

# Le pouvoir méthanogène des boues urbaines

## Cartographie des boues de STEP et réduction du temps de mesure par un couplage « expérimentation en réacteur/modélisation »

Sabrina Guérin-Rechdaoui, Sam Azimi,  
Jean Bernier et Vincent Rocher, Syndicat  
Interdépartemental pour l'Assainissement  
de l'Agglomération Parisienne (SIAAP).

Stéphane Mottelet et André Pauss,  
Université de Technologie de Compiègne (UTC).  
Thierry Ribeiro, UniLaSalle

Le programme MOCOPEE (Modélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux, [www.mocopee.com](http://www.mocopee.com)) vise à générer la connaissance et développer les outils métrologiques et mathématiques nécessaires à la maîtrise et l'optimisation des stations d'épuration. Au regard de la place importante occupée par la digestion anaérobie dans les stations d'épuration de l'agglomération parisienne, de nombreuses actions R et D traitant de la question de l'optimisation du procédé de digestion ont été engagées dans ce programme. Ces actions visent notamment à valider à l'échelle industrielle des méthodes d'estimation du potentiel méthane des boues urbaines et à construire des modèles de prédiction du fonctionnement des systèmes de digestion anaérobie. Cet article technique, consacré à l'évaluation du BMP des boues urbaines, a permis de dresser un état des lieux des niveaux de potentiel méthanogène des boues urbaines. Les valeurs moyennes sont comprises entre 300 et 500 Nml CH<sub>4</sub>/g MV (160 et 370 Nml CH<sub>4</sub>/g MS) pour tous les types de boues (primaires, biologiques, mixtes, etc.). Ce travail a également confirmé que la mesure des paramètres classiques (DCO, MV, MS) ne permettait pas de prédire de manière précise le potentiel méthanogène; la mesure du BMP en réacteur restant le seul moyen d'avoir une information précise. Une méthode de réduction du temps nécessaire à l'estimation du potentiel méthanogène par un couplage entre expérimentation en réacteurs (système AMPTS II<sup>®</sup>) et modélisation mathématique (modèle ADM simplifié) a donc été proposée. Ce couplage permet d'obtenir une valeur de BMP équivalente à celle obtenue avec une mesure en réacteur classique (erreur relative de 4 % en moyenne) en réduisant le temps d'expérimentation de 20 à 4 jours. Cette réduction du temps de mesure va probablement permettre de redonner un caractère opérationnel fort au BMP, trop peu utilisé à ce jour sur les sites de traitement.

### ABSTRACT

**The biological methane potential of urban sludge. Mapping of different WWTP sludge potentials and proposal of a method coupling reactor experiments and modeling to decrease the measurement time**

The MOCOPEE (Modeling, control and optimization of wastewater treatment processes, [www.mocopee.com](http://www.mocopee.com)) research program aims to improve our understanding of wastewater treatment processes and to develop measurement and mathematical tools, in order to lead to better control and optimization of wastewater treatment plants. Anaerobic digestion is

a relatively common process used by several WWTPs of the greater Parisian area. As such, several research activities concerning the optimization of the anaerobic digestion process have been realized within MOCOPEE. These activities range from benchmarking different biological methane potential (BMP) measurement tools to calibrating anaerobic digestion models, in both cases applied to full-scale digester processes. This paper concerns the evaluation of the BMP values of urban WWTP sludges. Measurements made on several different sludge types from Parisian plants were made. Average measured values were between 300 and 500 Nml CH<sub>4</sub>/g VM (160 and 370 Nml CH<sub>4</sub>/g DM) for all tested sludge types (primary, biologic, mixed, etc.). This work has also confirmed that commonly measured parameters (COD,

VM, DM) cannot be used to accurately predict sludge methane potential. BMP measurement thus remains the only mean to obtain an accurate value. A method to decrease the BMP measurement time, coupling reactor experiments (AMPTS II<sup>®</sup> system) and a simplified ADM model, was also proposed. This method provides a BMP estimation very close (4 % error on average) to results obtained using only the classical reactor method, while also decreasing the measurement time to 4 days (from 20 days using classical methods). This decrease in measurement time will help to increase the usefulness of on-site BMP measurements on a day-to-day basis, as it is currently rarely used for WWTP sludge digesters monitoring.

Mots-clés: Pouvoir méthanogène, BMP, boues urbaines, AMPTS, prédiction mathématique, modélisation.

La loi transition énergétique pour la croissance verte (2015-992 du 17 août 2015) a dessiné, pour le milieu du siècle, les grands objectifs du nouveau modèle énergétique français avec pour ambition de réduire la consommation énergétique de 50 % à l'horizon 2050. Pour atteindre cet objectif ambitieux, il est notamment question de recourir aux énergies renouvelables et de récupération (EnRR). La part des EnRR devra représenter 23 % de la consommation d'énergie brute dès 2020 et devra atteindre 32 % en 2030. À cette date, les énergies renouvelables devront représenter 40 % de la production d'électricité, 38 % de la consommation finale de chaleur, 15 % de la consommation finale de carburant et 10 % de la consommation de gaz. Pour concourir à la réalisation de ces objectifs, l'ensemble des acteurs du territoire doivent associer leurs efforts pour développer des territoires à énergie positive, et, de ce fait, s'engager dans une démarche permettant d'aller vers un équilibre entre la consommation et la production d'énergie à l'échelle locale.

Les industriels en charge du traitement des eaux résiduaires urbaines (ERU) ont ainsi mis au cœur de leurs préoccupations la problématique de la dépense énergétique (Azimi et Rocher 2016, Azimi et Rocher 2017, Friedrich *et al.* 2009, Chudoba *et al.* 2011, Müller *et al.* 2006). Il s'agit d'une part de trouver des voies de réduction des consommations énergétiques et, d'autre part, d'optimiser la production et l'utilisation des EnRR. La valorisation énergétique des boues via le procédé de digestion anaérobie occupe une place privilégiée. À l'échelle de l'agglomération parisienne (zone SIAAP, bassin-versant 2 000 km<sup>2</sup>, 8,5 millions d'habitants), la filière de digestion anaérobie admet d'ailleurs plus de 70 % des boues produites, permettant chaque année la production de plus de 80 millions de mètres cubes de biogaz. Il est à noter que la situation de l'agglomération parisienne se distingue du reste du territoire. À l'échelle nationale, sur les 19 500 stations d'épuration présentes en métropole (production annuelle de 1 036 855 tonnes de boue [matière sèche]), seules 85 ont une unité de digestion anaérobie sur site. La production de biogaz via la digestion de boue d'épuration ne représente d'ailleurs que 26 % de la production totale de biogaz

issue de la digestion de tous les gisements (ADEME 2015, Jimenez *et al.* 2015).

Au regard de la place importante occupée par la digestion anaérobie en agglomération parisienne, de nombreux efforts sont consentis pour optimiser le fonctionnement de cette filière. Premièrement, il s'agit de mieux gérer le biogaz produit en termes de stockage et d'utilisation. En effet, la taille des stockages de biogaz étant souvent restreinte pour en diminuer les risques et les problèmes d'emprise au sol, il est souvent nécessaire de recourir à du « torchage » afin de gérer l'excédent de production et ne pas libérer de CH<sub>4</sub> dans l'atmosphère. Pour limiter les volumes de biogaz brûlés, les voies de valorisation doivent donc être multipliées : production de chaleur, production d'électricité, cogénération (production chaleur et électricité) ou production de biométhane injectable dans le réseau de gaz naturel. Deuxièmement, il s'agit d'améliorer les rendements de la digestion anaérobie et ainsi d'augmenter la quantité de biogaz produit. Ce second volet de l'optimisation nécessite d'améliorer nos connaissances sur les matrices complexes qui sont introduites dans les digesteurs et de développer des outils d'évaluation de l'état du système afin d'en améliorer la conduite.

Dans ce contexte, des travaux de recherche appliquée ont été engagés dans le cadre du programme MOCOPEE (Modélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux, [www.mocopee.com](http://www.mocopee.com)) dans le but de valider à l'échelle industrielle des méthodes d'estimation du potentiel méthane des boues urbaines (BMP pour Biochemical Methane Potential) et de construire des modèles de prédiction du fonctionnement des systèmes de digestion anaérobie (mésophile/thermophile).

Cet article technique est consacré au premier volet de ce projet sur l'évaluation du BMP des boues urbaines et vise trois objectifs :

**1) Dresser un état des lieux des niveaux de BMP de différents types de boues urbaines.** Pendant trois ans, de nombreux types de boues ont été échantillonnés sur le site industriel de Seine aval (Achères, 1 700 000 m<sup>3</sup>/j) : boues primaires, boues biologiques (bassins à boues activées « forte charge », biofiltres nitrifiants et post-déni-

trifiants), boues physico-chimiques tertiaires et boues mixtes. La diversité des matrices considérées et le grand nombre d'échantillons analysés a permis de dresser une réelle cartographie du pouvoir méthanogène des boues urbaines.

**2) Cerner les relations existant entre les paramètres classiquement mesurés sur les boues (MS, MV, DCO, DBO<sub>5</sub>, COT) et le BMP.**

**3) Investiguer et proposer des méthodes de réduction du temps nécessaire à l'estimation de la valeur du BMP ;** la durée de la mesure, généralement estimée à 20-30 jours (méthode conventionnelle), étant trop importante pour envisager une utilisation opérationnelle du BMP. Dans la littérature scientifique, différentes méthodes alternatives (proche infrarouge, sondes fluorescentes, fluorescence 3D, etc.) sont proposées pour réduire ce temps de mesure (Bellaton *et al.* 2016, Charnier *et al.*, Doublet *et al.* 2013, Jimenez *et al.* 2014, Jimenez *et al.* 2015, Lesteur *et al.* 2011). La méthode proposée dans cet article consiste, quant à elle, en un couplage entre l'expérimentation en réacteur batch et un modèle prédictif simplifié, le modèle AM2 modifié (Bernard *et al.* 2001).

## Présentation de la démarche technico-scientifique

### Types de boues urbaines étudiés

Les boues résiduaires urbaines caractérisées dans le cadre de cette étude sont issues de la station d'épuration de Seine aval du SIAAP (Service Public de l'Assainissement Francilien). Cette station qui traite quotidiennement 1 700 000 m<sup>3</sup> d'eaux usées (6,5 millions équivalent-habitants), est alimentée par un réseau unitaire majoritairement domestique. La filière de traitement de l'eau comportait au moment du projet (1) un prétraitement (dégrillage, dessablage/déshuilage), (2) une décantation classique, (3) un traitement biologique du carbone par boues activées suivi d'une décantation physico-chimique lestée par micro-sable (Actiflo®) et (4) un traitement biologique de l'azote par biofiltration (nitrification puis post-dénitrification sur méthanol).

Toutes les boues produites dans cette station ont été caractérisées afin de dresser une cartographie précise de leur compor-

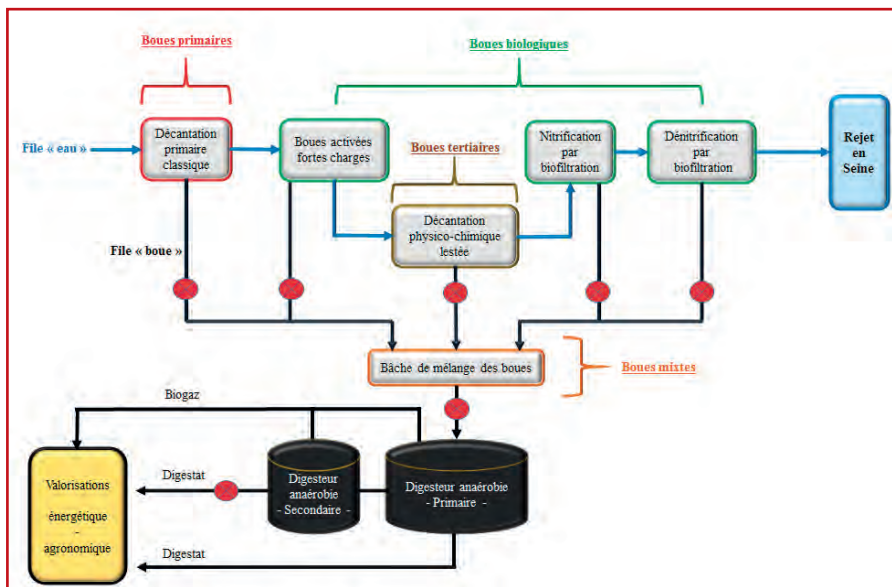


Figure 1: schéma de la filière de traitement des boues considérée dans le cadre de ce projet (Station d'épuration Seine aval - SIAAP).

tement méthanogène. Quatre familles de boues ont été étudiées entre 2013 et 2015 (figure 1):

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

### Descriptif de la méthode d'évaluation du potentiel méthane

#### Présentation technique du dispositif AMPTS II®

Le dispositif employé pour mesurer le potentiel méthanogène des boues est l'AMPTS II® (Bioprocess Control, fournisseur français: Labo-M Solutions), pour Automated Methane

Potential Testing System (figure 2). Ce système permet de mesurer de manière automatisée et en ligne les cinétiques et potentiels de production de méthane d'un substrat donné. Il est composé de 15 réacteurs de 500 ml, assimilés à des digesteurs, placés dans un bain thermostaté régulé à  $35,0 \pm 0,2$  °C. Le biogaz produit dans chaque digesteur est préalablement épuré des gaz acides par une solution alcaline de NaOH 4 M (piège à CO<sub>2</sub>) afin de ne comptabiliser que le méthane produit (Bassard *et al.* 2014). Un indicateur coloré de pH (thymolphthaléine) est également ajouté à cette solution alcaline, qui devient

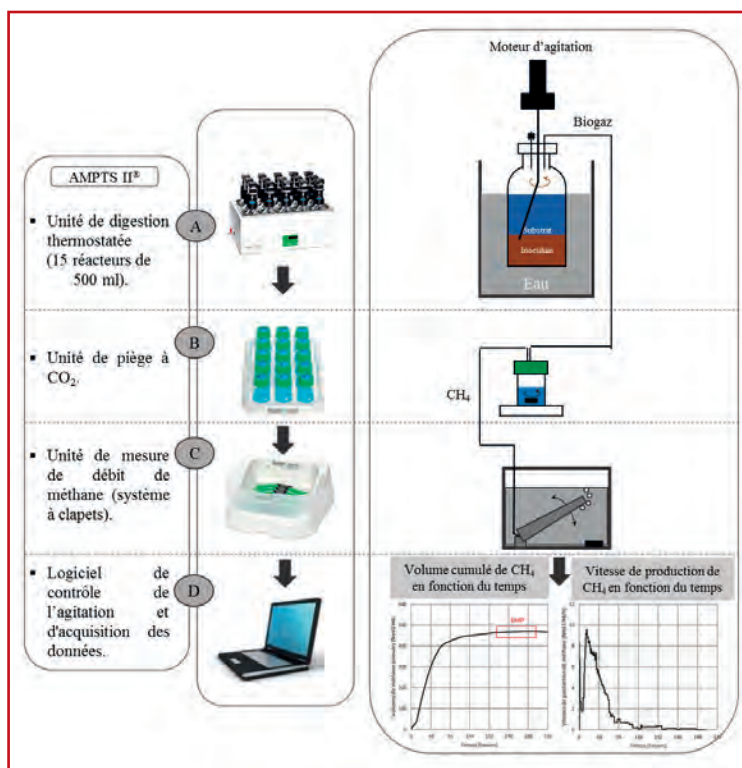


Figure 2: présentation schématique du dispositif AMPTS II® (Automated Methane Potential Testing System) utilisé dans le cadre de ce projet.

incolorable lorsque cette solution n'est plus capable de piéger les gaz acides. Des capteurs de pression et de température sont incorporés pour la correction en ligne des résultats (condition standard, 273K - 1 atm). Le volume cumulé de méthane produit au cours de l'incubation est défini par la comptabilisation des impulsions provoquées par le soulèvement des clapets reliés aux réacteurs, chaque clapet étant calibré à un volume donné (environ 10 ml). Les résultats obtenus via le dispositif AMPTS II® sont présentés sous deux formats complémentaires (1) les volumes cumulés en méthane dont le plateau correspond au BMP, exprimé en Nml CH<sub>4</sub> et (2) les vitesses de production de méthane instantanées en Nml CH<sub>4</sub>/h. Ces deux grandeurs sont ensuite rapportées à la quantité de matière organique introduite dans chacun des réacteurs, pour exprimer le BMP en Nml CH<sub>4</sub>/g<sub>MS ou MV</sub> et la vitesse en Nml CH<sub>4</sub>/h/g<sub>MS ou MV</sub>.

#### Description du protocole opératoire AMPTS II®

Au sein de chaque réacteur de 500 ml, un consortium bactérien (I pour Inoculum) est mis en contact avec le substrat à caractériser (S pour Substrat), en respectant un rapport I/S de 3, exprimé en matières volatiles (Bassard *et al.* 2014, OFEN 2012). Le consortium bactérien servant d'inoculum est prélevé à la sortie des digesteurs secondaires du site Seine aval. Sur ce site, la digestion anaérobie étudiée s'opère en deux parties: digestion primaire méso-ophile (temps de séjour hydraulique du digesteur étudié de 17 jours (médiane, n = 374) - production majeure de biogaz) suivie d'une digestion secondaire non chauffée (temps de séjour hydraulique du digesteur étudié de 3 jours (médiane, n = 374) - finalisation de la production de biogaz). La concentration du mélange dans chaque réacteur ne doit pas dépasser 50 g/l pour assurer une bonne homogénéité.

**Tableau 1: paramètres classiques mesurés sur les boues considérées dans le cadre de ce projet (moyenne ± écart type)**

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

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

sation des boues. Le volume occupé dans chaque réacteur est de 400 ml. Les expérimentations sont menées en triplicata pour chaque substrat. La respiration endogène de l'inoculum est également évaluée en introduisant 200 ml d'inoculum dans un réacteur complété par 200 ml d'eau distillée, opéré pareillement en triplicata. Ainsi, le volume d'inoculum introduit dans chaque réacteur est identique, réduisant les facteurs d'incertitude dans le calcul du BMP des substrats à caractériser.

Ce calcul correspond à la moyenne des triplicatas des volumes cumulés de méthane pour les mélanges Inoculum/Substrat amoindri de la moyenne des triplicatas de la respiration endogène.

Un coefficient de variation (moyenne/écart type) de 20 % dans les triplicatas est accepté, au-delà la moyenne est calculée sur des duplicatas.

### Paramètres classiques mesurés sur les matrices

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

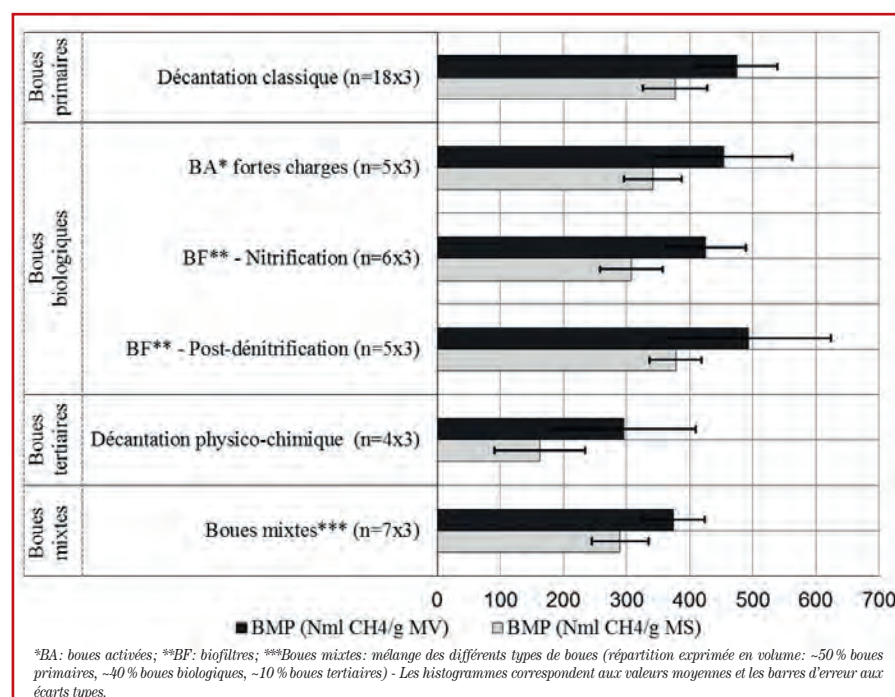
### Potentiel méthane des différents types de boues urbaines

#### Inter-comparaison des BMP des différents types de boues

La présente étude a permis de dresser une cartographie complète du pouvoir méthanogène des différentes boues produites dans la station d'épuration de Seine aval. La figure 3 permet d'apprécier cette cartographie pour les quatre familles de boues étudiées: les boues primaires, les boues biologiques, les boues tertiaires et les boues mixtes. Pour apporter une clé de lecture opérationnelle en exploitation

où la production de boues est estimée en matière sèche (MS), le BMP est exprimé en Nml CH<sub>4</sub>/g<sub>MS</sub> (diagramme en gris clair). Ces mêmes BMP sont également exprimés en Nml CH<sub>4</sub>/g<sub>MV</sub> selon les pratiques de la communauté scientifique (diagramme en gris foncé). Chaque diagramme présente la moyenne des BMP obtenus pour chaque type de boue et les barres d'erreur illustrent les écarts types associés. Le nombre de mesures en triplicata réalisé pour chaque type de boue est indiqué entre parenthèses, conduisant ainsi à un total de 135 expérimentations.

Les boues urbaines présentent un BMP



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

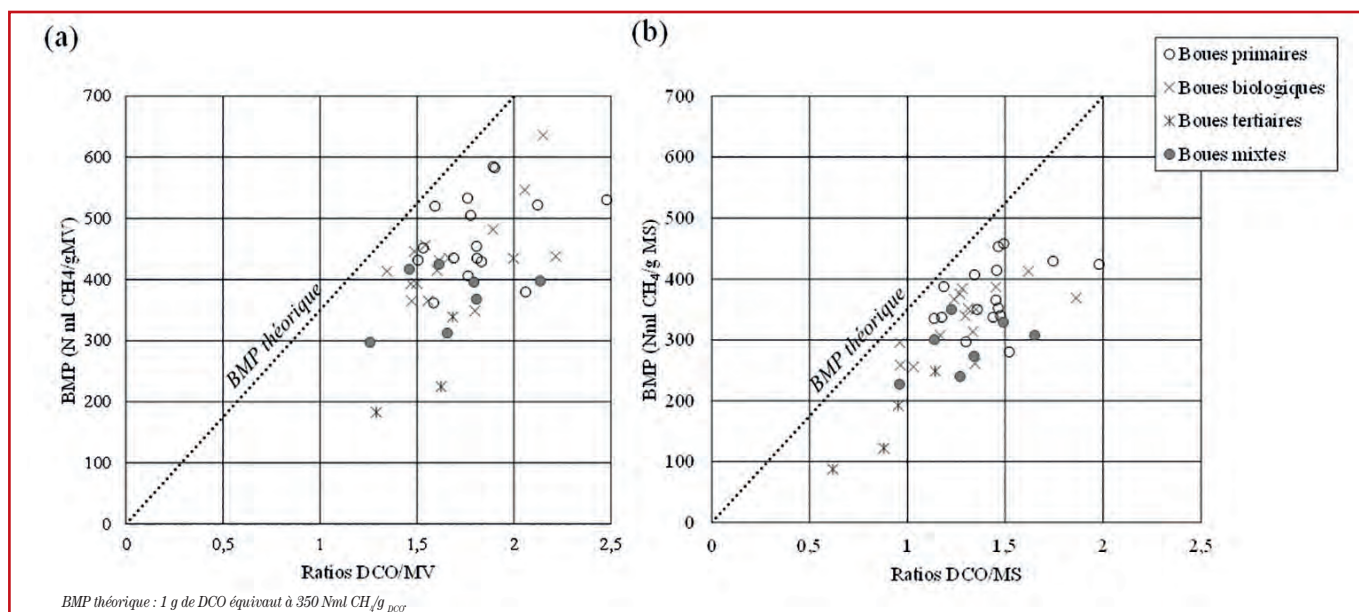


Figure 4 : corrélations entre le BMP et les ratios (a) DCO/MV et (b) DCO/MS dans les boues résiduaires urbaines de Seine aval.

moyen compris entre 300 et 500 Nml CH<sub>4</sub>/g<sub>MV</sub> et entre 160 et 370 Nml CH<sub>4</sub>/g<sub>MS</sub>. Ces valeurs sont en cohérence avec la littérature (OFEN 2012, Perez Fabiel 2009). Les boues urbaines présentent un BMP supérieur à celui des déchets verts (Servais 2008), équivalent à la majorité du gisement fermentescible admis en digestion anaérobie tel que le fumier bovin (Degueurce *et al.* 2016), et bien inférieur à celui des boues grasses (ADEME 2015).

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

### Relation entre BMP et paramètres classiques

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

et DCO/MS; ces ratios permettant d'obtenir les meilleures corrélations.

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

### Méthodes de réduction du temps nécessaire à l'estimation du BMP

#### Présentation de la démarche

La cartographie dressée sur le caractère méthanogène des différentes boues urbaines de Seine aval témoigne d'une variabilité non maîtrisée et plus ou moins importante et cela à deux niveaux: (1) par type de boue et (2) au sein d'un même type de boue. Le paragraphe précédent a montré que les ratios DCO/MS et DCO/MV ne permettaient qu'une estimation assez grossière du potentiel méthanogène. Accéder

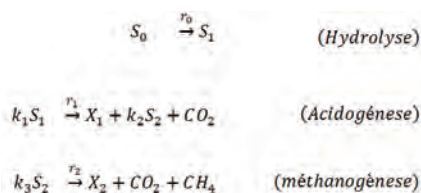
au BMP suppose donc de passer le plus souvent par des méthodes expérimentales longues à mettre en œuvre. En effet, il faut compter environ 20 jours pour obtenir un BMP dans les boues résiduaires par les méthodes conventionnelles (telle que l'AMPTS II®), temps dépassant généralement le temps de séjour hydraulique des digesteurs. Ce délai nuit fortement à l'utilisation de cette mesure. L'objectif de cette partie, est de voir dans quelle mesure le traitement mathématique des données générées par l'AMPTS II®, permettrait de prédire le BMP, sans attendre l'atteinte du plateau correspondant à la fin de l'expérimentation (figure 2). Il convient de souligner que, si le temps nécessaire à l'obtention de la valeur du BMP est d'une vingtaine de jours, l'essentiel du méthane est en revanche produit lors des premiers jours de l'expérimentation. Plus exactement, le temps nécessaire à l'obtention de 80 % du BMP pour les différents types de boues étudiés, est de 4 à 6 jours.

Dans le cadre de ce projet, nous nous sommes inspirés du modèle ADM1 (Anaerobic Digestion Model) proposé par le groupe de spécialistes sur la digestion anaérobie de l'IWA (International Water Association) dans lequel la digestion anaérobie est souvent considérée comme une chaîne trophique à trois étapes: une étape d'hydrolyse et de liquéfaction de grandes molécules organiques insolubles, suivie d'une étape de production d'acides gras volatils par un premier consortium microbien, et terminée par une production de méthane impliquant un écosystème méthanogène. Nous avons plus spécifiquement utilisé une version très simplifiée, le modèle AM2

modifié (Fekih-Salem *et al.* 2014). Afin de calibrer ce modèle, les données expérimentales acquises au cours de cette étude ont été utilisées. Il s'agit des volumes de méthane en fonction du temps et mesurés pour 88 expériences différentes issues de la réplication en triplicata de 30 mélanges substrat/inoculum différents. Malgré cette abondance de données, on verra que les paramètres du modèle ne sont pas déterminés de manière unique, mais nous montrons dans la suite comment nous avons pu obtenir un jeu de paramètres permettant de reproduire correctement les profils de production pour l'ensemble des expériences. L'idée exploitée consiste à séparer les paramètres en deux sous-ensembles distincts: d'une part les paramètres cinétiques (constantes de vitesse, rendements, etc.) et d'autre part les conditions initiales des différents états du système (substrats et biomasse). Le modèle obtenu permet de prédire la production de méthane à 4 jours avec une précision raisonnable tout en donnant la possibilité d'une compréhension de l'influence de la proportion initiale des différents substrats.

### Description du modèle utilisé (modèle AM2)

Pour cette étude nous avons utilisé le modèle AM2 modifié (Fekih-Salem *et al.* 2014). Le schéma réactionnel approché, qui prend en compte les trois étapes du processus de digestion anaérobie, est le suivant:



où  $S_0$  représente la DCO solide,  $X_1$  la biomasse acidogène,  $X_2$  la biomasse méthanogène,  $S_1$  la DCO facilement biodégradable,  $S_2$  les acides gras volatils,  $r_0 = \beta S_0$  et  $r_i = \mu_i(S_i)X_i$ ,  $i = 1, 2$  les vitesses de réaction.

La vitesse spécifique d'hydrolyse est considérée constante et donnée par le coefficient  $\beta$  et les vitesses  $\mu_i(S_i)$  spécifiques seront précisées plus loin. Enfin, les coefficients pseudo-stœchiométriques associés aux réactions biologiques sont notés:  $k_i$ ,  $i = 1...3$ . Nous utilisons les mêmes notations pour désigner les concentrations

(unités arbitraires) des différents constituants du système, qui sont des fonctions du temps  $t$  et vérifient le système d'équations différentielles suivant:

$$\begin{array}{l}
 S_0' = -\beta S_0, \\
 S_1' = \beta S_0 - k_1 \mu_1(S_1) X_1, \\
 X_1' = \mu_1(S_1) X_1, \\
 S_2' = k_2 \mu_1(S_1) X_1 - k_3 \mu_2(S_2) X_2, \\
 X_2' = \mu_2(S_2) X_2,
 \end{array}$$

Avec les conditions initiales :

$$S_0(0) = S_0^0, S_1(0) = S_1^0, X_1(0) = X_1^0, X_2(0) = X_2^0.$$

Les taux de croissance sont données par :

$$\mu_1(S_1) = \mu_1^{max} \frac{S_1}{S_1 + K_{S_1}}, \mu_2(S_2) = \mu_2^{max} \frac{S_2}{S_2 + K_{S_2}}$$

Le volume de méthane est donné en fonction du temps par :

$$CH_4(t) = k_4(X_2(t) - X_2(0)),$$

où  $k_4$  est un coefficient pseudo-stœchiométrique supplémentaire

Paramètres et identifiabilité structurelle

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

$$\begin{array}{l}
 \theta_c = (\mu_1^{max}, \mu_2^{max}, K_{S_1}, K_{S_2}, k_1, k_2, k_3, k_4, \beta), \\
 \theta_b = (X_1^0, X_2^0, S_1^0, S_2^0, S_0^0).
 \end{array}$$

Le vecteur  $\theta_c$  contient les paramètres cinétiques du procédé et sera donc commun à toutes les expériences alors que  $\theta_b$  sera différent. La question de l'identifiabilité structurelle, qui doit être posée avant d'entreprendre l'identification pratique des paramètres est la suivante: étant donné deux vecteurs de paramètres  $\theta_1$  et  $\theta_2$ , peut-on affirmer que:

$$\forall t > 0, CH_4(t; \theta_1) = CH_4(t; \theta_2) \Rightarrow \theta_1 = \theta_2 ?$$

La réponse est négative car il est possible de montrer que par exemple, les coefficients pseudo-stœchiométriques  $(k_i)_{i=1...4}$  ne sont pas déterminés de façon unique. Lorsque l'identifiabilité structurelle n'est pas vérifiée, les méthodes numériques de détermination des paramètres rencontrent de sérieux problèmes de convergence et il faut donc adopter des stratégies adéquates, nous précisons cela plus loin. L'absence d'identifiabilité peut poser problème pour la signification physique des paramètres obtenus, mais ce que nous recherchons ici est un modèle mathématique permettant de reproduire fidèlement le volume de méthane en fonction du temps, sans nécessairement décrire de manière unique les variables d'état ( $X_1, X_2, S_1, S_2, S_0$ ). Dans les résultats obtenus, les évolutions relatives, par exemple de  $S_0, S_1$  et  $S_2$  permettent de comprendre la diversité des comportements observés dans les expériences,

comme par exemple le caractère limitant de l'étape d'hydrolyse suivant les valeurs relatives de  $S_0^0, S_1^0$ , et  $S_2^0$ .

Stratégie d'identification des paramètres

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

### Apprentissage

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

$$J_i(\theta) \equiv J_i(\theta_c, \theta_b) = \sum_{k=2}^{m_i} (t_k^i - t_{k-1}^i)(CH_4(t_k^i; \theta_c, \theta_b) - V_k^i)^2,$$

Où  $CH_4(t; \theta_c, \theta_b)$  est le volume de méthane obtenu en résolvant les équations du modèle AM2 modifié pour le vecteur de paramètre  $\theta = (\theta_c, \theta_b)$ . La recherche d'un vecteur optimal (mais pas nécessairement unique) réalisant le minimum de  $J_i$  ne prend en compte que l'expérience numérotée  $i$ . C'est pourquoi nous considérons les  $n$  expériences en les couplant par la cinétique, en considérant le vecteur à déterminer  $\xi = (\theta_c, \theta_b^1, \dots, \theta_b^n)$  et le critère multi-expériences.

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

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

$$\Xi = \{ \xi \in \mathbb{R}^{9+5n}, \xi_{inf} \leq \xi \leq \xi_{sup} \}$$

**Tableau 2: vecteur optimal de paramètres cinétiques obtenu**

$\mu_1^{max}$	$\mu_2^{max}$	$K_{s1}$	$K_{s2}$	$k_1$	$k_2$	$k_3$	$k_4$	$\beta$
3,4	1,5	41,32	3,14	2,9	1,9	1	45,35	0,189

**Prédiction**

Étant donné  $\theta_c$ , obtenu lors de la phase d'apprentissage et une nouvelle expérience de durée arbitraire et définie par les données  $(t_k, V_k)$ , on définit le critère suivant:

$$\hat{J}(\theta_b) = \sum_{k=2}^m (t_k - t_{k-1})(CH_4(t_k; \hat{\theta}_c, \theta_b) - V_k)^2$$

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

*Aspects numériques.*

Dans cette étude, nous disposons de 88 expériences et donc il y a 449 paramètres à déterminer durant la phase d'apprentissage, ce qui peut paraître difficile étant donné les problèmes d'identifiabilité déjà évoqués et les temps de calculs potentiellement prohibitifs: en effet, pour évaluer  $J(\xi)$  et sa dérivée  $J'(\xi)$ , nécessaire à l'algorithme d'optimisation, il faut résoudre 88 équations différentielles dont l'inconnue au temps  $t$  est une matrice de taille  $5 \times 15$  (le vecteur  $(X_p, X_s, S_p, S_s, S_o)$ ) ainsi que sa dérivée par rapport à  $\theta$ . Ces calculs sont effectués en un temps raisonnable grâce une machine multi-processeurs (serveur à 20 processeurs Xeon E5-2660-v2), qui nous permet de calculer  $J(\xi)$  et sa dérivée  $J'(\xi)$  en 3 secondes (au lieu de 42

secondes). Nous avons laissé l'algorithme d'optimisation (BFGS avec contraintes de type intervalle sur les variables) effectuer 1000 itérations (ce qui a pris environ 2 heures), sans pouvoir atteindre les critères de convergence habituels.

Par contre la phase de prédiction pour une expérience particulière est très rapide car elle ne porte que sur 5 paramètres (conditions initiales des deux biomasses et des trois substrats). Les paramètres cinétiques obtenus pour le modèle sont présentés par le tableau 2.

**Présentation des résultats des simulations**

Les figures 5 et figure 6 permettent d'apprécier la capacité du modèle proposé à simuler la production de méthane dans les réacteurs AMPTS II® en s'appuyant sur les premiers jours de mesures.

Les deux graphiques de la figure 5 (a et b) présentent l'évolution des productions de  $CH_4$  mesurées et simulées dans un réacteur au cours d'une expérimentation. La courbe bleue correspond aux mesures et la courbe verte correspond aux résultats simulés. On note que la production simulée suit la production mesurée sur l'ensemble de la chronique temporelle, en prenant en compte seulement les 4 premiers jours d'expérience.

Les deux graphiques de la figure 6 (a et b) présentent les diagrammes BMP simu-

lés *versus* BMP mesurés pour l'ensemble des 88 réacteurs étudiés. On note une très bonne prédiction du modèle mathématique au bout de 4 jours d'expérimentation (figure 6a). L'erreur relative moyenne de la prédiction du modèle à 4 jours a été évaluée à 4%, valeur tout à fait acceptable d'un point de vue opérationnel.

En revanche, on observe que la réduction du temps d'expérimentation à 3 jours (figure 6b) conduit à dégrader fortement la qualité de la simulation. Si les points sont toujours répartis autour de la droite  $Y = X$ , on note une dispersion plus marquée autour de la droite. L'erreur relative moyenne de la prédiction du modèle à 3 jours est d'ailleurs calculée à 10%, valeur largement supérieure à celle calculée par la prédiction du modèle à 4 jours.

**Conclusion**

Le programme de recherche MOCOPEE (Modélisation, Contrôle et Optimisation des Procédés d'Épuration des Eaux, www.mocopee.com) vise à générer la connaissance et développer les outils métrologiques et mathématiques nécessaires à la maîtrise et l'optimisation des stations d'épuration. Au regard de la place importante occupée par la digestion anaérobie dans les stations d'épuration, et en particulier dans celles implantées en agglomération parisienne, de nombreuses actions R et D traitant de la question de l'optimi-

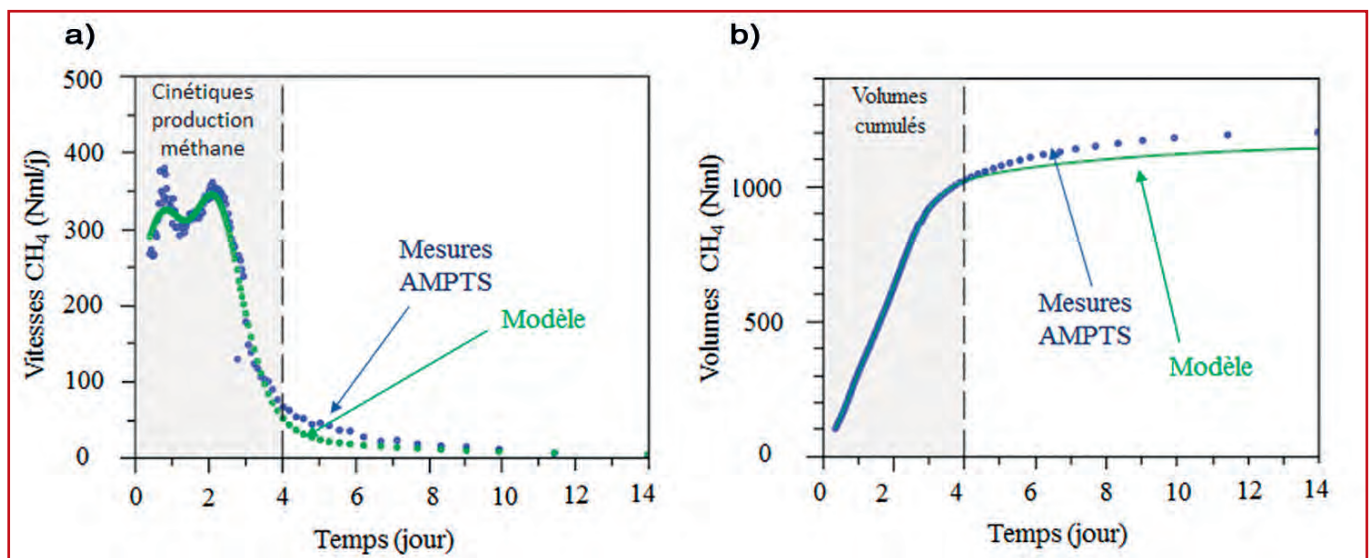
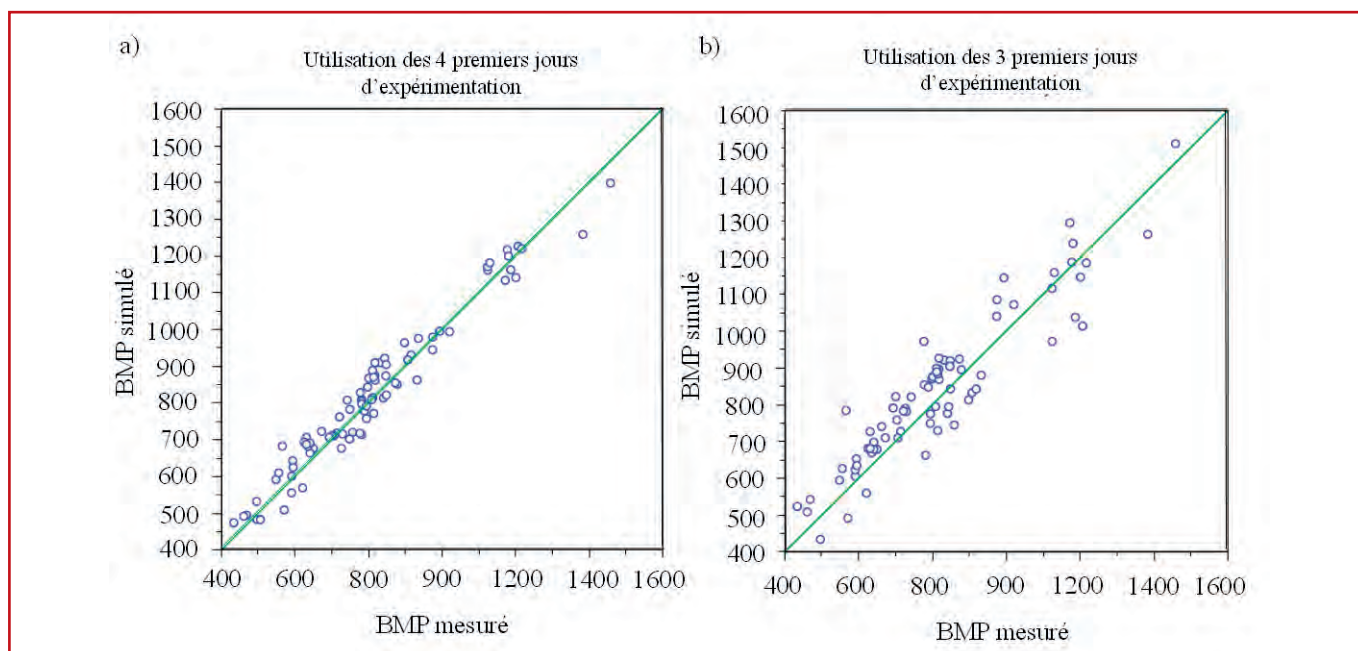


Figure 5: confrontation des productions de  $CH_4$  mesurées et des productions simulées avec le modèle proposé: (a) cas des vitesses de production de  $CH_4$ , (b) cas des volumes cumulés de  $CH_4$ , Exemple d'une expérimentation.



**Figure 6 :** diagrammes « simulations versus mesures » construits sur la base des 88 expérimentations en utilisant les 4 premiers jours d'expérimentation (a) et les 3 premiers jours d'expérimentation (b).

sation du procédé de digestion ont été engagées dans ce programme. Ces actions visent notamment à valider à l'échelle industrielle des méthodes d'estimation du potentiel méthane des boues urbaines et à construire des modèles de prédiction du fonctionnement des systèmes de digestion anaérobie.

Cet article technique, consacré à l'évaluation du BMP des boues urbaines, a permis (1) de dresser un état des lieux des niveaux de potentiel méthanogène de différents

types de boues urbaines, (2) de cerner les relations existant entre les paramètres classiquement mesurés sur les boues et le potentiel méthanogène et (3) de proposer des méthodes de réduction du temps nécessaire à l'estimation du potentiel méthanogène par un couplage entre expérimentation en réacteurs (système AMPTS II®) et modélisation mathématique (modèle AM2 modifié).

Ce couplage permet de réduire le temps d'expérimentation de 20 à 4 jours, avec une

erreur relative moyenne de 4%. La réduction du temps nécessaire à l'obtention de cette information va permettre de redonner un caractère opérationnel fort à cette mesure trop peu utilisée à ce jour sur les sites de traitement. ■

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

## Références bibliographiques

- ADEME, T., O (2015) Évaluation du potentiel de production de biométhane à partir des boues issues des stations d'épuration des eaux usées urbaines. 93.
- Azimi S. et Rocher V. (2016) Stratégie d'optimisation énergétique au sein d'une station d'épuration - Cas du Siaap. Techniques Sciences Méthodes 5, 17-31.
- Azimi S. and Rocher V. (2017) Energy consumption reduction in a waste water treatment plant. Water Practice and Technology (in press).
- Bassard D., André L., Dotal N., Valentin L., Nonus M., Pauss A. et Ribeiro T. (2014) A simple and rapid one-time method to evaluate the non-acidic gas content from bioprocesses. Bioprocess and biosystems engineering 37(2), 337-341.
- Bellaton S., Guérin S., Pautremat N., Bernier J., Muller M., Motellet S., Azimi S., Pauss A. et Rocher V. (2016) Early assessment of a rapid alternative method for the estimation of the biomethane potential of sewage sludge. Bioresource Technology 206, 279-284.
- Bernard O., Hadj-Sadok Z., Dochain D., Genovesi A. et Steyer J.-P. (2001) Dynamical model development and parameter identification for an anaerobic wastewater treatment process. Biotechnology and Bioengineering 75(4), 424-438.
- Charnier C., Latrille E., Jimenez J., Lemoine M., Boulet J.-C., Miroux J. et Steyer J.-P. Fast characterization of solid organic waste content with near infrared spectroscopy in anaerobic digestion. Waste Management.
- Chudoba P., Sardet C., Palko G. et Guibelin E. (2011) Main factors influencing anaerobic digestion of sludge and energy efficiency at several large WWTP in central Europe. Journal of Residuals Science & Technology 8(2).
- Degueurce A., Capdeville J., Perrot C., Bioteau T., Martinez J. et Peu P. (2016) Cattle manure as a resource for biogas conversion in France? Sciences Eaux et Territoires: la Revue du IRSTEA (Hors série 24), 9 p.
- Doublet J., Boulanger A., Ponthieux A., Laroche C., Poitrenaud M. et Cacho Rivero J.A. (2013) Predicting the biochemical methane potential of wide range of organic substrates by near infrared spectroscopy. Bioresource Technology 128, 252-258.
- Fekih-Salem R., Abdellatif N., Sari T. et Jérôme H. (2014) Analyse mathématique d'un modèle de digestion anaérobie à trois étapes. Revue Africaine de la Recherche en Informatique et Mathématiques Appliquées 17, 53-71.
- Friedrich E., Pillay S. et Buckley C. (2009) Environmental life cycle assessments for water treatment processes a South African case study of an urban water cycle. Water SA 35, 73-84.
- Jimenez J., Gonidec E., Cacho Rivero J.A., Latrille E., Vedrenne F. et Steyer J.-P. (2014) Prediction of anaerobic biodegradability and bioaccessibility of municipal sludge by coupling sequential extractions with fluorescence spectroscopy: Towards ADM1 variables characterization. Water Research 50, 359-372.
- Jimenez J., Latrille E., Harmand J., Robles A., Ferrer J., Gaida D., Wolf C., Mairet F., Bernard O., Alcaraz-Gonzalez V., Mendez-Acosta H., Zitomer D., Totzke D., Spanjers H., Jacobi F., Guwy A., Dinsdale R., Premier G., Mazhegrane S., Ruiz-Filippi G., Seco A., Ribeiro T., Pauss A. et Steyer J.-P. (2015) Instrumentation and control of anaerobic digestion processes: a review and some research challenges. Reviews in Environmental Science and Bio/Technology 14(4), 615-648.
- Lesteur M., Latrille E., Maurel V.B., Roger J.-M., Gonzalez C., Junqua G. et Steyer J.-P. (2011) First step towards a fast analytical method for the determination of Biochemical Methane Potential of solid wastes by near infrared spectroscopy. Bioresource Technology 102(3), 2280-2288.
- OFEN, X.C., Nathalie Bachmann (2012) La digestion des boues d'épuration: situation et potentiel d'optimisation OFEN Office fédéral de l'énergie.
- Perez Fabiel S. (2009) Etude de la biodégradabilité de boues secondaires soumises à un traitement thermique à 65 °C et du couplage digestion anaérobie et digestion thermophile aérobie pour la réduction de boues, Atelier national de reproduction des thèses, Lille.
- Servais C. (2008) La méthanisation. Edition Tec Doc Lavoisier R. Moletta coordinateur (ISBN 978-2-7430-1036-2).