

Article

« Émissions d'oxyde nitreux lors du traitement de l'azote des eaux usées de l'agglomération parisienne : état actuel et prévisions »

Gaëlle Tallec, Olivier Rousselot, Josette Garnier et Michel Gousailles

Revue des sciences de l'eau / Journal of Water Science, vol. 20, n° 1, 2007, p. 149-161.

Pour citer cet article, utiliser l'information suivante :

URI: <http://id.erudit.org/iderudit/015742ar>

DOI: 10.7202/015742ar

Note : les règles d'écriture des références bibliographiques peuvent varier selon les différents domaines du savoir.

Ce document est protégé par la loi sur le droit d'auteur. L'utilisation des services d'Érudit (y compris la reproduction) est assujettie à sa politique d'utilisation que vous pouvez consulter à l'URI <https://apropos.erudit.org/fr/usagers/politique-dutilisation/>

Érudit est un consortium interuniversitaire sans but lucratif composé de l'Université de Montréal, l'Université Laval et l'Université du Québec à Montréal. Il a pour mission la promotion et la valorisation de la recherche. Érudit offre des services d'édition numérique de documents scientifiques depuis 1998.

Pour communiquer avec les responsables d'Érudit : info@erudit.org

ÉMISSIONS D'OXYDE NITREUX LORS DU TRAITEMENT DE L'AZOTE DES EAUX USÉES DE L'AGGLOMÉRATION PARISIENNE : ÉTAT ACTUEL ET PRÉVISIONS

Nitrous oxide emissions during the removal of nitrogen from wastewater treatment plants in the Paris metropolitan area: current state and forecasts

Gaëlle Tallec^{1,2*}, Olivier Rousselot¹, Josette Garnier² et Michel Gonsailles¹

¹SLAAP / DRD, 82, Av. Kléber, 92700 Colombes, France.

²UMR Sisyphe 7619, Fonctionnement des Hydrosystèmes, Université P. et M. Curie-CNRS, Boîte 105, Tour 56, Étage 4, 4 place Jussieu, 75005 Paris, France.

Reçu le 15 décembre 2005, accepté le 6 septembre 2006

RÉSUMÉ

La Seine, un des fleuves les plus anthropisés d'Europe, reçoit les rejets des eaux usées de près de quinze millions d'habitants, soit le quart de la population française, dont dix millions sont concentrés dans l'agglomération parisienne. Suite à la directive européenne 91/271, l'assainissement des eaux usées de l'agglomération parisienne est actuellement remodelé et amélioré. Les flux d'azote, rejetés auparavant en Seine, seront progressivement traités via des procédés basés sur des cultures libres (boues activées) ou fixées (biofiltres immergés) permettant la nitrification et la dénitrification de la pollution azotée.

Néanmoins, il est désormais admis que de l'oxyde nitreux (N_2O), un gaz à effet de serre destructeur de la couche d'ozone, pourrait être émis dans l'atmosphère de façon significative durant le traitement biologique de l'azote en station d'épuration (STEP). Ces émissions ont été quantifiées en fonction des charges en azote traitées et des procédés utilisés, en conditions expérimentales. En se basant sur ces résultats, nous avons évalué les émissions de N_2O sur l'ensemble des stations d'épuration de l'agglomération parisienne, dans les

conditions actuelles des traitements pratiqués, mais également estimé les émissions futures, suite aux principaux changements prévus aux horizons 2006-2008 et 2012-2015.

Les estimations conduisent à des émissions actuelles de N_2O de l'ordre de 60-120 kg N- N_2O /j, qui augmenteront à l'issue de la première étape des travaux (2006-2008) à 320-480 kg N- N_2O /j, pour atteindre 370-750 kg N- N_2O /j en 2012-2015. Les niveaux les plus bas de ces émissions pourraient être atteints si le traitement de l'azote se fait avec une oxygénation supérieure à 2 mgO₂/L en nitrification et en dénitrification, avec des conditions d'anoxie totales et un ajout de méthanol permettant 100 % de la réduction de la charge en nitrate.

Compte tenu de nos résultats pour les stations d'épuration (60-120 kg N- N_2O /j) et ceux obtenus pour la Seine à l'aval du rejet des effluents non traités pour l'azote (90-200 kg N- N_2O /j), les émissions actuelles de N_2O sont estimées à 150-320 kg N- N_2O /j, et celles du futur augmenteraient d'un facteur d'à peine 2 quand le traitement de l'azote sera complet en stations d'épuration; cette augmentation est relativement faible si l'on tient compte de la gamme de nos estimations.

*Auteur pour correspondance :

Téléphone : 33.1.40.96.60.43

Télécopieur : 33.1.40.96.61.99

Courriel : gaille_tallec@yahoo.fr

De plus, à l'échelle du bassin de la Seine, les émissions d'oxyde nitreux liées au traitement de l'azote dans les stations d'épuration de l'agglomération parisienne (actuel et futur) continueront de représenter une faible proportion, de 1 à 10 % par rapport aux émissions provenant des sols agricoles du bassin amont (4100-8200 kg N-N₂O/j).

Mots clés : émissions de N₂O, stations d'épuration, traitement de l'azote, agglomération parisienne, bassin de la Seine.

SUMMARY

The Seine, one of Europe's rivers most affected by intense human pressures, receives wastewater discharges from almost fifteen million inhabitants, equal to a quarter of the French population, among which ten million are concentrated in the Paris conurbation. In the framework of the European directive 91/271, wastewater treatment in the Paris conurbation is being reorganized and improved. The nitrogen load, still discharged to the Seine River, will be gradually treated by fixed biological culture and activated sludge processes, allowing nitrification and denitrification of nitrogen pollution.

It is now accepted that nitrous oxide (N₂O), a greenhouse gas that induces the destruction of stratospheric ozone, is emitted during biological nitrogen treatment in wastewater treatment plants (WWTPs) and may be a significant source to the atmosphere. These emissions have been quantified under experimental conditions, depending on the nitrogen load treated and the treatment used. These results have allowed the estimation of N₂O emissions from all WWTPs in the Paris conurbation for present treatments and also for future conditions, with new treatments being scheduled in 2006-2008 and then in 2012-2015.

We estimate present N₂O emissions to be 60-120 kg N-N₂O/d, which would increase to 320-480 kg N-N₂O/d in 2006-2008 and reach 370-750 kg N-N₂O/d in 2012-2015. The emission levels could be limited to the lower range of values if the nitrification of nitrogen were performed at an oxygenation level higher than 2 mg O₂/L and if denitrification were performed under total anoxic conditions and with a methanol addition, allowing a 100% reduction of the nitrate load.

According to our results found for Paris WWTPs (60-120 kg N-N₂O/d) and those obtained in the lower Seine River, which receives effluents not treated for nitrogen (90-200 kg N-N₂O/d), N₂O emissions amount to 150-320 kg N-N₂O/d. This increase of N₂O emissions by a factor of less than 2 is a rather low value taking into account the range of our estimates.

Furthermore, at the scale of the Seine River basin, nitrous oxide emissions from nitrogen treatments in Paris conurbation WWTPs (at present or in the future) would continue to represent a low proportion, 1 to 10%, in comparison with the emissions from agricultural lands (4100-8200 kg N-N₂O/d).

Key words: N₂O emissions, wastewater treatment plants, nitrogen treatment, Paris conurbation, Seine River basin.

1. INTRODUCTION

La Seine reçoit les rejets des eaux usées de près de quinze millions d'habitants, dont dix millions d'habitants résident dans l'agglomération parisienne. Si l'élimination de la pollution carbonée a été appliquée dans de nombreuses stations d'épuration d'eaux usées, conduisant ainsi à l'obtention d'un effluent de meilleure qualité et à la réduction de son impact sur le milieu récepteur, des efforts doivent actuellement porter sur le traitement de l'azote. L'azote constitue en effet un élément clé de l'eutrophisation de la zone côtière (BILLEN *et al.*, 2001; CUGIER *et al.*, 2005).

Le traitement de l'azote des eaux usées se fait le plus souvent par traitement biologique. Des bactéries nitrifiantes et dénitrifiantes sont cultivées, en culture libre (boues activées) ou culture fixée, et permettent l'oxydation de l'ammonium en nitrate (la nitrification) et la réduction du nitrate en diazote gazeux (inerte) émis dans l'atmosphère (la dénitrification). Toutefois, il est désormais admis que de l'oxyde nitreux (N₂O) pourrait être produit de manière significative et émis dans l'atmosphère durant le traitement biologique de l'azote en station d'épuration (STEP) via la nitrification et la dénitrification, que ce soit en boues activées (HANAKI *et al.*, 1990; HANAKI *et al.*, 1992; TALLEC, 2005; TALLEC *et al.*, 2006; ZHENG *et al.*, 1994) ou en cultures fixées (KIM *et al.*, 2004; TALLEC, 2005). En effet, l'oxyde nitreux est produit par les bactéries impliquées dans les processus de nitrification (GOREAU *et al.*, 1980; POTH et FOCHT, 1985) et de dénitrification (KNOWLES, 1982) (Figure 1).

Le N₂O est un gaz à effet de serre extrêmement efficace, son potentiel de réchauffement est 320 fois plus élevé que celui du dioxyde de carbone (CO₂). Il persiste très longtemps dans l'atmosphère (120 ans environ), (IPCC, 2000). De plus, lorsqu'il est rejeté dans l'atmosphère, il finit par se convertir en oxyde nitrique (NO), un gaz destructeur de la couche d'ozone (O₃) stratosphérique (BLIEFERT et PERRAUD, 2001). Ce gaz à effet de serre retient désormais l'attention de la communauté scientifique concernée par les changements climatiques globaux. Sa stabilisation aux niveaux actuels de 311-313 ppb nécessiterait une réduction des émissions anthropogéniques de plus de 50 % (CITEPA, 2003).

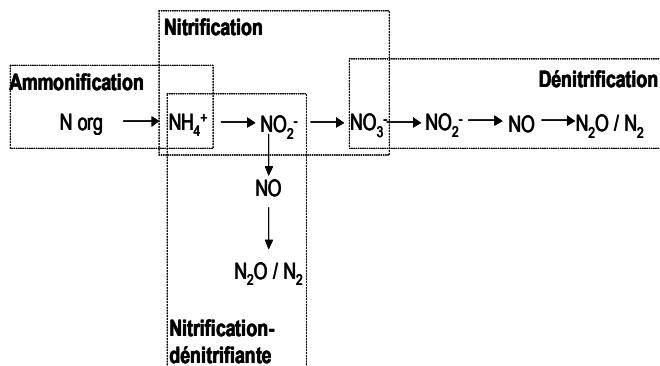


Figure 1. Processus biologiques de transformation de l'azote pouvant conduire à une production de N_2O : la nitrification autotrophe, la nitrification dénitrifiante autotrophe et la dénitrification hétérotrophe. Ces processus peuvent intervenir en STEP aussi bien lors de l'élimination de l'ammonium que du nitrate.

Biological processes of nitrogen transformation producing N_2O : autotrophic nitrification, autotrophic nitrifier denitrification and heterotrophic denitrification. These processes could occur in WWTP both during ammonium or nitrate removal.

Dans cette optique, à une échelle régionale, celle du bassin de la Seine, cette étude propose d'évaluer les émissions de ce gaz à effet de serre (N_2O) afférentes à la nitrification et la dénitrification lors du traitement des eaux usées de l'agglomération parisienne. Alors que la nitrification et la dénitrification des eaux usées, y compris les émissions d'oxyde nitreux, se produisaient essentiellement dans la Seine, ces processus sont de plus en plus pris en charge, de manière accélérée et contrôlée, au niveau des stations d'épuration. Un des inconvénients majeurs serait une augmentation globale des émissions de N_2O par le déplacement des sites d'émission, du milieu naturel vers les STEP (GARNIER *et al.*, 2006; ITOKAWA *et al.*, 2001).

Un objectif majeur de cette étude est d'estimer les émissions de N_2O actuelles pour l'ensemble des stations d'épuration de l'agglomération parisienne, compte tenu de leur type de traitement, en se basant sur des études expérimentales (cf. TALLEC, 2005); ces estimations sont comparées à un bilan effectué pour le bassin de la Seine (GARNIER *et al.*, 2006). Un autre objectif est d'évaluer les émissions de N_2O relatives aux futurs traitements de l'azote qui seront mis en place aux horizons 2006-2008 et 2012-2015, afin d'appréhender la quantité de pollution déplacée de la basse Seine, à l'aval des rejets de l'agglomération parisienne, vers les stations d'épuration de cette mégapole.

2. LE BASSIN DE LA SEINE ET LES ÉMISSIONS DE N_2O

2.1 Le bassin de la Seine.

Le réseau hydrographique de la Seine, qui prend sa source sur le plateau de Langres (417 m) et se jette dans la Manche, s'étend sur un bassin versant de 78 600 km² (jusqu'au Havre). L'influence des mouvements de marée est perceptible jusqu'au barrage de Poses, limite artificielle de la Seine fluviale et estuarienne. Le réseau hydrographique de la Seine peut être subdivisé en quatre sous-bassins (la Seine amont et les affluents principaux de la Seine : Marne, Oise, Eure) et la basse Seine (Figure 2).

L'agriculture et l'élevage représentent les deux principales sources de pollution du bassin amont, tant au niveau des émissions de N_2O dans l'atmosphère que des apports en nitrates au niveau du fleuve.

Les axes principaux des sous-bassins de la Seine, de la Marne et de l'Aube, sont équipés de barrages-réservoirs qui modifient à la fois l'hydrologie et la biogéochimie des cours d'eau (GARNIER *et al.*, 1999; 2000); ce sont des sites de sédimentation connus, qui entraînent le stockage ou l'élimination des éléments nutritifs (Si, N, P). Ainsi, les nitrates diminuent grâce principalement au processus de dénitrification, mais les réservoirs étant situés en amont (Figure 2), la rétention de nitrates à l'échelle du bassin reste limitée (GARNIER *et al.*, 2000).

L'urbanisation augmente surtout en aval de ces réservoirs. Certaines grosses agglomérations rejettent leurs effluents urbains (Troyes, Châlon-en-Champagne, Reims, etc.), les effets de ces rejets étant cependant beaucoup moins marqués que ceux de l'exutoire des grands axes et de la capitale, car les stations sont de bien plus faibles capacités (TUSSEAU-VUILLEMIN *et al.*, 2000).

Au niveau de la basse Seine, à l'aval de l'agglomération parisienne, la pollution ammoniacale représente une nuisance majeure. Depuis les années 1990, plusieurs travaux ont montré que l'azote ammoniacal (entre 1 et 4 mg N/L) apporté par les effluents de la station d'épuration Seine Aval (Achères, ouest de Paris), est complètement nitrifié au niveau de l'estuaire fluvial lors d'un transit de 200 km en aval, diminuant relativement peu sur le cours de la basse Seine (BRION *et al.*, 2000; CÉBRON *et al.*, 2003; GARNIER *et al.*, 2001, 2006). L'activité nitrifiante maximale dans l'estuaire entraîne une désoxygénation importante. Une étude a récemment montré que la nitrification de la colonne d'eau est accompagnée d'une émission de N_2O notable, la dénitrification benthique

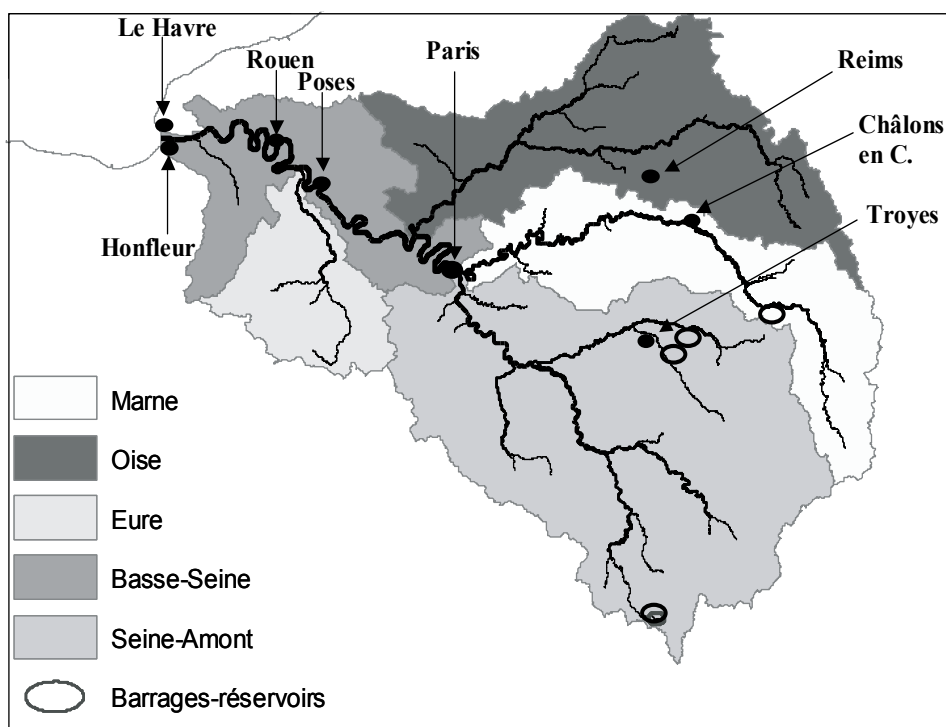


Figure 2. Carte représentant le réseau hydrographique de la Seine, ses quatre sous-bassins et la basse Seine (carte PIREN-Seine, S. Théry, comm. Pers.).
Map of the hydrographic network of the Seine River, its four sub-basins and the lower Seine River (PIREN-Seine map).

apparaissant aussi être une source de N₂O (GARNIER *et al.*, 2006; GARNIER *et al.*, sous presse).

2.2 Les émissions de N₂O dans le bassin de la Seine.

Des travaux sur les émissions de N₂O sur l'ensemble du bassin de la Seine sont menés pour les différents secteurs du bassin. Avec le quart de la population française, dont dix millions en agglomération parisienne, et le tiers de la production agricole nationale, les principales zones de production du N₂O sur le bassin de la Seine sont le bassin amont agricole et la zone estuarienne (GARNIER *et al.*, 2006). GARNIER *et al.* (2006) proposent en effet une gamme de 4 100-8 200 kg N-N₂O/j pour le total des émissions de N₂O provenant des sols agricoles du bassin de la Seine en amont de Poses, alors que pour le secteur de la basse Seine, de l'amont de Paris à l'estuaire fluvial, inclus, les émissions de N₂O seraient en moyenne de 120 kg N/j (90-200 kg N/j). En extrapolant à l'échelle du réseau hydrographique, les émissions de N₂O observées sur les secteurs aval, GARNIER *et al.* (2006) proposent des valeurs de 370-680 kg N-N₂O/j pour l'ensemble des surfaces en eau de la Seine.

3. LES STATIONS D'ÉPURATION DE L'AGGLOMÉRATION PARISIENNE ET LES ÉMISSIONS DE N₂O

3.1 Les stations d'épuration.

Le Syndicat Interdépartemental pour l'Assainissement de l'Agglomération Parisienne (SIAAP), chargé de l'assainissement de la ville de Paris et des départements de la Petite Couronne (Hauts de Seine, Seine-Saint-Denis, Val de Marne), soit 10 millions d'habitants, exploite l'usine d'épuration « Seine Aval » à Achères, « Marne Aval » à Noisy-le-Grand depuis 1976, « Seine Amont » à Valentigney depuis 1987, « Seine Centre » à Colombes depuis 1998 et prochainement deux nouvelles stations, « Les Grésillons » fin 2006 et « La Morée » en 2015 (Figure 3).

3.2 La station « Seine Aval »

Achères, ouest de Paris, traite environ $20,8 \times 10^5$ m³/j en temps sec, soit les deux tiers des eaux usées de l'agglomération

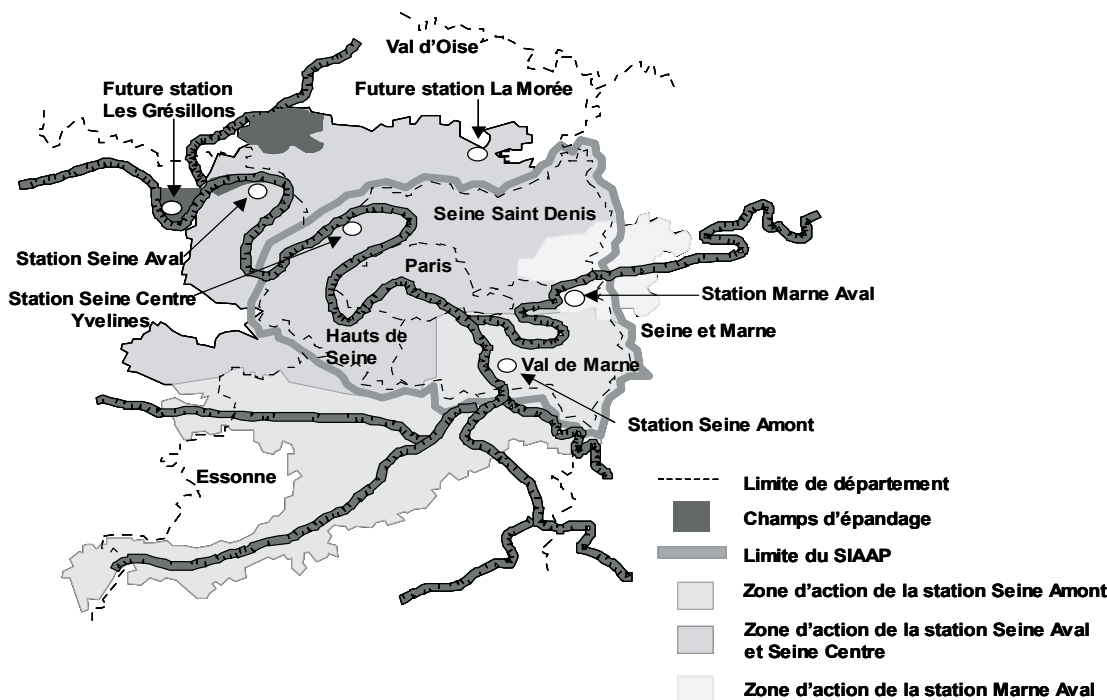


Figure 3. Zone de collecte du SIAAP (Syndicat Interdépartemental pour l'Assainissement de l'Agglomération Parisienne) et localisation des usines actuelles dont il a la charge; les futures stations sont également localisées.

Collection area of the SIAAP (Syndicat Interdépartemental pour l'Assainissement de l'Agglomération Parisienne) and location of the present wastewater treatment plants; the new ones planned in the future are also indicated.

parisienne, 69×10^5 équivalent habitant (éq. Hab.), via un traitement secondaire en boues activées.

Par temps sec, les eaux décantées primaires subissent une épuration biologique secondaire où seule la pollution carbonée est éliminée. Cette dernière s'effectue sur quatre tranches aux caractéristiques différentes. Une partie des eaux traitées biologiquement, subit une déphosphatation, basée sur un traitement physico-chimique ou « clarifloculation » (tamisage - coagulation-floculation - décantation).

Par temps de pluie, ce sont des eaux prétraitées qui arrivent au niveau de la clarifloculation où un traitement de la pollution carbonée et phosphorée est effectué.

3.3 La station « Seine Centre »

Colombes, ouest de Paris, d'une capacité de $2,4 \times 10^5$ m³/j (8×10^5 éq. Hab.), permet l'épuration des eaux allant jusqu'au traitement tertiaire par temps sec.

Le traitement s'effectue alors en trois étapes successives. L'eau brute, après un prétraitement, une décantation physico-chimique qui permet l'élimination des phosphates, subit une

épuration biologique par biofiltres immergés (cultures fixées). Cette dernière permet selon les configurations de l'usine, fonction des conditions climatiques et du débit, l'abattement de la pollution carbonée et azotée. L'élimination de la pollution carbonée étant ici presque totale, du carbone organique exogène est ajouté (méthanol) pour activer la dénitrification.

Par temps de pluie, la station peut traiter jusqu'à $6,9 \times 10^5$ m³/j, seule la pollution carbonée est alors éliminée. À titre d'exemple, en 2003 il y a eu environ une centaine de jours de pluie (arrêt annuel de la station compris).

3.4 La station « Seine Amont »

Valenton, est de Paris, traitera, fin 2006, 6×10^5 m³/j (20×10^5 éq. Hab.) via un traitement biologique secondaire en boues activées, opérant sur deux filières différentes de 3×10^5 m³/j chacune, Valenton I et Valenton II.

Sur Valenton I, l'eau décantée est introduite en tête des réacteurs biologiques cylindriques, dans la partie centrale anoxique, et chemine jusqu'à la zone aérobie externe. Seul le retour des boues activées extraites du clarificateur apporte la charge de nitrate au niveau de la zone anoxique.

Sur Valenton II, l'eau décantée est introduite en tête du bassin biologique, caractérisé par une zone endogène et anaérobie pour l'élimination du phosphate, suivie d'une zone anoxique pour l'élimination du nitrate, puis d'une zone aérobie pour l'élimination de l'ammonium. La recirculation de la liqueur mixte, provenant de la partie aval de la zone aérobie, apporte le nitrate au niveau de la zone anoxique. Valenton II a ainsi un rendement épuratoire pour le nitrate plus important que Valenton I, soit 70 % contre 50 % respectivement.

Pour les deux systèmes, Valenton I et Valenton II, le carbone organique nécessaire aux bactéries hétérotrophes au niveau des bassins en anoxie est apporté par l'eau décantée.

3.5 La station « Marne Aval »

Noisy-Le-Grand, est de Paris, a une capacité nominale de $0,3 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{j}$ ($1 \times 10^5 \text{ éq. Hab.}$).

L'eau brute subit un pré-traitement, puis une décantation primaire. Une partie des eaux décantées passe ensuite dans un ouvrage d'activation biologique, composé de trois canaux. Le premier de ces canaux permet la réoxygénation des boues provenant du décanteur secondaire, dans le but de les réactiver, voire de les stabiliser. Les eaux épurées de la pollution carbonée rejoignent la deuxième partie des eaux décantées primaires, et passent en traitement tertiaire sur deux biofiltres à ruissellement (Sessil®) qui permettent la nitrification. Les eaux subissent ensuite un traitement physico-chimique (ajout de polymère et de chlorure ferrique) qui permet la déphosphatation.

Les quatre stations de l'agglomération parisienne en service actuellement présentent donc des stratégies de traitement de la pollution azotée, des débits et des rendements épuratoires différents (Tableau 1).

Le tableau 2 présente, pour chaque station, les flux d'ammonium et de nitrate entrants et rejetés actuellement.

Les flux d'ammonium entrants sont calculés à partir de moyennes annuelles des flux de l'azote Kjeldahl total (NTK) sur une période comprise entre 1993 et 2002 pour Seine Aval, 1999 à 2003 pour Seine Centre, 1994 à 2003 pour Marne Aval et de 1995 à 2002 pour Seine Amont. Le rapport $\text{NH}_4^+ / \text{NTK}$ utilisé pour les calculs est de 0,7 pour l'eau brute. Les valeurs exprimées en ammonium rejeté sont calculées suivant les rendements épuratoires par rapport au NTK de chaque station, excluant la station Seine Aval qui ne traite pas l'azote. Le rapport $\text{NH}_4^+ / \text{NTK}$ utilisé pour les rejets est de 0,8 pour la station Seine Aval; les NTK y sont éliminés par ammonification en NH_4^+ lors de la décantation primaire, ce qui explique l'augmentation des flux d'ammonium sortants par rapport aux flux entrants. Pour les trois autres stations,

nous avons utilisé un rapport $\text{NH}_4^+ / \text{NTK}$ égal à 0,7 pour l'eau de rejet.

Pour les stations avec nitrification, les valeurs en nitrate entrant sont égales au flux de NH_4^+ traité en station lors de cette nitrification. Les valeurs de nitrate rejeté sont calculées à partir des rendements épuratoires fixés pour l'azote global (NGL) pour chaque station.

On confirme que les traitements sur Seine Aval, station la plus importante d'Europe, n'éliminent effectivement pas la pollution azotée. Si les autres stations de l'agglomération parisienne présentent un abattement de la pollution ammoniacale important, la pollution en nitrate reste importante. Seule la station Seine Centre présente actuellement des rejets en azote faibles. Rappelons que la directive européenne 91/271, et notamment la délimitation future du bassin de la Seine en zone sensible, devrait prochainement conduire à l'élimination de la pollution azotée au niveau de l'agglomération parisienne.

Seine Aval va être soulagée de $3 \times 10^5 \text{ m}^3$ de son débit journalier au profit de la station Seine Amont (Valenton II) à la fin de l'année 2006. Un débit de $1 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{j}$ sera également acheminé à la nouvelle station des Grésillons dont la mise en route est prévue fin 2006 et dont le débit atteindra $3 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{j}$ en 2015 (Tableau 3). Enfin, l'usine Seine Aval traitera, sur cultures fixées en 2007, 80 % de l'ammonium en nitrification et 33 % (70 % en 2015) en dénitrification (Tableau 3). À l'horizon 2006-2008, la station Marne Aval augmentera son débit de $0,5 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{j}$ après une restructuration de l'usine lui permettant de traiter 70 % du NGL et 95 % des NTK. La construction d'une nouvelle usine, la Morée, prévue en 2012-2015, permettra de traiter $0,5 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{j}$ (Tableau 3). Tous les systèmes de traitement prévus se feront majoritairement en traitement tertiaire sur cultures fixées. À noter qu'à l'horizon 2012-2015, l'abattement du NGL sur la station Seine Aval se fera bien sur cultures fixées, mais soit en traitement secondaire avec une recirculation ou en traitement tertiaire avec ajout de méthanol. Seule la station Seine Amont traitera l'azote en traitement secondaire en boues activées, du méthanol pouvant toutefois y être injecté si nécessaire pour atteindre les objectifs fixés de rejets.

Un tel traitement de la pollution azotée va contribuer à une modification considérable des flux d'azote traités via une nitrification et une dénitrification. À partir des flux de NTK et des rendements épuratoires, nous avons, comme précédemment, calculé les flux d'azote dans les conditions futures de nitrification et dénitrification (Tableau 4).

On remarque que les tonnages journaliers de NH_4^+ nitrifié (N), relativement faibles actuellement (18,2 T N/j, Tableau 4)

Tableau 1. Débits, objectifs fixés pour les rendements épuratoires pour le NTK (azote Kjeldahl = azote organique + NH_4^+) et le NGL (azote global = NTK + NO_3^- + NO_2^-) et systèmes actuellement utilisés pour le traitement de l'azote sur les quatre stations d'épuration de l'agglomération parisienne. (* Traitement en temps sec; ** Actuellement la réception des ouvrages de Valenton II étant en cours, seule la tranche de Valenton II fonctionne avec un débit de $3 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{j}$).

Table 1. Flows, targets set for the purification efficiencies for total Kjeldahl nitrogen (TKN) and global nitrogen (NGL), and current processes of nitrogen treatment used at the WWTPs of the Paris conurbation. (*Dry weather treatment; **at present, Valenton II is being delivered, only the sector of Valenton II is operated with an inflow of $3 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{d}$).

	Débits ($10^5 \text{ m}^3/\text{j}$)	Rendement épuratoire		Systèmes utilisés
		NTK	NGL %	
Seine Aval	20,8	0	0	Aucun
Seine Centre *	2,4	95	70	Traitement tertiaire - Cultures fixées
Seine Amont**				
Valenton I	3	95	50	Traitement secondaire - Boues activées
Valenton II		95	70	
Marne Aval	0,3	75	0	Traitement tertiaire - Cultures Fixées

Tableau 2. Flux actuels de l'ammonium et du nitrate entrants et rejetés, pour les quatre stations d'épuration de l'agglomération parisienne. (*Seuls les rendements épuratoires de Valenton I sont pris en compte ici).

Table 2. Present inflows and outflows of ammonium and nitrate, for the four WWTPs of the Paris conurbation. (*The treatment efficiencies of Valenton I only are reported here).

	NH_4^+ entrant	NH_4^+ rejeté	NO_3^- entrant	NO_3^- rejeté
	T N/j			
Seine Aval	56,1	64,1	0	0
Seine Centre	6,7	0,4	6,3	2,4
Seine Amont*	11,5	0,6	10,9	7,6
Marne Aval	1,4	0,4	1,0	1,0
Total	75,7	65,5	18,2	11

Tableau 3. Débits des effluents ($10^5 \text{ m}^3/\text{j}$), rendements épuratoires (Rdt. E en %) pour le NGL et le NTK, total des débits traités et moyennes pondérées des Rdt. E (Moyp, par rapport aux débits) pour les stations d'épuration de l'agglomération parisienne (flux actuels et prévus aux horizons 2006-2008 et 2012-2015).

Table 3. Effluent flows ($10^5 \text{ m}^3/\text{j}$) and treatment efficiencies (Rdt. E in %) for total Kjeldahl nitrogen (TKN) and global nitrogen (NGL), total of the treated flows and weighted average of Rdt. E (Moyp, related to the flows) for WWTPs of the Paris conurbation (present and future effluent flows as scheduled for 2006-2008 and 2012-2015).

	Actuel			2006-2008			2012-2015		
	Débit $10^5 \text{ m}^3/\text{j}$	Rdt. E %		Débit $10^5 \text{ m}^3/\text{j}$	Rdt. E %		Débit $10^5 \text{ m}^3/\text{j}$	Rdt. E %	
		NTK	NGL		NTK	NGL		NTK	NGL
Seine Aval	20,8	0	0	17	80	33	15	85	70
Seine Centre	2,4	95	70	2,4	95	70	2,4	95	70
Seine Amont	3	95	50	6	95	70	6	95	70
Marne Aval	0,3	75	0	0,75	95	70	0,75	95	70
Les Grésillons	0	-	-	1	95	80	3	95	80
La Morée	0	-	-	0	-	-	0,5	95	70
TOTAL DÉBIT	26,5			27,2			27,7		
Moy. Rdt. E		20	43		86	66		90	72

Tableau 4. Flux d'azote nitrifiés (N = tonnage journalier de NH₄⁺ nitrifié) et dénitrifiés (D = tonnage journalier de NO₃⁻ dénitrifié) aux stations d'épuration de l'agglomération parisienne (flux actuels et prévus aux horizons 2006-2008 et 2012-2015). (* Traitement en temps sec).

Table 4. *Flows of nitrified nitrogen (N = daily nitrified NH₄⁺, in tons N per day) and denitrified nitrogen (D = daily denitrified NO₃⁻, in tons N per day) in the WWTPs of the Paris conurbation, present and future effluent flows as scheduled for 2006-2008 and 2012-2015. (* Dry weather treatment).*

Stations	Flux d'azote N (T N/j)					
	Actuel		2006-2008		2012-2015	
	N	D	N	D	N	D
Seine Aval	0,0	0,0	43,2	6,4	41,0	30,4
Seine Centre*	6,2	3,9	6,2	3,9	6,2	3,9
Seine Amont	10,9	3,5	21,8	13,6	21,8	13,6
Marne Aval	1,0	0,0	3,2	2,0	3,2	2,0
Les Grésillons	0,0	0,0	3,2	2,5	9,7	7,5
La Morée	0,0	0,0	0,0	0,0	1,7	1,1
Total des flux	18,2	7,4	77,8	28,4	83,7	58,4

vont être multipliés par un facteur 4 et 4,6 aux horizons 2006-2008 et 2012-2015 respectivement (Total des flux, N, Tableau 4). Les tonnages journaliers de NO₃⁻ dénitrifié (D), quasi nuls, voire inexistantes sur certaines stations (Tableau 4) vont augmenter d'un facteur 3,8 pour 2006-2008 à 7,9 à partir de 2012. Le traitement de l'azote sera pris en charge en majorité par les stations Seine Aval (41,0 T N/j en N et 30,4 T N/j en D, 2012-2015, Tableau 4) et Seine Amont (21,8 T N/j en N et 13,6 T N/j en D, 2012-2015, Tableau 4). La nitrification et la dénitrification, au niveau de l'agglomération parisienne, se feront donc en traitement secondaire en boues activées et tertiaire sur cultures fixées.

4. LES ÉMISSIONS DE N₂O.

Des études menées sur les émissions de N₂O issues des différents traitements biologiques de l'azote (traitements secondaires en boues activées et traitements tertiaires sur cultures fixées) appliqués sur les usines d'épuration de l'agglomération parisienne, ont montré qu'elles représentaient de 0,1 à 0,8 % de l'ammonium oxydé ou du nitrate réduit (TALLEC, 2005) (Tableau 5). Ces valeurs varient en fonction de l'oxygénation en traitement secondaire lors de la nitrification et en fonction des quantités de carbone organique exogène (méthanol) ajoutées en traitement tertiaire lors de la dénitrification.

Les émissions de N₂O, provenant des procédés sur cultures fixées en traitement tertiaire lors de la nitrification, se situent

dans le haut de la gamme des émissions de N₂O, provenant des procédés avec boues activées en traitement secondaire (Tableau 5). De même lors de la dénitrification, on observe des valeurs d'émission qui peuvent être plus importantes sur cultures fixées (jusqu'à 0,8 % du NO₃⁻ réduit, Tableau 5) qu'en boues activées (0,4 % du NO₃⁻ réduit, Tableau 5). Toutefois, une dénitrification en traitement tertiaire sur cultures fixées peut, lorsque les conditions sont optimales, émettre moins de N₂O qu'une dénitrification en boues activées lors d'un traitement secondaire.

En considérant les flux d'azote traités (ammonium et nitrate) via la nitrification et la dénitrification pour chaque STEP de l'agglomération parisienne (cf. Tableau 4), nous pouvons calculer (grâce aux valeurs du Tableau 5), le pourcentage de N₂O émis par chacun de ces flux, et donc les quantités actuelles et futures de N₂O émis au niveau de chaque station (Tableau 6).

C'est au niveau de la station Seine Aval que les émissions de N₂O devraient augmenter le plus d'ici 2006-2008 (Tableau 6), puisque le traitement de l'azote y sera mis en place et que les débits y demeureront les plus élevés, même en tenant compte de leur diminution prévue de 17 à 15 x 10⁵ m³/j (Tableau 3).

Aucun nouveau traitement ou changement de débit n'étant prévu sur la station Seine Centre, les émissions de N₂O ne devraient pas changer et resteraient à 29-56 kg N-N₂O/j, suivant les quantités de méthanol ajoutées lors de la dénitrification.

Tableau 5. Pourcentage de N_2O émis par rapport aux quantités d'azote traitées (NH_4^+ oxydé lors de la nitrification et NO_3^- réduit lors de la dénitrification), suivant le traitement biologique de l'azote utilisé en STEP. Ces données proviennent des études menées sur les différentes stations de l'agglomération parisienne, en boues activées (TALLEC, 2005) et sur cultures fixées (TALLEC, 2005). (*suivant l'oxygénation, **suivant les quantités ajoutées de méthanol).

Table 5. Percentage of N_2O emitted per unit of treated nitrogen load (NH_4^+ oxidized during nitrification and NO_3^- reduced during denitrification), depending on the biological treatment used in the WWTP. These values are derived from experimental studies on the WWTPs of the Paris conurbation, using activated sludge and fixed culture (TALLEC, 2005). (*Depending on oxygenation, **depending on the amount of methanol added).

Systèmes de traitement utilisés	% N_2O / N éliminé	
	Nitrification	Dénitrification
Boues activées en traitement secondaire	0,1-0,4 %*	0,4 %
Cultures fixées en traitement tertiaire	0,4 %	0,1-0,8 %**

Tableau 6. Flux de N_2O émis via la nitrification (N) et la dénitrification (D) et flux de N_2O total (N + D : Total) aux stations d'épuration de l'agglomération parisienne : flux actuels et prévus aux horizons 2006-2008 et 2012-2015.

Table 6. Flow of N_2O emitted during nitrification (N) and denitrification (D) and total (N + D: Total) from the WWTPs of the Paris conurbation: present and future effluents flows for the periods 2006-2008 and 2012-2015.

Stations	Flux N_2O (kg N/j)								
	Actuel			2006-2008			2012-2015		
	N	D	Total	N	D	Total	N	D	Total
Seine Aval	0	0	0	173	6-51	179-224	164	30-243	194-407
Seine Centre	25	4-31	29-56	25	04-31	29-56	25	4-31	29-56
Seine Amont	11-44	14	25-58	22-87	54	76-141	22-87	54	76-141
Marne Aval	4	0	4	13	2-16	15-29	13	2-16	15-29
Les Grésillons	-	-	-	13	3-20	16-23	39	8-60	47-99
La Morée	-	-	-	-	-	-	7	1-9	8-16
Total émis		58-118			315-473			369-748	

Lorsque la tranche Valenton I fonctionne seule, la station de Seine Amont présente des flux de N_2O entre 25-58 kg N- N_2O /j. La mise en route de la nouvelle tranche, Valenton II, traitant le même débit d'eau que Valenton I, mais avec un rendement épuratoire supérieur, augmenterait d'un peu plus du double les quantités de N_2O émises (Tableau 6, Seine Amont, 25-58 à 76-141 kg N- N_2O /j).

La station Marne Aval, qui traite actuellement le plus petit débit ($0,3 \times 10^5$ m³/j, Tableau 3), émet évidemment peu de N_2O , 4 kg N- N_2O /j (Tableau 6). Néanmoins, ses émissions pourraient s'accroître légèrement à l'horizon 2006-2008 (15-29 kg N- N_2O /j, Tableau 6) avec l'augmentation de son débit nominal (Tableau 3) et l'installation d'un traitement de l'azote plus poussé.

La future station des Grésillons devrait émettre du N_2O en quantité comparable à celle de Marne Aval à l'horizon 2006-2008 (16-23 kg N- N_2O /j, Tableau 6); à cette station des Grésillons, les émissions devraient être multipliées par un facteur d'environ 3 (47-99 kg N- N_2O /j) en 2012-2015, en même temps que le débit augmentera de 1 à 3 x 10⁵ m³/j (Tableau 6 et Tableau 3).

La Morée, au débit moindre ($0,5 \times 10^5$ m³/j, Tableau 3), devrait être à l'origine d'émissions de N_2O plus faibles (8-16 kg N- N_2O /j, Tableau 6).

Au total, les quantités de N_2O émises par les stations d'épuration de l'agglomération parisienne devraient augmenter au cours du temps avec la prise en charge de l'élimination de

l'azote, au niveau de Seine Aval notamment. Ainsi, les émissions actuelles de N₂O de 58-118 kg N-N₂O/j, augmenteraient à 315-473 kg N-N₂O/j à l'horizon 2006-2008 et atteindraient 369-748 kg N-N₂O/j à l'horizon 2012-2015 (Total émis, Tableau 6). De ces estimations, il faut évidemment déduire celles de la basse Seine (90-200 kg N-N₂O/j) qui seront largement déplacées vers les stations, ainsi que le montrent les simulations par le modèle du fonctionnement écologique du bassin de la Seine (GARNIER *et al.*, sous presse).

5. DISCUSSION

5.1 Les émissions de N₂O provenant des traitements tertiaires sur cultures fixées et des traitements secondaires en boues activées

Le pourcentage de N₂O émis par rapport aux flux d'azote traités est présenté ici avec une certaine variabilité (Tableau 5), prenant en compte les principaux facteurs pouvant influencer directement les émissions d'oxyde nitreux lors du traitement, tels que l'oxygène et le carbone organique (HANAKI *et al.*, 1990; ITOKAWA *et al.*, 2001; PATHAK, 1999).

Nos travaux expérimentaux (TALLEC, 2005; TALLEC *et al.*, 2006) ont montré que, d'une manière générale, les émissions de N₂O sur cultures fixées en traitement tertiaire se situaient dans la gamme haute de celles issues des traitements secondaires en boues activées. Nous avons, en outre, montré que les émissions de N₂O, provenant d'un traitement secondaire en boues activées, étaient directement influencées par l'oxygénation, lors de la nitrification ou de la dénitrification (TALLEC, 2005).

Lors de la nitrification, les émissions de N₂O les plus importantes sont observées lorsque l'oxygénation se situe autour de 1 mg O₂/L (CÉBRON *et al.*, 2005; TALLEC, 2005; TALLEC *et al.*, 2006; ZHENG *et al.*, 1994). Le pic d'émission, dû au processus de nitrification-dénitrifiante, est réalisé par les bactéries autotrophes, où l'oxydation du NH₄⁺ en NO₂⁻ est suivie par une réduction du NO₂⁻ en N₂O et N₂ (BOCK *et al.*, 1995; ITOKAWA *et al.*, 2001; JIANG et BAKKEN, 1999; KUAI et VERSTRAETE, 1998). Les bactéries ammonium-oxydantes sont capables de réaliser une nitrification dénitrifiante lorsque l'oxygène est limitant, le nitrite remplaçant l'oxygène comme accepteur d'électron final (SHRESTHA *et al.*, 2002; TALLEC, 2005).

Un même pic d'émissions de N₂O se produit lors de la dénitrification en traitement secondaire avec un bassin anoxique en tête de filière, à environ 0,3 mg O₂/L, surtout si le bassin n'est pas couvert, ce qui permet ainsi à basse température une oxygénation (TALLEC, 2005). Même si le N₂O n'est généralement qu'un intermédiaire de la dénitrification, des

organismes capables de produire du N₂O en phase finale de la dénitrification ont été caractérisés (BRETTAR et HÖFLE, 1993; GREENBERG et BECKER, 1977). D'autres travaux ont également montré qu'à de faibles concentrations en oxygène (toutefois pas mentionnées), le N₂O peut être le produit final de la dénitrification au lieu du N₂ (ROBERTSON *et al.*, 1995; BAUMANN *et al.*, 1996), la réductase de l'oxyde nitreux étant l'enzyme la plus sensible à l'oxygène (BONIN *et al.*, 1989).

Les émissions de N₂O provenant des systèmes de traitement tertiaire présentent une large variabilité lors de la dénitrification (Tableau 5), conditionnée par les ajouts de carbone organique. Ainsi, les émissions d'oxyde nitreux les plus faibles (0,1 % du nitrate dénitrifié) sont observées lorsque les quantités de méthanol ajoutées permettent au moins 100 % de la dénitrification, alors qu'entre 50 et 80 % de la dénitrification, ces émissions sont plus importantes (0,8 % du nitrate dénitrifié), (TALLEC, 2005).

5.2 Bilan des émissions de N₂O sur les stations d'épuration de l'agglomération parisienne

Des estimations de N₂O, à partir de données acquises *in situ* sur les quatre stations de l'agglomération parisienne, sur les différents systèmes de traitement de l'azote, mais aussi du carbone, conduisent à des valeurs de l'ordre de 200 kg N-N₂O/j pour l'ensemble du traitement actuel des eaux usées (LEGAIGNEUR, 2003). Ces estimations sont du même ordre de grandeur, à un facteur 2 près, que celles que nous calculons pour le seul traitement actuel (58-118 kg N-N₂O/j).

SÜMER *et al.* (1995) et THÖRN et SÖRENSEN (1996) trouvent respectivement une production d'oxyde nitreux en boues activées de l'ordre de 0,22 g N-N₂O/m³/j en dénitrification et de 0,02 g N-N₂O/m³/j en nitrification, soit un total de 0,24 g N-N₂O/m³/j pour l'ensemble du traitement de l'azote. Pour un total de 27,7 x 10⁵ m³/j d'eaux usées de l'agglomération parisienne, qui subiront un traitement de la pollution azotée, via la dénitrification et la nitrification en 2012-2015, nous pouvons, d'après ces auteurs, estimer des émissions de N₂O de l'ordre de 700 kg N/j (0,24 g N-N₂O/m³/j x 27,7 x 10⁵ m³/j). Ces valeurs correspondent également bien à celles estimées ici pour cette période, soit 369-748 kg N-N₂O/j. Nos estimations des émissions de N₂O, au niveau des stations d'épuration de la région parisienne, sont donc confortées par celles provenant de sources très différentes.

Toutes ces estimations sont basées sur des expériences effectuées sur les boues activées et cultures fixées des stations de l'agglomération parisienne, dans leur état propre, *in situ*. Si les émissions de N₂O peuvent changer d'une station à l'autre, ces variations peuvent en plus être modulées par les configurations utilisées par l'exploitant de la station, c.-à-d. celles relatives à

l'oxygénation et aux quantités ajoutées de méthanol (TALLEC, 2005). Ces émissions peuvent également varier en fonction des contraintes climatiques (temps de pluie, temps sec), hydrologiques, etc. Les valeurs fournies ici présentent ainsi une variabilité que l'exploitant peut mettre à profit pour réduire les émissions de N_2O , tout en optimisant le traitement des effluents.

5.3 Impact des émissions de N_2O provenant des stations d'épuration de l'agglomération parisienne, actuelles et futures sur le bassin de la Seine

De manière générale, les émissions de N_2O sur l'ensemble des stations de l'agglomération parisienne, ne dépassent actuellement pas plus de 120 kg N- N_2O /j. Il faut y ajouter les émissions de la basse Seine, liées à la nitrification et la dénitrification des effluents rejetés par l'agglomération parisienne, environ 120 kg N- N_2O /j pour l'aval de l'agglomération parisienne (90-200 kg N- N_2O /j; GARNIER et al., 2006), soit un total d'environ 240 kg N- N_2O /j.

Avec un meilleur traitement de l'azote en station d'épuration, les émissions de N_2O seraient au total à peine plus élevées en 2006-2008 compte tenu des incertitudes, soit 315-473 kg N- N_2O /j mais renforcées à 369-748 kg N- N_2O /j en 2012-2015, lors de la mise en place d'une dénitrification totale au niveau de la station Seine Aval.

Une augmentation des émissions de N_2O avec une nitrification et une dénitrification réalisées en station d'épuration, et non plus dans le milieu naturel, pourrait s'expliquer par des différences de communautés bactériennes. Il a été en effet montré que toutes les espèces bactériennes n'émettaient pas les mêmes quantités de N_2O (ANDERSON et al., 1993; CAVIGELLI et ROBERTSON, 2001). En outre, les travaux de CÉBRON et al. (2003) ont mis en évidence des différences entre les communautés bactériennes nitrifiantes en provenance de la station Seine Aval et celles au niveau de l'estuaire.

Si le traitement des eaux usées, via l'élimination de la pollution azotée, peut être considéré comme à l'origine d'une nouvelle source de pollution potentiellement importante pour l'environnement, le N_2O étant un gaz à effet de serre actif, il est important de resituer cette pollution atmosphérique à l'échelle régionale du bassin. En effet, les émissions par les STEP s seraient relativement faibles, et plus par rapport aux émissions provenant des sols agricoles du bassin amont (4 100-8 200 kg N- N_2O /j, GARNIER et al., 2006 sur la base des travaux de KHALIL et al., 2004, soit 1 à 10 %) qu'en regard de celles de l'ensemble du réseau hydrographique de la Seine (370-680 kg N- N_2O /j, GARNIER et al., 2006, de l'ordre 20 à 100 %). À noter que les estimations des émissions dans le bassin ne

prennent pas en compte celles des zones ripariennes, encore difficiles à quantifier.

Si le traitement de l'azote en station d'épuration est susceptible d'accroître les émissions de gaz à effet de serre tel que le N_2O , une réduction poussée des rejets d'azote dissous dans le milieu naturel par les stations d'épuration devrait toutefois permettre de limiter les problèmes d'eutrophisation côtière (cf. CUGIER et al., 2005). En absence d'une réduction à la source des intrants azotés (fertilisants agricoles), il apparaît donc nécessaire de contrôler au mieux les processus de nitrification et de dénitrification impliqués dans les traitements tertiaires en stations d'épuration.

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué dans le cadre des programmes du PIREN-Seine et de Seine-Aval. L'étude a été financée par le Syndicat Interdépartemental pour l'Assainissement de l'Agglomération Parisienne (SIAAP).

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ANDERSON IC., M. POTH, J. HOMSTEAD et D. BURDIGE (1993). A comparison of NO and N_2O production by the autotrophic nitrifier *Nitrosomonas europaea* and the heterotrophic nitrifier *Alcaligenes faecalis*. *Appl. Environ. Microbiol.*, 59, 3525-3533.
- BAUMANN B., M. SNOZZI, A.J.B. ZEHNDER et J.R. VAN DER MEER (1996). Dynamics of denitrification activity of *Paracoccus denitrificans* in continuous culture during aerobic-anaerobic changes. *J. Bacteriol.*, 178, 4367-4374.
- BILLEN G., J. GARNIER, A. FICHT et C. CUN (2001). Modeling the response of water quality in the Seine River Estuary to human activity in its watershed over the last 50 years. *Estuaries*, 24, 977-993.
- BLIEFERT C. et R. PERRAUD (2001). Les oxydes d'azote. Dans : Chimie de l'environnement, air, eau, sol, déchets. DE BOECK (Éditeurs), Paris, pp. 177-188.
- BOCK. E., E. SCHMIDT, R. STÜVEN et D. ZART (1995). Nitrogen loss caused by denitrifying *Nitrosomonas* cells using ammonium or hydrogen as electron donors and nitrite as electron acceptor. *Arch. Microbiol.*, 163, 16-20.
- BONIN P., M. GILEWIEZ et J.C. BERTRAND (1989). Effect of oxygen on each step of denitrification on *Pseudomonas nautica* strain 617. *Can. J. Microbiol.*, 35, 1061-1064.

- BRETTAR I. et M.G. HÖLFE (1993). Nitrous oxide producing heterotrophic bacteria from water column of the central Baltic: abundance and molecular identification. *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, 94, 253-265.
- BRION N., G. BILLEN, L. GUEZENNEC et A. FICHT (2000). Distribution of nitrifying activity in the Seine River (France) from Paris to the estuary. *Estuaries*, 23, 669-682.
- CAVIGELLI M.A. et G.P. ROBERTSON (2001). Role of denitrifier diversity in rates of nitrous oxide consumption in a terrestrial ecosystem. *Soil Biol. Biochem.*, 33, 297-310.
- CÉBRONA., T. BERTHE et J. GARNIER (2003). Nitrification and nitrifying bacteria in the lower Seine River and estuary. *Appl. Environ. Microbiol.*, 69, 7091-7100.
- CÉBRON A., J. GARNIER et G. BILLEN (2005). Nitrous oxide production and nitrification kinetics by bacteria communities naturally present in river water (the lower Seine, France). *Aquat. Microb. Ecol.*, 41, 25-38.
- CITEPA (CENTRE INTERPROFESSIONNEL TECHNIQUE D'ÉTUDES DE LA POLLUTION ATMOSPHERIQUE) (2003). Émissions dans l'air en France métropole. Comparaisons des émissions de la France et d'autres pays. www.citepa.org/France-autres/comparaisons.pdf, consulté le 15 février 2003.
- CUGIER PH., G. BILLEN, J.F. GUILLAUD, J. GARNIER et A. MÉNESGUEN (2005). Modeling the eutrophication of the Seine Bight (France) under historical, present and future riverine nutrient loading. *J. Hydrol.*, 304, 381-396.
- GARNIER J., B. LEPORCQ, N. SANCHEZ et X. PHILIPPON (1999). Biogeochemical mass balances (C, N, P, Si) in the three large reservoirs of the seine basin (France). *Biogeochem.*, 47, 119-146.
- GARNIER J., G. BILLEN, N. SANCHEZ et B. LEPORCQ (2000). Ecological functioning of the Marne reservoir (upper Seine basin, France). *Regul. Rivers Res. Manage.*, 16, 51-71.
- GARNIER J., P. SERVAIS, G. BILLEN, M. AKOPIAN et N. BRION (2001). Lower Seine river and estuary (France): carbon and oxygen budgets during low flow. *Estuaries*, 24, 964-976.
- GARNIER J., A. CÉBRON, G. TALLEC, G. BILLEN, M. SEBILO et A. MARTINEZ (2006). Nitrous oxide emission in the Seine River estuary (France): comparison with upstream sector of the Seine basin. *Biogeochem.*, 77, 305-326.
- GARNIER J., A. CÉBRON et G. BILLEN (sous presse). Modeling nitrogen transformations in the lower Seine river and estuary (France): impact of wastewater release on oxygenation and N₂O emission. *Hydrobiol.*
- GOREAU T.J., W. KAPLAN, S. WOFSY, M. McELROY, F. VALOIS et S. WATSON (1980). Production of NO₂⁻ and N₂O by nitrifying bacteria at reduced concentrations of oxygen. *Appl. Environ. Microbiol.*, 40, 526-532.
- GREENBERG E.P. et G.E. BECKER (1977). Nitrous oxide as end product of denitrification by strains of fluorescent *Pseudomonas*. *Can. J. Microbiol.*, 23, 903-907.
- HANAKI K., C. WANTAWIN et S. OHGAKI (1990). Nitrification at low levels of dissolved oxygen with and without organic loading in a suspended-growth reactor. *Water Res.*, 24, 297-302.
- HANAKI K., Z. HONG et T. MATSUO (1992). Production of nitrous oxide gas during denitrification of wastewater. *Water Sci. Technol.*, 26, 1027-1036.
- IPCC (INTERGOVERNMENTAL PANEL ON CLIMATE CHANGE)(2000). Special report on emissions scenarios; Univ. Press, Cambridge, 598 p.
- ITOKAWA H., K. HANAKI et T. MATSUO (2001). Nitrous oxide production in high-loading biological nitrogen removal process under low COD/N ratio condition. *Water Res.*, 35, 657-664.
- JIANG Q-Q. et L.R. BAKKEN (1999). Nitrous oxide production and methane oxidation by different ammonia-oxidizing bacteria. *Appl. Environ. Microbiol.*, 65, 2679-2684.
- KHALIL K., B. MARY et P. RENAULT (2004). Nitrous oxide production by nitrification and denitrification in soil aggregates as affected by O₂ concentration. *Soil Biol. Biochem.*, 36, 687-699.
- KIM J.S., S.J. KIM et B.H. LEE (2004). Effect of *Alcaligenes faecalis* on nitrous oxide emission and Nitrogen removal in three phase fluidized bed process. *J. Environ. Sci. Health*, 39, 1791-1804.
- KNOWLES R. (1982). Denitrification. *Microbiol. Rev.*, 46, 43-70.
- KUAI L. et W. VERSTRAETE (1998). Ammonium removal by the oxygen-limited autotrophic nitrification-denitrification system. *Appl. Environ. Microbiol.*, 64, 4500-4506.

- LEGAIGNEUR V. (2003). Émissions atmosphériques provenant des stations d'épuration du SIAAP, en particulier les oxydes d'azote et le protoxyde d'azote. Diplôme de recherche technologique. Univ. Paris 7, 178 p.
- PATHAK H. (1999). Emissions of nitrous oxide from soil. *Curr. Sci.*, 77, 359-369.
- POTH M. et D. FOCHT (1985). ^{15}N kinetic analysis of N_2O production by *Nitrosomonas europaea*: an examination of nitrifier denitrification. *Appl. Environ. Microbiol.*, 49, 1134-1141.
- ROBERTSON L.A., T. DALSGAAR, N.P. REVSBECH et J.G. KUENEN (1995). Confirmation of aerobic denitrification in batch cultures, using gas chromatography and ^{15}N mass spectrometry. *FEMS Microbiol. Ecol.*, 18, 113-120.
- SHRESTHA N., S. HADANO, T. KAMACHI et I. OKURA (2002). Dinitrogen production from ammoia by *Nitrosomonas europaea*. *Appl. Catal. A Gen.*, 237, 33-39.
- SÜMER L.Y., A. WEISKE, G. BENCKISER et J.C.G. OTTOW (1995). Influence of environmental conditions on the amount of N_2O released from activated sludge in a domestic wastewater treatment plant. *Experientia*, 51, 419-422.
- TALLEC G. (2005). Émissions d'oxyde nitreux lors du traitement de l'azote en station d'épuration. Thèse de doctorat, ENPC, ED «Ville et Environnement», Paris, 253 p.
- TALLEC G., J. GARNIER, G. BILLEN et M. GOUSAILLES (2006). Nitrous oxide emissions from secondary activated sludge in nitrifying conditions of urban wastewater treatment plants: effect of oxygenation level. *Water Res.*, 40, 2972-2980.
- THÖRN M. et F. SÖRENSEN (1996). Variation of nitrous oxide formation in the denitrification basin in a wastewater treatment plant with nitrogen removal. *Water Res.*, 30, 1543-1547.
- TUSSEAU-VUILLEMIN M.H., G. LE REVEILLÉ, J.M. MOUCHEL, J. DISPAN, M. DELBEC et P. SERVAIS (2000). Biodégradabilité de la matière organique en sortie de la station d'épuration, Paris, France. Rapport d'activité Piren-Seine, 1999, 4-22.
- ZHENG H., K. HANAKI et T. MATSUO (1994). Production of nitrous oxide gas during nitrification of wastewater. *Water Sci. Technol.*, 30, 134-141.