

Emissions de protoxyde d'azote par les procédés intensifs et extensifs de traitement des eaux usées

A. Filali, J. Bollon, Y. Fayolle, S Gillot

► **To cite this version:**

A. Filali, J. Bollon, Y. Fayolle, S Gillot. Emissions de protoxyde d'azote par les procédés intensifs et extensifs de traitement des eaux usées. Journées Information Eaux JIE, Oct 2016, Poitiers, France. JIE, 6 p., 2016. <hal-01467423>

HAL Id: hal-01467423

<https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01467423>

Submitted on 14 Feb 2017

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

EMISSIONS DE PROTOXYDE D'AZOTE PAR LES PROCÉDES INTENSIFS ET EXTENSIFS DE TRAITEMENT DES EAUX USEES

Ahlem FILALI¹, Julien BOLLON¹, Yannick FAYOLLE¹, Sylvie GILLOT²

¹ Irstea, UR HBAN, 1 Rue Pierre-Gilles de Gennes, CS 10030, F-92761 Antony Cedex, France

² Irstea, UR MALY, 5 rue de la Doua CS70077, 69626 Villeurbanne Cedex, France

I. INTRODUCTION

Le protoxyde d'azote (N₂O) est un puissant gaz à effet de serre (GES) dont le potentiel de réchauffement est équivalent à 300 fois celui du dioxyde de carbone (GIEC¹, 2007). Il joue également un rôle important dans la destruction de la couche d'ozone (Ravishankara *et al.* 2009). Principalement d'origine naturelle (sol et hydrosphère), il est également émis par les activités anthropiques, en particulier l'agriculture, l'industrie, l'énergie, le traitement des déchets ainsi que le traitement des eaux usées, dans lequel il est émis pendant les processus de nitrification et de dénitrification de l'azote (Kampschreur *et al.* 2009).

La contribution du secteur de traitement des eaux résiduaires aux émissions anthropiques mondiales a été estimée à une valeur de 3.5% (GIEC, 2014). Bien que ces émissions paraissent négligeables comparées à l'ensemble des quantités émises, le contexte réglementaire et sociétal actuel de lutte contre les émissions de GES oblige à considérer et limiter l'ensemble de leurs flux, quelles qu'en soient les sources. En France, l'article 75 de la loi Grenelle II du 12 Juillet 2010 et le décret d'application n° 2011-829 du 11 juillet 2011, rendent obligatoires pour les collectivités territoriales de plus de 50 000 habitants, le rendu de bilans d'émission des GES et la mise en place de démarches visant à leur réduction. Lors de l'élaboration de ces bilans, l'estimation des émissions de GES repose principalement sur l'utilisation de facteurs d'émission fixes connus.

Actuellement, le facteur d'émission directe (3,2 g N₂O/EH/an équivalent à 0,037% de l'azote entrant), utilisé pour quantifier les émissions directes (c.-à-d. gazeuses) du secteur du traitement biologique des eaux résiduaires urbaines et recommandé par le GIEC, provient de données acquises sur une seule station d'épuration à boues activées d'Amérique du Nord traitant le carbone (Czepiel *et al.* 1995). Le N₂O dissous en sortie de station est négligé et il est considéré qu'une fraction de l'azote total contenu dans les eaux traitées sera émise sous forme de N₂O lors de sa transformation dans les rivières et estuaires (émission indirecte correspondant à 0,5% de l'azote total sortant). Récemment, le GIEC a adopté un facteur d'émission directe pour les filtres plantés de roseaux à écoulement vertical plus faible que celui employé pour les procédés intensifs (FE = 0,023% de l'azote entrant).

Les données de la littérature portant sur les émissions *in situ* de N₂O sont dispersées, indiquant des taux compris entre 0,001 – 25% de la charge d'azote entrante pour les procédés intensifs (Law *et al.* 2012) et 0,006 – 1,83% de la charge d'azote entrante pour les procédés extensifs (Mander *et al.* 2014). La dispersion de ces résultats est en partie liée à la diversité des méthodes de prélèvement et d'analyse des gaz (prélèvement ponctuel, suivi en ligne, durée de suivi,...). D'autre part, les

¹ Le Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du Climat (GIEC) est un organisme intergouvernemental qui a pour but d'évaluer l'information scientifique, technique et socio-économique pour comprendre le risque du changement climatique d'origine humaine. Il produit principalement des rapports d'évaluation, et des directives sur les méthodes et les pratiques en matière d'inventaire des émissions nationales de gaz à effet de serre.

caractéristiques des effluents, la nature des procédés et les paramètres de dimensionnement et de gestion technique des stations d'épuration qui engendrent de multiples conditions de traitement ont également un impact sur le taux d'émission mesuré.

Si les données d'émission de N₂O par les procédés conventionnels fonctionnant selon le principe des boues activées se sont multipliées ces dernières années, celles des procédés à biomasse fixée et des procédés extensifs sont encore très rares. Dans le cadre de projets collaboratifs avec les professionnels du domaine, d'une convention avec l'ONEMA et du programme de recherche Mocopée (www.mocopee.com), Irstea a réalisé des campagnes de mesure des émissions de N₂O de trois procédés de traitement majoritairement employés en France : (i) les boues activées conventionnelles, (ii) les biofiltres et (iii) les filtres plantés de roseaux à écoulement vertical. Des protocoles d'échantillonnage et de mesure spécifiques à chaque procédé ont été développés. Ces derniers prennent en compte la variabilité spatiale et temporelle des émissions. Parallèlement à ces mesures, une étude approfondie des procédés a été réalisée afin de préciser le lien entre les conditions opératoires et les émissions observées.

Les résultats de ces études ont fait l'objet de publications scientifiques (Bollon *et al.*, 2016a,b) et de différents rapports techniques détaillés (Fiches ONEMA). Le présent document a pour objectif de présenter les dispositifs de quantification des émissions de N₂O développés ainsi que les principales conclusions dégagées par ces études.

II. DISPOSITIFS DE COLLECTE ET DE MESURE DES EMISSIONS DE N₂O

II.1. Méthodes de mesure du protoxyde d'azote en phase gazeuse

Les émissions gazeuses de N₂O ont été quantifiées sur les procédés extensifs (filtres plantés de roseaux) en utilisant la technique de la boîte d'accumulation. Cette technique est particulièrement adaptée aux systèmes non aérés où les flux gazeux sont par définition relativement faibles.

Une chambre fermée, de dimension variable et dont la surface extérieure est peinte en blanc ou recouverte d'aluminium pour éviter l'augmentation de température radiative à l'intérieur de la chambre, est disposée sur une surface connue du procédé étudié. Afin de s'assurer de l'étanchéité de la chambre (ou boîte), celle-ci est enfoncée de 4 cm dans le sol. Des échantillons sont prélevés régulièrement pour l'analyse du gaz. Le flux de N₂O est alors calculé suivant l'équation suivante :

$$F = \frac{V}{A} \frac{dC}{dt} \quad \text{où } F \text{ représente le flux de N}_2\text{O (mgN}_2\text{O.m}^{-2}\text{.j}^{-1}\text{), } V \text{ le volume gazeux de la chambre (m}^3\text{), } A \text{ la surface recouverte par la chambre (m}^2\text{) et } dC/dt \text{ le gradient de concentration gazeuse (mgN}_2\text{O.m}^{-3}\text{.j}^{-1}\text{).}$$

Afin d'évaluer la variabilité spatiale et temporelle des émissions de N₂O, des boîtes de prélèvement manuel et de prélèvement automatique ont été employées (Figure 1). Les boîtes de prélèvement automatique (raccordées en circuit fermé à un analyseur de gaz en ligne infra-rouge) permettent une haute résolution de l'échantillonnage au cours du temps. Les boîtes de prélèvement manuel ont quant à elles été employées en complément des boîtes automatiques afin d'évaluer la variabilité spatiale des émissions (avec 2 ou 3 prélèvements / jour / boîte). L'analyse du gaz lors du prélèvement manuel s'effectuait par chromatographie gazeuse.

Dans les procédés intensifs d'épuration tel que le procédé à boues activées, le traitement de l'azote est réalisé par l'alternance de conditions aérobies (insufflation d'air), nécessaires à la nitrification, et anoxies (absence d'air et faible débit gazeux), nécessaires à la dénitrification. Le protoxyde d'azote pouvant être formé et émis sous forme gazeuse lors de ces deux processus, il est nécessaire de disposer de méthodes de mesure adaptées aux deux conditions de traitement.

Les gaz issus du bassin ont été recueillis par des collecteurs flottants en bois et polystyrène fixés au bassin par des cordes (Figure 2). Lors des phases aérées, le gaz issu du collecteur est envoyé pour une mesure en ligne de son débit et une fraction de celui-ci est envoyée à l'analyseur de gaz afin de déterminer sa teneur en N_2O . Lors des phases non aérées (lorsque le débit de gaz descend en dessous d'une valeur consigne), le système de collecte et de mesure de gaz bascule en circuit fermé, équivalent à la « boîte d'accumulation » utilisée pour les procédés extensifs. Le flux de N_2O est alors estimé de la même manière que pour ces derniers.



Figure 1 : Boîtes d'accumulation du gaz à prélèvement manuel (gauche) et automatique (droit) positionnées sur un filtre planté de roseaux



Figure 2 : Collecteur de gaz positionné sur un bassin aéré

II.2. Méthodes de mesure du protoxyde d'azote en phase liquide

La concentration en protoxyde d'azote dissous dans l'effluent de sortie des stations a été mesurée grâce à des microsondes de type Clark dont un schéma de principe est présenté sur la Figure 3. Une différence de potentiel, de 700 mV est imposée entre une anode (Argent) et une cathode de Platine via un électrolyte. Sous son effet se produisent des réactions d'oxydo-réduction. Le courant induit par ces réactions d'oxydo-réduction, proportionnel à la concentration en oxydant que l'on souhaite mesurer, est amplifié et enregistré sur un ordinateur. Dans le cas de la mesure de N_2O , la technologie mise en œuvre fait intervenir une solution additionnelle d'ascorbate qui permet la réduction de l'oxygène à la surface d'une cathode de protection. Ainsi, l'électrode est insensible à l'oxygène dissout. Cette technologie permet des mesures en continu dans une gamme de concentration de 0 à $30 \text{ mgN}_2\text{O L}^{-1}$ avec une limite de détection de $0,1 \text{ } \mu\text{mol N}_2\text{O L}^{-1}$.

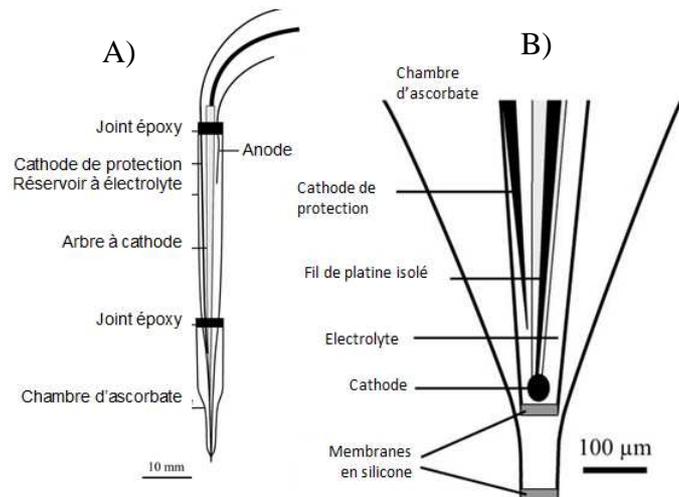


Figure 3 : Microélectrode de type Clark pour la mesure de protoxyde d'azote dissous : A) schéma global, B) détail de la pointe

III. Synthèse des résultats et conclusions majeurs

Le tableau 1 présente les caractéristiques principales des sites étudiés et les facteurs d'émission de N_2O mesurés. Les résultats obtenus mettent en évidence la forte disparité des émissions de N_2O d'un procédé à l'autre (de 0 à 5 % de $N-N_2O/N$ entrant) mais également la variabilité temporelle de ces émissions pour un même procédé en lien avec les paramètres opératoires observés (cas des biofiltres pour lequel les émissions ont été mesurées à deux périodes de l'année). De plus, les facteurs d'émission de N_2O mesurés sont largement supérieurs à ceux préconisés par le GIEC (rapport de 5 à 60) et ce pour toutes les stations à l'exception de la station (A) pour laquelle un facteur d'émission environ 10 fois plus faible a été mesuré. En effet, dans cette station, une consommation du N_2O , contenu dans l'air atmosphérique insufflé, a été observée à certains moments de la journée.

L'hétérogénéité des résultats obtenus démontre (i) la nécessité de définir à minima un facteur d'émission par procédé, en tenant compte des spécificités de chacun et (ii) le manque de pertinence de l'approche actuelle du GIEC basée sur l'utilisation de facteurs d'émission fixes et communs à l'ensemble des procédés, ne tenant pas compte de l'influence des conditions de gestion des procédés sur les émissions et pouvant conduire à une forte sous-estimation du poids de ces émissions sur l'impact environnemental des stations d'épuration.

Des campagnes de mesure complémentaires sur d'autres stations permettraient de consolider ces résultats, de quantifier la variabilité sur un échantillon plus large et plus représentatif et permettre ainsi leur extrapolation. De plus, les données collectées lors de ces différentes campagnes de mesure devraient contribuer, au long terme, à développer des modèles mathématiques (particulièrement pour les boues activées et les biofiltres) permettant de décrire en dynamique le fonctionnement des procédés et les émissions associées de N_2O . Ces outils permettront une meilleure estimation des émissions et de leur variabilité en fonction des conditions de gestion des procédés et des conditions climatiques. Ces outils constituent donc une perspective essentielle aussi bien pour affiner encore l'estimation des facteurs d'émission de N_2O que pour l'identification de solutions de réduction de ces émissions afin de réduire l'impact environnemental des stations d'épuration.

Tableau 1 : Caractéristiques principales des sites étudiés et facteurs d'émission de N₂O

Site	A	B	C				D	E
Capacité nominale (EH)	230 000	22 000	5 000 000				270	800
Type de procédé	Boues activées	Boues activées	Biofiltres				Filtres plantés de roseaux à écoulement vertical	Filtres plantés de roseaux à écoulement vertical
Spécifications	Aération prolongée C _m = 0,044 kgDBO ₅ /kgMVS/j	Aération prolongée C _m = 0,085 kgDBO ₅ /kgMVS/j	Biofiltres nitrifiants (nitrification tertiaire) C _v = 1,2 - 1,5 kgN/m ³ de matériaux/j		Biofiltres post dénitrifiants C _v = 2,3 - 2,8 kgN/m ³ de matériaux/j		Colmatage du filtre induisant une perte de la nitrification	Filtre non-colmaté présentant un fonctionnement classique
Période de mesure	Hiver	Eté	Eté	Hiver	Eté	Hiver	Eté	Printemps
Aération Forcée	Oui	Oui	Oui	Oui	Non	Non	Non	Non
Abattement de l'azote (%)	NH ₄ : 98 NGL : 93	NH ₄ : 99 NGL : 83	NH ₄ : 83	NH ₄ : 82	NO ₃ : 99	NO ₃ : 93	NH ₄ : 3,4 NGL : 25	NH ₄ : 94 NGL : 34
Facteur d'émission de N₂O (%) (moyenne ± écart type)	0,004 ^{1*} (écart-type non applicable mesure sur une période courte)	0,19 ± 0,06 ^{1*}	2,26 ± 0,46 ^{2**}	4,86 ± 0,54 ^{2**}	1,28 ± 2,0 ^{3**}	0,22 ± 0,31 ^{3**}	0,46 ^{1*} (écart-type non applicable mesure sur un seul cycle)	0,64 ^{1*} 0,79 ^{1**} (écart-type non applicable mesure sur un seul cycle)
Publication associée	(Filali <i>et al.</i> 2013)	-	(Bollon <i>et al.</i> 2016 a)		(Bollon <i>et al.</i> 2016 b)		-	(Bollon <i>et al.</i> 2016)

¹kgN-N₂O/kg N_{entrant}

²kgN-N₂O/kg N-NH₄ dégradé,

³kgN-N₂O/kg N-NO₃ dégradé,

* Facteur estimé à partir des flux de N₂O gazeux uniquement,

** Facteur estimé à partir des flux de N₂O gazeux et dissous.

IV. Références

- BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GUERIN S., ROCHER V., GILLOT S. (2016a). Full-scale post denitrifying biofilters: sinks of dissolved N₂O? *Science of The Total Environment*, 563–564, 320-8.
- BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GUERIN S., ROCHER V., GILLOT S. (2016b). N₂O emissions from full-scale nitrifying biofilters. *Water Research*, 102, 41-51.
- BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., MOLLE P., MANDER Ü., GILLOT S. Spatial and temporal variations of N₂O emission in a vertical flow constructed wetland, IWA Specialist Conference on Wetland Systems for Water Pollution Control ICWS, Gdańsk du 4 au 9 Septembre 2016.
- BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GILLOT S. (2013). Emissions de N₂O dans les procédés de traitement des ERUs. Etat des connaissances (Fiche ONEMA). 27 pages. Disponible sur : http://www.onema.fr/IMG/pdf/2013_048.pdf
- BOLLON J., FILALI A., FAYOLLE Y., GILLOT S. (2013). Protocoles de mesure des émissions de N₂O dans les procédés de traitement des ERUs. Etat des connaissances (Fiche ONEMA). 19 pages. Disponible sur : http://www.onema.fr/IMG/pdf/2013_045.pdf
- CZEPIEL P., CRILL P. AND HARRISS R. (1995). Nitrous-Oxide Emissions from Municipal Waste-Water Treatment. *Environmental Science & Technology* 29(9), 2352-6.
- FILALI A., FAYOLLE Y., PEU P., PHILIPPE L., NAULEAU F., GILLOT S. Régulation de l'aération en boues activées : impact sur les performances épuratoires, les gains énergétiques et les émissions de N₂O, 14ème Congrès de la Société Française de Génie des Procédés SFGP, Lyon du 8 au 10 octobre 2013.
- GIEC (2007). Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. Solomon, S. et al. (Eds.), *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, 114–143.
- GIEC (2014) Industry. In: *Climate Change 2014: Mitigation of Climate Change. Contribution of Working Group III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA. [Edenhofer, O., R. Pichs-Madruga, Y. Sokona, E. Farahani, S. Kadner, K. Seyboth, A. Adler, I. Baum, S. Brunner, P. Eickemeier, B. Kriemann, J. Savolainen, S. Schlömer, C. von Stechow, T. Zwickel and J.C. Minx (eds.)] (ed).
- KAMPSCHREUR, M. J., TEMMINK, H., KLEEREBEZEM, R., JETTEN, M. S. M. & VAN LOOSDRECHT, M. C. M. 2009. Nitrous oxide emission during wastewater treatment. *Water Research*, 43, 4093-4103.
- LAW, Y., YE, L., PAN, Y. AND YUAN, Z. (2012). Nitrous oxide emissions from wastewater treatment processes. *Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences* 367(1593), 1265-1277.
- MANDER, U., DOTRO, G., EBIE, Y., TOWPRAYOON, S., CHIEMCHAISRI, C., NOGUEIRA, S.F., JAMSRANJAV, B., KASAK, K., TRUU, J., TOURNEBIZE, J. AND MITSCH, W.J. (2014). Greenhouse gas emission in constructed wetlands for wastewater treatment: A review. *Ecological Engineering* 66, 19-35.
- RAVISHANKARA A. R., DANIEL J. S. AND PORTMANN R. W. (2009). Nitrous Oxide (N₂O): The Dominant Ozone-Depleting Substance Emitted in the 21st Century. *Science* 326(5949), 123-5.