au bout duquel la buse était fixée. Cette section étant à température ambiante, le liquide pourrait s'être réchauffé au contact des parois. Aussi, la présence de la buse provoquait un jet d'aspersion sous forme de grosses gouttelettes de liquide, ce qui augmentait la surface de contact entre le liquide et l'air ambiant. Ainsi, au contact de l'air, ces gouttelettes pourraient s'être se réchauffée, le différentiel de température étant assez grand (4 °C pour le liquide contre environ 21 °C pour la température ambiante). Finalement, il se peut que le temps de réaction du thermomètre pour la prise de mesure, c'est-à-dire le temps nécessaire pour avoir une mesure stable sur le thermomètre, ait aussi influencé la température finale mesurée considérant le différentiel de température important entre le liquide et l'air.

Pour le réacteur témoin J2, le liquide était à une température non contrôlée : le tuyau d'alimentation présent dans le hall d'essai, soit à température ambiante, était assez long pour contenir environ deux pompages. Ainsi, l'écart de temps de 40 minutes entre les pompages permettait au liquide de se réchauffer, soit de passer de 4 °C, température à laquelle les lixiviats étaient conservés, à environ 21 °C.

#### 4.1.1.2 Performance d'enlèvement du CH<sub>4</sub>

La Figure 13 montre les charges appliquées, ainsi que celles éliminées en CH₄ du réacteur J3 et du réacteur témoin J2 en fonction des jours d'opération. Dans le présent mémoire, pour tous les graphiques de charge (CH₄, NO₃<sup>-</sup>, etc.), les symboles de points « • » montrent la charge appliquée à l'entrée, alors que les symboles de triangles « ▲ » montrent la charge éliminée, soit la différence entre la charge à l'entrée et la charge en sortie. Ces charges ont été calculées de manière ponctuelle par la multiplication du débit d'entrée et de la concentration mesurée (entrée ou sortie). Il est à noter que l'hypothèse à l'effet que les débits d'entrée et de sortie soient égaux a été posée autant pour les gaz que pour les liquides, d'où seulement les débits d'entrée ont été utilisés pour les calculs. Cette hypothèse a été validée au laboratoire lors des expérimentations. L'Annexe D présente les équations utilisées pour le calcul des charges à partir des données en parties par million (ppmv) et en pourcentage volumique (%v/v) pour les gaz et à partir des données en mg/L pour les liquides.





Le premier changement effectué a été la diminution de la température des lixiviats pour l'alimentation au jour 251. Pour une charge appliquée moyenne de 219 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j du jour 253 au jour 266, la charge éliminée moyenne est de 112 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j pour J3. Ainsi, il apparait que l'oxydation du CH<sub>4</sub> peut continuer malgré la diminution de température du liquide d'alimentation. Par la suite, au jour 266, après l'échantillonnage, l'alimentation en CH<sub>4</sub> a été arrêtée afin de tester l'effet de l'ajout du CH<sub>4</sub> sur le traitement de l'azote NO<sub>3</sub><sup>-</sup> des lixiviats : cet objectif est discuté à la section 4.2. Il est à noter que durant cette phase, l'alimentation en air s'est continuée. Après la

remise en marche du système d'alimentation en CH<sub>4</sub>, soit 13 jours plus tard, le traitement du CH<sub>4</sub> a repris. Effectivement, seulement après deux jours d'alimentation, du jour 281 au jour 295, les capacités d'élimination étaient retrouvées : pour une charge appliquée moyenne de 210 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j, une charge éliminée moyenne de 98 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j a été mesurée pour J3. Les performances épuratoires, même avec l'arrêt de l'alimentation en CH<sub>4</sub>, sont demeurées stables : 51 % d'enlèvement avant l'arrêt contre 47 % d'enlèvement après la remise en marche de l'alimentation en CH<sub>4</sub>. En comparaison, sur la période s'échelonnant du jour 253 au jour 295, la charge appliquée moyenne au témoin J2 a été de 215 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j pour une charge éliminée moyenne de 113 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j.

Il apparait donc que les charges éliminées par les deux réacteurs sont équivalentes, pour une même charge appliquée, et que la diminution de la température d'alimentation liquide du réacteur à 8 °C n'a pas affecté de manière marquée et négative la prise en charge du CH<sub>4</sub> dans le biofiltre durant les expérimentations.

#### 4.1.1.3 Performance d'enlèvement du NO<sub>3</sub><sup>-</sup>

La Figure 14 montre les performances d'enlèvement du NO<sub>3</sub>-, soit les charges appliquées et éliminées en N-NO<sub>3</sub>en fonction des jours d'opération pour le réacteur J3 et le réacteur témoin J2.





Du jour 253 au jour 266, soit après la diminution de la température d'alimentation liquide, il apparait que l'enlèvement des NO<sub>3</sub>-s'est continué. Effectivement, durant cette période, il est possible de calculer une charge appliquée moyenne de 22,6 gN-NO<sub>3</sub>-/m³/j pour une charge éliminée moyenne de 3,2 gN-NO<sub>3</sub>-/m³/j. Cela

représente donc un enlèvement d'environ 14,2 %. Les résultats des jours 266 à 281 sont discutés à la section 4.2 : la prise en charge des NO<sub>3</sub> s'est arrêtée durant cette période. Lors de la remise en marche de l'alimentation en CH<sub>4</sub> dans le réacteur J3, le traitement des NO<sub>3</sub>- a repris : il a fallu environ 6 jours pour revenir aux performances précédentes. Effectivement, les conséquences observables des changements d'opération au niveau des liquides sont visibles moins rapidement qu'au niveau des gaz. Le débit liquide étant plus faible que le débit de gaz, le temps de résidence des liquides est plus long que celui des gaz dans le réacteur. Effectivement, en considérant un volume de garnissage de 45 litres et les débits d'alimentation liquide et gazeuse, il est possible de calculer un EBRT de 85 minutes pour les gaz et de 28 jours pour les liquides. Du jour 284 au jour 295, une charge éliminée moyenne de 2,6 gN-NO<sub>3</sub>/m<sup>3</sup>/j a été mesurée pour une charge appliquée moyenne de 25,0 gN-NO<sub>3</sub> /m<sup>3</sup>/j, ce qui représente un enlèvement de 10,4 %. À titre de comparaison, le réacteur témoin J2 a consommé en moyenne 4,4 gN-NO<sub>3</sub>/m<sup>3</sup>/j pour une charge appliquée moyenne de 25,1 gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/m<sup>3</sup>/j du jour 253 au jour 295, soit un enlèvement de 17,5 %. La différence de performance entre J2 et J3 variant de 3,5 à 7,1 % pourrait être attribuable à la température d'alimentation liquide qui était de 8 °C pour le réacteur test J3 et d'environ 21 °C pour le réacteur témoin J2. Effectivement, comme mentionné précédemment, les températures plus basses impactent négativement la réalisation des processus biologiques. Cependant, il demeure que les deux réacteurs permettent tout de même d'obtenir des performances d'enlèvement semblables se situant dans le même ordre de grandeur.

#### 4.1.1.4 Profil de température des réacteurs J2 et J3

La Figure 15 montre le profil de température du réacteur J2 en fonction des jours d'opération. Il est à noter que la position des capteurs a été présentée à la Figure 12 de la section 3.2.4, le capteur « B » étant le plus éloigné de la base du réacteur et le capteur « E » étant le plus près de la base. Aussi, « T<sub>amb</sub> » signifie température ambiante.



Figure 15 - Profil de température du réacteur témoin J2 en fonction des jours d'opération (le capteur « B » est le plus éloigné de la base et le capteur « E » est le plus près de la base)

Il est possible de voir que le profil de température est demeuré stable, sans changement majeur tout au long des expérimentations. La variation à la hausse des températures entre les jours 243 et 259 est aussi observée pour le réacteur J3 (Figure 16). Cela propose donc que cette variation pourrait être due à un facteur externe ou encore à la baisse du débit liquide de 3,2 à 1,5 L/j effectuée au jour 237 sur les quatre réacteurs. Le débit avait été diminué afin de tenter d'obtenir des températures plus chaudes à l'intérieur avant de démarrer les tests en températures froides. Effectivement, durant les expérimentations il a été possible de voir que la baisse du débit liquide provoquait une augmentation des températures internes et un déplacement de la zone la plus chaude vers le haut du réacteur (voir Annexe B pour les résultats en lien avec cette conclusion). Comme la masse d'eau à chauffer était plus faible, une augmentation de température plus importante était observée.

La Figure 16 montre le profil de température en fonction des jours d'opération dans le réacteur J3.



Figure 16 - Profil de température du réacteur J3 en fonction des jours d'opération (le capteur « B » est le plus éloigné de la base et le capteur « E » est le plus près de la base)

Premièrement, il est possible de voir qu'après la diminution de la température d'alimentation liquide, au jour 251, la section la plus active du biofiltre, et donc la plus chaude s'est déplacée vers le bas. Effectivement, jusqu'au jour 255 environ la température la plus chaude se trouvait à la position « C », avant de se déplacer vers la position « D ». La température à la position « E » a d'ailleurs aussi augmenté pour devenir la deuxième zone la plus chaude au jour 266. La position « B », qui semblait équivalente à la position « E » avant le changement de température a vu sa température diminuée autour de 24 °C.

Des jours 266 à 279, l'alimentation en CH<sub>4</sub> a été coupée. Cette portion de courbe est discutée plus en détail à la section 4.2.

Après la remise en marche de l'alimentation en CH<sub>4</sub>, au jour 279, les températures internes ont augmenté sur tout le profil du réacteur, ce qui concorde avec les résultats précédents : la reprise du traitement du CH<sub>4</sub> et des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> a provoqué une augmentation des températures en lien avec le caractère exothermique de la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub>. Cette différence pourrait aussi s'expliquer par la température d'alimentation liquide qui a été modifiée au jour 251. Effectivement, les sondes aux positions B, C et D présentaient déjà des diminutions de températures avant l'arrêt de l'alimentation en CH<sub>4</sub> au jour 266. Bien que les températures des différents points de mesure soient un peu plus faibles qu'auparavant, il est intéressant de voir que même après un arrêt de 13 jours, le traitement du CH<sub>4</sub> et la prise en charge des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> reprennent et que les températures augmentent

à nouveau. La biofiltration est une technologie ayant prouvé son efficacité à reprendre le traitement après un arrêt (Jorio et Heitz, 1999) et il semble que la biofiltration méthanotrophe n'y fasse pas exception.

# 4.1.1.5 Discussion sur le changement de température d'alimentation liquide sur le réacteur J3

Ainsi, il apparait que, malgré une baisse de la température de l'alimentation liquide du biofiltre, le traitement du CH<sub>4</sub> et des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> s'est continué au sein du réacteur J3. Effectivement, la charge éliminée moyenne en CH<sub>4</sub> est de 98 à 112 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j, ce qui représente un pourcentage d'enlèvement de 47 à 51 % pour le réacteur J3, alors qu'une charge éliminée moyenne de 113 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j a été obtenue avec le réacteur témoin, soit un pourcentage d'enlèvement de 53 %. Dans l'étude de Cabral *et al.* (2010) effectuée sur le terrain avec un procédé de biorecouvrement pour l'oxydation passive du CH<sub>4</sub>, une capacité d'élimination du CH<sub>4</sub> de presque 100 % a été maintenue malgré la diminution de la température extérieure (et donc de la température du sol) et l'augmentation de la charge appliquée en CH<sub>4</sub> au même moment. Donc, bien que dans la présente étude l'enlèvement du CH<sub>4</sub> n'a pas été de 100 %, il demeure que la capacité d'élimination du CH<sub>4</sub> dans le réacteur s'est maintenue malgré la diminution de la température liquide et donc une diminution de la température dans la partie supérieure du biofiltre. Cela concorde d'ailleurs avec l'étude de Gebert *et al.* (2003) qui montre que le traitement du CH<sub>4</sub> pourrait se continuer durant la saison hivernale puisque la composition de la population microbienne au sein d'un biofiltre ou d'un biorecouvrement apparait comme étant capable de s'adapter aux températures froides.

Il a été possible de voir l'influence d'une alimentation liquide plus froide sur le profil de température en raison d'un refroidissement sur la couche supérieure du biofiltre, près de la zone d'aspersion. Ainsi, la zone active du biofiltre, c'est-à-dire là où la température est plus élevée, s'est déplacée vers le bas. Il faut tout de même tenir compte que la température extérieure était à environ 21 °C comparativement à diverses études qui se déroulent sur le terrain directement. L'isolant a permis de restreindre en partie les échanges entre l'extérieur et l'intérieur du biofiltre en termes d'énergie thermique : aucune augmentation de chaleur n'a été observée à la surface de l'isolant. Cependant, l'étude du réacteur J4 montre que l'isolant possède ses limites. Cet aspect est abordé dans la section 4.1.2. Ce comportement de déplacement de la zone la plus chaude, soit la zone active du biofiltre, en présence de température froide à la surface, avait été observé par Cabral *et al.* (2010) avec un procédé de biorecouvrement pour l'oxydation passive du CH<sub>4</sub> sur le terrain. Effectivement, avec la diminution de la température à la surface du biorecouvrement, et donc de la température du sol, au début de septembre, la zone la plus chaude du système s'était déplacée vers la couche inférieure, soit à une profondeur comprise entre 0,45 et 0,7 m, alors qu'elle se trouvait dans la partie supérieure, soit à une profondeur de 0,1 à 0,25 m entre mai et septembre.

# 4.1.2 Impact de la diminution de la température des lixiviats et de la température ambiante

Afin d'étudier l'effet de la diminution de la température d'arrivée d'eau et de la température ambiante, le réacteur J4 a été placé dans une chambre réfrigérée hors tension au départ, puis démarrée par la suite. La pompe d'alimentation liquide a été placée dans cette même chambre réfrigérée (voir section 3.1.5 pour le fonctionnement du montage). Ainsi, lorsque la chambre réfrigérée a été mise sous tension, il a été possible d'obtenir une température ambiante et une température d'alimentation liquide avoisinant les 4 °C. Cette expérimentation avait aussi pour but de vérifier l'effet de l'isolant et de sa capacité à limiter les échanges thermiques entre l'intérieur et l'extérieur du réacteur.

Dans cette section, le réacteur J3 et J4 sont comparés : la différence entre les deux réacteurs repose sur la température ambiante qui est de 4 °C pour le réacteur J4 et d'environ 21 °C pour le réacteur J3. Par ailleurs, comme il a été mentionné précédemment, l'alimentation liquide du réacteur J4 était à 4 °C alors que l'alimentation liquide du réacteur J3 est à 8 °C. Finalement, pour le réacteur J4, il faut aussi savoir que le mélange gazeux partait du hall d'essai à température pièce, mais une section de tuyau (du mur de la chambre réfrigérée au réacteur) était à environ 4 °C dans la chambre réfrigérée avant de rejoindre l'entrée du réacteur. Bien que la température du gaz ne devrait pas avoir d'influence notable selon les résultats obtenus avec le logiciel de thermodynamique d'IQ-CRIQ (Groupe Conseil Technosim inc., 2007), il apparait que cette différence doit être gardée en tête au regard des résultats.

# 4.1.2.1 Performance d'enlèvement du CH<sub>4</sub>

La Figure 17 montre la charge en CH<sub>4</sub> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J3 et J4.



#### Figure 17 - Charges appliquées et éliminées en CH<sub>4</sub> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J3 et J4

Il est possible de voir qu'après le changement de température au jour 251 la capacité du réacteur à traiter le CH<sub>4</sub> a chuté de manière assez rapide. Effectivement, la charge éliminée se situait entre 114 et 120 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j avant le changement de température pour ensuite diminuer et se stabiliser à des valeurs mesurées entre 4 et 8 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j. Il apparait donc que les méthanotrophes n'ont pas été en mesure de continuer d'effectuer l'oxydation du CH<sub>4</sub> après la baisse des températures.

Ce résultat pourrait s'expliquer par le changement drastique de température qui a probablement nui aux processus biologiques au sein du biofiltre et à l'adaptation de la biomasse méthanotrophe. Comme mentionné précédemment, Gebert *et al.* (2003) proposaient que le traitement du CH<sub>4</sub> pourrait se continuer en période hivernale étant donné la capacité de la population microbienne à s'adapter aux températures froides. Cependant, dans le cas présent, la chute de la température a été drastique alors qu'en temps normal cette dernière est graduelle et pourrait donc permettre une adaptation progressive. Par ailleurs, les expérimentations terrain d'IQ-CRIQ (2016) avec un biofiltre méthanotrophe pour le traitement des gaz d'enfouissement d'un LET ont montré une conversion de CH<sub>4</sub> toute l'année, le procédé ayant été opéré d'octobre 2013 à septembre 2015. Une capacité moyenne d'élimination de 156 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j a été obtenue, ce qui est relativement semblable à ce qui a été obtenu dans le cadre de la présente expérimentation.

#### 4.1.2.2 Performance d'enlèvement du NO<sub>3</sub><sup>-</sup>

La Figure 18 montre les charges appliquées et éliminées en N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J3 et J4.



Figure 18 - Charges appliquées et éliminées en N-NO3<sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J3 et J4

Les mêmes observations qu'à la Figure 17 peuvent être faites : après la diminution de la température d'alimentation liquide et de la température ambiante au jour 251, la capacité du réacteur J4 à prendre en charge les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> a grandement diminué et est devenue nulle. Comme il a été observé auparavant, la réponse au niveau des liquides, donc des NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, est moins marqué et se fait plus lentement qu'au niveau des gaz. Le milieu filtrant étant composé de tourbe, il agit comme une éponge et le débit de liquide étant faible, les changements d'opération dans l'alimentation liquide des réacteurs n'étaient visibles qu'après plusieurs jours à la sortie. Effectivement, jusqu'au jour 260, la capacité d'élimination des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> du réacteur J4 s'est maintenue, avant de diminuer et de devenir nulle au jour 270. En comparaison, bien que la capacité de traitement du réacteur J3 était plus faible que celle de J4, le réacteur J3 semble maintenir sa capacité à traiter après la diminution de la température de l'alimentation liquide au jour 251 jusqu'au jour 266, où l'alimentation en CH<sub>4</sub> a été coupée. Comme expliqué précédemment, après avoir remis en marche l'alimentation en CH<sub>4</sub> pour le réacteur J3 au jour 279, le traitement des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> a repris à un rythme semblable à partir du jour 284. La portion de la courbe où l'alimentation en CH<sub>4</sub> a été coupée (jours 266 à 279) est discutée à la section 4.2.

Ainsi, la diminution de la température ambiante semble avoir affecté la capacité du réacteur J4 à traiter les NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Cette observation concorde avec l'arrêt de l'oxydation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes qui par le fait même n'assimilent plus les NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Comme expliqué précédemment, le EBRT des gaz (85 minutes) étant plus faible que celui des liquides (28 jours), la réponse du système suite à un changement d'opération est perceptible plus rapidement pour les gaz que pour les liquides.

### 4.1.2.3 Profil de température du réacteur J4

La Figure 19 montre le profil de température du réacteur J4 en fonction des jours d'opération pour les différents capteurs installés dans le réacteur.



Figure 19 - Profil de température du réacteur J4 en fonction des jours d'opération (le capteur « B » est le plus éloigné de la base et le capteur « E » est le plus près de la base)

La Figure 19 montre une chute drastique des températures internes sur tout le profil du réacteur J4, pour se stabiliser à une température autour de 3,8 °C. Ainsi, cela confirme l'arrêt de la prise en charge du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes : la chute de la température ambiante a provoqué l'arrêt du traitement et donc l'arrêt de la réaction exothermique et du dégagement de chaleur. En comparaison, la Figure 16 qui présente le profil de température du réacteur J3 montre que les températures internes se maintiennent malgré la diminution de la température de l'alimentation liquide.

Par ailleurs, il est intéressant de voir qu'au moment où les températures ont été modifiées (jour 251), le capteur en position « E » est celui qui a diminué le plus rapidement, alors que le capteur en position « B » était le plus froid au départ. Le mélange de gaz était à la température ambiante dans le hall d'essai et une longueur de tuyau souple d'environ deux mètres se trouvait dans la chambre réfrigérée pour acheminer les gaz au réacteur. Les gaz ont donc pu se refroidir au passage dans le tuyau souple, mais aucune température n'a été mesurée à cet endroit. Ainsi, il pourrait être pensé que la température du gaz a pu avoir une légère influence au bas du réacteur. Cependant, le fait que les couverts aux deux extrémités n'étaient pas isolés apparait comme la cause la plus probable de cette chute de température observée à l'intérieur du biofiltre.

Il semble donc que l'isolant n'a pas pu jouer complètement le rôle souhaité, soit d'éviter les échanges thermiques entre l'intérieur et l'extérieur du réacteur. L'objectif de reproduire en laboratoire une situation semblable à celle sur le terrain n'a pas été complètement rempli. Effectivement, sur le terrain, la taille du biofiltre serait beaucoup plus importante et il y aurait une isolation naturelle faite par le sol entourant ce dernier. Une partie du biofiltre pourrait devenir inactive en raison des températures froides, mais le cœur du biofiltre pourrait probablement être assez bien isolé et continuer de fonctionner. C'est d'ailleurs ce qui a été observé lors des essais de biofiltration pour le traitement de gaz d'enfouissement (sans traitement de lixiviat) sur le terrain par IQ-CRIQ dans la Ville de Québec qui ont montré des températures internes de plus de 60 °C en octobre et de 40 °C en novembre (Turgeon *et al.*, 2011). Par ailleurs, sur le terrain, les températures présentent des variations diurnes et diminuent de manière moins drastique, d'où il pourrait être supposé que la composition de la population microbienne pourrait s'adapter aux changements de température extérieure (Gebert *et al.*, 2003).

# 4.2 Bénéfice de l'ajout du CH<sub>4</sub> sur le traitement des lixiviats

Le deuxième objectif du projet était de démontrer que l'ajout du traitement du CH<sub>4</sub> en simultané avec le traitement des lixiviats des sites d'enfouissement permet d'améliorer la prise en charge de l'azote NO<sub>3</sub><sup>-</sup> au sein d'un biofiltre. Le réacteur J3 a permis de répondre à cet objectif. Les résultats de prise en charge de l'azote, ainsi que les différents changements d'opération sont présentés à la Figure 20 qui est une adaptation de la Figure 14.



Figure 20 - Charges appliquées et éliminées en N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J2 et J3 : arrêt de l'alimentation en CH<sub>4</sub> sur le réacteur J3

Du jour 251 au jour 266, l'alimentation du réacteur s'est faite selon les valeurs présentées au Tableau 4. Dans ces conditions d'opération, une consommation en NO<sub>3</sub><sup>-</sup> de 3,2 gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup> a été mesurée en moyenne sur les jours 253 à 266 pour le réacteur J3. Bien que la charge éliminée soit relativement faible, il apparait qu'il y a une prise en charge des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> au sein du réacteur. Le comportement du réacteur face à l'arrêt de l'alimentation en CH<sub>4</sub> montre donc que la prise en charge des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> dans le biofiltre peut être attribuée à l'activité des méthanotrophes et à leurs besoins en NO<sub>3</sub><sup>-</sup>.

Du jour 266 au jour 279, l'alimentation en CH<sub>4</sub> a été coupée, ainsi seulement de l'air a alimenté le réacteur en gaz. Il est possible de voir que lors de l'arrêt de l'alimentation en CH<sub>4</sub>, la prise en charge de l'azote diminue et devient nulle.

L'alimentation en CH<sub>4</sub> a par la suite été remise en marche au jour 279 et le traitement de l'azote des lixiviats a repris. Le délai de réponse est un peu plus long pour les liquides que pour les gaz : la diminution de la prise en charge s'est observée de manière moins drastique pour les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> que pour le CH<sub>4</sub>. Il a donc fallu environ 5 jours pour retrouver une prise en charge semblable à ce qui était observé auparavant. Du jour 284 au jour 295, la consommation moyenne de NO<sub>3</sub><sup>-</sup> a été de 2,6 gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/m<sup>3</sup>/j, ce qui est comparable à ce qui était éliminé avant l'arrêt de l'alimentation en CH<sub>4</sub>. Ainsi, il apparait intéressant d'ajouter le traitement du CH<sub>4</sub> au sein du procédé

de biofiltration puisque les capacités épuratoires en lien avec l'enlèvement des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> des lixiviats sont améliorées.

Par ailleurs, il est possible de remarquer que les différents profils de charge de NO<sub>3</sub><sup>-</sup> présentés sont un peu instables. Considérant que l'entrée liquide contient environ 700 mgN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L, des dilutions de l'ordre de 1:25 ont été faites pour analyser les échantillons, ce qui induit une certaine incertitude sur les données. Des analyses ont été effectuées par un laboratoire accrédité afin de confirmer les analyses au hall d'essai. Un pourcentage d'erreur maximal entre deux mesures de 6,5 % a été obtenu (voir le Tableau 26 de l'Annexe C).

La Figure 21 (adaptation de la Figure 16) présente le profil de température pour le réacteur J3 en fonction des jours d'opération en identifiant la zone d'intérêt de l'arrêt d'alimentation en CH<sub>4</sub>.



Figure 21 - Profil de température du réacteur J3 en fonction des jours d'opération : arrêt de l'alimentation en CH<sub>4</sub> (le capteur « B » est le plus éloigné de la base et le capteur « E » est le plus près de la base)

Après l'échantillonnage au jour 266, l'alimentation en CH<sub>4</sub> a été coupée. Il est possible de voir une diminution de température sur tout le profil du réacteur. Ainsi, il apparait que la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub> avait bien lieu dans le réacteur : l'absence d'oxydation du CH<sub>4</sub> provoque l'arrêt de la prise en charge de l'azote comme il a été observé à la Figure 20 et une chute de température interne vers la température ambiante. Aussi, la température à la position « B » a diminué en deçà, de la température ambiante.
## 4.3 Impact de l'augmentation de la charge appliquée en CH<sub>4</sub>

Le troisième objectif du projet était de voir l'impact de l'augmentation de la charge en CH<sub>4</sub> sur les performances épuratoires du biofiltre. Pour ce faire, la concentration en CH<sub>4</sub> à l'entrée a été augmentée de 2 à 3 % au jour d'opération 257 sur le réacteur J1. La charge appliquée sur J1 représente donc une fois et demie la charge appliquée sur le témoin J2, le débit d'alimentation étant demeuré le même.

#### 4.3.1 Performance d'enlèvement du CH<sub>4</sub> et des NO<sub>3</sub>-

La Figure 22 montre les résultats quant aux charges appliquées et éliminées en CH<sub>4</sub> pour le réacteur J1 qui a vu sa charge augmentée en fonction des jours d'opération. À titre de comparaison, les résultats du réacteur témoin J2 ont aussi été ajoutés.



Figure 22 – Charges appliquées et éliminées en CH4 en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J1 et J2

Il est possible de voir que l'enlèvement du CH<sub>4</sub> demeure relativement semblable pour les deux réacteurs, et ce malgré une charge appliquée augmentée pour le réacteur J1. En moyenne, pour le réacteur J1, la charge appliquée est de 321 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j alors que la charge traitée est de 112 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j du jour 260 au jour 295. En comparaison, pour le réacteur témoin J2, la charge appliquée moyenne est de 215 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j alors que la charge traitée est de 113 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j alors que la charge traitée est de 113 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j du jour 253 au jour 295. Il apparait donc que le biofiltre est limité dans sa capacité à prendre en charge une quantité plus importante de CH<sub>4</sub>. À première vue, il aurait été possible de penser que l'augmentation de la concentration aurait permis une meilleure diffusion du CH<sub>4</sub> au sein du biofilm et donc, une

plus grande disponibilité du gaz pour les méthanotrophes. Contrairement à ce qui a été observé ici, pour un même EBRT, plusieurs études ont démontré que l'augmentation de la charge en CH<sub>4</sub> à l'entrée du système permettait d'accroitre l'efficacité d'enlèvement du CH<sub>4</sub> (La *et al.*, 2018). Il est donc possible de croire qu'il y a un élément qui est limitant dans le système.

La Figure 23 montre les charges appliquées et les charges éliminées en N-NO<sub>3</sub>- pour le réacteur J1 et le réacteur témoin J2 en fonction des jours d'opération.



#### Figure 23 – Charges appliquées et éliminées en N-NO3<sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour les réacteurs J1 et J2

En observant la Figure 23, il est possible de voir que la consommation moyenne de NO<sub>3</sub><sup>-</sup> de 4,8 gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/m<sup>3</sup>/j du jour d'opération 260 au jour 295 pour le réacteur J1 pour une charge appliquée de 24,0 gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/m<sup>3</sup>/j. Pour ce qui est du réacteur témoin J2, la consommation des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> a été de 4,4 gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/m<sup>3</sup>/j du jour d'opération 253 au jour 295 pour une charge appliquée de 25,1 gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/m<sup>3</sup>/j. Il est donc possible d'affirmer que c'est environ la même quantité d'azote NO<sub>3</sub><sup>-</sup> qui a été consommée, et ce malgré une plus grande disponibilité de CH<sub>4</sub> pour le réacteur J1. Cela démontre que la quantité d'azote NO<sub>3</sub><sup>-</sup> consommée est directement liée aux besoins métaboliques des méthanotrophes pour l'oxydation du CH<sub>4</sub>. Par ailleurs, comme les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> sont non nulles en sortie, il semble y avoir des limitations au sein du réacteur : malgré une plus grande charge appliquée en CH<sub>4</sub>, le réacteur est limité dans sa capacité à prendre en charge plus de CH<sub>4</sub> et par le fait même, dans sa capacité à effectuer l'enlèvement de l'azote NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Ces limitations peuvent montrer un problème au niveau du balancement

ou de la disponibilité entre le CH<sub>4</sub> et les autres éléments nutritifs nécessaires au métabolisme des méthanotrophes.

Comme les lixiviats sont prétraités, il serait possible d'envisager qu'une carence en phosphore pourrait être présente puisqu'il a probablement été retiré en partie lors du traitement des lixiviats au LET. Les mesures en phosphore total montrent que la différence entre la concentration à l'entrée et à la sortie est faible et les concentrations en sortie ne sont pas nulles. Au jour 295, la concentration en phosphore à l'entrée était de 0,28 mgP/L et les concentrations en sorties étaient de 0,24 mgP/L, 0,84 mgP/L et 0,11 mgP/L pour les réacteurs J1, J2 et J3 respectivement. En considérant les données des jours 0 à 240, les concentrations à l'affluent ont varié de 0,23 mgP/L à 0,30 mgP/L (voir Annexe C). Considérant la concentration faible à l'affluent, il est possible de croire qu'il pourrait être limitant. Un suivi plus serré du phosphore serait à envisager.

L'hypothèse d'un manque d'oxygène dans le biofilm peut aussi être une piste. La littérature rapporte que le taux d'oxydation du CH<sub>4</sub> n'était pas influencé par la concentration en oxygène si cette dernière se maintenait audessus de 3 % (Ménard *et al.*, 2012). Dans le cas présent, la concentration d'oxygène ne semble pas être un problème : une concentration moyenne de 18,4 % a été observée à la sortie pour une concentration moyenne à l'entrée de 20,6 % (moyenne des concentrations mesurées entre les jours d'opération 260 et 295). Cependant, bien qu'il y avait un résiduel d'oxygène important, il est possible de croire que la diffusion de l'oxygène dans le biofilm peut être problématique. Il a été observé que des concentrations supérieures à 10 %v/v d'oxygène favoriseraient la production de substances polymériques extracellulaires (SPE) et donc l'épaississement du biofilm. Cette production de SPE entraînerait une limitation de la diffusion de l'oxygène dans le biofilm et par le fait même une réduction du taux d'oxydation du CH<sub>4</sub> (Ménard *et al.*, 2012). Cette limitation avait été observée après 100 jours d'opération d'un biofiltre. Considérant que les expérimentations se sont déroulées sur presque 300 jours, cette hypothèse apparait comme plausible. Aussi, l'humidité peut jouer un rôle dans la diffusion des gaz, les processus de transport par diffusion étant plus lents dans l'eau que dans l'air. Un taux d'humidité trop élevé oblige les gaz à diffuser dans la phase liquide, ce qui réduit le transfert et la disponibilité du CH<sub>4</sub> et de l'O<sub>2</sub> et limite donc l'oxydation du CH<sub>4</sub> (Scheutz *et al.*, 2009).

Dans un autre ordre d'idée, il pourrait y avoir des éléments qui inhibent la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub>, comme des métaux ou autres composés toxiques présents dans les lixiviats ou encore des éléments présents au sein même du média filtrant. Effectivement, comme mentionné précédemment, les lixiviats sont réputés pour contenir une foule de contaminants, ce qui augmente le potentiel d'avoir divers composés qui inhibent les réactions biologiques. L'ion Cl- a d'ailleurs été montré comme ayant un potentiel d'inhibition sur l'oxydation du CH<sub>4</sub> (Scheutz *et al.*, 2009). Une analyse de différents ions effectuée au jour d'opération 215 avait montré une

concentration de plus de 2000 mg/L de Cl<sup>-</sup> dans les lixiviats. Cependant, les recherches actuelles ne permettent pas de valider cette hypothèse d'inhibition par les ions Cl<sup>-</sup>.



#### 4.3.2 Profil de température du réacteur J1

La Figure 24 présente la température en fonction des jours d'opération pour le réacteur J1.

Figure 24 - Profil de température du réacteur J1 en fonction des jours d'opération (le capteur « B » est le plus éloigné de la base et le capteur « E » est le plus près de la base)

Il est possible d'observer une augmentation de la température interne du réacteur au jour 259, puis une diminution graduelle jusqu'au jour 295. Ce profil au niveau des températures concorde avec ce qui a été mesuré pour l'élimination du CH<sub>4</sub>. En se référant à la Figure 22, l'échantillonnage au jour 259, soit 2 jours après avoir augmenté la charge appliquée en CH<sub>4</sub>, a montré une légère augmentation de la prise en charge du CH<sub>4</sub>, passant de 105 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j à 139 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j traité. Cependant, cette augmentation ne s'est pas maintenue et une décroissance graduelle a d'ailleurs été observée jusqu'à une prise en charge de 77 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j au jour 295. Il est donc possible de voir que la température interne est directement corrélée avec la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub>, et ce avec une température ambiante qui est relativement stable et qui ne présente pas ce profil de décroissance graduelle.

## 4.4 Ratio de consommation CH<sub>4</sub>/N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>

Évidemment, bien qu'il y ait une consommation de NO<sub>3</sub><sup>-</sup> au sein des réacteurs, l'enlèvement des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> par les réacteurs J1, J2 et J3 qui a varié entre 10 % et 20 %, peut paraitre faible dans l'optique où l'objectif est

d'améliorer le traitement des lixiviats via l'ajout du CH<sub>4</sub> au procédé de biofiltration. Cependant, en comparant les résultats actuels avec l'étude antérieure d'IQ-CRIQ (2014), des résultats équivalents en termes d'enlèvement de N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup> ont été obtenus. Le Tableau 6 présente les charges appliquées et éliminées moyennes en CH<sub>4</sub> et en azote NO<sub>3</sub><sup>-</sup> pour les réacteurs J1, J2 et J3 du présent projet et pour un projet antérieur d'IQ-CRIQ (2014) pour les périodes optimales ainsi que les ratios CH<sub>4\_oxydé</sub>/N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup><sub>assmillé</sub>.

Réacteur Charge CH<sub>4</sub> Charge N-NO<sub>3</sub>-Ratio Jour Projet g CH<sub>4 oxvdé</sub> gCH₄/m³/j gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/m<sup>3</sup>/j d'opération g N-NO3<sup>-</sup> assimilé Appliquée Éliminée Appliquée Éliminée J1 260 à 295 23 320.9 112,5 24.0 4.8

112,8

112,7

98,3

170,2

25,1

22.6

25,0

14,1

4,4

3.2

2,6

5,7

26

35

37

30

215,3

218,1

209,5

202,4

Présent projet

de maîtrise

**IQ-CRIQ** (2014)

J2

J3

L2

253 à 295

253 à 266

284 à 295

322 à 442

Tableau 6 - Charges appliquées et éliminées pour le présent projet et les travaux antérieurs d'IQ-CRIQ et les ratios CH4\_oxydé/N-NO3<sup>-</sup>assimilé

Il est possible de voir que les ratios varient entre 23 et 37. Ainsi, il apparait que le réacteur J1 montre les meilleures performances d'enlèvement. Effectivement, pour traiter 1 g de N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, il faut être en mesure d'éliminer 23 g de CH<sub>4</sub> seulement alors que pour le réacteur J3 il faut être capable d'éliminer 35 à 37 g de CH<sub>4</sub> pour éliminer la même quantité d'azote. Ainsi, il apparait que J3 a montré un enlèvement d'azote plus faible que J1 et J2. Comme la température d'alimentation liquide était plus faible, il est possible de penser que les processus biologiques ont pu être affectés.

Pour ce qui est des travaux antérieurs d'IQ-CRIQ (2014), un ratio de 30 gCH<sub>4</sub>/gN a pu être calculé pour la période optimale d'opération, soit des jours 322 à 442. Il se retrouve donc dans le même ordre de grandeur que les autres réacteurs.

Les travaux antérieurs de Jewell *et al.* (1992) sur un réacteur méthanotrophe à lit fluidisé portent sur l'étude du comportement d'assimilation de l'azote et du phosphore par les méthanotrophes sous différentes conditions de limitations en lien avec la cinétique de croissance des bactéries et la stœchiométrie. Le réacteur était alimenté avec un liquide synthétique composé de NH<sub>4</sub>Cl, d'un mélange de K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> et de KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> en équivalence molaire et de l'extrait de levure pour les besoins d'éléments en traces. Ainsi, à l'inverse de la présente expérimentation, le réacteur était alimenté à l'aide de NH<sub>4</sub>+ plutôt que de NO<sub>3</sub>-. Pour ces expérimentations, les ratios calculés étaient de 20 à 37 gCH<sub>4</sub>/gN : les résultats obtenus dans le cadre du présent projet et du projet antérieur d'IQ-CRIQ se situent dans cette gamme de ratios. Ainsi, il semble que l'azote consommé par assimilation dans le projet de maîtrise concorde avec la littérature présentant des travaux antérieurs.

### 4.5 Diminution des GES

Dans le projet, il demeurait important de s'assurer que la quantité de GES était bel et bien réduite. Afin de comparer la production de N<sub>2</sub>O avec la transformation du CH<sub>4</sub>, un calcul d'équivalent en CO<sub>2</sub> a été fait. L'Annexe E présente le détail du calcul, la démarche suivie, ainsi que les données et les résultats intermédiaires. Il est à noter que le calcul a été effectué du jour 215 au jour 295 (sauf pour le réacteur J4 : jour 215 à 278), c'est-à-dire la période correspondant au moment où le FTIR a été utilisé pour la mesure du N<sub>2</sub>O. Le Tableau 7 montre un bref résumé du bilan de réduction des GES pour les quatre réacteurs. Selon les données fournies sur le site du Gouvernement du Canada provenant du GIEC, les valeurs de potentiel de réchauffement global (PRG) sur un horizon de 100 ans ont été utilisées dans le calcul (Gouvernement du Canada, 2019a). Une valeur de 298 a été utilisée pour le N<sub>2</sub>O et une valeur de 25 a été utilisée pour le CH<sub>4</sub>. Bien que le PRG pour le CH<sub>4</sub> ait été évalué à une valeur entre 28 et 36 par la US EPA (s.d.), la valeur issue du rapport officiel des Nations Unies (erratum de 2012) est de 25. Ainsi, l'utilisation de cette valeur montre un scénario plus conservateur en termes de réduction des GES.

	N <sub>2</sub> O	CH₄	Équivalents CO₂		Bilan de réduction
Réacteur	Σ masse produite	Σ masse éliminée	N₂O produit	CH₄ éliminé	des GES
	(g N <sub>2</sub> O)	(g CH <sub>4</sub> )	(g eCO <sub>2</sub> )		(g eCO <sub>2</sub> )
J1	0,7	384	201	9592	9391
J2	1,5	401	456	10031	9575
J3	1,0	335	289	8383	8093
J4	1,3	229	402	5712	5310

Tableau 7 - Bilan d'équivalent en CO<sub>2</sub> pour la réduction des GES

En observant Tableau 7, il est possible de voir que les masses produites de N<sub>2</sub>O sont considérablement inférieures aux différentes quantités de CH<sub>4</sub> éliminées. Ensuite, en tenant compte du facteur de pondération du PRG pour la transposition en équivalents CO<sub>2</sub>, les valeurs de N<sub>2</sub>O produites sont encore une fois plus faibles que les valeurs de CH<sub>4</sub> éliminées. Des réductions variant de 5310 à 9575 g eCO<sub>2</sub> ont été mesurées. Le réacteur J4 a un bilan plus faible puisque le traitement a cessé à partir du jour 251 où les températures ambiantes et d'alimentation liquide ont été diminuées et la prise de mesure s'est arrêtée au jour 278. Il est tout de même à noter que la quantité de N<sub>2</sub>O produite était supérieure à celle des autres réacteurs avant d'effectuer les changements aux paramètres d'opération (température, etc.) et que la prise en charge du CH<sub>4</sub> chute drastiquement. Une compaction plus importante pourrait favoriser la présence de zone anoxie au sein d'un biofiltre et donc la production de N<sub>2</sub>O par dénitrification (Aubry, 2008). La prise de données de compaction n'a pas été réalisée à un intervalle assez régulier pour valider cette information. Cependant, les données de pertes de charge (voir Annexe C) n'indiquent pas de problème quant à une restriction particulière du passage de l'air qui peut survenir lors d'une compaction importante ou d'un colmatage du réacteur.

Pour ce qui est du réacteur J2, la quantité de N<sub>2</sub>O produite a été supérieure à celles produites par les deux autres réacteurs. Cette mesure concorde avec les observations faites au laboratoire : le tuyau de sortie du réacteur J2 montrait souvent une quantité plus importante de dépôts et donc de matières en suspension. Il est donc possible de croire que la quantité de biomasse contenue dans ce réacteur était supérieure aux autres et qu'il y avait un décrochage de la biomasse fixée. Par ailleurs, le réacteur J2 est le premier à avoir présenté une augmentation de la conversion du CH<sub>4</sub> lors de la période préalable (jour 0 à 240) et a maintenu une capacité épuratoire relativement constante sur une durée de plus d'une centaine de jours (voir Annexe B). Aussi, les pertes de charge mesurées pour le réacteur J2 étaient par moment supérieures à celles des autres réacteurs, ce qui indique un début de colmatage, probablement causé par le développement plus accru du biofilm. Un biofilm plus important peut favoriser la présence de zone anoxie, et donc contribuer à la production de N<sub>2</sub>O. Un constat semblable ne peut cependant pas être fait pour le réacteur J4.

En somme, un bilan positif est obtenu : le procédé de biofiltration méthanotrophe a permis de réduire les GES qui auraient pu être envoyés à l'environnement.

## Conclusion

Au Québec, et même à travers le monde, l'enfouissement des déchets est une technique largement utilisée pour l'élimination des matières résiduelles. Bien que peu coûteuse, cette technique présente certaines problématiques qui ne sont pas sans conséquence sur l'environnement. La production de lixiviats, qui sont des eaux usées très chargées issues de la percolation de l'eau dans les amas de déchets, ainsi que la production de gaz d'enfouissement via les processus de dégradation anaérobie de la matière organique représentent deux défis de taille auxquels les exploitants des sites d'enfouissement doivent faire face. Considérant l'impact de ces rejets sur l'environnement, ainsi que la problématique mondiale de réchauffement planétaire qui devient de plus en plus préoccupante, il apparait nécessaire de continuer le développement de technologies plus vertes permettant de réduire les rejets de polluants à l'environnement. Dans cette optique, la biofiltration méthanotrophe apparait comme une option intéressante pour le traitement simultané du CH<sub>4</sub> des gaz d'enfouissement et des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> des lixiviats de manière complémentaire à un traitement des lixiviats déjà en place. La mise en place d'un tel système pour un LET en fin de vie utile ou lorsque la valorisation énergétique n'est plus viable serait aussi deux autres options intéressantes.

Le présent projet de recherche visait à vérifier si le caractère exothermique de la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes pouvait permettre de maintenir l'activité biologique au sein d'un biofiltre en période hivernale afin d'assurer une continuité dans le traitement du CH<sub>4</sub> des gaz d'enfouissement et des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> des lixiviats. Plus particulièrement, trois principaux objectifs ont été formulés :

- Déterminer si la chaleur dégagée par les bactéries méthanotrophes permet de maintenir la capacité épuratoire en période hivernale quant à la dénitrification (assimilation des NO<sub>3</sub>-) effectuée par les bactéries méthanotrophes et le traitement du CH<sub>4</sub> et évaluer cette capacité épuratoire;
- Démontrer que l'ajout du traitement du CH<sub>4</sub> en simultané avec le traitement des lixiviats des sites d'enfouissement permet d'améliorer la prise en charge de l'azote (NO<sub>3</sub>-) au sein d'un biofiltre;
- Déterminer l'effet de la charge appliquée en CH<sub>4</sub> sur le procédé, particulièrement sur le traitement de l'azote (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) des lixiviats.

Afin de répondre aux objectifs énoncés, un montage expérimental constitué de quatre réacteurs a été construit. Les réacteurs ont été alimentés avec des lixiviats prétraités issus d'un LET et un mélange gazeux synthétique composé de CH<sub>4</sub> et d'air. La température ambiante, la température de l'alimentation liquide, ainsi que la concentration en CH<sub>4</sub> font partie des variables ayant été modifiées au cours des expérimentations. Premièrement, même avec une diminution de la température d'alimentation liquide pour le réacteur J3, le traitement du CH<sub>4</sub> et des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> a été maintenu. Pour ce qui est du CH<sub>4</sub>, le réacteur J3 a présenté une capacité moyenne d'élimination du CH<sub>4</sub> entre 98 et 112 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j, alors qu'une valeur moyenne de 113 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j a été observée pour le témoin J2. En ce qui concerne les NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, une capacité d'élimination entre 2,6 à 3,2 gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/m<sup>3</sup>/j a été obtenue pour le réacteur J3, alors qu'une valeur moyenne de 4,4 gN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/m<sup>3</sup>/j a été mesurée pour le réacteur témoin J2. Par ailleurs, le profil de température du réacteur J3 a montré une diminution de température dans la partie supérieure du réacteur, et un déplacement de la zone active, c'est-à-dire la zone chaude, vers le bas du réacteur. Cela s'explique par le fait que le CH<sub>4</sub> est injecté par le bas du réacteur et que les liquides, injectés par le haut, ont plus de temps pour se réchauffer à mesure qu'ils cheminent vers le bas du réacteur. Ces observations permettent donc d'illustrer que le traitement de biofiltration méthanotrophe possède la capacité de s'adapter à une certaine variation de température dans son alimentation liquide et que son application en climat froid pourrait être possible.

Lors de l'arrêt de l'alimentation en CH<sub>4</sub> (réacteur J3 alimenté seulement en air), le traitement des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> s'est complètement arrêté. Ainsi, cela montre qu'il y a bel et bien une prise en charge des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> par les méthanotrophes et que l'ajout du CH<sub>4</sub> au sein du biofiltre permet d'améliorer le traitement des lixiviats. Par ailleurs, l'arrêt d'alimentation en CH<sub>4</sub> a permis de mettre en évidence la capacité du système à reprendre le traitement malgré un arrêt de plusieurs jours.

Ensuite, malgré une augmentation de la charge appliquée en CH<sub>4</sub>, le réacteur J1 n'a pas été en mesure de prendre en charge une quantité supérieure en CH<sub>4</sub> et en NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, ce qui laisse croire qu'il pourrait y avoir un problème de balancement entre le CH<sub>4</sub>, les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> et les autres nutriments essentiels au métabolisme des méthanotrophes. Il est aussi possible de suspecter que la diffusion des gaz dans le biofilm ait été un facteur limitant pour l'oxydation du CH<sub>4</sub>.

Finalement, il est intéressant et encourageant de voir que les charges de N<sub>2</sub>O produites étaient relativement faibles. Comme ce GES est beaucoup plus puissant que le CH<sub>4</sub>, il était important de valider que la production de N<sub>2</sub>O ne contribue pas à obtenir un bilan négatif, soit une augmentation de la quantité nette de GES envoyés à l'environnement en équivalent CO<sub>2</sub>. Le bilan d'équivalent en CO<sub>2</sub> a permis d'obtenir des valeurs positives de réduction des GES, soit des réductions de l'ordre de 5310 à 9575 g eCO<sub>2</sub> avec les différents biofiltres.

En conclusion, le traitement du CH<sub>4</sub> et du NO<sub>3</sub><sup>-</sup> par biofiltration méthanotrophe peut être maintenu même avec une diminution de la température de l'alimentation liquide, cependant, des incertitudes demeurent considérant la difficulté à reproduire les conditions d'un climat nordique en laboratoire à petite échelle. Le réacteur J4 n'a d'ailleurs pas été en mesure de continuer le traitement du CH<sub>4</sub> et du NO<sub>3</sub><sup>-</sup> lors de la chute drastique des températures d'alimentation liquide et ambiante à 4 °C. L'absence d'isolant aux extrémités du réacteur a pu contribuer à cette chute drastique lors de la diminution de la température ambiante à 4 °C.

Cependant, les expérimentations ont montré qu'il y a un bénéfice à ajouter du CH<sub>4</sub> au sein d'un traitement des lixiviats par biofiltration puisqu'il y a eu une diminution de la concentration des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> en sortie. Les concentrations en sorties demeurent toutefois relativement élevées, mais concordent avec les travaux antérieurs.

## Limite du projet

Bien que le projet ait pu mettre en évidence la possibilité d'appliquer la biofiltration méthanotrophe en conditions froides, certaines limites sont à prendre en compte pour la suite du développement de la technologie.

Premièrement, il a été difficile de reproduire des conditions terrain. Comme mentionné précédemment, le réacteur J4 n'a pas été en mesure de continuer à traiter le CH<sub>4</sub> et les NO<sub>3</sub><sup>-</sup> lors de la diminution de la température d'alimentation liquide et la température ambiante à 4 °C. L'isolant ne semble pas avoir été en mesure de combattre la perte de chaleur du biofiltre à la masse d'air ambiante. Cependant, il faut savoir que sur le terrain, une isolation naturelle du biofiltre est effectuée via les parois et la différence d'échelle a probablement contribué à l'arrêt complet du traitement. Par ailleurs, malgré les multiples configurations testées, la température de l'alimentation liquide du réacteur J3 n'a pas pu être abaissée sous les 8 °C alors que les lixiviats se retrouveraient en hiver à des températures plus basses.

Au cours des expérimentations, l'évaluation de la prise en charge des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> était relativement difficile et représente donc une source d'erreur dans l'analyse des résultats. Il y a un certain délai de réponse entre l'entrée et la sortie du système, considérant, entre autres, les débits d'alimentation liquide assez faibles. Ainsi, les changements d'opération dans l'alimentation liquide des réacteurs n'étaient visibles qu'après plusieurs jours à la sortie, ce qui a rendu plus difficile l'analyse des résultats par moment. Par ailleurs, la concentration en azote dans les lixiviats était relativement élevée, soit de l'ordre de 750 mgN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L. Comme la gamme de mesure du test en laboratoire s'étendait de 0,2 à 30,0 mgN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L, il advient qu'une dilution de 1:25 était nécessaire pour analyser les échantillons, ce qui augmente l'erreur sur la mesure. Considérant les quantités d'azote enlevées, une petite différence pouvait se traduire par une variation importante dans les résultats.

Aussi, le mélange gazeux était constitué d'un mélange de gaz naturel, composé en très grande majorité de CH<sub>4</sub> et de quelques impuretés, ainsi que d'air. Cependant, les gaz d'enfouissement peuvent contenir une foule de polluants et il est donc possible de suspecter que la présence d'autres composés présents dans les gaz d'enfouissement pourrait avoir un impact sur la biofiltration méthanotrophe. Par exemple, la présence d'hydrochlorofluorocarbures, qui sont des composés traces dans les gaz d'enfouissement, peut contribuer à inhiber l'oxydation du CH<sub>4</sub> (Scheutz et Kjeldsen, 2004). Aussi, la quantité d'oxygène présente dans les gaz d'enfouissement pourrait être plus faible. Des concentrations d'environ 21 % d'oxygène étaient mesurées dans le mélange gazeux à l'entrée des réacteurs alors que Turgeon *et al.* (2011) ont mesuré des concentrations en oxygène de 7 à 9 %v/v dans les gaz d'enfouissement lors de leurs expérimentations. Cette gamme de concentration a été jugée comme étant relativement élevée par Turgeon *et al.* (2011) et révélait la présence

d'une infiltration d'air dans le système de capture des gaz du site d'enfouissement. Par ailleurs, la pénétration des gaz dans le biofilm a pu limiter la capacité du système à oxyder le CH<sub>4</sub>.

La présence d'inhibiteur dans les lixiviats est aussi à considérer sachant qu'ils sont composés d'une foule de contaminants (ex : les chlorures). La nature des lixiviats et les contaminants qu'ils contiennent peuvent être différents d'un LET à l'autre et avoir un impact significatif sur le biofiltre.

Finalement, les taux d'application des liquides et des gaz étaient relativement faibles comparativement à ce qui peut être fait dans un biofiltre utilisé pour le traitement des lixiviats. Le biofiltre BIOSOR<sup>MD</sup> admet un taux de charge hydraulique de 0,10 à 0,20 m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>/j pour le traitement d'effluents liquides, alors que 0,05 m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>/j a été utilisé pour les jours 240 à 295. Boucher (2010) avait utilisé 0,154 m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>/j pour un lixiviat prétraité dans le cas du traitement des lixiviats exclusivement, alors que lors des expérimentations d'IQ-CRIQ (2014) pour un traitement combiné CH<sub>4</sub>-lixiviat, c'est un taux de charge hydraulique de 0,04 m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>/j qui avait été utilisé. L'application d'une masse d'eau froide plus importante pourrait entraîner des répercussions différentes sur le comportement épuratoire du biofiltre quant aux NO<sub>3</sub><sup>-</sup> et sur sa capacité à maintenir la réaction exothermique d'oxydation du CH<sub>4</sub>. Ainsi, il advient nécessaire de vérifier si l'approche est économiquement intéressante pour le traitement des lixiviats des LET en fonction des quantités de lixiviats qui sont à traiter.

## Perspectives pour les recherches futures

La recherche sur le traitement simultané ne s'arrête pas là puisque plusieurs questionnements demeurent afin de continuer d'approfondir la compréhension des différents phénomènes au sein des biofiltres et d'optimiser le procédé.

Comme mentionné précédemment, le CH<sub>4</sub> est peu soluble dans l'eau. Afin d'augmenter le transfert du CH<sub>4</sub> de la phase gazeuse à la phase aqueuse, des études ont avancé que l'implantation de champignons filamenteux au sein du biofiltre pourrait être bénéfique pour cet aspect en raison de la nature hydrophobe de leurs parois cellulaires (Olivier et Schilling, 2018). Ainsi, le CH<sub>4</sub> pourrait être davantage disponible pour les bactéries méthanotrophes. Par le fait même, le transfert de l'O<sub>2</sub> pourrait aussi être amélioré. Comme le taux d'humidité est aussi un facteur qui peut influencer le transfert des gaz vers le biofilm, une attention particulière devrait y être portée.

La biofiltration pourrait être effectuée à l'aide d'un mélange gazeux plus représentatif des gaz d'enfouissement présent dans un LET. Selon Hanson et Hanson (1996), les méthanotrophes n'oxydent pas seulement le CH<sub>4</sub>, ils ont aussi la capacité d'oxyder des substances, telles que les trichloréthylènes, les alcanes, les alcènes et différents composés aromatiques. Ainsi, il apparait intéressant de voir si leur présence peut favoriser ou nuire la conversion du CH<sub>4</sub> et la prise en charge des NO<sub>3</sub><sup>-</sup>.

Dans ces expérimentations, des lixiviats prétraités, c'est-à-dire ayant reçu un traitement important et contenant déjà des NO<sub>3</sub>-, a été utilisé. Or, le prétraitement pourrait contribuer à causer des carences en certains éléments nutritifs nécessaires aux méthanotrophes. Ainsi, il serait intéressant de vérifier la capacité du système à traiter la DBO<sub>5</sub>, à nitrifier les lixiviats, puis à assimiler l'azote NO<sub>3</sub>- dans des conditions froides. Effectivement, les expérimentations précédentes à IQ-CRIQ sur le traitement simultané avaient eu pour objectif de valider que tous ces phénomènes pouvaient avoir lieu au sein d'un même biofiltre, cependant, les expérimentations avaient été effectuées avec des températures non contrôlées, c'est-à-dire à température pièce. Sachant que la nitrification est particulièrement sensible à la température, il serait intéressant de valider si la réaction exothermique d'oxydation du CH<sub>4</sub> peut permettre de maintenir la transformation de NH<sub>4</sub>+ en NO<sub>3</sub>- en conditions froides.

Par ailleurs, il serait intéressant de se pencher sur la prise en charge plus accrue de l'azote au sein du biofiltre considérant que la charge éliminée moyenne représente 10 % à 20 % de la charge appliquée pour les réacteurs J1, J2 et J3 sur la période qui s'étend du jour 253 au jour 295. Une recherche plus approfondie des possibles inhibiteurs de la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes pourrait être pertinente.

Aussi, un travail pourrait être effectué au niveau du garnissage : le mélange de garnissage d'origine organique et inorganique pourrait permettre de tirer profit de leurs avantages respectifs. Par exemple, le colmatage à long terme est une problématique connue pour les biofiltres organiques en raison de leur faible résistance mécanique.

Bien évidemment, des essais à plus grandes échelles à l'extérieur pourraient permettre de valider le caractère isolant du sol et la capacité du biofiltre à continuer le traitement des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> et du CH<sub>4</sub> en période hivernale. Par ailleurs, en fonction des taux de charge pouvant être appliqués sur le système et des quantités d'azote à traiter dans les lixiviats produits dans un LET, il serait nécessaire de valider la viabilité économique d'un tel système de traitement en fonction des quantités de lixiviats qui sont à traiter.

# Bibliographie

Anthony, C. (1982). The Biochemistry of Methylotrophs. Londres: Academic Press, 431 p.

- Aubry, G. (2008). Étude du comportement de l'azote dans un biofiltre à lit ruisselant traitant du lisier de porc. (Thèse de doctorat), Université Laval, 367 p.
- Bodelier, P. L. E., et Laanbroek, H. J. (2004). Nitrogen as a regulatory factor of methane oxidation in soils and sediments. *FEMS Microbiology Ecology*, *4*7, 265-277. doi:10.1016/S0168-6496(03)00304-0
- Börjesson, G., Sundh, I., et Svensson, B. (2004). Microbial oxidation of CH4 at different temperatures in landfill cover soils. *FEMS Microbiology Ecology*, *48*, 305-312. doi:10.1016/j.femsec.2004.02.006
- Boucher, K. (2011). Biofiltration et captage des métaux lourds de lixiviat de lieu d'enfouissement de matières résiduelles. (Mémoire de maîtrise), Université Laval, 151 p.
- Bozkurt, S., Moreno, L., et Neretnieks, I. (1999). Long-term fate of organics in waste deposits and its effect on metal release. *Science of the Total Environment*, 228(2), 135-152. doi:10.1016/S0048-9697(99)00047-9
- Bundesministerium der Justiz und für Verbraucherschutz (2004). Verordnung über Anforderungen an das Einleiten von Abwasser in Gewässer (Abwasserverordnung - AbwV) : Anhang 51 Oberirdische Ablagerung von Abfällen (p.100). [En ligne] <u>https://www.gesetze-im-internet.de/abwv/anhang\_51.html</u> Consulté le 2020-10-06.
- Burton, S. A. Q., et Watson-Craik, I. A. (1998). Ammonia and nitrogen fluxes in landfill sites: Applicability to sustainable landfilling. *Waste Management & Research, 16*(1), 41-53. doi:10.1177/0734242X9801600106
- Cabral, A. R., Moreira, J. F. V., et Jugnia, L.-B. (2010). Biocover performance of landfill methane oxidation: Experimental results. *Journal of Environmental Engineering*, 136(8), 785-793. doi:10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0000182
- Christensen, T. H., Kjeldsen, P., Albrechtsen, H. J. r., Heron, G., Nielsen, P. H., Bjerg, P. L., et Holm, P. E. (1994). Attenuation of landfill leachate pollutants in aquifers. *Critical Reviews in Environmental Science* and Technology, 24(2), 119-202. doi:10.1080/10643389409388463
- Christopherson, M., Kjeldsen, P., Holst, H., et Chanton, J. (2001). Lateral gas transport in soil adjacent to an old landfill: factors governing emissions and methane oxidation. *Waste Management & Research, 19*(6), 595-612. doi:10.1177/0734242X0101900616
- Christopherson, M., Linderød, L., Jensen, P. E., et Kjeldsen, P. (2000). Methane oxidation at low temperatures in soil exposed to landfill gas. *Journal of Environmental Quality*, 29(6), 1989-1997. doi:10.2134/jeq2000.00472425002900060036x
- Conseil canadien des ministres de l'environnement (2012). *Recommandations canadiennes pour la qualité des eaux : protection de la vie aquatique nitrate*. [En ligne] <u>http://cegg-rcge.ccme.ca/download/fr/109</u> Consulté le 2020-09-27.

- Cossu, R., et Stegmann, R. (2019). Solide Waste Landfilling : Concepts, Processes, Technology. (1ère ed.), Amsterdam : Elsevier, 1190 p. [En ligne] <u>https://www.sciencedirect.com/book/9780128183366/solid-waste-landfilling</u> Consulté le 2020-06-23.
- Dia, O. (2017). Combinaison des procédés de biofiltration et d'électrocoagulation pour le traitement des lixiviats des sites d'enfouissement sanitaires. (Thèse de Doctorat), Institut National de la Recherche Scientifique (INRS), 377 p.
- Dubé, R., et Turgeon, N. (2014). Traitement simultané des lixiviats et des gaz d'enfouissement : Une approche innovante. *Vecteur Environnement, Mars 2014*, 58-64.
- Ehrig, H.-J. (1983). Quality and quantity of sanitary landfill leachate. Waste Management & Research, 1(1), 53-68. doi:10.1016/0734-242X(83)90024-1
- Einola, J.-K. M., Kettunena, R. H., et Rintala, J. A. (2007). Responses of methane oxidation to temperature and water content in cover soil of a boreal landfill. *Soil Biology & Biochemistry*, 39(5), 1156–1164. doi:10.1016/j.soilbio.2006.12.022
- Elser, J. J., Bracken, M. E., Cleland, E. E., Gruner, D. S., Harpole, W. S., Hillebrand, H., Ngai, J. T., Seabloom, E. W., Shurin, J. B., et Smith, J. E. (2007). Global analysis of nitrogen and phosphorus limitation of primary producers in freshwater, marine and terrestrial ecosystems. *Ecology Letters*, *10*(12), 1135-1142. doi:10.1111/j.1461-0248.2007.01113.x
- Gebert, J., Groengroeft, A., et Miehlich, G. (2003). Kinetics of microbial landfill methane oxidation in biofilters. *Waste Management*, 23(7), 609-619. doi:10.1016/S0956-053X(03)00105-3
- Gouvernement du Canada. (2019a). Potentiels de réchauffement planétaire. [En ligne] <u>https://www.canada.ca/fr/environnement-changement-climatique/services/changements-</u> <u>climatiques/emissions-gaz-effet-serre/orientation-quantification/potentiels-rechauffement-</u> planetaire.html. Consulté le 2020-07-30.
- Gouvernement du Canada (2019b). Rapport d'inventaire national 1990-2017 : Sources et puits de gaz à effet de serre au Canada - Partie 3. [En ligne] <u>https://publications.gc.ca/collections/collection\_2019/eccc/En81-4-2017-3-fra.pdf</u> Consulté le 2021-02-01.
- Groupe Conseil Technosim inc. (2007). Biosor version 6.2. Investissement Québec Centre de recherche industrielle du Québec (IQ-CRIQ).
- Hanson, R. S., et Hanson, T. E. (1996). Methanotrophic bacteria. *Microbiological Reviews*, 60(2), 439-471.
- Harmsen, J. (1983). Identification of organic compounds in leachate from a waste tip. *Water Research*, *17*(6), 699-705.
- Haubrichs, R., et Widmann, R. (2006). Evaluation of aerated biofilter systems for microbial methane oxidation of poor landfill gas. *Waste Management*, 26, 408 416. doi:10.1016/j.wasman.2005.11.008
- Howarth, R. W. (2008). Coastal nitrogen pollution: A review of sources and trends globally and regionally. *Harmful Algae, 8*(1), 14-20. doi:10.1016/j.hal.2008.08.015
- IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change). (2013). IPCC Climate change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel

*on Climate Change* Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA. [En ligne] <u>https://www.ipcc.ch/site/assets/uploads/2018/03/WG1AR5\_SummaryVolume\_FINAL.pdf</u> Consulté le 2020-06-30.

- IQ-CRIQ (Investissement Québec Centre de recherche industrielle du Québec). (2014). Traitement combiné du méthane et des lixiviats de sites d'enfouissement par biofiltration BIOSOR - Dossier IQ-CRIQ PE-42180. Document interne d'IQ-CRIQ,70 p.
- IQ-CRIQ (Investissement Québec Centre de recherche industrielle du Québec). (2016). Mise à l'essai d'un système de biofiltration méthanotrophe pour la réduction des gaz à effet de serre (GES) générés par un lieu d'enfouissement Dossier IQ-CRIQ PE-41753. Document interne d'IQ-CRIQ,203 p.
- Jewell, W. J., Nelson, Y. M., et Mark, W. S. (1992). Methanotrophic bacteria for nutrient removal from wastewater: Attached film system. Water Environment Research, 64(6), 756-765. doi:10.2175/WER.64.6.2
- Jorio, H., et Heitz, M. (1999). Traitement de l'air par biofiltration. *Canadian Journal of Civil Engineering*, 26(4), 402-424. doi:10.1139/I99-001
- Khabiri, B., Ferdowsi, M., Buelna, G., Jones, J. P., et Heitz, M. (2020). Methane biofiltration under different strategies of nutrient solution addition. *Atmospheric Pollution Research*, *11*(1), 85-93. doi:10.1016/j.apr.2019.09.018
- Kjeldsen, P., Barlaz, M. A., Rooker, A. P., Baun, A., Ledin, A., et Christensen, T. H. (2002). Present and longterm composition of MSW landfill leachate: A Review. *Critical Review in Environnemental Science and Technology*, 32(4), 297-336. doi:1064-3389/02/\$.50
- La, H., Hettiaratchi, J. P. A., Achari, G., et Dunfield, P. F. (2018). Biofiltration of methane *Bioresource Technology*, 268, 759-772. doi:10.1016/j.biortech.2018.07.043
- Laner, D. (2011). Understanding and evaluating long-term environmental risks from landfills. (Thèse de doctorat), Vienna University of Technology, 243 p.
- MDDEFP (Ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs). (2012). *Guide d'application du Règlement sur l'enfouissement et l'incinération de matières résiduelles (REIMR) (Q-2, r.19)*. [En ligne] <u>http://www.environnement.gouv.qc.ca/matieres/reglement/Guide-application-REIMR.pdf</u> Consulté le 2020-09-14.
- MDDELCC (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques). (2017). Charges de phosphore, d'azote et de matières en suspension à l'embouchure des rivières du Québec 2009 à 2012. [En ligne] http://www.environnement.gouv.qc.ca/eau/eco\_aqua/phosphore/charge-phosphore-azote-mes2009-2012.pdf Consulté le 2020-10-06.
- MDDEP (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs). (2007). Calcul et interprétation des objectifs environnementaux de rejet pour les contaminants du milieu aquatique. [En ligne] <u>http://www.environnement.gouv.qc.ca/eau/oer/Calcul\_interpretation\_OER.pdf</u> Consulté le 2020-09-14.
- MELCC (Ministère de l'Environnement et de la lutte contre les changements climatiques). (2019). *Inventaire québécois des émissions de gaz à effet de serre en 2017 et leur évolution depuis 1990*. [En ligne] <u>https://www.environnement.gouv.qc.ca/changements/ges/2017/inventaire1990-2017.pdf</u> Consulté le 2020-05-31.

- MELCC (Ministère de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques). (2020). Règlement sur l'enfouissement et l'incinération de matières résiduelles (Q-2, r. 19). LégisQuébec. [En ligne] http://legisquebec.gouv.qc.ca/fr/ShowDoc/cr/Q-2,%2019 Consulté le 2020-06-18.
- Ménard, C., Ramirez, A. A., Nikiema, J., et Heitz, M. (2012). Biofiltration of methane and trace gases from landfills : A review. *Environmental Reviews*, 20(1), 40-53. doi:10.1139/a11-022
- Metcalf & Eddy Inc. (2003). Wastewater Engineering : Treatment and Reuse. (4e ed.), Boston: McGraw-Hill, 1819 p.
- Ministère de la Transition écologique et solidaire. (2017). Arrêté du 24/08/17 modifiant dans une série d'arrêtés ministériels les dispositions relatives aux rejets de substances dangereuses dans l'eau en provenance des installations classées pour la protection de l'environnement. [En ligne] <a href="https://aida.ineris.fr/consultation\_document/39706?fbclid=lwAR1UTBAPGVDbhWEmrW\_ODg3dqxqU">https://aida.ineris.fr/consultation\_document/39706?fbclid=lwAR1UTBAPGVDbhWEmrW\_ODg3dqxqU</a> <a href="https://axEl5ZoCtTnokxHEf67CKfhrQgmwoA">axEl5ZoCtTnokxHEf67CKfhrQgmwoA</a>. Consulté le 2020-10-06.
- Moletta, R. (2011). La méthanisation. (2e ed.), Paris : Lavoisier, 552 p. [En ligne] <u>https://books.google.ca/books?id=e0qBbD1DeSUC&lpg=PP1&dq=moletta&hl=fr&pg=PP1#v=onepag</u> <u>e&q&f=false</u> Consulté le 2020-09-03.
- Murrell, J. C., et Dalton, H. (1983). Nitrogen fixation in obligate methanotrophs. *Journal of General Microbiology*, 129, 3481-3486.
- Nayono, S. E. (2010). Anaerobic Digestion of Organic Solid Waste for Energy Production. Karlsruhe : KIT Scientific Publishing, 152 p. [En ligne] <u>https://www.ksp.kit.edu/9783866444645</u> doi:10.5445/KSP/1000015038. Consulté le 2020-09-04.
- Nikiema, J., Bibeau, L., Lavoie, J., Brzezinski, R., Vigneux, J., et Heitz, M. (2005). Biofiltration of methane: An experimental study. *Chemical Engineering Journal*, *113*(2), 111–117. doi:10.1016/j.cej.2005.04.005
- Nikiema, J., Brzezinski, R., et Heitz, M. (2007). Elimination of methane generated from landfills by biofiltration : A review. *Rev. Environ. Sci. Biotechnol.*, *6*(4), 261-284. doi:10.1007/s11157-006-9114-z
- Nikiema, J., Brzezinski, R., et Heitz, M. (2010). Influence of phosphorus, potassium, and copper on methane biofiltration performance. *Canadian Journal of Civil Engineering*, 37(2), 335-345. doi:10.1139/L09-145
- Nikiema, J., et Heitz, M. (2010). The use of inorganic paking materials during methane biofiltration. *International Journal of Chemical Engineering*, 2010, 1-8. doi:10.1155/2010/573149
- Nyerges, G., et Stein, L. Y. (2009). Ammonia cometabolism and product inhibition vary considerably among species of methanotrophic bacteria. *FEMS Microbiol Letters*, 297, 131-136. doi:10.1111/j.1574-6968.2009.01674.x
- Olivier, J. P., et Schilling, J. S. (2018). Harnessing fungi to mitigate CH4 in natural and engineered systems. *Applied Microbiology and Biotechnology, 102*, 7365-7375. doi:10.1007/s00253-018-9203-2
- Parker, T., Dottridge, J., et Kelly, S. (2002). Investigation of the Composition and Emissions of Trace Components in Landfill Gas - Technical Report P1-438/TR. Environment Agency, Bristol, Royaume-Uni. [En ligne] <u>http://www.gassim.co.uk/documents/P1-438-TR%20Composition%20of%20Trace%20Components%20in%20LFG.pdf</u> Consulté le 2020-10-01.

- Pêches et Océans Canada (2014). Introduction d'une technologie commerciale de broyage de coquilles pour l'industrie ostréicole en Colombie-Britannique. [En ligne] <u>https://dfo-mpo.gc.ca/aquaculture/sustainable-durable/rapports-reports/2011-12/P17-fra.htm</u> Consulté le 2020-08-13.
- Rabalais, N. N., Turner, R. E., Díaz, R. J., et Justić, D. (2009). Global change and eutrophication of coastal waters. *ICES Journal of Marine Science*, *66*(7), 1528-1537. doi:10.1093/icesjms/fsp047
- Recyc-Québec. (2020). Bilan 2018 de la gestion des matières résiduelles au Québec : L'élimination. [En ligne] <u>https://www.recyc-quebec.gouv.qc.ca/sites/default/files/documents/bilan-gmr-2018-section-</u> <u>elimination.pdf</u> Consulté le
- Reddy, K. R., Rai, R. K., Green, S. J., et Chetri, J. K. (2019). Effect of temperature on methane oxidation and community composition in landfill cover soil. *Journal of Industrial Microbiology & Biotechnology*, 46(9-10), 1283-1295. doi:10.1007/s10295-019-02217-y
- Renou, S., Givaudan, J. G., Poulain, S., Dirassouyan, F., et Moulin, P. (2008). Landfill leachate treatment : Review and opportunity. *Journal of Hazardous Materials*, 150, 468-493. doi:10.1016/j.jhazmat.2007.09.077
- Rosenberg, E., DeLong, E. F., Lory, S., Stackebrandt, E., et Thompson, F. (2013). *The Prokaryotes : Prokaryotic Physiology and Biochemistry*. (4e ed.), Berlin: Springer, 662 p.
- Scheutz, C., et Kjeldsen, P. (2004). Environmental factors influencing attenuation of methane and hydrochlorofluorocarbons in landfill cover soils. *Journal of Environmental Quality, 33*(1), 72-79. doi:10.2134/jeq2004.7200
- Scheutz, C., Kjeldsen, P., Bogner, J. E., De Visscher A., Gebert, J., Hilger, H. A., Huber-Humer, M., et Spokas, K. (2009). Microbial methane oxidation processes and technologies for mitigation of landfill gas emissions. *Waste Management & Research*, 27(5), 409-455. doi:10.1177/0734242X09339325
- Stegmann, R., Heyer, K.-U., et Cossu, R. (2005). *Leachate treatment.* Papier présenté à Sardinia 2005, Tenth International Waste Management and Landfill Symposium, S. Margherita di Pula, Cagliari, Italy, 3 au 7 octobre 2005.
- Turgeon, N., Bihan, Y. L., Buelna, G., Bourgault, C., Verreault, S., Lessard, P., Nikiema, J., et Heitz, M. (2011). Application of methanotrophic biofilters to reduce GHG generated by landfill in Quebec City (Canada). WIT Transactions on Ecology and the Environment, 147(Air Pollution XIX), 11. doi:10.2495/AIR110361
- Turgeon, N., Dubé, R., Buelna, G., et LeBihan, Y. (2017). Système et méthode de biofiltration pour le traitement combiné et simultané du méthane et du lixiviat. Brevet canadien No. CA 2,927,328 émis le 2017-09-12 et demande de brevet US 2016/0251245A1, en instance.
- U.S. Federal Government. (2020). Electronic Code of Federal Regulations Title 40 : Protection of Environment - Part 445 - Landfills points source category. [En ligne] <u>https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=7e2e50f207072b35927561ef22e99dfa&mc=true&node=pt40.32.445&rgn=div5</u>. Consulté le 2020-10-06.
- US EPA. (s.d.). Understanding Global Warming Potentials. [En ligne] https://www.epa.gov/ghgemissions/understanding-global-warming-potentials. Consulté le 2020-08-15.

Valoris. (2020). Projet LET Valoris. [En ligne] http://letvaloris.com/. Consulté le 2020-08-27.

- Veillette, M., Viens, P., Ramirez, A. A., Brzezinski, R., et Heitz, M. (2011). Effect of ammonium concentration on microbial population and performance of a biofilter treating air polluted with methane. *Chemical Engineering Journal*, 171(3), 1114-1123. doi:10.1016/j.cej.2011.05.008
- Vorobev, A. V., Baani, M., Doronina, N. V., Brady, A. L., Liesack, W., Dunfield, P. F., et Dedysh, S. N. (2011). Methyloferula stellata gen. nov., sp. nov., an acidophilic, obligately methanotrophic bacterium that possesses only a soluble methane monooxygenase. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 61, 2456–2463. doi:10.1099/ijs.0.028118-0
- Wang, J., Xia, F.-F., Bai, Y., Fang, C.-R., Shen, D.-S., et He, R. (2011). Methane oxidation in landfill waste biocover soil: Kinetics and sensitivity to ambient conditions. *Waste Management*, 31(5), 864–870. doi:10.1016/j.wasman.2011.01.026
- Whittenbury, R., Phillips, K. C., et Wilkinson, J. F. (1970). Enrichment, isolation and some properties of methaneutilizing bacteria. *Journal of General Microbiology*, *61*, 205-218.
- WSP. (2016). Aménagement d'un LET Concept d'étanchéité. [En ligne] <u>http://www.ridr.qc.ca/site/wp-content/uploads/2016/08/Sommaire\_%C3%A9tanch%C3%A9ite\_2016-08-03.pdf</u>. Consulté le 2020-10-25.
- Yoon, G.-L., Kim, B.-T., Kim, B.-O., et Han, S.-H. (2003). Chemical-mechanical characteristics of crushed oystershell. *Waste Management*, 23(9), 825-834. doi:10.1016/S0956-053X(02)00159-9

# Annexe A – Protocole de fabrication de l'inoculum et résultats des tests en « batch »

L'inoculum a été fabriqué en se basant sur un protocole mis au point à IQ-CRIQ. La boue d'un étang de la Montérégie a été utilisée pour développer l'inoculum. Les débris les plus gros ont été retirés à l'aide d'un tamis (petites roches, morceaux de bois, etc.) puis, un mélange de boue et de surnagent a été introduit dans une bouteille de verre de 500 mL. Un volume du mélange de boue a été introduit, puis de la solution minérale a été ajoutée afin de combler les besoins nutritionnels des bactéries méthanotrophes. Cette solution se base sur les besoins nutritionnels et les expérimentations précédentes réalisées à l'interne d'IQ-CRIQ : elle est constituée de Ca(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> et de CuSO<sub>4</sub>.

Les bouteilles de verre de 500 mL ont deux ouvertures filetées permettant de connecter des tuyaux de type Tygon <sup>1</sup>/<sub>4</sub>" de diamètre intérieur. Une de ses ouvertures possède une tige de verre percée qui se rend jusqu'à quelques centimètres du fond de la bouteille, ce qui permet une agitation par bullage dans le liquide. De plus, une ouverture filetée (filetage GL 45) sur le dessus de la bouteille permet de connecter les têtes de mesure pour le suivi de la concentration du méthane ou de mettre un couvert étanche.

Ainsi, le montage était constitué d'une tête de mesure à l'entrée placée sur un dispositif étanche permettant de la tenir en place, puis une tête de mesure était placée à la sortie juste après l'échantillon sur une bouteille vide. Dans certains cas, la tête de mesure était placée directement sur la bouteille contenant l'échantillon. Un mélange gazeux à une concentration inférieure à 10 % de CH<sub>4</sub> était introduit dans un sac de gaz avec enveloppe multicouches à deux valves de 10L et une pompe péristaltique de type Masterflex® permettait de faire recirculer le mélange en boucle dans le système, en plus d'assurer une légère agitation. Lorsque la concentration en CH<sub>4</sub> se retrouvait en bas de 1 %, le sac de gaz était rempli à nouveau avec un mélange de gaz naturel et d'air. Des tuyaux de type Tygon® 1/4" de diamètre intérieur étaient fixés à la bouteille et rejoignaient le tuyau de tête de pompe de type Norprène® L/S 16 de 1/8" de diamètre intérieur. Les capteurs de CH<sub>4</sub> utilisés qui pouvaient être branchés directement sur les bouteilles étaient de marque BlueSens. Les capteurs permettaient d'enregistrer les données de concentration en CH<sub>4</sub> à un intervalle d'une ou deux heures selon l'incrément choisi. Aussi, à un certain moment, la concentration en nitrates a été vérifiée avec des bandelettes indicatrices Hach© (0 - 50 mgN-NO<sub>3</sub>/L et 0 - 3,0 mgN-NO<sub>2</sub>/L). Au besoin, c'est-à-dire si la concentration en nitrates diminuait en deçà de 50 mgN/L, des nitrates étaient ajoutés à partir d'une solution à 5 g/L de KNO<sub>3</sub>.

Après un certain temps, afin de déterminer si l'inoculum était bien actif, un test en circuit fermé, c'est-à-dire sans la présence d'un sac de gaz, a été effectué. Pour ce faire, le sac de gaz a été rempli à une concentration inférieure à 10 % et le mélange gazeux a été recirculé dans la bouteille. Lorsque le mélange gazeux était

homogène dans le système, soit après environ une heure au minimum, la pompe était arrêtée, des pinces de mohr étaient mises en place pour conserver le gaz à l'intérieur de la bouteille et le sac de gaz était retiré du montage. Les tuyaux étaient par la suite rebranchés ensemble afin de former un circuit fermé sans nouvel apport de CH<sub>4</sub> et la pompe était redémarrée pour assurer un certain brassage. Ainsi, il était possible de mesurer l'activité méthanotrophe, c'est-à-dire la consommation de CH<sub>4</sub> par les bactéries. La Figure 25 montre le montage expérimental utilisé pour débuter la production d'inoculum et pour effectuer les tests de consommation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes.



Figure 25 - Montage expérimental pour la production initiale d'inoculums et pour les tests de consommation du CH4

Plusieurs tests ont été effectués en suivant cette méthode. À la fin des différents tests, le sac de gaz était remis en place afin d'alimenter à nouveau les bactéries en CH<sub>4</sub> et en O<sub>2</sub>, puis d'autres tests étaient réalisés subséquemment. Durant la recirculation du mélange gazeux, tous les échantillons étaient branchés en série, mais lors des tests, c'est-à-dire lorsque le sac de gaz était retiré, chaque échantillon était placé en circuit fermé de manière isolée. À un certain moment, pour éviter l'incertitude en lien avec une contamination par aérosol, des sacs de gaz ont été ajoutés pour isoler les différents réacteurs. À noter que durant les premiers tests effectués, les têtes de mesures étaient paramétrées pour prendre des données toutes les deux heures, puis l'intervalle de mesure a été modifié pour une donnée toutes les heures.

Différents tests ont été performés pour comparer l'activité de différents inoculums : inoculum fait à partir de la boue d'un étang et deux inoculums provenant de la sortie liquide et du média d'un réacteur de traitement par biofiltration méthanotrophe. Les deux inoculums provenant d'un réacteur méthanotrophe ont été mélangés et sont appelés « Laboratoire » dans les résultats. Un témoin a accompagné la plupart des tests. Ce dernier consistait en une bouteille remplie uniquement avec de la solution minérale, soit un liquide ne contenant aucun microorganisme méthanotrophe. La Figure 26 montre le résultat d'une série de trois tests consécutifs sur un



réacteur témoin contenant uniquement de la solution minérale et sur deux inoculums provenant respectivement de la boue d'un étang (Étang) et d'un réacteur de biofiltration méthanotrophe (Laboratoire).

Figure 26 - Concentration de CH<sub>4</sub> en fonction du temps pour trois tests consécutifs (avril 2019)

En observant les pentes des droites, il est possible de voir que la consommation du CH<sub>4</sub> est un peu plus lente lors du premier test, mais elle s'accélère lors des tests subséquents. Le Tableau 8 montre la consommation de CH<sub>4</sub> selon les différents essais. Les valeurs de consommation correspondent à la valeur de la pente (section la plus abrupte) en tenant compte du volume de liquide et du volume gazeux dans les bouteilles et la tubulure.

	Consommation (mgCH₄/(L <sub>biomasse</sub> .j)			
	Étang	Laboratoire	Témoin	
Essai 1	-16,02	-7,89	-1,12	
Essai 2	-19,37	-17,78	-0,95	
Essai 3	-24,76	-15,93	-1,19	

Tableau 8 - Consommation de CH4 selon les essais

Considérant les difficultés qui se sont présentées au démarrage du système de réacteur J1 à J4 (voir Annexe B), il a été considéré que le média filtrant lui-même pourrait être un inhibiteur de l'activité des méthanotrophes. Ainsi, 90 g de média filtrant vierge a été introduit dans une bouteille de verre de 500 mL, puis un volume de 250 à 300 mL d'inoculum a été ajouté. Un test témoin a aussi été effectué en parallèle de chaque test. Il consistait en 90 g de média filtrant auquel était ajouté 250 à 300 mL de solution minérale. La même configuration de montage et la même démarche que pour les tests précédents ont été suivies : le mélange gazeux a été recirculé pendant minimum une heure, puis le sac de gaz a été retiré afin de suivre la décroissance de la concentration de CH<sub>4</sub> pour chaque échantillon.

Un résultat étonnant a été observé : le témoin dans lequel aucune souche de méthanotrophe n'a été introduite a montré une consommation de CH<sub>4</sub>. Le premier test, c'est-à-dire celui où le média filtrant avait été mis en contact avec la solution minérale depuis peu, ne présentait pas de consommation de CH<sub>4</sub> importante : les tuyaux de type Tygon® qui ne sont pas complètement imperméable au CH<sub>4</sub> pourraient expliquer la légère décroissance de CH<sub>4</sub> observée. À la suite de ce test, le sac de gaz était remis en place et le mélange gazeux était recirculé pendant quelques jours avant de refaire l'expérimentation en circuit fermé. Après quelques essais, il a été observé qu'une recirculation du gaz pendant une période d'environ 10 jours permettait le développement d'une activité méthanotrophe. Il semble donc que des bactéries méthanotrophes soient déjà présentes dans le média filtrant. En effet, les bactéries méthanotrophes peuvent être retrouvées dans l'environnement, dans la tourbe entre autres (Hanson et Hanson, 1996). La Figure 27 montre les résultats de trois tests consécutifs avec trois réacteurs auxquels du média filtrant a été ajouté. Le média filtrant a été ajouté quelques heures avant le début du premier test.



#### Figure 27 - Concentration de CH<sub>4</sub> en fonction du temps pour trois tests consécutifs avec média filtrant (octobre 2019)

Comme lors de la recirculation du mélange gazeux les échantillons étaient mis en série, des tests ont été effectués afin de s'assurer que l'échantillon témoin n'était pas contaminé par des liquides ou des aérosols provenant des autres échantillons contenant de l'inoculum. Ainsi, le test a été effectué avec une nouvelle bouteille et un nouveau sac de gaz uniquement utilisé pour cet échantillon. Le nouvel échantillon contenait

encore une fois 90 g de média filtrant vierge et entre 250 et 300 mL de solution minérale. Les mêmes étapes ont été suivies : un premier test peu de temps après la mise en contact du média filtrant avec la solution minérale, puis une recirculation pendant au moins 10 jours du mélange gazeux suivi d'un nouveau test. Encore une fois, le premier test n'a pas montré de décroissance significative du CH<sub>4</sub>, alors qu'après 10 jours de recirculation, le test en circuit fermé a présenté une consommation importante du CH<sub>4</sub>. La Figure 28 montre la concentration en CH<sub>4</sub> en fonction du temps pour les cinq tests consécutifs.



Figure 28 - Concentration du CH<sub>4</sub> en fonction du temps pour un échantillon témoin avec du média filtrant pour cinq tests consécutifs (novembre 2019)

Il est possible de voir que le premier test n'a pas montré de consommation de CH<sub>4</sub>, alors qu'après 10 jours de contact avec le gaz, une consommation de CH<sub>4</sub> a pu être notée. Le test effectué au jour 15 n'a pas montré de diminution significative de CH<sub>4</sub>, ce qui est étonnant considérant les résultats obtenus avec les autres tests. Le Tableau 9 montre les taux de consommation de CH<sub>4</sub> en fonction des essais.

	Consommation (mgCH₄/(L_biom.j)
Jour 1	-2,83
Jour 11	-44,32
Jour 13	-54,06
Jour 15	-6,46
Jour 25	-63,83

Afin de s'affranchir de toute incertitude en lien avec le branchement des tuyaux et à leur possible faible perméabilité au CH<sub>4</sub>, des tests ont été refaits sans branchement et par le fait même sans agitation. Ainsi, seule la surface de l'eau peut permettre les échanges gaz-liquide. Dans ce type de test, des bouchons étanches ont été mis sur les deux bras de la bouteille qui permettaient habituellement de mettre en place les tuyaux pour la recirculation du gaz. Ainsi, du méthane était ajouté par l'orifice du dessus dans la partie gazeuse de la bouteille à l'aide d'une pompe péristaltique et d'un sac de gaz contenant du gaz naturel, puis la tête de mesure était replacée rapidement. Après une première lecture du capteur, la concentration en CH<sub>4</sub> était ajustée afin de se trouver entre 5 et 10 % : la bouteille était plus basse que 5 %. Par la suite, la bouteille restait fermée afin de suivre la consommation du CH<sub>4</sub> par les bactéries. Le réacteur T1 contenait un mélange de solutions nutritives et de médias filtrants qui avait été mis en contact avec du CH<sub>4</sub> depuis plusieurs semaines. Ce réacteur avait déjà été utilisé pour des tests et avait présenté une consommation de CH<sub>4</sub>. Le réacteur T2 avait la même composition que T1, cependant, du CH<sub>4</sub> a été ajouté pour la première fois dans le réacteur environ 150 h avant le début du test. La Figure 29 montre les trois répétitions effectuées avec le réacteur T1 sans agitation et T2 (JX signifie le jour où le test a commencé).



Figure 29 - Concentration de CH<sub>4</sub> en fonction du temps pour deux échantillons témoins avec du média filtrant sans agitation (janvier 2020)

Il est possible de voir une diminution de la concentration de CH<sub>4</sub> dans le réacteur lors du test T1-J7. La courbe montre une allure différente de ce qui est habituellement observé. Les tests subséquents sur le même réacteur, T1-J11 et T1-J15, ont cependant montré des profils de consommation de CH<sub>4</sub> qui s'apparentent à ce qui était observé précédemment. En ce qui concerne le réacteur T2-J1, il est possible de voir qu'il n'y a pas eu de

consommation de CH<sub>4</sub> durant le premier test c'est-à-dire du jour 200 au jour 350 environ. Par la suite, du CH<sub>4</sub> a été ajouté à nouveau dans le réacteur pour le test T2-J7. Il est intéressant de voir que la concentration en CH<sub>4</sub> est demeurée relativement stable sur une durée d'environ 100 h encore, avant de montrer une diminution de la concentration de CH<sub>4</sub> semblable avec un aspect semblable à ce qui est habituellement observé.

Au terme de tous ces essais, il est possible de voir que le média filtrant est une source en soit de méthanotrophe puisqu'il est possible de développer une activité méthanotrophe seulement avec du média filtrant et de la solution nutritive pour un test en « batch ». Comme les bactéries méthanotrophes peuvent se retrouver dans les tourbières, il est possible de penser que ces dernières proviennent de là. En concordance avec ce qui a été observé dans les projets précédents, il demeure que l'inoculation des réacteurs devrait permettre une accélération du démarrage du traitement. Aussi, il a été possible de mettre à l'écart le doute quant à l'étanchéité du montage.

# Annexe B – Conditions d'opération, modifications et résultats des jours 0 à 240

Les expériences précédentes avec les biofiltres méthanotrophes à IQ-CRIQ ont permis de démontrer que la recirculation d'un inoculum permettait l'installation d'une population microbienne au sein du biofiltre et accélérait considérablement le démarrage de ce dernier (Lavoie, 2005). Ainsi, chaque réacteur a été inoculé à l'aide de 2 L d'inoculum développé à IQ-CRIQ à partir de la boue d'un étang et 2 L de solution minérale au jour 7. Le mélange liquide a été placé dans des chaudières de 10 L en PEHD et recirculé en circuit fermé à un débit de 6,3 L/j (un volume pompé de 44 mL pendant cinq secondes toutes les dix minutes): la sortie de la colonne était renvoyée vers la chaudière d'entrée de 10 L. Le choix du débit liquide s'est basé sur les expérimentations précédentes et les connaissances en biofiltration à IQ-CRIQ quant au média BIOSOR<sup>MD</sup>. Comme les lixiviats utilisés dans le cadre du projet seraient des lixiviats traités et contenant donc peu de matière organique facilement dégradable (DB0<sub>5</sub> faible), il avait été jugé qu'une charge hydraulique (critère limitatif ici) plus élevée que les expérimentations précédentes était convenable : selon les paramètres de conception de la technologie BIOSOR<sup>MD</sup> d'IQ-CRIQ, la charge hydraulique maximale est de 350 L/m²/j. Un débit de 6,3 L/j correspond à une charge hydraulique appliquée de 200 L/m²/j et respecte donc le critère. Le Tableau 10 montre les conditions d'opération de départ de tous les réacteurs. La même concentration en CH₄ dans le mélange gazeux que les expérimentations précédentes a été utilisée.

Au jour 10, 1 L de solution minérale a été ajouté à chaque chaudière puisque les niveaux de liquide avaient diminué. Ensuite, au jour 12, 2 L d'inoculum et 1 L de solution minérale ont encore une fois été ajoutés dans chaque chaudière.

Paramètres	Valeurs	Unités
[CH <sub>4</sub> ] <sub>in</sub>	1,0	%v/v
$Q_{gaz}$	1,0	L/min
Q <sub>liquide</sub>	6,3	L/j
[N-NO <sub>3</sub> ] <sub>in</sub>	750	mgN-NO₃⁻/L
Mode alim.	Circuit fermé	(-)
Liquide alim.	Mélange inoculum et solution minérale	(-)
T <sub>liquide</sub>	21	С°
T <sub>ambiante</sub>	21	C°

Comme les résultats escomptés en termes d'enlèvement du  $CH_4$  n'ont pas été observés, les conditions d'opération des réacteurs ont été modifiées afin de tenter d'optimiser le procédé par rapport à l'enlèvement du  $CH_4$  et de la prise en charge des  $NO_3^-$  du jour 57 au jour 166. Au jour 166, les conditions d'opération ont été ajustées pour être les mêmes sur les quatre réacteurs. Du jour 225 au jour 230, des changements sur le débit

ont été effectués en raison d'un problème d'approvisionnement de lixiviat. Les débits ont été diminués à nouveau au jour 237 afin de faire augmenter les températures internes des réacteurs avant d'effectuer les changements relatifs aux objectifs spécifiques au projet : augmentation de la charge appliquée en CH<sub>4</sub> pour J1 et changement de température pour J3 et J4. Cette partie du projet a outrepassé les objectifs principaux de la maîtrise, mais a tout de même permis de faire des observations intéressantes. Le Tableau 11 présente les différents changements dans les conditions d'opération des quatre réacteurs et les problèmes d'arrêt d'alimentation liés à une panne ou à un manque de liquide.

Dete	Jour	Réacteur				
Dale	d'op.	J1	J2	J3	J4	
2019-08-09	57	↑[CH₄]in 2 %		↓Q <sub>liquide</sub> 3,15 L/j		
2019-08-14	62		Ouverture système		↑[N-NO₃] <sub>in</sub> 2000 mg/L	
2019-08-21	69	Ouverture système		Ouverture système	Ouverture système	
2019-09-03	82	Panne de courant: manque liquide pendant environ 5h = aucune alimentation en liquide et en gaz				
2019-09-04	83	Ajout nutriments dans alim. liquide				
2019-09-10	89	Ajout inoculum Étang recirculé (2 jours)		Ajout inoculum Labo recirculé (2 jours)		
2019-09-18	97				↓[N-NO₃] <sub>in</sub> 750 mg/L	
2019-09-27	106	Liquide alim. = Lixiviat		Liquide alim. = Lixiviat		
2019-09-30	109				↓Q <sub>liquide</sub> 1,15 L/j	
2019-10-16	125		Liquide alim. = Lixiviat		Liquide alim. = Lixiviat	
2019-10-21	130	Manque de liquide d'alimentation pendant environ 4 à 5h				
2019-10-31	140		↓Q <sub>gaz</sub> 0,5 L/min = ↑[CH₄] <sub>in</sub> 2 %			
2019-11-02	142	Panne de courant				
2019-11-11	151	↓Q <sub>gaz</sub> 0,5 L/min				
2019-11-26	166	↓Q <sub>liquide</sub> 3,15 L/j	↓Q <sub>liquide</sub> 3,15 L/j	↓Q <sub>gaz</sub> 0,5 L/min = ↑[CH₄]in 2 %	↓Q <sub>gaz</sub> 0,5 L/min = ↑[CH₄]in 2 %	
				Droh alim liquida	↑Qliquide 3,15 L/j	
2019-12-10	180			(tête de pompe défectueuse)		
2020-01-15	216	Remplacement des pompes alim. gaz par des débitmètres massiques				
2020-01-24	225	↓Q <sub>liquide</sub> 1,5 L/j				
2020-01-29	230	↑Q <sub>liquide</sub> 3,15 L/j				
2020-02-05	237	↓Q <sub>liquide</sub> 1,6 L/j				

Tableau 11 - Changement dans les conditions d'opération du système

Date	Jour d'op.	Réacteur			
		J1	J2	J3	J4
2020-02-19	251			↓T°C alim. 4 °C	↓T°C alim. 4 °C + ambiante frigo 4 °C
2020-02-25	257	↑[CH₄]in 3 %			
2020-03-05	266			Arrêt alim. CH <sub>4</sub>	
2020-03-18	279			Redémarrage alim. CH <sub>4</sub>	

Les prochaines sections présentent les données des différents suivis effectués durant les jours 0 à 240. Plusieurs observations ont pu être faites, cependant, considérant les nombreuses modifications qui ont été effectuées durant cette période, il peut être difficile de déterminer avec certitude l'effet des différents paramètres sur le traitement du CH<sub>4</sub> et des N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>.

## Traitement du CH<sub>4</sub>

La Figure 30 montre le pourcentage d'enlèvement du CH<sub>4</sub> des quatre réacteurs en fonction des jours d'opération. Il est possible de se référer au Tableau 11 pour connaitre la nature des différents changements effectués.



Figure 30 - Pourcentage d'enlèvement du CH4 en fonction des jours d'opération pour les quatre réacteurs

Une période d'ajustement des appareils explique pourquoi les données n'ont été répertoriées qu'à partir du jour d'opération 46. Par ailleurs, il est bien de regarder les pourcentages d'enlèvement du CH<sub>4</sub>, cependant, comme les débits de gaz et les concentrations en CH<sub>4</sub> ont été modifiés à quelques reprises, il faut savoir que la charge appliquée n'est pas nécessairement la même pour tous les réacteurs.

Premièrement, l'ouverture du système au jour 62 (J2) et 69 (J1, J3 et J4) c'est-à-dire l'arrêt de la recirculation en circuit fermé, a été bénéfique pour les performances de tous les réacteurs. Effectivement, les performances d'enlèvement étaient inférieures à 20 % et sont passées à des valeurs supérieures à 50 %. Il semble donc qu'il puisse y avoir un inhibiteur dans le garnissage ou un sous-produit issu d'une réaction à l'intérieur du biofiltre qui empêchent les méthanotrophes d'oxyder le CH<sub>4</sub> de manière optimale.

Par ailleurs, certains nutriments pourraient être en carences : effectivement, lors de l'ajout des lixiviats au jour 106 pour les réacteurs J1 et J3, les performances ont encore une fois augmenté pour atteindre 100 % d'enlèvement à un moment. Bien que ces performances n'aient pas été maintenues, il est très intéressant de voir que de telles performances peuvent être atteintes en termes d'enlèvement du CH<sub>4</sub>.

La Figure 31 (réacteur 1), la Figure 32 (réacteur 2), la Figure 33 (réacteur 3) et la Figure 34 (réacteur 4) montrent les charges appliquées (JX in) et éliminées (JX éliminée) en CH<sub>4</sub> en fonction des jours d'opération pour chaque réacteur.







Figure 32 - Charges appliquées et éliminées en CH<sub>4</sub> en fonction des jours d'opération pour le réacteur J2 (jours 0 à 240)



Figure 33 - Charges appliquées et éliminées en CH<sub>4</sub> en fonction des jours d'opération pour le réacteur J3 (jours 0 à 240)



Figure 34 - Charges appliquées et éliminées en CH<sub>4</sub> en fonction des jours d'opération pour le réacteur J4 (jours 0 à 240)

En comparaison avec les autres réacteurs, J1 montrait un enlèvement considérable de CH<sub>4</sub> en tenant compte que la charge appliquée correspondait environ au double de celle appliquée sur les autres réacteurs jusqu'au jour 151 où le débit de gaz et la concentration en CH<sub>4</sub> ont été diminués à environ 230 gCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>/j.

## Traitement de l'azote N-NO3-

La Figure 35 montre le pourcentage de N-NO<sub>3</sub>- éliminé en fonction des jours d'opération pour les quatre réacteurs.



Figure 35 - Pourcentage de N-NO3 éliminé en fonction des jours d'opération pour les quatre réacteurs

Lors de changement dans l'opération (débit liquide ou concentration d'azote dans l'alimentation liquide), il est arrivé d'avoir des charges en azote plus grandes à la sortie qu'à l'entrée, le temps que le réacteur se « purge », ce qui a causé des charges éliminées négatives ou encore des prises en charge plus importantes que ce qui était réellement éliminé. Les valeurs négatives ont été retirées du graphique présenté à la Figure 35 afin d'avoir une meilleure vision des résultats. Elles sont toutefois présentées au Tableau 12.

Réacteur	Jour d'opération	% N-NO <sub>3</sub> - éliminé
14	109	-10,30 %
51	235	-10,60 %
J2	235	-7,80 %
12	109	-47,80 %
55	235	-17,80 %
	98	-145,50 %
14	102	-2,30 %
J4	130	-18,30 %
	235	-11,10 %

Tableau 12 - Données de charges éliminées négatives retirées du graphique du pourcentage de N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup> capté en fonction des jours d'opération pour les quatre réacteurs

Les effets quant à la prise en charge de l'azote sont plus difficiles à cerner que pour le CH<sub>4</sub> en raison de la grande variabilité qui était observée dans les données. Comme expliqué précédemment, les changements d'opération provoquaient un certain délai de réponse, d'où l'effet du changement était difficilement perceptible. Aussi, les concentrations d'azote étaient de l'ordre de 750 à 2000 mgN-NO<sub>3</sub>-/L, alors que la limite de mesure des tests était de 30 mgN-NO<sub>3</sub>-/L. Ainsi, les échantillons liquides devaient être dilués de manière assez importante, soit de l'ordre de 25 à 50 fois, d'où une incertitude était induite sur les mesures. Comme pour le CH<sub>4</sub>, il est bien de regarder les pourcentages d'enlèvement, cependant, comme les débits d'alimentation liquide et les concentrations en N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup> ont été modifiés à quelques reprises, il faut savoir que la charge appliquée n'est pas nécessairement la même pour tous les réacteurs. Par exemple, au jour 260, le pourcentage de N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup> éliminé a été d'environ 83 %, or, à ce moment, la charge appliquée était faible.

La Figure 36 (réacteur 1), la Figure 37 (réacteur 2), la Figure 38 (réacteur 3) et la Figure 39 (réacteur 4) montrent les charges appliquées (JX in) et éliminées (JX éliminée) en NO<sub>3</sub><sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour chaque réacteur.



Figure 36 - Charges appliquées et éliminées en N-NO<sub>3</sub>- en fonction des jours d'opération pour le réacteur J1 (jours 0 à 240)


Figure 37 - Charges appliquées et éliminées en N-NO3<sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour le réacteur J2 (jours 0 à 240)



Figure 38 - Charges appliquées et éliminées en N-NO3<sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour le réacteur J3 (jours 0 à 240)



Figure 39 - Charges appliquées et éliminées en N-NO3<sup>-</sup> en fonction des jours d'opération pour le réacteur J4 (jours 0 à 240)

# Température des réacteurs

La Figure 40 montre la température la plus chaude enregistrée pour chaque réacteur (toutes positions de capteurs confondues) en fonction des jours d'opération.



Figure 40 - Température la plus chaude dans chaque réacteur (toutes positions de capteurs confondues) en fonction des jours d'opération

Plusieurs constats ont été effectués durant la période visée. Comme expliqué précédemment, l'ouverture des systèmes (arrêt de la recirculation en boucle fermée pour l'alimentation liquide) a été bénéfique pour le traitement du CH<sub>4</sub>. Cela concorde aussi avec les données de température qui montrent une augmentation des températures internes des réacteurs au moment où le circuit a été ouvert (jour 62 pour le réacteur J2 et jour 69 pour les réacteurs J1, J3 et J4). Effectivement, étant donné que la réaction d'oxydation du CH<sub>4</sub> par les méthanotrophes est exothermique, l'augmentation de la prise en charge du CH<sub>4</sub> est directement corrélée avec une augmentation de température à l'intérieur du réacteur.

L'ouverture des systèmes c'est-à-dire l'arrêt de la recirculation du liquide (jour 62 pour J2 et jour 69 pour J1, J3 et J4) ainsi que le remplacement de la solution nutritive par les lixiviats (jour 106 pour J1 et J3 et jour 125 pour J2 et J4) ont eu pour effet d'augmenter la prise en charge du CH<sub>4</sub>, ce qui a, par le fait même, provoqué une hausse des températures internes des réacteurs. Le réacteur J1 a d'ailleurs montré une grande augmentation de température (ce réacteur a montré une efficacité d'enlèvement du CH<sub>4</sub> de 100 % au même moment, soit au jour 124). Il est plutôt difficile d'expliquer pourquoi une telle augmentation de température été observée seulement sur ce réacteur. Bien que la température augmentait déjà au sein du réacteur, le remplacement de la solution nutritive par les lixiviats pour l'alimentation liquide a provoqué une augmentation de température

importante. Ainsi, il est possible de penser qu'il pouvait y avoir une certaine carence au sein de l'alimentation liquide des réacteurs et que les lixiviats ont pu combler cette carence.

La Figure 41 (réacteur 1), la Figure 42 (réacteur 2), la Figure 43 (réacteur 3) et la Figure 44 (réacteur 4) montrent les profils de température en fonction des jours d'opération pour chaque réacteur. La sonde B est celle placée la plus haute, soit près de l'alimentation liquide et la sonde E est celle placée la plus basse, soit près de l'alimentation de gaz (voir Figure 12 pour la position des sondes).



Figure 41 - Profil de température du réacteur J1 (jours 0 à 240)



Figure 42 - Profil de température du réacteur J2 (jours 0 à 240)



Figure 43 - Profil de température du réacteur J3 (jours 0 à 240)



Figure 44 - Profil de température du réacteur J4 (jours 0 à 240)

Les profils de température ont permis de voir que malgré une alimentation liquide à température ambiante, l'augmentation du débit liquide provoquait une diminution de la température interne des réacteurs (ou au contraire, la diminution du débit liquide provoquait une augmentation de la température interne). Par exemple, au jour 166, où le débit liquide de J4 a été augmenté à 3,15 L/j, la température à la position B est passée de 30,7 °C à 28,4 °C alors que la température ambiante est passée de 22,4 °C à 21,1 °C. Par la suite, les positions C et D étaient celles avec les températures les plus élevées et la position E était même plus élevée que la position B, ce qui était loin d'être le cas avec un débit plus faible. Pour ce qui est de J1, le débit a été diminué à 3,15 L/j au jour 166, ce qui a provoqué une augmentation de température pour les positions B, C et D alors que la température à la position E est restée stable. Le réacteur J2 a aussi vu son débit diminué à 3,15 L/j, d'où une augmentation considérable des températures aux positions B, C et D a été observée, alors que la température à la position E a diminué.

Aussi, une diminution du débit liquide provoquait un déplacement de la zone de température la plus chaude vers la section supérieure du réacteur (à l'inverse, une augmentation du débit liquide provoque un déplacement de la zone de température la plus chaude vers la partie inférieure). Par exemple, au jour 109, le débit liquide de J4 est passé de 6,3 L/j à 1,15 L/j, ce qui a provoqué une augmentation considérable de la température à la position B et une diminution de température pour la position E. La température à la position B est passée de 28,8 °C à 35,0 °C alors que la température ambiante est restée plutôt stable passant de 24,1 °C à 23,4 °C.

# Suivi du pH

Le pH a été suivi au sein de l'alimentation liquide et de la sortie des réacteurs. Au départ, les réacteurs étaient alimentés de manière indépendante les uns des autres, puis, au moment de l'alimentation avec les lixiviats, le même bassin a été utilisé pour tous les réacteurs. Pour les jours 109 à 166, J1 et J3 ont été alimentés à partir du même bassin, d'où les valeurs de pH à l'entrée sont les mêmes. À partir du jour 130, tous les réacteurs ont été alimentés à partir du même bassin et donc, une seule mesure de pH était effectuée. Le Tableau 13 montre les données de suivi du pH.

Data	Jour	J1		J	2	J3		J4	
Dale	d'opération	in	out	in	out	in	out	in	out
2019-08-19	67	-	-	8,11	8,30	-	-	-	-
2019-08-23	71	8,17	8,23	8,19	8,47	8,16	8,21	8,18	8,27
2019-08-27	75	8,14	8,45	8,14	8,54	8,12	8,30	8,10	8,41
2019-08-30	78	8,04	8,46	8,02	8,48	8,00	8,34	8,11	8,52
2019-09-04	83	8,10	8,59	8,13	8,55	8,13	8,52	8,12	8,56
2019-09-09	88	8,14	8,43	8,14	8,45	8,11	8,50	8,14	8,53
2019-09-13	92	8,20	8,55	8,24	8,63	8,19	8,65	8,23	8,61
2019-09-16	95	8,14	8,51	8,12	8,53	8,13	8,49	8,16	8,50
2019-09-19	98	8,06	8,44	8,04	8,46	8,05	8,46	7,97	8,44
2019-09-23	102	8,02	8,36	8,09	8,35	8,08	8,52	8,11	8,45
2019-09-30	109	8,59	8,55	8,11	8,17	8,59	8,56	8,15	8,37
2019-10-04	113	8,57	8,68	8,17	8,35	8,57	8,83	8,20	8,74
2019-10-07	116	8,48	8,63	8,11	8,35	8,48	8,73	8,16	8,75
2019-10-10	119	8,74	8,68	8,14	8,36	8,74	8,71	8,10	8,85
2019-10-15	124	8,35	8,61	8,03	8,22	8,35	8,64	8,04	8,78
2019-10-21	130	7,08	8,56	7,08	8,63	7,08	8,68	7,08	8,81
2019-10-24	133	8,13	8,44	8,13	8,50	8,13	8,51	8,13	8,67
2019-10-30	139	8,42	8,38	8,42	8,50	8,42	8,53	8,42	8,76
2019-11-05	145	8,41	8,66	8,41	8,60	8,41	8,64	8,41	8,85
2019-11-08	148	8,29	8,58	8,29	8,54	8,29	8,64	8,29	8,77
2019-11-13	153	8,18	8,58	8,18	8,54	8,18	8,67	8,18	8,81
2019-11-16	156	8,27	8,53	8,27	8,48	8,27	8,62	8,27	8,76
2019-11-20	160	8,13	8,45	8,13	8,40	8,13	8,60	8,13	8,76
2019-11-23	163	8,22	8,42	8,22	8,39	8,22	8,55	8,22	8,71
2019-12-02	172	8,24	8,38	8,24	8,28	8,34	8,41	8,24	8,41
2019-12-06	176	8,19	8,45	8,19	8,32	8,19	8,46	8,19	8,46
2019-12-09	179	8,21	8,39	8,21	8,28	8,21	8,45	8,21	8,48
2019-12-13	183	8,19	8,46	8,19	8,38	8,19	8,50	8,19	8,49
2019-12-16	186	8,23	8,45	8,23	8,45	8,23	8,52	8,23	8,54
2019-12-19	189	8,19	8,47	8,19	8,43	8,19	8,50	8,19	8,55
2020-01-07	208	7,92	8,18	7,92	8,25	7,92	8,38	7,92	8,45
2020-01-14	215	8,01	8,39	8,01	8,42	8,01	8,38	8,01	8,43
2020-01-17	218	7,48	8,36	7,48	8,34	7,48	8,41	7,48	8,47
2020-01-21	222	7,52	8,03	7,52	8,20	7,52	8,28	7,52	8,39

Date	Jour	J1		J2		J	3	J4	
Dale	d'opération	in	out	in	out	in	out	in	out
2020-01-24	225	7,97	8,34	7,97	8,25	7,97	8,37	7,97	8,41
2020-01-28	229	8,11	8,23	8,11	8,15	8,11	8,24	8,11	8,43
2020-02-03	235	8,00	8,16	8,00	8,02	8,00	8,28	8,00	8,41

Le pH à l'entrée a varié de 7,08 à 8,74 alors que le pH en sorti a varié de 8,02 à 8,85. Les réacteurs J3 et J4 ont présenté des pH plus élevés en sortie.

#### Suivi de l'azote N-NH4+

Les lixiviats utilisés étaient déjà prétraités via un système effectuant une nitrification complète. Effectivement, les analyses effectuées montrent des concentrations très basses à ce niveau, particulièrement considérant les valeurs de N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup> qui se situaient autour de 500 à 900 mg N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L. La charge en azote N-NH<sub>4</sub><sup>+</sup> peut donc être considérée comme négligeable. Le Tableau 14 montre le suivi des NH<sub>4</sub><sup>+</sup> des jours 0 à 240.

	Jour		J1		J2		J3	J4		
Date	Jour	mgl	N-NH₄⁺/L	mgl	N-NH₄⁺/L	mgl	N-NH4+/L	mgN-NH₄⁺/L		
	d operation	in	out	in	out	in	out	in	out	
2019-10-07	116	2	0			2	0			
2019-10-10	119	2	1			2	0			
2019-10-15	124	3	0	0	0	3	0	-	1	
2019-10-21	130	1	0	1	0	1	0	1	0	
2019-10-24	133	0	0	0	1	0	0	0	0	
2019-10-30	139	1	0	1	1	1	0	1	0	
2019-11-05	145	1	0	1	0	1	0	1	0	
2019-11-08	148	1	1	-	-	-	-	-	-	
2019-11-13	153	0	0	0	0	0	0	0	0	
2019-11-20	160	1	0	1	0	1	1	1	1	
2019-12-02	172	1	0	1	1	1	2	1	2	
2019-12-09	179	0	0	0	0	0	1	0	0	
2019-12-16	186	4	0	4	0	4	0	4	0	
2020-01-07	208	1	1	1	1	1	0	1	1	
2020-01-14	215	1	0	1	0	1	0	1	0	
2020-01-21	222	0	1	0	0	0	0	0	0	
2020-01-28	229	1	0	1	1	1	0	1	0	
2020-02-03	235	1	1	1	2	1	0	1	0	

Tableau 14 - Suivi des NH4+ des jours 0 à 240

#### Suivi de l'azote NO<sub>2</sub>.

Le Tableau 15 montre les concentrations en N-NO<sub>2</sub><sup>-</sup> mesurées en laboratoire. Il est à noter qu'à partir du jour 235, la méthode utilisée a été changée (Hach 8153 a été changé pour Hach 10019). Effectivement, les tests Hach 8153 provoquaient la production de mousse qui faussait les résultats d'analyse. C'est ce qui explique le nombre de chiffres significatifs différents. Cependant, les analyses provenant du laboratoire confirment que les concentrations en N-NO<sub>2</sub>- sont demeurées basses durant toute la durée des expérimentations. Tout comme pour les N-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, la charge en azote N-NO<sub>2</sub><sup>-</sup> peut être considérée comme négligeable considérant les concentrations élevées en N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>.

	laur	J	1	J	2	J	3	J4	
Date	Jour	mgN-	NO₂⁻/L	mgN-	NO₂⁻/L	mgN-NO₂⁻/L		mgN-NO <sub>2</sub> /L	
	u operation	in	out	in	out	in	out	in	out
2019-10-07	116	6	44			6	43		
2019-10-10	119	5	3			5	4		
2019-10-15	124	8	>50	1	21	8	>50	-	>50
2019-10-21	130	2	5	2	1	2	9	2	0
2019-10-24	133	0	3	0	0	0	0	0	0
2019-10-30	139	0	3	0	4	0	1	0	0
2019-11-05	145	1	2	1	4	1	8	1	0
2019-11-08	148	1	2	1	3	1	2	1	0
2019-11-13	153	0	1	0	3	0	2	0	0
2019-11-20	160	1	2	1	3	1	10	1	0
2019-12-02	172	1	2	1	3	1	5	1	0
2019-12-06	176	0,024	0,950	0,024	3,360	0,024	0,348	0,024	0,454
2019-12-09	179	0,022	0,665	0,022	7,450	0,022	0,555	0,022	0,499
2019-12-13	183	0,030	0,420	0,030	6,700	0,030	0,130	0,030	0,454
2019-12-16	186	0,028	0,382	0,028	3,875	0,028	0,126	0,028	0,486
2019-12-19	189	0,026	0,344	0,026	4,380	0,026	0,123	0,344	0,448
2020-01-07	208	0,056	0,508	0,056	2,060	0,056	0,346	0,056	0,292
2020-01-14	215	0,047	0,388	0,047	1,090	0,047	0,264	0,047	0,274
2020-02-03	235	7,900	0,920	7,900	1,960	7,900	0,520	7,900	0,150

# Suivi de la DCO

Le Tableau 16 présente le suivi de la DCO des jours 0 à 240.

	Jour	J	1	J	2	J3		J4	
Date	Jour d'anération	mç	g/L	mg	mg/L		g/L	mg/L	
	u operation	in	out	in	out	in	out	in	out
2019-10-07	116	475	603			473	600		
2019-10-10	119	482	744			482	685		
2019-10-15	124	483	703	9	266	483	721	8	889
2019-10-21	130	471	619	471	536	471	816	471	952
2019-10-24	133	463	560	463	536	463	686	463	956
2019-10-30	139	473	537	473	567	473	643	473	1038
2019-11-05	145	473	557	473	554	473	626	473	1093
2019-11-08	148	480	533	480	549	480	631	480	1114
2019-11-13	153	464	514	464	532	464	609	464	1038
2019-11-20	160	431	479	431	496	431	606	431	1042
2019-12-02	172	433	498	433	554	433	556	433	692
2019-12-09	179	567	545	567	588	567	550	567	655
2019-12-16	186	545	572	545	587	545	535	545	590
2020-01-07	208	620	610	620	614	620	571	620	599
2020-01-14	215	596	613	596	611	596	579	596	616
2020-01-21	222	564	571	564	717	564	547	564	594
2020-01-28	229	574	561	574	581	574	505	574	588
2020-02-03	235	538	526	538	782	538	499	538	565

Tableau 16 - Suivi de la DCO des jours 0 à 240

# Annexe C – Résultats supplémentaires pour les jours 240 à 295 et résultats des laboratoires accrédités

L'Annexe C présente les résultats supplémentaires obtenus en laboratoire lors des échantillonnages.

# Suivi du pH

Le Tableau 17 montre le suivi du pH pour les jours 240 à 295.

	lour	рН										
Date	Jour	J	1	J	J2		J3		J4			
	u operation	in	out	in	out	in	out	in	out			
2020-02-11	243	8,13	8,23	8,11	8,15	8,11	8,24	8,11	8,43			
2020-02-14	246	8,25	8,22	8,25	8,23	8,25	8,40	8,25	8,53			
2020-02-18	250	8,09	8,19	8,09	8,14	8,09	8,30	8,09	8,44			
2020-02-21	253	7,64	8,22	7,64	8,32	7,64	8,33	7,64	8,30			
2020-02-25	257	7,90	8,06	7,90	8,11	7,90	8,12	7,90	8,40			
2020-02-28	260	7,76	8,19	7,76	8,29	7,76	8,38	7,76	8,44			
2020-03-02	263	7,97	8,07	7,97	8,28	7,97	8,36	7,97	8,37			
2020-03-05	266	8,09	8,31	8,09	8,33	8,09	8,46	8,09	8,35			
2020-03-09	270	7,98	8,28	7,98	8,39	7,98	8,42	7,98	8,33			
2020-03-12	273	8,08	8,33	8,08	8,35	8,08	8,32	8,08	8,30			
2020-03-17	278	8,15	8,30	8,15	8,39	8,15	8,27	8,15	8,31			
2020-03-20	281	8,19	8,37	8,19	8,28	8,19	8,16	-	-			
2020-03-24	285	7,73	8,22	7,73	8,20	7,73	8,24	-	-			
2020-03-27	288	8,01	8,38	8,01	8,35	8,01	8,34	-	-			
2020-03-31	292	8,26	8,40	8,26	8,41	8,26	8,42	-	-			
2020-04-03	295	7,91	8,34	7,91	8,43	7,91	8,49	-	-			

1 anicau 11 - Suivi uu ni 1 ucs iouis 270 a 23	Τá	ableau	17 -	Suivi	du	bН	des	iours	240	à	29
--	----	--------	------	-------	----	----	-----	-------	-----	---	----

# Suivi de l'azote N-NH4+

Le Tableau 18 montre le suivi des  $NH_{4^+}$  pour les jours 240 à 295.

		NH4 <sup>+</sup>										
Dete	Jour	J1 mgN-NH₄⁺/L		J	J2 mgN-NH₄⁺/L		3	J4				
Date	d'opération			mgN-l			mgN-NH₄⁺/L		mgN-NH₄⁺/L			
		in	out	in	out	in	out	in	out			
2020-02-25	257	1	2	1	2	1	1	1	2			
2020-03-02	263	1	0	1	1	1	0	1	4			
2020-03-05	266	1	1	1	0	1	0	1	5			
2020-03-09	270	1	1	1	1	1	1	1	4			
2020-03-17	278	1	1	1	1	1	1	1	3			
2020-03-24	285	2	0	2	1	2	0	-	-			
2020-03-31	292	2	0	2	0	2	0	-	-			

	Tableau	18 -	Suivi	des	NH4+	pour	les	jours	240	à	295
--	---------	------	-------	-----	------	------	-----	-------	-----	---	-----

### Suivi de l'azote NO<sub>2</sub>-

Le Tableau 19 montre le suivi des NO<sub>2</sub><sup>-</sup> pour les jours 240 à 295.

		NO <sub>2</sub> .									
Data	Jour	J	J1		J2		J3		J4		
Date	d'opération	mgN-	NO₂ <sup>-</sup> /L	mgN-	mgN-NO <sub>2</sub> -/L		mgN-NO <sub>2</sub> -/L		NO₂ <sup>-</sup> /L		
		in	out	in	out	in	out	in	out		
2020-02-11	243	8,075	0,950	8,075	2,120	8,075	0,960	8,075	0,140		
2020-02-14	246	8,350	1,390	8,350	1,670	8,350	0,550	8,350	0,550		
2020-02-18	250	7,525	1,760	7,525	1,230	7,525	1,066	7,525	0,250		
2020-02-25	257	6,800	1,115	6,800	1,615	6,800	2,000	6,800	0,055		
2020-03-02	263	6,375	1,825	6,375	1,735	6,375	1,295	6,375	0,031		
2020-03-05	266	6,275	0,230	6,275	0,540	6,275	0,140	6,275	0,027		
2020-03-09	270	6,325	0,440	6,325	0,790	6,325	0,292	6,325	0,027		
2020-03-12	273	6,450	0,441	6,450	0,726	6,450	0,243	6,450	0,033		
2020-03-17	278	6,750	0,756	6,750	0,926	6,750	0,357	6,750	0,062		
2020-03-24	285	1,100	0,412	1,100	1,100	1,100	0,292	-	-		
2020-03-31	292	6,220	0,974	6,220	0,224	6,220	0,390	-	-		

#### Tableau 19 - Suivi des NO2<sup>-</sup> pour les jours 240 à 295

# Suivi de la DCO

Le Tableau 20 montre le suivi de la DCO pour les jours 240 à 295.

		DCO										
Dete	Jour	J	1	J	2	J	3	J4				
Date	d'opération	mg/L		mg/L		mg/L		mg/L				
		in	out	in	out	in	out	in	out			
2020-02-25	257	540	528	540	600	540	496	540	450			
2020-03-02	263	555	533	555	587	555	490	555	459			
2020-03-09	270	555	514	555	609	555	525	555	467			
2020-03-17	278	553	501	553	506	553	467	553	478			
2020-03-24	285	616	512	616	620	616	541	-	-			
2020-03-31	292	646	627	646	555	646	697	-	-			

	Tableau 20 -	Suivi de la DC	O pour les	jours 24	0 à 295
--	--------------	----------------	------------	----------	---------

# Suivi des pertes de charge

Le Tableau 21 montre le suivi des pertes de charge pour les jours 240 à 295.

		Pertes de charge										
Data	Jour	(mm d'eau)										
Date	d'opération	J1		J2		J3		J4				
		Entrée	Total	Entrée	Total	Entrée	Total	Entrée	Total			
2020-02-11	243	3,4	1,5	7,8	5,7	3,4	0,8	1,8	0,9			
2020-02-17	249	4,5	1,7	12,9	10,3	3,5	0,8	1,9	1,0			
2020-02-25	257	3,1	1,5	4,8	2,8	3,2	0,8	1,2	0,2			
2020-03-02	263	6,6	4,3	13,0	9,4	3,2	0,9	2,1	1,2			
2020-03-06	267	5,5	1,5	9,3	6,3	2,9	0,9	-	-			
2020-03-09	270	3,7	2,1	4,0	2,0	2,9	0,9	1,9	1,0			
2020-03-17	278	8,6	6,8	4,5	2,1	2,9	0,9	2,0	1,2			
2020-03-23	284	5,5	4,1	5,2	2,1	2,9	1,3	1,8	1,1			
2020-03-30	291	30,4	28,7	11,5	9,3	2,9	0,8	-	-			
2020-04-03	295	13,1	11,1	10,0	7,4	3,0	0,9	-	-			

Tableau 21 - Suivi des pertes de charge pour les jours 240 à 295

# Analyses du laboratoire accrédité d'IQ-CRIQ ou du laboratoire externe

Le Tableau 22 montre les résultats d'analyse du phosphore total par un laboratoire accrédité (méthode d'analyse MA.200-Mét. 1.2).

	المريبة	Pt mgP/L									
Date	JUUI d'anération										
	u operation	Entrée	J1	J2	J3	J4					
2019-11-08	148	0,23	0,32	-	-	-					
2019-12-16	186	0,28	0,42	2,10	0,27	0,33					
2020-01-14	215	0,30	0,30	1,30	0,22	0,35					
2020-03-31	292	0,28	0,24	0,84	0,11	-					

Lahleau 22 –	Résultats	d'analyse c	lu nhasnhai	re total (P₊)	nariin	laboratoire	accrédité
	roountato	a anaiyoo c	ia piloopiloi		paran	laboratono	acciounto

Le Tableau 23 montre les résultats d'analyse des NH4<sup>+</sup> par un laboratoire accrédité.

Data	lour						
Date	JOUr		mgl	Méthode d'analyse			
aemanae	d operation	Entrée	J1	J2	J3	J4	-
2019-11-08	148	3,5	3,5				CRIQ MA-4048
2019-12-02	172	3,9	2,8	3,7	4,2	3,2	CRIQ MA-4048
2019-12-16	186	4,4	4,0	4,3	3,3	3,3	CRIQ MA-4048
2020-01-14	215	6,7	5,7	5,6	4,7	4,1	CRIQ MA-4048
2020-02-18	250	6,2	4,9	7,6	3,6	4,8	CRIQ MA-4048
2020-03-05	266	0,60	0,56	0,39	0,17		MA.300-NTPT 2.0
2020-03-17	278	0,71	0,87	0,54	0,41		MA.300-NTPT 2.0
2020-03-31	292	0,45	0,34	0,38	0,15		MA.300-NTPT 2.0

#### Tableau 23 - Résultats d'analyse des NH4+ par un laboratoire accrédité

Le Tableau 24 montre les résultats d'analyse de l'azote total Kjeldahl (NTK) par un laboratoire accrédité.

Tableau 24 - Résultats d'analyse des N	NTK par un laboratoire accrédité
--	----------------------------------

Dete	lour						
Dale	Jour d'anáration		m	Méthode d'analyse			
demande d operation		Entrée	J1	J2	J3	J4	
2019-11-08	148	17,5	15,6				CRIQ MA-4049
2019-12-16	186	12,5	11,1	13,2	13,0	12,7	CRIQ MA-4049
2020-03-05	266	27	21	24	23		MA.300-NTPT 2.0
2020-03-17	278	32	30	30	23		MA.300-NTPT 2.0
2020-03-31	292	<40	<40	<40	<40		MA.300-NTPT 2.0

Le Tableau 25 montre les résultats d'analyse des NO<sub>3</sub>- par un laboratoire accrédité et la comparaison avec les résultats obtenus au laboratoire du hall d'essai.

		Laboratoire accrédité NO <sub>3</sub> -					Hall d'essai NO₃ <sup>-</sup>					
Date	Jour											Méthode
demande	d'opération	mgN-NO₃ <sup>-</sup> /L					mgN-NO₃⁻/L					d'analyse
		Entrée	J1	J2	J3	J4	Entrée	J1	J2	J3	J4	
2019-11-08	148	298	226				300	218	230	233	120	CRIQ MA-4073
2019-12-16	186	600	530	490	530	490	598	538	490	506	458	MA.300–lons 1.3
2020-03-05	266	710	600	580			710	593	600	628	673	MA.300–lons 1.3
2020-03-17	278	670	560	560	690		703	580	573	728	695	MA.300–lons 1.3
2020-03-31	292	700	570	550	610		694	543	538	613		MA.300–lons 1.3

Tableau 25 - Résultats d'analyse des NO3<sup>-</sup> par un laboratoire accrédité et comparaison avec les résultats obtenus au hall d'essai

Le Tableau 26 montre les pourcentages d'erreur entre les résultats d'analyse du laboratoire accrédité et ceux obtenus au hall d'essai.

Tableau 26 - Pourcentage d'erreur entre les résultats d'analyse du laboratoire accrédité et ceux obtenus au hall d'essai

Dete	lour		Pourcentage d'erreur								
Dale	d'opération		(%)								
uemanue		Entrée	J1	J2	J3	J4					
2019-11-08	148	-0,6	3,7								
2019-12-16	186	0,3	-1,5	0,0	4,5	6,5					
2020-03-05	266	0,0	1,3	-3,4							
2020-03-17	278	-4,9	-3,6	-2,2	-5,4						
2020-03-31	292	0,9	4,8	2,3	-0,4						

Le Tableau 27 montre les résultats d'analyse des NO2<sup>-</sup> par un laboratoire accrédité.

Tableau 27 - Résultats d'analyse des NO2<sup>-</sup> par un laboratoire accrédité

Data	lour		1	Máthada			
Dale	Jour d'anáration		mgN	d'encluse			
uemanue	u operation	Entrée	J1	J2	J3	J4	u analyse
2019-11-08	148	< 6,0	< 6,0				CRIQ MA-4073
2019-12-16	186	<1,0	<1,0	4,0	<1,0	<1,0	MA.300–lons 1.3
2020-03-05	266	7,3	<1,0	<1,0			MA.300–lons 1.3
2020-03-17	278	6,4	<2,0	<2,0	<2,0		MA.300–lons 1.3
2020-03-31	292	2,0	<2,0	<2,0	<2,0		MA.300–lons 1.3

Le Tableau 28 montre les résultats d'analyse du cuivre et du zinc par un laboratoire accrédité (méthode d'analyse MA.200-Mét. 1.2).

	la.un			Cu		Zn					
Date	JOUI d'onération		mg/L								
	u operation	Entrée	J1	J2	J3	J4	Entrée	J1	J2	J3	J4
2019-11-08	148	0,018	0,025				0,021	0,020			
2019-12-03	173	0,0053	0,0300	0,0350	0,0170	0,0072	0,041	0,033	0,017	0,030	0,087
2020-01-14	215	0,063	0,041	0,086	0,021	0,017	0,100	0,048	0,036	0,058	0,062
2020-03-31	292	0,018	0,025	0,080	0,018		0,056	0,034	0,029	0,042	

Tableau 28 – Résultats d'analyse du cuivre (Cu) par un laboratoire accrédité

# Annexe D – Équations pour le calcul des charges

L'Annexe D présente les équations utilisées pour le calcul des charges en gaz et en liquide. Les résultats issus du µGC-TCD sont exprimés en %v/v alors que ceux provenant du FTIR sont exprimés en ppmv. L'Équation 4 permet de calculer la charge appliquée et la charge en sortie sur une base journalière à partir des concentrations en pourcentages sur une base volumique (%v/v) et du débit de gaz (Q<sub>gaz</sub> en L/min) mesuré à l'entrée. L'Équation 5 permet d'arriver au même résultat, mais à partir des concentrations en gaz mesurées en parties par millions sur une base volumique (ppmv). L'hypothèse à l'effet que le débit d'entrée et le débit de sortie sont égaux a été posée. Le volume molaire (VM@25 °C en L/mol), le volume de média filtrant (V<sub>MF</sub> en m<sup>3</sup>), la masse molaire (M en g/mol) et des facteurs de conversion d'unités de temps (FCU<sub>1</sub>) sont aussi nécessaires aux calculs. Le volume molaire (@25 °C) se définit comme étant le volume occupé par une mole de gaz (peu importe la nature du gaz) à température ambiante et pression normale, soit à 25 °C et à 101,325 kPa. La valeur utilisée pour le calcul est 24,45 L/mol et calculé via la loi des gaz parfaits avec une température de 298 K, une pression de 101,325 kPa et une constante de 8,314 kPa.L/(mol.K).

Charge 
$$X\left(\frac{g_X}{m^3.j}\right) = \frac{[X](\%v/v)}{100} \cdot \frac{1}{VM(@25^\circ C)} \cdot Q_{gaz} \cdot \frac{1}{V_{MF}} \cdot M_X \cdot FCU_t$$
 Équation 4

$$Charge Y\left(\frac{g_Y}{m^3.j}\right) = \frac{[Y](ppmv)}{1\ 000\ 000} \cdot \frac{1}{VM@25^\circ C} \cdot Q_{gaz} \cdot \frac{1}{V_{MF}} \cdot M \cdot FCU_t \qquad \text{Équation 5}$$

Pour la charge liquide, l'Équation 6 permet d'effectuer le calcul à l'aide de la concentration mesurée au laboratoire en entrée et en sortie ([X] en mg/L), du débit liquide en entrée (Q<sub>liquide</sub> en L/j), du volume de média filtrant (V<sub>MF</sub> en m<sup>3</sup>) et d'un facteur de conversion des unités de masse (FCU<sub>m</sub>). Encore une fois, les débits d'entrée et de sortie ont été considérés comme égaux.

Charge 
$$X\left(\frac{g_X}{m^3.j}\right) = [X](mg_X/L) \cdot Q_{liquide} \cdot \frac{1}{V_{MF}} \cdot FCU_m$$
 Équation 6

# Annexe E – Données et résultats intermédiaires du calcul des équivalents CO<sub>2</sub> pour le bilan des GES

L'Annexe E présente les données et résultats intermédiaires pour le calcul du bilan d'équivalent en CO<sub>2</sub>. Le Tableau 29 présente les données de concentration de CH<sub>4</sub> et de débit de gaz mesurées au laboratoire, ainsi que les charges en CH<sub>4</sub> calculées avec ces données. Le Tableau 30 présente les mêmes informations pour le N<sub>2</sub>O. Les nombres en gras dans les cases grises représentent les mesures effectuées au laboratoire, alors que les nombres en italiques représentent les données interpolées. Ces dernières ont été calculées en faisant des moyennes entre les différents échantillonnages. Par exemple, les valeurs aux jours d'opération 216 et 217 ont été calculées en faisant la moyenne des données des jours 215 et 218. À noter qu'au jour 273, les données de CH<sub>4</sub> n'ont pas été enregistrées. Les données ont donc été interpolées entre les jours 270 et 278 pour le CH<sub>4</sub> alors que pour le N<sub>2</sub>O les données ont été interpolées des jours 270 à 273, puis des jours 273 à 278.

					[C]	H <sub>4</sub> ]					Qg	jaz					Charg	je CH.	4		
Data	Jour				(%)	/v)					(L/n	nin)					(gCH	₄/m³/j)			
Date	op.	J	1	J	2	J	3	J	4	J1	J2	J3	J4	,	1	,	2	,	13	J	14
		IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	IN	IN	IN	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT
2020-01-14	215	2,033	0,974	1,858	0,893	1,989	0,913	1,933	0,744	0,479	0,508	0,484	0,503	205	98	199	96	203	93	205	79
2020-01-15	216	1,962	0,966	1,874	0,911	1,949	0,904	1,917	0,743	0,501	0,515	0,501	0,512	207	102	204	99	206	95	207	80
2020-01-16	217	1,962	0,966	1,874	0,911	1,949	0,904	1,917	0,743	0,501	0,515	0,501	0,512	207	102	204	99	206	95	207	80
2020-01-17	218	1,892	0,959	1,890	0,929	1,908	0,895	1,900	0,741	0,522	0,522	0,518	0,520	208	106	208	102	208	98	208	81
2020-01-18	219	1,997	1,049	1,988	1,012	2,003	0,966	1,994	0,808	0,523	0,524	0,521	0,523	220	116	220	112	220	106	220	89
2020-01-19	220	1,997	1,049	1,988	1,012	2,003	0,966	1,994	0,808	0,523	0,524	0,521	0,523	220	116	220	112	220	106	220	89
2020-01-20	221	1,997	1,049	1,988	1,012	2,003	0,966	1,994	0,808	0,523	0,524	0,521	0,523	220	116	220	112	220	106	220	89
2020-01-21	222	2,101	1,139	2,086	1,095	2,098	1,038	2,088	0,874	0,525	0,525	0,524	0,526	233	126	231	121	232	115	232	97
2020-01-22	223	2,034	1,103	2,020	1,058	2,028	1,000	2,022	0,846	0,526	0,527	0,525	0,527	226	122	224	118	224	111	225	94
2020-01-23	224	2,034	1,103	2,020	1,058	2,028	1,000	2,022	0,846	0,526	0,527	0,525	0,527	226	122	224	118	224	111	225	94
2020-01-24	225	1,968	1,067	1,953	1,020	1,959	0,961	1,956	0,819	0,527	0,528	0,525	0,528	219	119	218	114	217	107	218	91
2020-01-25	226	1,949	1,010	1,937	0,967	1,943	0,900	1,936	0,748	0,533	0,534	0,531	0,534	219	113	218	109	218	101	218	84
2020-01-26	227	1,949	1,010	1,937	0,967	1,943	0,900	1,936	0,748	0,533	0,534	0,531	0,534	219	113	218	109	218	101	218	84
2020-01-27	228	1,949	1,010	1,937	0,967	1,943	0,900	1,936	0,748	0,533	0,534	0,531	0,534	219	113	218	109	218	101	218	84

Tableau 29 - Données de concentration de CH<sub>4</sub>, débits de gaz (Q<sub>gaz</sub>) et calculs de charges appliquées (IN) et de sorties (OUT)

					[C]	H <sub>4</sub> ]					Qg	jaz					Charg	je CH	4		
Data	Jour				(%)	/v)					(L/r	nin)					(gCH	₄/m³/j)			
Date	op.	J	1	J	2	J	3	J	4	J1	J2	J3	J4	,	11		12		J3	J	J4
		IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	IN	IN	IN	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT
2020-01-28	229	1,930	0,952	1,921	0,914	1,927	0,838	1,915	0,677	0,539	0,541	0,537	0,540	219	108	219	104	218	95	218	77
2020-01-29	230	1,984	1,054	1,976	0,988	1,982	0,922	1,974	0,788	0,540	0,541	0,538	0,541	226	120	226	113	225	105	225	90
2020-01-30	231	1,984	1,054	1,976	0,988	1,982	0,922	1,974	0,788	0,540	0,541	0,538	0,541	226	120	226	113	225	105	225	90
2020-01-31	232	1,984	1,054	1,976	0,988	1,982	0,922	1,974	0,788	0,540	0,541	0,538	0,541	226	120	226	113	225	105	225	90
2020-02-01	233	1,984	1,054	1,976	0,988	1,982	0,922	1,974	0,788	0,540	0,541	0,538	0,541	226	120	226	113	225	105	225	90
2020-02-02	234	1,984	1,054	1,976	0,988	1,982	0,922	1,974	0,788	0,540	0,541	0,538	0,541	226	120	226	113	225	105	225	90
2020-02-03	235	2,039	1,156	2,030	1,062	2,037	1,007	2,033	0,900	0,540	0,542	0,538	0,542	232	132	232	121	231	114	232	103
2020-02-04	236	1,988	1,124	1,975	1,033	1,982	0,975	1,978	0,879	0,537	0,539	0,536	0,538	225	127	225	117	224	110	225	100
2020-02-05	237	1,988	1,124	1,975	1,033	1,982	0,975	1,978	0,879	0,537	0,539	0,536	0,538	225	127	225	117	224	110	225	100
2020-02-06	238	1,988	1,124	1,975	1,033	1,982	0,975	1,978	0,879	0,537	0,539	0,536	0,538	225	127	225	117	224	110	225	100
2020-02-07	239	1,988	1,124	1,975	1,033	1,982	0,975	1,978	0,879	0,537	0,539	0,536	0,538	225	127	225	117	224	110	225	100
2020-02-08	240	1,988	1,124	1,975	1,033	1,982	0,975	1,978	0,879	0,537	0,539	0,536	0,538	225	127	225	117	224	110	225	100
2020-02-09	241	1,988	1,124	1,975	1,033	1,982	0,975	1,978	0,879	0,537	0,539	0,536	0,538	225	127	225	117	224	110	225	100
2020-02-10	242	1,988	1,124	1,975	1,033	1,982	0,975	1,978	0,879	0,537	0,539	0,536	0,538	225	127	225	117	224	110	225	100
2020-02-11	243	1,938	1,092	1,919	1,004	1,926	0,944	1,923	0,859	0,534	0,536	0,533	0,535	218	123	217	114	216	106	217	97
2020-02-12	244	1,939	1,077	1,919	0,986	1,927	0,940	1,922	0,847	0,528	0,530	0,527	0,530	216	120	215	110	214	104	215	95
2020-02-13	245	1,939	1,077	1,919	0,986	1,927	0,940	1,922	0,847	0,528	0,530	0,527	0,530	216	120	215	110	214	104	215	95
2020-02-14	246	1,939	1,061	1,920	0,968	1,929	0,935	1,920	0,834	0,522	0,524	0,521	0,524	214	117	212	107	212	103	212	92
2020-02-15	247	1,921	1,060	1,906	0,967	1,913	0,932	1,905	0,850	0,524	0,526	0,524	0,526	212	117	211	107	211	103	211	94
2020-02-16	248	1,921	1,060	1,906	0,967	1,913	0,932	1,905	0,850	0,524	0,526	0,524	0,526	212	117	211	107	211	103	211	94
2020-02-17	249	1,921	1,060	1,906	0,967	1,913	0,932	1,905	0,850	0,524	0,526	0,524	0,526	212	117	211	107	211	103	211	94
2020-02-18	250	1,902	1,059	1,891	0,966	1,897	0,929	1,889	0,866	0,526	0,528	0,527	0,527	211	118	211	108	211	103	210	96
2020-02-19	251	1,896	1,051	1,880	0,942	1,921	0,904	1,917	1,040	0,524	0,526	0,526	0,526	210	116	209	105	213	100	213	115
2020-02-20	252	1,896	1,051	1,880	0,942	1,945	0,879	1,944	1,213	0,524	0,526	0,525	0,524	210	116	209	105	215	97	215	134
2020-02-21	253	1,890	1,044	1,869	0,918	1,879	0,865	1,886	1,415	0,522	0,523	0,522	0,525	208	115	206	101	207	95	209	157
2020-02-22	254	1,935	1,044	1,950	0,916	1,956	0,912	1,971	1,646	0,527	0,529	0,527	0,530	215	116	218	102	217	101	220	184
2020-02-23	255	1,935	1,044	1,950	0,916	1,956	0,912	1,971	1,646	0,527	0,529	0,527	0,530	215	116	218	102	217	101	220	184
2020-02-24	256	1,935	1,044	1,950	0,916	1,956	0,912	1,971	1,646	0,527	0,529	0,527	0,530	215	116	218	102	217	101	220	184
2020-02-25	257	1,980	1,044	2,031	0,914	2,033	0,959	2,056	1,877	0,532	0,534	0,531	0,534	222	117	229	103	228	107	232	211
2020-02-26	258	2,436	1,360	1,997	0,888	1,999	0,959	2,019	1,884	0,537	0,538	0,536	0,538	277	155	227	101	226	108	229	214
2020-02-27	259	2,892	1,676	1,997	0,888	1,999	0,959	2,019	1,884	0,543	0,538	0,536	0,538	331	192	227	101	226	108	229	214
2020-02-28	260	2,901	1,683	1,962	0,863	1,964	0,959	1,982	1,891	0,544	0,542	0,540	0,543	333	193	224	99	224	109	227	217

					[C]	H₄]					Qg	az					Charg	je CH	4		
Data	Jour				(%)	v/v)					(L/n	nin)					(gCH	₁/m³/j)			
Date	op.	J	1	J	2	J	3	J	4	J1	J2	J3	J4	,	11	J	J2		13	J	4
		IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	IN	IN	IN	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT
2020-02-29	261	2,884	1,681	1,947	0,859	1,952	0,957	1,963	1,893	0,542	0,539	0,537	0,541	329	192	221	98	221	108	224	216
2020-03-01	262	2,884	1,681	1,947	0,859	1,952	0,957	1,963	1,893	0,542	0,539	0,537	0,541	329	192	221	98	221	108	224	216
2020-03-02	263	2,866	1,680	1,931	0,854	1,941	0,954	1,944	1,896	0,539	0,536	0,533	0,538	326	191	218	97	218	107	221	215
2020-03-03	264	2,855	1,678	1,925	0,850	1,930	0,991	1,939	1,891	0,538	0,536	0,533	0,537	324	191	218	96	217	112	220	214
2020-03-04	265	2,855	1,678	1,925	0,850	1,930	0,991	1,939	1,891	0,538	0,536	0,533	0,537	324	191	218	96	217	112	220	214
2020-03-05	266	2,845	1,677	1,919	0,845	1,919	1,028	1,933	1,886	0,538	0,535	0,533	0,536	323	190	217	95	216	116	219	213
2020-03-06	267	2,779	1,662	1,875	0,827	0,000	0,000	1,891	1,842	0,535	0,533	0,525	0,534	314	188	211	93	0	0	213	207
2020-03-07	268	2,779	1,662	1,875	0,827	0,000	0,000	1,891	1,842	0,535	0,533	0,525	0,534	314	188	211	93	0	0	213	207
2020-03-08	269	2,779	1,662	1,875	0,827	0,000	0,000	1,891	1,842	0,535	0,533	0,525	0,534	314	188	211	93	0	0	213	207
2020-03-09	270	2,712	1,647	1,831	0,809	0,000	0,000	1,848	1,799	0,532	0,531	0,518	0,532	305	185	205	91	0	0	207	202
2020-03-10	271	2,856	1,804	1,928	0,885	0,000	0,000	1,948	1,890	0,537	0,535	0,519	0,536	324	205	218	100	0	0	220	214
2020-03-11	272	2,856	1,804	1,928	0,885	0,000	0,000	1,948	1,890	0,537	0,535	0,519	0,536	324	205	218	100	0	0	220	214
2020-03-12	273	2,856	1,804	1,928	0,885	0,000	0,000	1,948	1,890	0,537	0,535	0,519	0,536	324	205	218	100	0	0	220	214
2020-03-13	274	2,856	1,804	1,928	0,885	0,000	0,000	1,948	1,890	0,537	0,535	0,519	0,536	324	205	218	100	0	0	220	214
2020-03-14	275	2,856	1,804	1,928	0,885	0,000	0,000	1,948	1,890	0,537	0,535	0,519	0,536	324	205	218	100	0	0	220	214
2020-03-15	276	2,856	1,804	1,928	0,885	0,000	0,000	1,948	1,890	0,537	0,535	0,519	0,536	324	205	218	100	0	0	220	214
2020-03-16	277	2,856	1,804	1,928	0,885	0,000	0,000	1,948	1,890	0,537	0,535	0,519	0,536	324	205	218	100	0	0	220	214
2020-03-17	278	2,999	1,960	2,025	0,962	0,000	0,000	2,049	1,982	0,542	0,539	0,520	0,541	343	224	230	109	0	0	234	226
2020-03-18	279	2,949	1,970	1,992	0,975	0,995	0,535	-	-	0,544	0,541	0,528	-	339	226	227	111	112	60	-	-
2020-03-19	280	2,949	1,970	1,992	0,975	0,995	0,535	-	-	0,544	0,541	0,528	-	339	226	227	111	112	60	-	-
2020-03-20	281	2,900	1,979	1,958	0,989	1,990	1,070	-	-	0,546	0,543	0,535	-	334	228	225	113	225	121	-	-
2020-03-21	282	2,858	1,975	1,928	0,974	1,954	0,999	-	-	0,539	0,536	0,528	-	325	224	218	110	218	111	-	-
2020-03-22	283	2,858	1,975	1,928	0,974	1,954	0,999	-	-	0,539	0,536	0,528	-	325	224	218	110	218	111	-	-
2020-03-23	284	2,815	1,971	1,897	0,958	1,918	0,927	-	-	0,531	0,528	0,520	-	315	221	211	107	210	102	-	-
2020-03-24	285	2,788	1,987	1,877	0,951	1,886	0,946	-	-	0,536	0,534	0,527	-	315	225	211	107	210	105	-	-
2020-03-25	286	2,788	1,987	1,877	0,951	1,886	0,946	-	-	0,536	0,534	0,527	-	315	225	211	107	210	105	-	-
2020-03-26	287	2,788	1,987	1,8/7	0,951	1,886	0,946	-	-	0,536	0,534	0,527	-	315	225	211	107	210	105	-	•
2020-03-27	288	2,761	2,003	1,856	0,943	1,853	0,965	-	-	0,541	0,539	0,534	-	315	229	211	107	209	109	-	-
2020-03-28	289	2,727	1,959	1,835	0,936	1,829	0,983	-	-	0,538	0,538	0,533	-	310	222	208	106	206	110	-	-
2020-03-29	290	2,727	1,959	1,835	0,936	1,829	0,983	-	-	0,538	0,538	0,533	-	310	222	208	106	206	110	-	•
2020-03-30	291	2,692	1,915	1,814	0,928	1,805	1,000	-	-	0,535	0,536	0,532	-	304	216	205	105	203	112	-	•
2020-03-31	292	2,670	1,942	1,798	0,918	1,795	0,999	-	-	0,537	0,536	0,533	-	302	220	203	104	202	112	-	-

					[C]	H4]					Qg	jaz					Charg	je CH	4		
Dete	Jour				(%)	/v)					(L/r	nin)					(gCH	₄/m³/j)			
Date	op.	J	1	J	2	J	13	J	4	J1	J2	J3	J4	,	J1		J2	,	J3	,	J4
		IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	IN	IN	IN	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT
2020-04-01	293	2,670	1,942	1,798	0,918	1,795	0,999	-	-	0,537	0,536	0,533	-	302	220	203	104	202	112	-	-
2020-04-02	294	2,670	1,942	1,798	0,918	1,795	0,999	1	-	0,537	0,536	0,533	I	302	220	203	104	202	112	I	-
2020-04-03	295	2,647	1,970	1,783	0,908	1,785	0,998	-	-	0,539	0,536	0,534	-	301	224	202	103	201	112	-	-

#### Tableau 30 - Données de concentration de N<sub>2</sub>O, débits de gaz (Qgaz) et calculs de charges appliquées (IN) et de sorties (OUT)

					[N	2 <b>0</b> ]					Qg	jaz					Charg	e N₂O			
Data	Jour				(pp	mv)					(L/r	nin)					(gN₂C	)/m³/j)			
Dale	d'op.	J	1		J2	,	J3		J4	J1	J2	J3	J4	J	1	J	2	J	3	J	4
		IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	IN	IN	IN	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT
2020-01-14	215	1,593	8,183	1,510	17,055	1,548	13,498	1,493	29,460	0,479	0,508	0,484	0,503	0,044	0,227	0,044	0,502	0,043	0,378	0,043	0,858
2020-01-15	216	1,455	8,246	1,390	17,093	1,399	13,210	1,380	31,025	0,501	0,515	0,501	0,512	0,042	0,239	0,041	0,510	0,040	0,383	0,041	0,919
2020-01-16	217	1,455	8,246	1,390	17,093	1,399	13,210	1,380	31,025	0,501	0,515	0,501	0,512	0,042	0,239	0,041	0,510	0,040	0,383	0,041	0,919
2020-01-17	218	1,318	8,310	1,270	17,130	1,250	12,923	1,268	32,590	0,522	0,522	0,518	0,520	0,040	0,251	0,038	0,518	0,037	0,387	0,038	0,981
2020-01-18	219	1,443	8,206	1,393	16,856	1,370	12,549	1,386	33,384	0,523	0,524	0,521	0,523	0,044	0,249	0,042	0,511	0,041	0,378	0,042	1,011
2020-01-19	220	1,443	8,206	1,393	16,856	1,370	12,549	1,386	33,384	0,523	0,524	0,521	0,523	0,044	0,249	0,042	0,511	0,041	0,378	0,042	1,011
2020-01-20	221	1,443	8,206	1,393	16,856	1,370	12,549	1,386	33,384	0,523	0,524	0,521	0,523	0,044	0,249	0,042	0,511	0,041	0,378	0,042	1,011
2020-01-21	222	1,568	8,103	1,515	16,583	1,490	12,175	1,505	34,178	0,525	0,525	0,524	0,526	0,048	0,246	0,046	0,504	0,045	0,369	0,046	1,041
2020-01-22	223	1,488	8,258	1,446	17,078	1,434	12,595	1,439	35,680	0,526	0,527	0,525	0,527	0,045	0,251	0,044	0,521	0,044	0,383	0,044	1,088
2020-01-23	224	1,488	8,258	1,446	17,078	1,434	12,595	1,439	35,680	0,526	0,527	0,525	0,527	0,045	0,251	0,044	0,521	0,044	0,383	0,044	1,088
2020-01-24	225	1,408	8,413	1,378	17,573	1,378	13,015	1,373	37,183	0,527	0,528	0,525	0,528	0,043	0,257	0,042	0,537	0,042	0,396	0,042	1,136
2020-01-25	226	1,430	8,941	1,401	18,918	1,404	13,674	1,396	34,060	0,533	0,534	0,531	0,534	0,044	0,276	0,043	0,586	0,043	0,421	0,043	1,051
2020-01-26	227	1,430	8,941	1,401	18,918	1,404	13,674	1,396	34,060	0,533	0,534	0,531	0,534	0,044	0,276	0,043	0,586	0,043	0,421	0,043	1,051
2020-01-27	228	1,430	8,941	1,401	18,918	1,404	13,674	1,396	34,060	0,533	0,534	0,531	0,534	0,044	0,276	0,043	0,586	0,043	0,421	0,043	1,051
2020-01-28	229	1,453	9,470	1,425	20,263	1,430	14,333	1,420	30,938	0,539	0,541	0,537	0,540	0,045	0,295	0,045	0,634	0,044	0,446	0,044	0,966
2020-01-29	230	1,426	9,208	1,381	19,271	1,390	14,583	1,366	29,269	0,540	0,541	0,538	0,541	0,045	0,288	0,043	0,604	0,043	0,454	0,043	0,916
2020-01-30	231	1,426	9,208	1,381	19,271	1,390	14,583	1,366	29,269	0,540	0,541	0,538	0,541	0,045	0,288	0,043	0,604	0,043	0,454	0,043	0,916
2020-01-31	232	1,426	9,208	1,381	19,271	1,390	14,583	1,366	29,269	0,540	0,541	0,538	0,541	0,045	0,288	0,043	0,604	0,043	0,454	0,043	0,916
2020-02-01	233	1,426	9,208	1,381	19,271	1,390	14,583	1,366	29,269	0,540	0,541	0,538	0,541	0,045	0,288	0,043	0,604	0,043	0,454	0,043	0,916
2020-02-02	234	1,426	9,208	1,381	19,271	1,390	14,583	1,366	29,269	0,540	0,541	0,538	0,541	0,045	0,288	0,043	0,604	0,043	0,454	0,043	0,916

					[N	2 <b>0</b> ]					Q	jaz					Charg	e N <sub>2</sub> O			
Dete	Jour				(pp	mv)					(L/r	nin)					(gN₂C	)/m³/j)			
Date	d'op.	J	1	,	J2	,	13	,	J4	J1	J2	J3	J4	J	1	J	2	J	3	J	4
		IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	IN	IN	IN	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT
2020-02-03	235	1,400	8,945	1,338	18,280	1,350	14,833	1,313	27,600	0,540	0,542	0,538	0,542	0,044	0,280	0,042	0,573	0,042	0,462	0,041	0,865
2020-02-04	236	1,515	7,659	1,455	16,340	1,484	13,014	1,455	23,083	0,537	0,539	0,536	0,538	0,047	0,238	0,045	0,510	0,046	0,404	0,045	0,720
2020-02-05	237	1,515	7,659	1,455	16,340	1,484	13,014	1,455	23,083	0,537	0,539	0,536	0,538	0,047	0,238	0,045	0,510	0,046	0,404	0,045	0,720
2020-02-06	238	1,515	7,659	1,455	16,340	1,484	13,014	1,455	23,083	0,537	0,539	0,536	0,538	0,047	0,238	0,045	0,510	0,046	0,404	0,045	0,720
2020-02-07	239	1,515	7,659	1,455	16,340	1,484	13,014	1,455	23,083	0,537	0,539	0,536	0,538	0,047	0,238	0,045	0,510	0,046	0,404	0,045	0,720
2020-02-08	240	1,515	7,659	1,455	16,340	1,484	13,014	1,455	23,083	0,537	0,539	0,536	0,538	0,047	0,238	0,045	0,510	0,046	0,404	0,045	0,720
2020-02-09	241	1,515	7,659	1,455	16,340	1,484	13,014	1,455	23,083	0,537	0,539	0,536	0,538	0,047	0,238	0,045	0,510	0,046	0,404	0,045	0,720
2020-02-10	242	1,515	7,659	1,455	16,340	1,484	13,014	1,455	23,083	0,537	0,539	0,536	0,538	0,047	0,238	0,045	0,510	0,046	0,404	0,045	0,720
2020-02-11	243	1,630	6,373	1,573	14,400	1,618	11,195	1,598	18,565	0,534	0,536	0,533	0,535	0,050	0,197	0,049	0,447	0,050	0,345	0,049	0,575
2020-02-12	244	1,645	6,423	1,590	15,010	1,646	11,945	1,666	19,114	0,528	0,530	0,527	0,530	0,050	0,196	0,049	0,460	0,050	0,364	0,051	0,586
2020-02-13	245	1,645	6,423	1,590	15,010	1,646	11,945	1,666	19,114	0,528	0,530	0,527	0,530	0,050	0,196	0,049	0,460	0,050	0,364	0,051	0,586
2020-02-14	246	1,660	6,473	1,608	15,620	1,675	12,695	1,735	19,663	0,522	0,524	0,521	0,524	0,050	0,196	0,049	0,474	0,051	0,383	0,053	0,597
2020-02-15	247	1,689	6,211	1,690	15,234	1,719	12,260	1,733	19,785	0,524	0,526	0,524	0,526	0,051	0,188	0,051	0,464	0,052	0,372	0,053	0,602
2020-02-16	248	1,689	6,211	1,690	15,234	1,719	12,260	1,733	19,785	0,524	0,526	0,524	0,526	0,051	0,188	0,051	0,464	0,052	0,372	0,053	0,602
2020-02-17	249	1,689	6,211	1,690	15,234	1,719	12,260	1,733	19,785	0,524	0,526	0,524	0,526	0,051	0,188	0,051	0,464	0,052	0,372	0,053	0,602
2020-02-18	250	1,718	5,950	1,773	14,848	1,763	11,825	1,730	19,908	0,526	0,528	0,527	0,527	0,052	0,181	0,054	0,454	0,054	0,360	0,053	0,607
2020-02-19	251	1,704	6,156	1,720	15,299	1,713	11,269	1,670	15,295	0,524	0,526	0,526	0,526	0,052	0,187	0,052	0,465	0,052	0,343	0,051	0,466
2020-02-20	252	1,704	6,156	1,720	15,299	1,663	10,713	1,610	10,683	0,524	0,526	0,525	0,524	0,052	0,187	0,052	0,465	0,051	0,326	0,049	0,324
2020-02-21	253	1,690	6,363	1,668	15,750	1,630	10,863	1,735	6,773	0,522	0,523	0,522	0,525	0,051	0,192	0,051	0,477	0,049	0,328	0,053	0,206
2020-02-22	254	1,673	6,916	1,674	17,311	1,655	12,344	1,736	4,850	0,527	0,529	0,527	0,530	0,051	0,211	0,051	0,531	0,050	0,377	0,053	0,148
2020-02-23	255	1,673	6,916	1,674	17,311	1,655	12,344	1,736	4,850	0,527	0,529	0,527	0,530	0,051	0,211	0,051	0,531	0,050	0,377	0,053	0,148
2020-02-24	256	1,673	6,916	1,674	17,311	1,655	12,344	1,736	4,850	0,527	0,529	0,527	0,530	0,051	0,211	0,051	0,531	0,050	0,377	0,053	0,148
2020-02-25	257	1,655	7,470	1,680	18,873	1,680	13,825	1,738	2,928	0,532	0,534	0,531	0,534	0,051	0,230	0,052	0,584	0,052	0,425	0,054	0,090
2020-02-26	258	1,859	8,464	1,520	18,479	1,536	13,200	1,649	2,466	0,537	0,538	0,536	0,538	0,058	0,264	0,047	0,576	0,048	0,409	0,051	0,077
2020-02-27	259	2,063	9,458	1,520	18,479	1,536	13,200	1,649	2,466	0,543	0,538	0,536	0,538	0,065	0,297	0,047	0,576	0,048	0,409	0,051	0,077
2020-02-28	260	1,855	9,560	1,360	18,085	1,393	12,575	1,560	2,005	0,544	0,542	0,540	0,543	0,058	0,301	0,043	0,568	0,044	0,393	0,049	0,063
2020-02-29	261	2,045	9,381	1,493	17,291	1,524	11,726	1,673	2,019	0,542	0,539	0,537	0,541	0,064	0,294	0,047	0,540	0,047	0,365	0,052	0,063
2020-03-01	262	2,045	9,381	1,493	17,291	1,524	11,726	1,673	2,019	0,542	0,539	0,537	0,541	0,064	0,294	0,047	0,540	0,047	0,365	0,052	0,063
2020-03-02	263	2,235	9,203	1,625	16,498	1,655	10,878	1,785	2,033	0,539	0,536	0,533	0,538	0,070	0,287	0,050	0,512	0,051	0,336	0,056	0,063
2020-03-03	264	2,183	8,791	1,573	15,595	1,616	10,393	1,711	1,963	0,538	0,536	0,533	0,537	0,068	0,274	0,049	0,484	0,050	0,321	0,053	0,061
2020-03-04	265	2,183	8,791	1,573	15,595	1,616	10,393	1,711	1,963	0,538	0,536	0,533	0,537	0,068	0,274	0,049	0,484	0,050	0,321	0,053	0,061
2020-03-05	266	2,130	8,380	1,520	14,693	1,578	9,908	1,638	1,893	0,538	0,535	0,533	0,536	0,066	0,261	0,047	0,455	0,049	0,306	0,051	0,059

					[N	2 <b>0</b> ]					Q	jaz					Charg	e N <sub>2</sub> O			
Dete	Jour				(pp	omv)					(L/r	nin)					(gN₂C	)/m³/j)			
Date	d'op.	J	1	,	J2	,	13		J4	J1	J2	J3	J4	J	1	J	2	J	3	J	4
		IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	IN	IN	IN	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT	IN	OUT
2020-03-06	267	2,079	7,996	1,509	13,920	1,018	7,161	1,563	1,731	0,535	0,533	0,525	0,534	0,064	0,248	0,047	0,430	0,031	0,219	0,048	0,054
2020-03-07	268	2,079	7,996	1,509	13,920	1,018	7,161	1,563	1,731	0,535	0,533	0,525	0,534	0,064	0,248	0,047	0,430	0,031	0,219	0,048	0,054
2020-03-08	269	2,079	7,996	1,509	13,920	1,018	7,161	1,563	1,731	0,535	0,533	0,525	0,534	0,064	0,248	0,047	0,430	0,031	0,219	0,048	0,054
2020-03-09	270	2,028	7,613	1,498	13,148	0,458	4,415	1,488	1,570	0,532	0,531	0,518	0,532	0,062	0,235	0,046	0,404	0,014	0,132	0,046	0,048
2020-03-10	271	2,034	7,180	1,498	12,848	0,449	4,089	1,526	1,618	0,532	0,531	0,518	0,532	0,063	0,222	0,046	0,396	0,013	0,123	0,047	0,050
2020-03-11	272	2,034	7,180	1,498	12,848	0,449	4,089	1,526	1,618	0,532	0,531	0,518	0,532	0,063	0,222	0,046	0,396	0,013	0,123	0,047	0,050
2020-03-12	273	2,040	6,748	1,498	12,548	0,440	3,763	1,565	1,665	0,531	0,531	0,518	0,532	0,063	0,210	0,046	0,388	0,013	0,113	0,049	0,052
2020-03-13	274	2,050	6,805	1,483	12,261	0,419	3,661	1,579	1,649	0,537	0,535	0,519	0,536	0,064	0,213	0,046	0,381	0,013	0,110	0,049	0,051
2020-03-14	275	2,050	6,805	1,483	12,261	0,419	3,661	1,579	1,649	0,537	0,535	0,519	0,536	0,064	0,213	0,046	0,381	0,013	0,110	0,049	0,051
2020-03-15	276	2,050	6,805	1,483	12,261	0,419	3,661	1,579	1,649	0,537	0,535	0,519	0,536	0,064	0,213	0,046	0,381	0,013	0,110	0,049	0,051
2020-03-16	277	2,050	6,805	1,483	12,261	0,419	3,661	1,579	1,649	0,537	0,535	0,519	0,536	0,064	0,213	0,046	0,381	0,013	0,110	0,049	0,051
2020-03-17	278	2,060	6,863	1,468	11,975	0,398	3,560	1,593	1,633	0,542	0,539	0,520	0,541	0,065	0,215	0,046	0,374	0,012	0,107	0,050	0,051
2020-03-18	279	1,962	6,975	1,427	12,033	0,899	4,640	-	-	0,544	0,541	0,528	-	0,062	0,220	0,045	0,377	0,028	0,142	-	-
2020-03-19	280	1,962	6,975	1,427	12,033	0,899	4,640	-	-	0,544	0,541	0,528	-	0,062	0,220	0,045	0,377	0,028	0,142	-	-
2020-03-20	281	1,863	7,087	1,387	12,090	1,400	5,720	-	-	0,546	0,543	0,535	-	0,059	0,224	0,044	0,380	0,043	0,177	-	-
2020-03-21	282	1,868	6,898	1,398	11,440	1,424	5,900	-	-	0,539	0,536	0,528	-	0,058	0,215	0,043	0,355	0,043	0,180	-	-
2020-03-22	283	1,868	6,898	1,398	11,440	1,424	5,900	-	-	0,539	0,536	0,528	-	0,058	0,215	0,043	0,355	0,043	0,180	-	-
2020-03-23	284	1,873	6,710	1,410	10,790	1,448	6,080	-	-	0,531	0,528	0,520	-	0,058	0,206	0,043	0,330	0,044	0,183	-	-
2020-03-24	285	1,915	7,578	1,411	11,070	1,426	6,311	-	-	0,536	0,534	0,527	-	0,059	0,235	0,044	0,342	0,044	0,193	-	-
2020-03-25	286	1,915	7,578	1,411	11,070	1,426	6,311	-	-	0,536	0,534	0,527	-	0,059	0,235	0,044	0,342	0,044	0,193	-	-
2020-03-26	287	1,915	7,578	1,411	11,070	1,426	6,311	-	-	0,536	0,534	0,527	-	0,059	0,235	0,044	0,342	0,044	0,193	-	-
2020-03-27	288	1,958	8,445	1,413	11,350	1,405	6,543	-	-	0,541	0,539	0,534	-	0,061	0,264	0,044	0,354	0,043	0,202	-	-
2020-03-28	289	1,943	9,136	1,405	11,059	1,420	6,404	-	-	0,538	0,538	0,533	-	0,061	0,284	0,044	0,344	0,044	0,198	-	-
2020-03-29	290	1,943	9,136	1,405	11,059	1,420	6,404	-	-	0,538	0,538	0,533	-	0,061	0,284	0,044	0,344	0,044	0,198	-	-
2020-03-30	291	1,928	9,828	1,398	10,768	1,435	6,265	-	-	0,535	0,536	0,532	-	0,060	0,304	0,043	0,334	0,044	0,193	-	-
2020-03-31	292	1,823	7,756	1,346	10,534	1,346	6,150	-	-	0,537	0,536	0,533	-	0,057	0,241	0,042	0,327	0,042	0,190	-	-
2020-04-01	293	1,823	7,756	1,346	10,534	1,346	6,150	-	-	0,537	0,536	0,533	-	0,057	0,241	0,042	0,327	0,042	0,190	-	-
2020-04-02	294	1,823	7,756	1,346	10,534	1,346	6,150	-	-	0,537	0,536	0,533	-	0,057	0,241	0,042	0,327	0,042	0,190	-	-
2020-04-03	295	1,718	5,685	1,295	10,300	1,258	6,035	-	-	0,539	0,536	0,534	-	0,054	0,177	0,040	0,320	0,039	0,187	-	-

Le **Erreur ! Référence non valide pour un signet.** présente les charges éliminées en CH<sub>4</sub> (différence entre la charge appliquée et la charge en sortie) et les charges produites en N<sub>2</sub>O (différence entre la charge en sortie et la charge appliquée). En sommant les charges et en les multipliant par le volume de média filtrant, il est possible de retrouver la quantité de CH<sub>4</sub> éliminée et de N<sub>2</sub>O produite. En multipliant ces quantités avec leur PRG respectif, il est possible d'obtenir les équivalents CO<sub>2</sub> et de voir si le bilan est positif ou négatif, c'est-à-dire si les biofiltres permettent bel et bien de diminuer les GES et non de les augmenter.

	lour	C	harge éli	minée C	H4	C	harge pr	oduite N	20
Date	Jour		(gCH	₄/m³/j)			(gN₂C	D/m³/j)	
	op.	J1	J2	J3	J4	J1	J2	J3	J4
2020-01-14	215	107	103	110	126	0,183	0,457	0,335	0,814
2020-01-15	216	105	105	110	127	0,197	0,468	0,342	0,879
2020-01-16	217	105	105	110	127	0,197	0,468	0,342	0,879
2020-01-17	218	103	106	111	127	0,211	0,480	0,350	0,943
2020-01-18	219	105	108	114	131	0,205	0,469	0,337	0,969
2020-01-19	220	105	108	114	131	0,205	0,469	0,337	0,969
2020-01-20	221	105	108	114	131	0,205	0,469	0,337	0,969
2020-01-21	222	106	110	117	135	0,198	0,458	0,324	0,995
2020-01-22	223	103	107	114	131	0,206	0,477	0,339	1,045
2020-01-23	224	103	107	114	131	0,206	0,477	0,339	1,045
2020-01-24	225	100	104	111	127	0,214	0,495	0,354	1,094
2020-01-25	226	106	109	117	134	0,232	0,542	0,378	1,008
2020-01-26	227	106	109	117	134	0,232	0,542	0,378	1,008
2020-01-27	228	106	109	117	134	0,232	0,542	0,378	1,008
2020-01-28	229	111	115	123	141	0,250	0,590	0,401	0,922
2020-01-29	230	106	113	120	135	0,243	0,561	0,411	0,873
2020-01-30	231	106	113	120	135	0,243	0,561	0,411	0,873
2020-01-31	232	106	113	120	135	0,243	0,561	0,411	0,873
2020-02-01	233	106	113	120	135	0,243	0,561	0,411	0,873
2020-02-02	234	106	113	120	135	0,243	0,561	0,411	0,873
2020-02-03	235	101	111	117	130	0,236	0,531	0,420	0,824
2020-02-04	236	98	107	114	125	0,191	0,465	0,358	0,675
2020-02-05	237	98	107	114	125	0,191	0,465	0,358	0,675
2020-02-06	238	98	107	114	125	0,191	0,465	0,358	0,675
2020-02-07	239	98	107	114	125	0,191	0,465	0,358	0,675
2020-02-08	240	98	107	114	125	0,191	0,465	0,358	0,675
2020-02-09	241	98	107	114	125	0,191	0,465	0,358	0,675
2020-02-10	242	98	107	114	125	0,191	0,465	0,358	0,675
2020-02-11	243	95	103	110	120	0,147	0,398	0,295	0,526
2020-02-12	244	96	104	110	120	0,146	0,412	0,314	0,535
2020-02-13	245	96	104	110	120	0,146	0,412	0,314	0,535
2020-02-14	246	97	105	109	120	0,145	0,425	0,333	0,544
2020-02-15	247	95	104	108	117	0,137	0,412	0,320	0,549
2020-02-16	248	95	104	108	117	0,137	0,412	0,320	0,549
2020-02-17	249	95	104	108	117	0,137	0,412	0,320	0,549
2020-02-18	250	94	103	108	114	0,129	0,399	0,307	0,555
2020-02-19	251	93	104	113	97	0,135	0,413	0,291	0,415
2020-02-20	252	93	104	118	81	0,135	0,413	0,275	0,275

Tableau 31 – Charges éliminées en CH4 et charges produites en N2O

	lour	C	harge éli	minée C	H₄	С	harge pro	oduite N	20
Date	Jour		(gCH₄	ı/m³/j)			(gN₂C	)/m³/j)	
	op.	J1	J2	J3	J4	J1	J2	J3	J4
2020-02-21	253	93	105	112	52	0,141	0,427	0,279	0,153
2020-02-22	254	99	116	116	36	0,160	0,479	0,326	0,095
2020-02-23	255	99	116	116	36	0,160	0,479	0,326	0,095
2020-02-24	256	99	116	116	36	0,160	0,479	0,326	0,095
2020-02-25	257	105	126	120	20	0,179	0,532	0,373	0,037
2020-02-26	258	122	126	117	15	0,206	0,528	0,362	0,025
2020-02-27	259	139	126	117	15	0,232	0,528	0,362	0,025
2020-02-28	260	140	126	115	10	0,243	0,525	0,350	0,014
2020-02-29	261	137	124	113	8	0,230	0,493	0,317	0,011
2020-03-01	262	137	124	113	8	0,230	0,493	0,317	0,011
2020-03-02	263	135	122	111	5	0,217	0,461	0,285	0,008
2020-03-03	264	134	121	106	5	0,206	0,435	0,271	0,008
2020-03-04	265	134	121	106	5	0,206	0,435	0,271	0,008
2020-03-05	266	133	121	100	5	0,195	0,408	0,257	0,008
2020-03-06	267	126	118	0	5	0,183	0,383	0,188	0,005
2020-03-07	268	126	118	0	5	0,183	0,383	0,188	0,005
2020-03-08	269	126	118	0	5	0,183	0,383	0,188	0,005
2020-03-09	270	120	114	0	6	0,172	0,358	0,119	0,003
2020-03-10	271	119	118	0	7	0,159	0,350	0,109	0,003
2020-03-11	272	119	118	0	7	0,159	0,350	0,109	0,003
2020-03-12	273	119	118	0	/	0,146	0,342	0,100	0,003
2020-03-13	2/4	119	118	0	/	0,149	0,335	0,098	0,002
2020-03-14	275	119	118	0	/	0,149	0,335	0,098	0,002
2020-03-15	276	119	118	0	/	0,149	0,335	0,098	0,002
2020-03-16	2//	119	118	0	/	0,149	0,335	0,098	0,002
2020-03-17	278	119	121	0	8	0,151	0,328	0,095	0,001
2020-03-18	279	112	116	52	-	0,158	0,332	0,115	-
2020-03-19	280	112	116	52	-	0,158	0,332	0,115	-
2020-03-20	281	106	111	104	-	0,165	0,337	0,134	-
2020-03-21	282	100	108	106	-	0,157	0,312	0,137	-
2020-03-22	283	100	108	106	-	0,157	0,312	0,137	-
2020-03-23	284	95	105	109	-	0,149	0,287	0,139	-
2020-03-24	200	91	104	104	-	0,170	0,298	0,149	-
2020-03-25	200	91	104	104	-	0,170	0,298	0,149	-
2020-03-20	207	97	104	104	-	0,170	0,290	0,149	•
2020-03-21	200	01 07	104	05	-	0,203	0,310	0,159	-
2020-03-20	209	07	102	95	-	0,224	0,300	0,154	-
2020-03-29	290	07	102	90	-	0,224	0,300	0,134	•
2020-03-30	291	00 82	100	90	•	0,243	0.291	0,149	•
2020-03-31	292	82	100	90 00	-	0,104	0,200	0,140	-
2020-04-01	295	82	100	90 Q/	-	0,104	0,200	0,140	-
2020-04-02	204	77	90	80	-	0.124	0,200	0.140	-
2020-04-03	200 (a/m <sup>3</sup> )	8560	8061	7/99	5102	15	21	22	30
Z	(g/III')	204	404	1400	0100	10	04 1 E	1.0	10
	2 (g)	304	401	330 F	220	0,7	1,0	1,0	1,3
	PKG	0.500	2	0		0.01	29	90 90	100
eC	CO₂ (g)	9592	10031	8383	5/12	201	456	289	402

Ainsi, les calculs d'équivalent en CO<sub>2</sub> permettent de voir que le bilan net est positif : les GES émis à l'environnement ont diminué. Les diminutions pour J1, J2, J3 et J4 sont respectivement de 9391, 9575, 8093 et 5310 g eCO<sub>2</sub>.