

# Emissions gazeuses de $\text{NH}_3$ , $\text{N}_2\text{O}$ , $\text{CH}_4$ , $\text{CO}_2$ au cours du traitement biologique du lisier de porc selon trois modes d'aération

Laurence LOYON, Pascal PEU, Fabrice GUIZIOU, Sylvie PICARD

CEMAGREF, Unité de recherche Gestion environnementale et traitement biologique des déchets  
17, avenue de Cucillé, CS 64427, 35044 Rennes Cedex, France

laurence.loyon@cemagref.fr

## **Emissions gazeuses de $\text{NH}_3$ , $\text{N}_2\text{O}$ , $\text{CH}_4$ , $\text{CO}_2$ au cours du traitement biologique du lisier de porc selon trois modes d'aération**

Le traitement biologique par aération intermittente permet de réduire jusqu'à 70 % l'azote des lisiers de porc sous forme de  $\text{N}_2$ . Cependant, sous certaines conditions l'aération induit la production de gaz polluants ( $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}_2$ ). Ce papier présente les résultats de mesures terrain relatives aux émissions gazeuses de trois réacteurs biologiques. Les émissions gazeuses ont été mesurées en utilisant la technique de la cloche flottante couplée à une chromatographie gazeuse pour l'analyse du  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$  et  $\text{CO}_2$  et à un système de piège acide pour l'ammoniac. Au cours de l'aération du lisier les émissions de  $\text{NH}_3$  sont nulles compte tenu des temps de séjour élevés des lisiers dans les réacteurs (>30 jours). La production de  $\text{N}_2\text{O}$  est faible, inférieure à 1 % de l'azote du lisier entrant dans la filière. La comparaison des trois modes d'aération indique que l'origine du  $\text{N}_2\text{O}$  peut être la phase de dénitrification, la phase de nitrification ou les deux phases. La production de méthane est faible ( $0,1-0,9 \text{ gC-CH}_4 \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{j}^{-1}$ ) et a lieu au cours de la phase d'anoxie permettant la dégradation de la matière organique. Cette transformation biologique se traduit également par une production de  $\text{CO}_2$  ( $4-17 \text{ gC-CO}_2 \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{j}^{-1}$ ).

## **Gaseous emissions of $\text{NH}_3$ , $\text{N}_2\text{O}$ , $\text{CH}_4$ , $\text{CO}_2$ from biological treatment of pig slurry - Influence of the aeration strategy**

Biological treatment by intermittent aeration reduce up to 70% of nitrogen content of pig slurry. However, under some conditions the aeration lead to polluting gases ( $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}_2$ ). This paper presents the results of field measurements of gaseous emissions from three aerobic biological reactors. Gas emissions were measured using the dynamic chamber technique coupled with a gas chromatography for  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$  and  $\text{CO}_2$  analysis and an acidic trapping system for  $\text{NH}_3$ . During slurry aeration  $\text{NH}_3$  emissions were nil due to high residence time of the slurry in the reactor (>30 days).  $\text{N}_2\text{O}$  production was low, <1% of total nitrogen entering treatment plant. The comparison of three aeration ways showed that  $\text{N}_2\text{O}$  pathways were denitrification, nitrification or both pathways.  $\text{CH}_4$  emissions were low ( $0.1-0.9 \text{ gC-CH}_4 \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ ) and occurred during anoxic stage allowing organic matter degradation. This biological transformation also produced  $\text{CO}_2$  ( $4-17 \text{ gC-CO}_2 \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ ).

## INTRODUCTION

Pour répondre aux dispositions réglementaires concernant la pollution des eaux par le nitrates, un certain nombre d'éleveurs de porc installés en zones d'excédent structurel (ZES) ont choisi le traitement biologique afin de respecter la dose de 170 kg Norganique.ha<sup>-1</sup>.an<sup>-1</sup> pour l'épandage du lisier. Le traitement biologique par aération intermittente (80 % des traitements mis en place) élimine l'azote ammoniacal principalement sous forme N<sub>2</sub> par les processus de nitrification et de dénitrification (Burton, 1993 ; Béline et al., 1999). Cependant, sous certaines conditions le traitement biologique est également une source de pollution gazeuse (NH<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>). Du N<sub>2</sub>O peut être émis lorsque les processus de nitrification/dénitrification ne sont pas suffisants pour transformer complètement l'azote sous forme de N<sub>2</sub>. Selon Béline (2001), les principaux paramètres de fonctionnement influençant les transformations sont la quantité de carbone assimilable du lisier brut et la stratégie d'aération. Les gaz carbonés (CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>) sont issus de la dégradation de la matière organique du lisier. Dans ce cadre, cette étude concerne l'évaluation des émissions gazeuses en conditions réelles de fonctionnement de trois réacteurs biologiques différents par leur mode et leur cycle d'aération.

## 1. MATÉRIEL ET MÉTHODES

Les trois réacteurs suivis sont équipés respectivement d'aérateurs de surface, d'aérateurs à fines bulles et de turbines

déprimogènes. Ces réacteurs se différencient également par la durée et la gestion des cycles d'aération (Tableau 1). Les principales caractéristiques de ces réacteurs sont également regroupées dans ce tableau. Afin d'exprimer les émissions de N<sub>2</sub>O en % du N-NH<sub>4</sub><sup>+</sup> ou de l'azote total (NTK) du lisier traité, les valeurs du tableau 1 sont celles de Béline et al. (2003) qui ont suivi ces trois réacteurs dans le cas de la détermination des flux de matières des stations de traitement.

Le flux des émissions gazeuses (NH<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>) a été déterminé grâce à une cloche flottante (Peu et al., 1999) placée à la surface du lisier contenu dans les réacteurs biologiques. Une circulation continue d'air balaie les gaz émis à la surface du lisier. Une partie de l'air prélevé est dérivée vers un système de piégeage de l'ammoniac par une solution acide (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 1N). La solution acide est titrée ultérieurement en laboratoire. Les concentrations en CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>O sont déterminées en continu sur site par chromatographie gazeuse (CPG) équipée de deux détecteurs : FID (Flame Ionisation Detector) et ECD (Electron Capture Detector).

## 2. RÉSULTATS ET DISCUSSION

La mesure des émissions gazeuses des trois réacteurs étudiés a été effectuée du 20 mars au 7 avril 2004 pour l'aérateur de surface, du 16 juillet au 20 août 2004 pour l'aérateur à fines bulles et du 6 au 24 décembre 2004 pour la turbine déprimogène. Les facteurs d'émission établis pour les trois réacteurs sont rassemblés dans le tableau 2.

**Tableau 1** - Principales caractéristiques des réacteurs de traitement biologique étudiés

	<b>Aérateur de surface</b>	<b>Fines Bulles</b>	<b>Turbine Déprimogène</b>
Volume du réacteur (m <sup>3</sup> )	680	960	965
Débit d'alimentation (m <sup>3</sup> .j <sup>-1</sup> )	12,1	17	13,7
Cycle d'aération	[Aération de 2h + anoxie de 4h] + contrôle redox	Aération de 20h + anoxie de 4h	Aération de 20-30 mn + anoxie de 15-20 mn
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (gN/kg)	2,6	2,4	2,5
NTK (gN/kg)	3,9	3,2	3,7

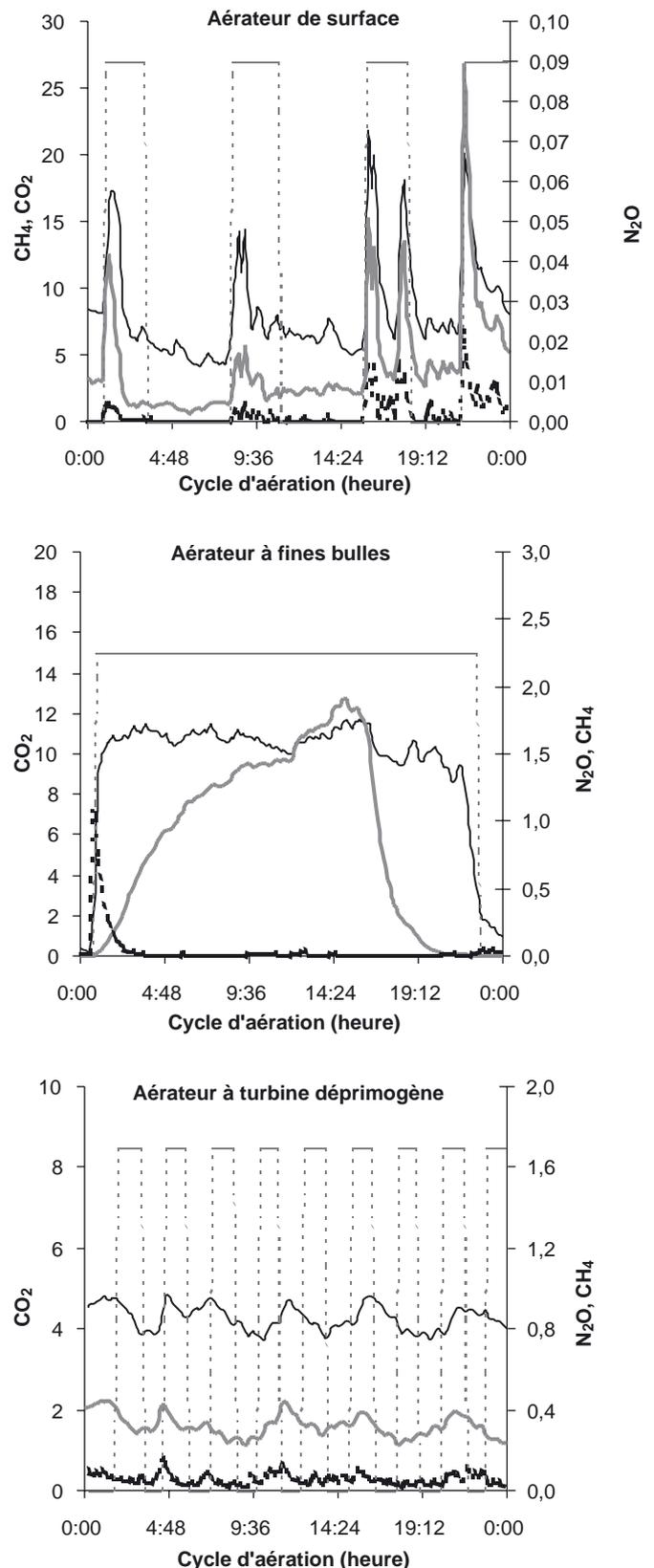
**Tableau 2** - Facteurs journaliers moyens des émissions de NH<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub> et CO<sub>2</sub> issues des trois réacteurs (ND : non détecté)

	<b>Aérateur de surface</b>				<b>Fines Bulles</b>				<b>Turbine Déprimogène</b>			
	Moy.	Min.	Max.	Ecart type	Moy.	Min.	Max.	Ecart type	Moy.	Min.	Max.	Ecart type
NH <sub>3</sub> (gN.m <sup>-2</sup> .j <sup>-1</sup> )	ND				ND				ND			
N <sub>2</sub> O (gN.m <sup>-3</sup> .j <sup>-1</sup> )	0,015	0,004	0,035	0,007	0,59	0,04	2,72	0,06	0,27	0,005	0,49	0,12
CH <sub>4</sub> (gC.m <sup>-3</sup> .j <sup>-1</sup> )	0,88	0,11	2,68	0,54	0,13	0,03	0,41	0,08	0,09	0,04	0,24	0,06
CO <sub>2</sub> (gC.m <sup>-3</sup> .j <sup>-1</sup> )	12,1	5,2	17,1	3,6	16,9	7,1	27,2	6,5	4,1	3,0	4,8	0,6

Quel que soit le mode d'aération les émissions de  $\text{NH}_3$  sont nulles. Ceci est en accord avec la littérature (Evans et Smith, 1986 ; Burton, 1992 ; Béline, 1998) qui indique une volatilisation de  $\text{NH}_3$  quasiment nulle pour des temps de séjour du lisier dans les réacteurs étudiés supérieurs à 30 jours.

Le suivi des émissions de  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$  et  $\text{CO}_2$  sur les trois réacteurs (Figure 1) montre l'influence du cycle d'aération sur la production gazeuse. En dehors du  $\text{N}_2$  (non mesuré), le principal gaz émis est le  $\text{CO}_2$ , le dioxyde de carbone étant un des produits finaux de la transformation biologique des composés organiques du lisier. Le  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$  et  $\text{CO}_2$  sont détectés essentiellement au cours de la phase d'aération pour les aérateurs de surface et fines bulles, tandis que l'aération par turbine déprimogène semble produire ces gaz indépendamment de la phase de traitement. Toutefois, l'analyse des résultats indique des quantités produites et une dynamique de production gazeuse différentes selon le type d'aération. Dans le cas de l'aération de surface, le flux journalier moyen de  $\text{N}_2\text{O}$  est de  $0,015 \text{ gN}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$ ,  $0,87 \text{ gC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$  de  $\text{CH}_4$  et de  $12,1 \text{ gC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$  de  $\text{CO}_2$ . La dynamique de ces gaz au cours d'un cycle d'aération indique que la production a lieu essentiellement au cours de la phase d'anoxie. Les gaz produits sont ensuite strippés au cours de l'aération. Pour l'aérateur à fines bulles, les flux moyens journaliers sont de  $0,58 \text{ gN}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$ ,  $0,13 \text{ gC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$  et  $16,9 \text{ gC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$  pour le  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$  et le  $\text{CO}_2$  respectivement. Ces trois gaz sont détectés uniquement au cours de la phase d'aération. Le  $\text{CH}_4$  est émis de façon éphémère juste au début de l'aération tandis que le  $\text{CO}_2$  est détecté pendant toute la durée de l'aération. Le  $\text{N}_2\text{O}$  est émis progressivement au cours de l'aération pour atteindre un palier. Ainsi, la production de  $\text{N}_2\text{O}$  et de  $\text{CO}_2$  a lieu au cours de la phase aérobie alors que le  $\text{CH}_4$  est produit au cours de la phase d'anoxie et strippé au début de l'aération. Pour l'aération par turbine déprimogène, les flux journaliers moyens sont de  $0,27 \text{ gN}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$  de  $\text{N}_2\text{O}$ , de  $0,09 \text{ gC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$  de  $\text{CH}_4$  et de  $4,1 \text{ gC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$  de  $\text{CO}_2$ . L'effet de l'aération n'est pas aussi net que pour les deux autres réacteurs. Pour ce type de réacteur, il est difficile de différencier l'origine du  $\text{N}_2\text{O}$  et du  $\text{CO}_2$ , le  $\text{CH}_4$  étant uniquement produit en conditions anaérobies.

La comparaison des trois sites de traitement indique que la production de méthane est faible et a lieu au cours de la phase d'anoxie permettant la dégradation de la matière organique. Cette transformation biologique se traduit également par une production de  $\text{CO}_2$ . Toutefois, dans le cas d'un traitement par aération intermittente, cette production de biogaz est réduite (Martinez et al., 2003) ce qui explique les faibles quantités de  $\text{CH}_4$  mesurées. La production de  $\text{N}_2\text{O}$  est faible pour les trois réacteurs. Les quantités produites correspondent à 0,03 % de l'azote ammoniacal entrant dans le réacteur de surface, 1,4 % pour le réacteur à fines bulles et 0,8% du réacteur à turbine déprimogène. Ces résultats s'apparentent aux valeurs citées dans la littérature (Osada et al., 1995 ; Pahl et al., 1997). L'origine de la production du  $\text{N}_2\text{O}$  est différente selon le cycle d'aération. Elle est principalement la phase de dénitrification pour l'aération de surface, la phase de nitrification pour l'aération à fines bulles et les deux phases pour



**Figure 1** - Evolution des émissions de  $\text{N}_2\text{O}$  (—),  $\text{CH}_4$  (---) et  $\text{CO}_2$  (---) au cours des cycles d'aération (en  $\text{gN}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$  et  $\text{gC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$ )

l'aération par turbine déprimogène. Selon la bibliographie, il apparaît que la production de  $\text{N}_2\text{O}$  peut être due à l'inhibition du processus de dénitrification (Burton et al., 1993 ; Osada et al., 1995, Béline et al., 2001) et/ou au processus de nitrification lors d'un traitement par aération

intermittente (Willers et al., 1996 ; Béline et Martinez, 2002). Béline et al. (2003) ont montré que le potentiel oxydo-réducteur et la concentration en oxygène dissous dans les 3 réacteurs de traitement évoluent dans le temps en fonction de la charge carbonée apportée dans le réacteur. Cette variation du potentiel redox et de la teneur en  $O_2$  peut être à l'origine de l'inhibition partielle de la nitrification et/ou de la dénitrification et par conséquent être à l'origine du  $N_2O$ . Une variation de la charge organique peut avoir lieu suite à une modification du débit d'alimentation du réacteur en fonction des contraintes de l'éleveur (quantité de lisier stocké en amont de l'aération, dysfonctionnement du séparateur du lisier) ou aux contraintes de fonctionnement du réacteur (réduction de l'activité nitrifiante/dénitrifiante des bactéries). Certains composés comme les nitrites ou l'ammoniac peuvent, selon leur concentration, inhiber les processus de nitrification/dénitrification (Anthonisen et al., 1976). La température peut également modifier les processus de nitrification et de dénitrification. Il est néanmoins difficile de déterminer en conditions réelles l'influence de ces différents facteurs.

## CONCLUSION

Les résultats de cette étude, réalisée à l'échelle d'une unité de production commerciale, confirment la production de gaz polluants au cours du traitement du lisier de porc par aération intermittente. En dehors du  $N_2$ , non mesuré, le  $CO_2$  est le principal gaz émis suite à la transformation biologique des composés organiques du lisier. La production de  $N_2O$  correspond à moins de 1 % de l'azote total du lisier entrant dans la station de traitement. Le  $N_2O$  est émis selon le cycle d'aération appliqué soit au cours de la phase de dénitrification, de nitrification ou des deux phases. La production de  $CH_4$  est faible et a lieu au cours du cycle d'anoxie. En raison des temps séjour du lisier dans les réacteurs, les émissions de  $NH_3$  sont nulles.

## REMERCIEMENTS

Cette étude a été financée par l'ADEME dans le cadre du programme « Porcherie Verte ». Les auteurs tiennent à remercier les éleveurs pour avoir mis à la disposition du CEMAGREF leurs installations de traitement.

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Anthonisen A.C., Loehr R.C., Prakasam T.B.S., Srinath E.G., 1976. Inhibition of nitrification by ammonia and nitric acid. *Journal WPCF*, 48, 835-852.
- Béline F., 2001. Le traitement biologique aérobie du lisier de porc - Les transformations de l'azote et les émissions gazeuses polluantes ( $NH_3$ ,  $NO_2$ ), 134 p., Coll. Études du Cemagref, Série Équipements pour l'eau et l'environnement, n° 26.
- Béline F., Daumer M.L, Guiziou F., 2003. Traitement biologique aérobie du lisier de porcs : performances des système de séparation de phases et caractéristiques des co-produits. *Ingénieries*, 34, 25-33.
- Béline F., Martinez J., 2002. Nitrogen transformations during biological aerobic treatment of pig slurry: effect of intermittent aeration on nitrous oxide emissions. *Bioresource Technology*, 83 (3), 225-228.
- Béline F., Martinez J., Chadwick D., Guiziou F., Coste C.M., 1999. Factors affecting nitrogen transformations and related nitrous oxide emissions from aerobically treated piggery slurry. *J. Agric. Eng. Research*, 73(3), 235-243.
- Béline F., Martinez J., Marol C., Guiraud G., 1998. Nitrogen transformations during anaerobically stored  $15N$ -labelled pig slurry. *Bioresource Technology*, 64, (2), 83-88.
- Béline F., Martinez J., Marol C., Guiraud G., 2001. Application of the  $15N$  technique to determine the contributions of nitrification and denitrification to the flux of nitrous oxide from aerated pig slurry. *Water Research*, 35, (11), 2774-2778.
- Burton C.H., 1992. A review of the strategies in the aerobic treatment of pig slurry: purpose, theory and method. *J. agric. Engng Res.*, 53, 249-272.
- Burton C. H., Sneath R. W., Farrent J.W., 1993. Emissions of nitrogen oxide gases during aerobic treatment of animal slurries. *Bioresource Technology*, 45, (3), 233-235.
- Evans M.R., Smith M.P.W., 1986. Treatment of farm animal wastes. *Journal of Applied Bacteriology Symposium Supplement*, 27S-41S.
- Osada T., Kuroda K., Yonaga M., 1995. Reducing nitrous oxide gas emissions from fill-and-draw type activated sludge process. *Water Research*, 29, (6), 1607-1608.
- Pahl O., Burton C.H., Biddlestone A.J., 1997.  $N_2O$  emission from redox controlled aerobic treatment of pig slurry. *Proceedings of the International Symposium: Ammonia and odour control from animal production facilities*. Eds Voermans J.A.M., Monteny G. Vinkeloord, October 6-10, The Netherlands. Pp 197-208.
- Peu P., Béline F., Martinez J., 1999. A Floating Chamber for estimating Nitrous Oxide Emissions from Farm Scale Treatment Units for Livestock Wastes. *Journal of Agricultural Engineering Research*, 73, (1), 101-104.
- Willers H. C., Derickx P.L.J., Ten Have P.J.W., Vijn T.K., 1996. Emission of ammonia and nitrous oxide from aerobic treatment of veal calf slurry. *J; agric. Engng Res.*, 63, 345-352.