



Mémoire pour l'obtention du diplôme de Magister en Hydraulique
Option : Mobilisation et protection des ressources en eau

**Développement d'un modèle dynamique sous matlab pour un
processus anaérobie de traitement des eaux**

Présenté par : **Aymen ZEGNOUNI**

le Janvier 2010

devant le membre de jury composé de :

<u>Président :</u>	ADJIM.M	Maître de Conférences	UABTlemcen
<u>Examineurs :</u>	BOUCHELKIA H.	Maître de Conférences	UABTlemcen
	MOUSSA BOUDJEMAA B.	Maître de Conférences	UABTlemcen
	CHIBOUB FELLAH A.	Maître de Conférences	UABTlemcen
<u>Encadreur :</u>	BENMANSOUR A.	Maître de Conférences	UABTlemcen
<u>Co encadreur :</u>	CHERKI Brahim	Maître de Conférences	UABTlemcen

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein de l'université Abou Bekr Belkaid de Tlemcen, à la faculté des sciences de l'ingénieur, au département d'hydraulique en collaboration avec le département d'automatique.

J'exprime ma gratitude à M. A BENMANSOUR et M. B. CHERKI, mes encadreurs qui n'ont pas hésité à me faire confiance. Je tiens à les remercier pour leur patience à mon égard durant les étapes de ce travail, pour leurs conseils ainsi que leur soutien permanent. Je leur suis très reconnaissant d'avoir partagé avec moi leur grande expérience.

Je remercie également Mr. ADJIM M., de m'avoir fait l'honneur de présider le jury d'examen.

Aussi je remercie Mr. BOUCHELKIA H., Mr. CHIBOUB FELLAH A. et Mr. MOUSSA BOUJEMAA B. pour l'honneur qu'ils m'ont fait de bien vouloir examiner mon travail.

Je remercie aussi tous ceux qui ont participé, de près ou de loin, à mon modeste travail,

J'exprime ma reconnaissance à tous les enseignants qui ont contribué à ma formation tout au long de mon cursus.

Dédicaces

*Aux plus chers des chers,
Aux plus beaux de ce qu'a eu la terre,
A mon père (Mouloud) et ma mère (Khaoula)*

*A mes frères,
Tarik mon exemple de sagesse,
Naim la preuve de la gentillesse,*

*A celle qui ma toujours soutenue avec ses prières,
ma grand-mère Rabiaa,
A la mémoire de mes grands parents khamsa,
Mouhammed et Naimi*

*A toute ma famille,
A tous mes amis,*

ملخص

هذه المذكرة مساهمة في دراسة نمذجة التطهير البيولوجي للمياه .
المادة العضوية تستهلك من طرف أربعة أصناف بكتريولوجية و ينتج عن هذه العملية بيوغاز مكون أساسا من الميثان و بيوكسيد الكربون.
تمثيل رقمي مؤسس على معادلات النموذج أم2 الذي يصف العملية باعتبار مفاعلتين بيولوجيتين.
الكلمات الأساسية : تطهير المياه ، غياب الأوكسجين ، النمذجة، نموذج أم2.

Résumé

Ce mémoire est une contribution à l'étude de la modélisation des bioprocédés pour le traitement des eaux usées par voie anaérobie.

La matière organique est dégradée par quatre principales populations bactériologiques en produisant un biogaz composé essentiellement de méthane et de dioxyde de carbone.

Des simulations numériques, basées sur les équations du modèle AM2 qui décrit le processus par deux réactions biologiques, ont été effectuées.

Mots clé : Traitement des eaux usées, digestion anaérobie, modélisation, modèle AM2.

Abstract

This memoir is a contribution to the study of biological wastewater treatment processes by anaerobic digestion.

The organic matter is consumed by four principal bacteria populations that produce a biogas compound by methane and carbon dioxide.

Numerical simulations were carried out, based on AM2 model equations, which describe the process by two biological reactions.

Key words: wastewater treatment, anaerobic digestion, modeling, AM2 Model.

SOMMAIRE

Introduction générale.....	9
Chapitre I : La digestion anaérobie : généralités	19
1. Introduction.....	19
1.1. La découverte de la fermentation et du biogaz.....	19
1.2. Un système naturel et complexe.....	21
2. Microbiologie de la digestion anaérobie.....	23
2.1. Hydrolyse.....	23
2.2. Acidogénèse.....	23
2.3. Acétogénèse.....	25
2.4. Méthanogénèse.....	27
3. Physico-chimie de la digestion anaérobie.....	28
3.1. Température.....	28
3.2. pH et alcalinité.....	31
3.3. Les nutriments.....	31
4. Les procédés de la digestion anaérobie.....	32
4.1. Généralités.....	32
4.1.1. Avantages et inconvénients.....	32
4.1.2. Choix et dimensionnement du digesteur.....	34
4.2. Mode d'alimentation des réacteurs.....	35
4.3. Solutions technologiques.....	36
4.3.1. Digesteurs à cellule libre.....	36
4.3.2. Digesteurs à biofilm et à granules.....	38
4.3.3. Réacteur à support mobile.....	40
4.3.4. Réacteurs à deux étages.....	40
5. Caractéristiques du biogaz.....	44
Chapitre II : Modélisation des procédés de digestion	
Anaérobie.....	46
1. Modélisation des bioprocédés.....	46
1.1. Introduction.....	46
1.2. Modélisation de la digestion anaérobie.....	47
1.2.1. Modèle cinétique enzymatique.....	47
1.2.2. Du chemostat au méthaniseur.....	48

2. Modèles ADM1.....	53
2.1. Structure du modèle.....	53
2.2. Choix de modélisation.....	53
3. Le modèle AM2.....	56
Chapitre III : Le modèle AM2.....	59
1. Dispositif expérimental.....	59
1.1. Le réacteur.....	59
1.2. L'effluent.....	61
1.3. Moyens de mesure.....	61
2. Hypothèses et description du modèle.....	63
2.1. Réactions biologiques.....	63
2.2. Processus physico-chimique.....	64
3. Propriétés hydrodynamiques du réacteur.....	66
4. Modélisation par bilan de matière.....	67
5. Structure du modèle.....	68
6. Détermination et stabilité des états d'équilibre.....	69
7. Valeurs des débits gazeux.....	73
Chapitre IV : Identification des paramètres.....	75
1. Procédure d'identification des paramètres cinétiques.....	75
2. Procédure d'identification du coefficient K_{La}	79
3. Procédure d'identification des coefficients de rendement.....	80
Chapitre V : Résultats et discussions.....	83
1. Résultats expérimentaux et simulés du pH.....	84
2. Alcalinité et carbone inorganique.....	85
3. Concentration de la DCO et des AGVs.....	87
4. Débits gazeux.....	88
5. Conclusion.....	89
Conclusion générale et perspectives.....	91
Annexes.....	94
Bibliographie.....	100

Liste des tableaux

Tableau I-1 Produits de la dégradation du glucose.....	24
Tableau I-2 Réactions d'acétogénèse avec production de dihydrogène et de formate.....	26
Tableau I-3 Homoacétogénèse fermentative.....	26
Tableau I-4 Réactions de transfert inter-espèces du H ₂ et du formate.....	28
Tableau III-1 : Caractéristiques de l'effluent.....	61
Tableau III.2 : Mesures pour le suivi analytique du fermenteur pilote et méthodes associées.....	62
Tableau IV-1 : Caractéristique de l'effluent aux états d'équilibre.....	77
Tableau IV-2 : Valeurs des paramètres cinétiques estimées.....	79
Tableau IV-3 : Valeurs estimées des ratios de coefficients de rendement.....	81
Tableau IV-4 : Valeurs estimées des coefficients de rendement.....	81

Liste des figures

Figure 1 : Schéma du concept de <i>Développement Durable</i>	12
Figure 2: Capacité des installations de traitement anaérobie des déchets solides municipaux en Europe.....	15
Figure 3: Boom de la digestion anaérobie en Allemagne.....	16
Figure I-1 : Schéma de la chaîne trophique des étapes de la fermentation.....	22
Figure I-2 : Effet de la température sur le taux de croissance des méthanogènes ...	29
Figure I-3 : Comparatif des procédés anaérobie et à boues activées.....	33
Figure I-4 : Schéma d'un digesteur infiniment mélangé.....	37
Figure I-5 : Schéma d'un digesteur à contact	38
Figure I-6 : Schéma d'un digesteur à lit fixe.....	39
Figure I-7 : Exemple de support mobile.....	41
Figure I-8 : Schéma d'un digesteur à deux étages.....	42
Figure II-1 : Schéma synoptique d'un système dynamique.....	46
Figure II-2 : Processus biochimiques et physiques pris en compte dans ADM1	54
Figure II-3 : Processus biochimiques dans ADM1.....	55
Figure III-1 : Synoptique du réacteur pilote pour le traitement des vinasses de distillerie et son instrumentation.....	60
Figure III-2 : photographie du réacteur pilote pour le traitement des vinasses de distillerie et son instrumentation.....	60
Figure III-3 : Taux de croissance en fonction du substrat d'une population bactérienne régit par une cinétique de Monod.....	70

Figure III-4 : Taux de croissance en fonction du substrat d'une population bactérienne régit par une cinétique de Haldane.....	72
Figure IV-1 : Caractéristiques de l'effluent durant la période expérimentale.....	77
Figure IV-2: régression linéaire entre les valeurs de D et S_1 à l'équilibre.....	78
Figure IV-3: régression linéaire entre les valeurs de D et S_2 à l'équilibre.....	79
Figure V-1 : pH simulé et pH mesuré.....	84
Figure V-2 : Résultats expérimentaux et des simulations de l'alcalinité.....	85
Figure V-4 : Concentrations simulées et expérimentales du carbone inorganique..	86
Figure V-5 : Concentrations mesurées et simulées de la DCO et des AGV.....	86
Figure V-6 : Débit de dioxyde de carbone produit.....	87
Figure V-7 : Débit du méthane produit.....	88

Liste des symboles

Symbole	unité	signification
C, C_{in}	mmol/L	concentration du carbone inorganique total
D	J^{-1}	Taux de dilution
k_1		Taux de dégradation du substrat
k_2	mmol/g	Taux de production des AGV
k_3	mmol/g	Taux de consommation des AGV
k_4	mmol/g	Taux de production de CO_2
k_5	mmol/g	Taux de production de CO_2
k_6	mmol/g	Taux de production de méthane
K_a, K_b	mol/L	constantes d'équilibre
K_H	mmol/L par atm	constante d'Henry
K_{La}	j^{-1}	constante de transfert liquide-gaz
K_{I2}	mmol/L	constante d'inhibition
K_{S1}	g/L	constante de demi saturation
K_{S2}	mmol/L	constante de demi saturation
P_C	atm	pression partielle de CO_2
P_T	atm	pression totale
q_C	mmol/L/j	débit de dioxyde de carbone
q_M	mmol/L/j	débit de méthane
S_1, S_{1in}	g/L	concentration organique du substrat
S_2, S_{2in}	mmol/L	concentration des acides gras volatiles
X_1	g/L	concentration des bactéries acidogènes
X_2	g/L	concentration des bactéries méthanogènes
Z	mmol/L	alcalinité totale
α		fraction des bactéries le liquide

μ_1	j^{-1}	taux spécifique de croissance des acidogènes
$\mu_{1\max}$	j^{-1}	taux maximum de croissance des acidogènes
μ_2	j^{-1}	taux spécifique de croissance des méthanogènes
$\mu_{2\max}$	j^{-1}	taux maximum de croissance des méthanogènes

*Introduction
Générale*

Introduction générale

Le siècle dernier a connu un accroissement démographique exceptionnel ; la population a été multipliée par six, et au rythme de croissance actuelle, les prévisionnistes de l'ONU tablent sur un doublement de la population mondiale d'ici à 2050. Cet essor démographique s'est accompagné d'un fort développement économique qui, faute d'une gestion réfléchie des ressources, a marqué durablement l'environnement. Les effets des activités humaines sont visibles à plusieurs niveaux ; épuisement des ressources naturelles, érosion de la biodiversité, augmentation de la pollution, réchauffement climatique...

La consommation d'eau pour les usages industriels est en constante augmentation depuis une cinquantaine d'année, atteignant actuellement 20% des prélèvements. L'agriculture reste le premier consommateur d'eau puisqu'elle représente 69% des prélèvements effectués. Bien que l'eau soit essentielle à la vie et au développement, de grandes disparités existent dans l'utilisation de cette ressource et 12% de la population mondiale consomme à elle seule 80% de l'eau utilisée annuellement. La situation est telle que l'on n'hésite plus à employer le mot de guerre pour désigner la compétition pour accéder aux ressources en eau. On comprend d'autant mieux cette tension que les pays développés, qui ont largement participé à l'épuisement et à la pollution des ressources naturelles, plaident désormais pour une gestion plus rationnelle, ce qui avec les modes de production actuels constituerait un frein à la croissance des pays émergents. Cette crise devrait encore s'accroître dans les années à venir puisque les pays en voie de développement, qui dans une large proportion sont déjà les plus sévèrement touchés par le manque d'eau salubre, devraient connaître les accroissements démographiques les plus prononcés ; la part de la population mondiale n'ayant pas durablement accès à l'eau augmentera en conséquence, creusant d'autant plus les inégalités.

L'agriculture et l'industrie génèrent des rejets nocifs pour l'environnement. Pendant longtemps les effluents de ces deux secteurs ont été rejetés dans la nature sans réelle précaution ; les déchets des industries agro-alimentaires (IAA) étaient considérés comme peu polluants en raison de leur caractère naturel (matière organique). Cependant leur forte charge organique présente un réel danger pour l'environnement, puisque leur dégradation implique la consommation de l'oxygène dissous dans l'eau, limitant ainsi la croissance des autres organismes présents dans le milieu. La pollution agricole a détérioré la qualité des sols, des cours d'eau et des nappes phréatiques. Cette pollution est attribuée à l'utilisation massive d'engrais et de produits phytosanitaires, ainsi qu'aux déjections animales des élevages intensifs. Ces rejets, fortement chargés en azote et phosphore, favorisent l'eutrophisation des cours d'eau lorsqu'ils sont transportés par les eaux de pluie vers les milieux aquatiques environnants.

Les problématiques de l'énergie présentent de nombreuses similitudes avec celles de l'eau ; inégale répartition et déplétion des ressources, disparités régionales des besoins, impacts environnementaux...

Malgré les chocs pétroliers successifs, les énergies fossiles (hydrocarbures [pétrole et gaz naturel] et charbon) fournissaient encore 83% de l'énergie primaire à l'échelle mondiale en 2005, ce qui ne représente qu'une baisse de 3,6% par rapport à 1973 [IEA, 2007], et 63,5% de l'électricité est produite à partir des énergies fossiles [Anderson et al., 2004]. La consommation totale d'énergie a très fortement augmenté (+70%) entre 1973 et 2005 et l'on prévoit une nouvelle augmentation de 60% de la demande énergétique d'ici 2030. Au vu des politiques énergétiques actuellement mises en place, l'Agence Internationale de l'Energie (IEA, International Energy Agency) prévoit que les combustibles fossiles resteront la principale source énergétique, fournissant encore 81% de l'énergie à l'horizon 2030.

Les ressources en énergies fossiles sont pourtant loin d'être illimitées et depuis le premier choc pétrolier l'idée d'un épuisement des réserves mondiales d'hydrocarbures s'est ancrée dans les esprits. Au rythme de consommation actuel, l'ASPO (Association for the Study of Peak Oil and Gas, 2002) estime que les ressources mondiales seront épuisées bien avant la fin de ce siècle. Cette diminution

des hydrocarbures disponibles s'accompagne naturellement d'une forte augmentation du prix de l'essence, qui, compte tenu de la place des hydrocarbures dans l'économie mondiale, se répercute sur le prix des matières premières et de tous les produits manufacturés. La forte demande énergétique des nouvelles puissances économiques (Chine, Inde,..) favorise le maintien de prix élevés. Le secteur des transports dont la part dans la consommation de produits pétroliers s'élevait à 60% en 2005 devrait être le premier touché par le manque d'hydrocarbures.

L'épuisement des ressources naturelles et les effets tangibles du dérèglement climatique ont fait prendre conscience de la nécessité d'inclure une dimension environnementale dans le modèle de croissance des pays développés, basé uniquement sur des critères économiques. En 1992, lors du Sommet de la Terre à Rio de Janeiro, l'adoption du programme 21 (Action 21) consacra le concept de *Développement Durable*. Selon la définition donnée dans le Rapport Brundtland (1987),

"Le Développement Durable est un développement qui répond aux besoins du présent sans compromettre la capacité des générations futures à répondre aux leurs."

L'objectif du Développement Durable est de définir des modes de vie conciliant le progrès économique, la justice sociale et la préservation de l'environnement (figure 1).

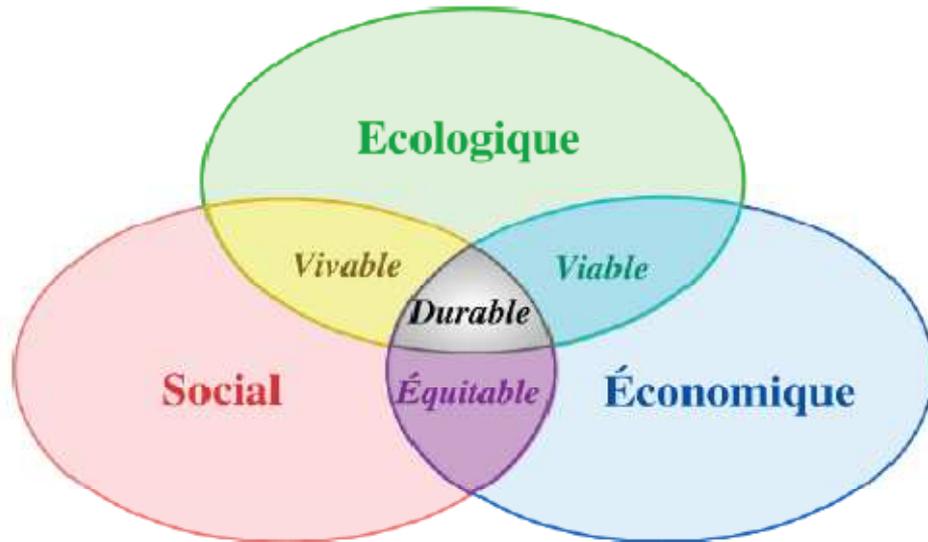


Figure 1 : Schéma du concept de *Développement Durable*

La réduction de la consommation en eau pour les activités industrielles et agricoles, une gestion plus raisonnée des déchets, et le développement d'alternatives énergétiques pour remplacer les hydrocarbures sont parmi les défis auxquels nous devons faire face dans les années à venir pour atteindre une forme de développement durable.

Le concept d'énergies renouvelables est à différencier de celui d'*énergies propres* qui ne prend en considération que les émissions de CO₂ et la quantité de déchets générés. Il existe une controverse sur les énergies hydro-électrique et nucléaire qui ne sont pas systématiquement classées dans la catégorie des énergies renouvelables, certains mettant en avant les nuisances écologiques causées par les grands barrages ou l'épineux problème des déchets nucléaires. Le rapport Observ'ER (2006) considère comme énergies renouvelables les sources suivantes : l'éolien, le photovoltaïque, le solaire thermique, la petite hydraulique, la biomasse solide, la géothermie, l'hélio thermodynamique, l'énergie marine, les biocarburants, le biogaz.

La valorisation de la biomasse renouvelable est l'une des voies les plus importantes pour lutter contre le réchauffement climatique. Gosh (1997) estime que la valorisation des déchets organiques et des effluents industriels permettrait une réduction de 20% du réchauffement climatique. On inclut sous l'appellation *biomasse* une grande variété de matériaux :

- déchets verts de l'agriculture et de la sylviculture,
- fraction fermentescible des ordures ménagères brutes,
- bois,
- cultures énergétiques agricoles,
- rejets d'élevages,
- rejets des industries agro-alimentaires (IAA), papeteries, tanneries,...

La biomasse peut être valorisée comme matière première dans l'industrie de la chimie où elle sert à produire des tensioactifs, résines, huiles essentielles... [AND International, 2007]. Un autre débouché est sa combustion directe pour produire de la chaleur et de l'électricité dans des chaudières ou des machines de cogénération, mais elle peut aussi au moyen de traitements biologiques (méthanisation) ou thermo-chimiques (transestérification, pyrolyse et gazéification) servir à produire des biocarburants comme le biodiesel ou le biogaz.

Un autre mode de valorisation de la biomasse repose sur sa décomposition, dans un environnement dépourvu d'oxygène, qui conduit à la formation d'un biogaz, composé majoritairement de méthane (40- 70%) et de dioxyde de carbone. Ce phénomène naturel, qui peut être observé dans les décharges d'ordures ménagères ou les marais, est appelé digestion anaérobie ou fermentation méthanogène. Il tire profit de la capacité de certains microorganismes à dégrader la matière organique en l'absence d'oxygène. Cette décomposition peut également s'effectuer de manière contrôlée dans des fermenteurs anaérobies. Le biogaz produit peut alors se substituer au gaz naturel pour de nombreuses applications :

- production de chaleur sous forme d'eau chaude ou de vapeur,
- production d'air chaud pour le séchage,
- production d'électricité par turbines ou moteurs à gaz,
- production combinée d'électricité et de chaleur par cogénération,

– utilisation comme carburant automobile.

Le traitement de déchets par méthanisation remonte à la fin du 19^e siècle en Inde. Historiquement, les fermenteurs méthanogènes étaient plutôt destinés à traiter des effluents liquides et le développement de procédés pour le traitement de solides et de déchets secs ne date que des années 1980 [Gijzen, 2002].

La variété des matériaux pouvant produire du biogaz par digestion anaérobie confère à la fermentation méthanogène une place unique dans le système de production de bioénergies, puisqu'elle permet la valorisation énergétique de déchets.

Comparée à la combustion ou à la gazéification, la méthanisation de la fraction organique des déchets urbains et ménagers permet de récupérer plus d'énergie elle présente aussi de nombreux avantages par rapport aux autres techniques de traitement des eaux usées et de déchets comme par exemple la digestion aérobie et les procédés à boues activées :

- Traitement d'effluents fortement concentrés en substrats difficilement dégradables,
- Dégradation des germes pathogènes qui se retrouvent sous forme concentrée dans les boues de station d'épuration (STEP),
- Faibles besoins énergétiques en comparaison de la digestion aérobie où l'apport d'oxygène pour la croissance des bactéries est énergétivore,
- Production réduite de boues dont le devenir est un des soucis majeurs pour les procédés à boues activées,
- **Production d'énergie** via la valorisation du biogaz.

La fermentation méthanogène apparaît être une meilleure solution que les procédés à boues activées en terme de bilan énergétique, ce qui encourage son utilisation pour le traitement de rejets fortement concentrés. Autre atout non négligeable, la digestion anaérobie permet la stabilisation des déchets organiques sous forme d'un digestat qui possède un fort pouvoir fertilisant.

Malgré une faible valorisation du gisement exploitable, il existe une véritable volonté de développer le biogaz en Europe. La rentabilité du traitement de la fraction solide des déchets urbains et ménagers explique l'accroissement du nombre d'unités de méthanisation (figure 2).

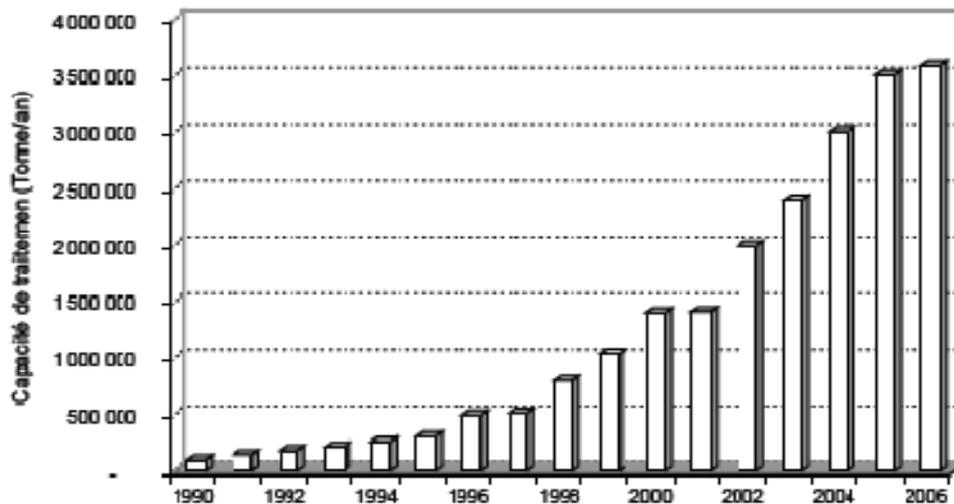


Figure 2: Capacité des installations de traitement anaérobie des déchets solides municipaux en Europe

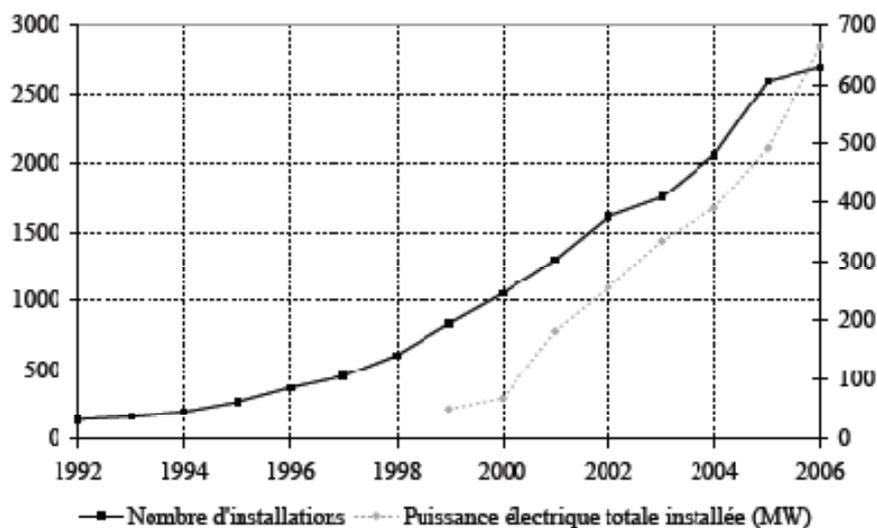


Figure 3: Boom de la digestion anaérobie en Allemagne

La première contrainte à satisfaire est sans conteste de garantir la pérennité et la stabilité des méthaniseurs dans le temps en dépit de variations et de perturbations,

en quantité et en qualité, des effluents à traiter. A l'heure actuelle la conduite des méthaniseurs est trop souvent effectuée manuellement, l'opérateur se fondant sur sa connaissance limitée du procédé [Vanrolleghem et Lee, 2003]. La solution courante qui consiste à faire fonctionner les digesteurs en sous-capacité entraîne une faible rentabilité de l'unité de traitement. La seconde approche, qualifiée de téméraire [Steyer et al., 2006], qui veut que la charge appliquée soit augmentée jusqu'aux premiers signes de déstabilisation du digesteur permet d'espérer une productivité de gaz supérieure. Cependant l'identification d'un dysfonctionnement n'est non seulement pas une tâche aisée, mais de plus elle nécessite un suivi en temps réel des variables du procédé. L'opérateur téméraire s'expose donc à des défaillances conduisant à des risques d'acidification pouvant peser lourd sur le plan financier.

Pour palier à toutes ces difficultés nous nous proposons de modéliser certains paramètres du processus sous environnement matlab.

Le modèle ADM1 très complexe réalisé par Batstone et al. En 2002, nous a permis de comprendre le process et d'utiliser le modèle AM2 plus simpliste [Bernard et al., 2001], basé sur l'estimation, l'observation, la commande ou le diagnostic du procédé. Ceci représente la première étape de notre étude. La nature du modèle à obtenir est bien entendu conditionnée par l'objectif pour lequel il va être destiné et l'expérimentation.

Notre travail a pour objectif d'effectuer des simulations numériques basées sur les équations du modèle AM2 et les résultats expérimentaux.

Les deux premiers chapitres sont une synthèse bibliographique concernant la digestion anaérobie et les principes de modélisation des bioprocédés de traitement des eaux et les modèles décrivant les réactions biologiques.

Dans le troisième chapitre nous décrivons le modèle AM2, ses hypothèses et ses équations obtenues par le principe de bilan de matière.

Dans le quatrième chapitre, sont estimés les paramètres du modèle à partir de données expérimentales à l'état d'équilibre.

Le cinquième chapitre porte sur les interprétations des résultats obtenus par la simulation numérique tout en les comparant aux résultats expérimentaux.

Des conclusions générales et des perspectives liées à notre travail concluent notre mémoire.

Chapitre I

La digestion anaérobie *Généralités*

La digestion anaérobie : Généralités

1. Introduction

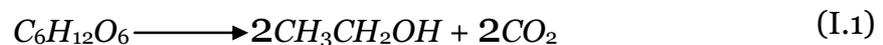
Le métabolisme énergétique cellulaire est lié à une succession de réactions d'oxydo-réduction couplées jusqu'à un accepteur final d'électrons. Les microorganismes disposent de deux voies pour produire de l'énergie ; soit par photosynthèse (organismes phototrophes), soit par une suite de réactions chimiques (organismes chimiotrophes), telles que la respiration ou la fermentation. Dans le cas des chimiotrophes, on parle de fermentation lorsque l'accepteur final d'électrons est un composé organique, et de respiration anaérobie lorsque l'accepteur final est un composé minéral oxygéné (nitrates, sulfates, carbonates,...).

Dans la suite le terme fermentation désignera un processus *anaérobie*, c'est à dire se déroulant dans un environnement exempt d'oxygène.

1.1. La découverte de la fermentation et du biogaz

La découverte et la maîtrise des techniques de fermentation sont intimement liées à la fabrication de la bière et du pain, qui ont suivi la mise en place des cultures de céréales ; les premières cultures céréalières dateraient de 8000 av. J.C. en Mésopotamie. Des tablettes sumériennes de 4000 av. J.C font référence au "pain liquide", ancêtre de la bière, et la corporation des boulangers existait déjà en Egypte ancienne vers 2700 av. J.C.

Si la fermentation fut rapidement maîtrisée, il fut pendant très longtemps impossible d'expliquer le phénomène. L'existence d'organismes invisibles à l'oeil nu était suspectée depuis longtemps, mais les bactéries ne purent être découvertes qu'en 1677 avec le premier véritable microscope, développé par Antoni van Leeuwenhoek. Ce furent ensuite les chimistes, Lavoisier en première ligne, et non les biologistes qui produisirent les premiers travaux scientifiques sur la fermentation alcoolique ; ainsi l'équation chimique globale du processus de fermentation alcoolique



a été faussement attribuée à Gay Lussac en 1815 (Barnett, 2003). Les véritables premières avancées vers la microbiologie moderne sont le fait d'observations au microscope ; la même année, en 1837, Cagniard- Latour, Theodor Schwann et Friedrich Traugott Kützing démontrèrent que la levure de bière est un organisme vivant.

Par la suite, les travaux de Pasteur sur la période 1857-1876 mirent fin à la polémique qui opposa durant la première partie du 19e siècle Jöns Jacob Berzelius et Theodor Schwann, qui affirmaient respectivement, que la fermentation était purement chimique pour l'un, et uniquement microbienne pour l'autre. Pasteur mit en évidence le rôle des levures dans les processus de fermentation lactique et alcoolique. Il montra aussi qu'à chaque fermentation correspondait un ferment particulier. Le développement des procédés de pasteurisation et de stérilisation, qui permirent la mise en place de cultures pures de microorganismes, devait marquer le début de la maîtrise industrielle de la fermentation, et les besoins en acétone durant la Première Guerre Mondiale accélérèrent le développement d'une industrie de la fermentation.

En parallèle de ces avancées en microbiologie survinrent les premières grandes découvertes sur le biogaz. En 1630 Jan Baptist van Helmont, surnommé le Leonard de Vinci bruxellois, découvre que la fermentation de la matière organique produit un gaz inflammable. Il faudra ensuite attendre 1776 et les vacances d'Alessandro Volta sur les rives du Lac Majeur pour que soit identifié le méthane qu'il appellera *gaz des marais* ; au cours d'une promenade en bateau il remarque qu'en remuant le fond du lac avec un bâton, des bulles de gaz remontent en surface. Il collectera une partie de ce gaz et montera qu'il est combustible. Il conclut également que le volume de gaz était proportionnel à la masse de matière en décomposition. Le terme de méthane ne sera proposé qu'en 1865 pour être définitivement accepté en 1892 lors d'un congrès international de nomenclature chimique.

La digestion anaérobie n'est autre que l'exploitation par l'homme d'un processus naturel, la fermentation méthanogène de la matière organique, c'est à dire une fermentation avec comme accepteur final d'électrons le (bio)méthane. Cette dégradation de matière organique en anaérobiose conduit à la formation d'un mélange gazeux composé essentiellement de méthane (CH_4) et de dioxyde de carbone

(CO₂), communément appelé biogaz. Concernant l'utilisation du biométhane, des preuves historiques suggèrent que 10 siècles av. J.C., les Assyriens s'en servaient pour chauffer l'eau de leur bain. De nombreux pays ont très tôt saisi l'intérêt de produire du biogaz pour prévenir une trop forte dépendance aux hydrocarbures chers. Ainsi l'Inde commença dès le début du 19^e siècle à produire du biogaz (mélange de biométhane et de dioxyde de carbone) ; la première unité de traitement de déchets pour produire du biogaz aurait été construite en 1859 dans une colonie de lépreux à Bombay (Meynell, 1976). Vers 1890-1895, Donald Cameron construisit une fosse septique pour la ville d'Exeter au Royaume-Uni. Le gaz produit était alors collecté et servait à l'éclairage public.

Vers la fin du 19^e siècle, Mitscherlich suggéra le rôle des microorganismes dans les réactions de dégradation de la cellulose et la production de méthane (Illinois State Water Survey Division, 1939). Les travaux en microbiologie conduisirent vers 1930 plusieurs scientifiques, dont Arthur M. Buswell, à la découverte des bactéries anaérobies, et au moyen de produire plus efficacement du biogaz. C'est également à cette époque que furent formulées les premières équations macroscopiques de dégradation de la matière organique par fermentation méthanogène.

1.2. Un système naturel complexe

Les bactéries méthanogènes sont présentes dans de nombreux écosystèmes naturels comme les fosses septiques, les marais et tourbières, en bien encore la toundra arctique, et même les appareils digestifs des ruminants (le rumen) ou des humains.

La fermentation méthanogène peut servir à traiter des rejets organiques, des eaux usées, ou encore des lisiers, des ordures ménagères... Plus de 140 espèces bactériennes [Godon et al., 1997] sont impliquées dans ce procédé pour dégrader la matière organique en biogaz. Les bactéries représentent une grande part de la flore microbienne anaérobie, mais d'autres organismes comme des protozoaires, des champignons ou des levures peuvent intervenir [Gaval et al., 2002]. Ce processus est tout particulièrement intéressant en raison du biométhane produit, qui est un gaz énergétique valorisable.

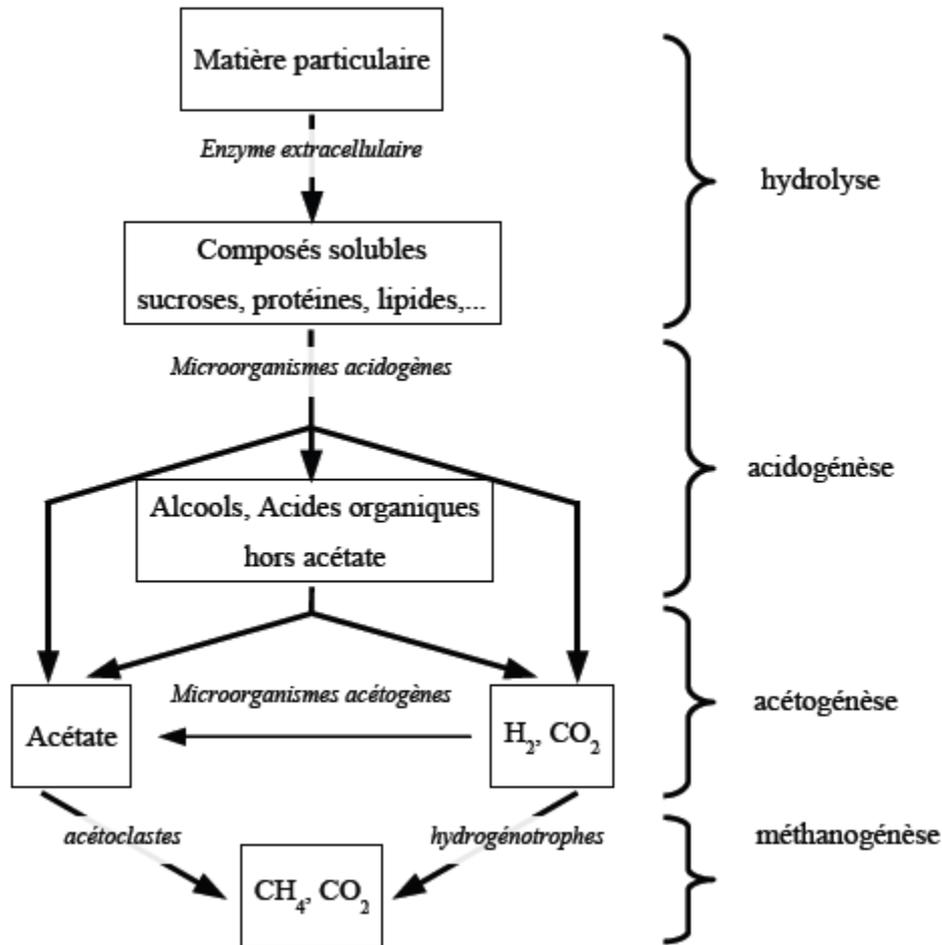


Figure I-1 : Schéma de la chaîne trophique des étapes de la fermentation [Sinechal et al.1979].

Les progrès en microbiologie ont permis d'étendre les connaissances sur le déroulement de la fermentation méthanogène, et la description du processus s'est compliquée au fur et à mesure. Andrews (1968) choisit de représenter la fermentation méthanogène uniquement par l'étape finale de méthanogénèse (voir figure I-1). Un peu plus tard Graef et Andrews (1973) inclurent également l'étape d'acidogénèse dans leur description macroscopique de la fermentation. D'autres auteurs, Hill et Barth (1977) Boone et Bryant (1980) ont choisi d'ajouter une étape initiale d'hydrolyse dans leur description et obtinrent un processus en trois étapes. La prise en compte de compétitions entre espèces bactériennes pour l'utilisation des différents substrats conduit à considérer des schémas réactionnels plus complexes, par exemple avec neuf mécanismes réactionnels [Hall et al., 1992 ; Kalyuzhnyi et al., 1998].

On considère souvent un niveau de description à quatre étapes principales (figure I-1), impliquant quatre groupes de microorganismes spécifiques, où les composés intermédiaires des premières étapes servent de substrats pour les étapes suivantes [Sinechal et al., 1979 ; Mosey, 1983] :

1. hydrolyse,
2. acidogénèse,
3. acétogénèse,
4. méthanogénèse.

Ces quatre étapes principales sont présentées et détaillées dans la suite de ce chapitre.

2. Microbiologie de la digestion anaérobie

2.1. Hydrolyse

Au cours de l'étape d'hydrolyse, les macromolécules complexes sont solubilisées sous l'action d'enzymes extracellulaires excrétées par des bactéries anaérobies strictes (*Clostridium* pour la dégradation de cellulose, amidon) ou facultatives aérotolérantes (*Bacillus* pour la dégradation de protéines). Les composés particuliers sont scindés en monomères (ou dimères) de taille suffisamment petite pour pouvoir être transportés au travers de la membrane cellulaire. Une fois dans la cellule ces molécules simples pourront être utilisées comme source d'énergie pour le métabolisme [Zeikus, 1980 ; Parawira et al., 2005].

Lorsque l'on s'intéresse à la méthanisation de déchets complexes contenant des fractions solides, par exemple de la cellulose [Siegert et Banks, 2005], l'hydrolyse devrait être considérée comme l'étape cinétiquement limitante [McCarty et Mosey, 1991 ; Veeken et al., 2000]. On peut schématiser les réactions d'hydrolyse enzymatique comme suit, en considérant la dégradation de cellulose en glucose, où les enzymes joueraient le rôle de catalyseur [Illinois State Water Survey Division, 1939] :



2.2. Acidogénèse

Dans une seconde étape, les monomères issus de l'hydrolyse, ainsi que les composés dissous, servent de substrats à des microorganismes fermentaires qui les dégradent principalement en acides de faibles poids moléculaires comme les acides gras volatils [AGV] tels que propionate, butyrate, valérate, mais également en pyruvate, lactate, ou en alcools tels que le méthanol, l'éthanol, ... [Mosey, 1983 ; McCarty et Mosey, 1991]. L'éthanol et le lactate qui sont produits par des voies métaboliques moins intéressantes énergétiquement ne sont généralement pas synthétisés à l'équilibre [Dinopoulou et al., 1987]. Du gaz carbonique et du dihydrogène sont également produits au cours de ces réactions.

Les microorganismes réalisant cette étape peuvent aussi bien être anaérobies facultatifs (du genre *Acetobacter* ou *Streptococcus*) que strictement anaérobies (*Clostridium*). Leur taux de croissance très élevé, de l'ordre de 48 jours⁻¹ [Mosey, 1983], est responsable, dans le cas d'une surcharge organique, de l'accumulation de composés intermédiaires comme l'acétate ou l'hydrogène, qui peuvent inhiber les flores acétogènes et méthanogènes.

En considérant le glucose comme substrat de référence on représente l'acidogénèse par les équations du tableau I-1.

Tableau I-1 Produits de la dégradation du glucose.

Produits	Réaction	
Propionate	$C_6H_{12}O_6 + 2H_2 \longrightarrow 2CH_3CH_2COOH + 2H_2O$	(I.3)
Butyrate	$C_6H_{12}O_6 \longrightarrow CH_3CH_2CH_2COOH + 2H_2 + 2CO_2$	(I.4)
Ethanol	$C_6H_{12}O_6 \longrightarrow 2CH_3CH_2OH + 2CO_2$	(I.5)
Lactate	$C_6H_{12}O_6 \longrightarrow 2CH_3CHOHCOOH$	(I.6)

D'après l'IWA Task Group for Mathematical Modelling of Anaerobic Digestion Processes (2002), la réaction I.3 ne serait jamais observée et il faudrait à la place considérer la production couplée de propionate et d'acétate selon la réaction (I.7).



2.3. Acétogénèse

Les produits de l'hydrolyse et de l'acidogénèse (acides, sucres, alcools,...) sont réduits en acétate, hydrogène et dioxyde de carbone par un groupe hétérogène de trois populations bactériennes :

- les acétogènes syntrophes productrices d'hydrogène ; *Syntrophomonas, wolfei, Syntrophobacter, ...*
- les bactéries acétogènes non-syntrophes parmi lesquelles on distingue :
 - les bactéries fermentatives acétogènes ; *Selomonas, Clostridium, Ruminococcus...*
 - les acétogènes hydrogénotrophes ou homoacétogènes ; *Acetogenium, Acetobacterium, Clostridium...*

Acétogénèse productrice d'hydrogène

Cette phase fait appel à un groupe de bactéries dites OHPA (Obligate Hydrogen Producing Acetogens), qui produisent de l'acétate et de l'hydrogène à partir d'acides. Ces organismes furent initialement mis en évidence par Stadtman et Barker (1951), qui, au moyen de cultures pures, découvrirent deux bactéries méthanogènes dégradant les acides gras volatils par oxydation, qu'ils nommèrent *Methanobacterium propionicum* et *Methanobacterium suboxydans*. Le tableau I-2 représente certaines réactions de dégradation possibles.

Tableau I-2 Réactions d'acétogénèse avec production de dihydrogène et de formate.

Substrat	Réaction
Propionate	$CH_3CH_2COOH + 2H_2O \longrightarrow CH_3COOH + 3H_2 + CO_2$ (I. 8)
	$CH_3CH_2COOH + 2H_2O + 2CO_2 \longrightarrow CH_3COOH + 3H_2 + 3HCOOH$ (I. 9)
Butyrate	$CH_3CH_2CH_2COOH + 2H_2O \longrightarrow 2CH_3COOH + 2H_2$ (I. 10)
	$CH_3CH_2CH_2COOH + 2H_2O + 2CO_2 \longrightarrow 2CH_3COOH + 2H_2 + 2HCOOH$ (I. 11)
Ethanol	$CH_3CH_2OH + H_2O \longrightarrow CH_3COOH + 2H_2$ (I. 12)
Lactate	$CH_3CHOHCOOH + H_2O \longrightarrow CH_3COOH + 2H_2 + CO_2$ (I. 13)

Acétogénèse non-syntrophes

Le terme homoacétogène s'applique aux bactéries strictement anaérobies qui produisent majoritairement de l'acétate, et peuvent également utiliser le CO_2 (équation I.16) comme accepteur final d'électron. Ces organismes non-syntrophes sont capables de croître aussi bien de façon autotrophe (bactéries lithotrophes), qu'hétérotrophe ou mixotrophe. On trouve ce type de microorganismes essentiellement dans les milieux à forte concentration en CO_2 .

Reaction homoacétogénèse lithotrophe



- Homoacétogénèse fermentative.



2.4. Méthanogénèse

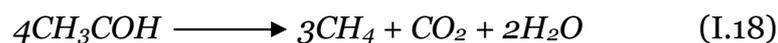
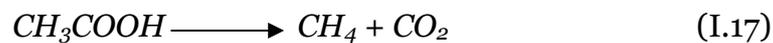
La méthanogénèse constitue l'étape de réduction finale du processus de méthanisation. Elle est considérée comme l'étape limitante dans le processus de dégradation des composés dissous [Kaspar et Wuhrmann, 1978]. La méthanogénèse est réalisée par une classe spécifique de bactéries anaérobies strictes, les *Archae*, qui peuvent utiliser divers substrats comme l'acétate, le dioxyde de carbone et l'hydrogène, ou encore, pour certaines espèces, le méthanol, les méthylamines ou le formate [Braun, 2007]. Au sein de cette classe on distingue deux familles responsables de la synthèse de méthane :

- les méthanogènes acétoclastes, également appelés acétotrophes,
- les méthanogènes hydrogénéophiles, ou hydrogénéotrophes.

Bactéries méthanogènes acétoclastes

Ces organismes peuvent produire du méthane à partir de nombreux substrats comportant un groupement méthyle comme l'acétate, le méthanol mais également des (n)-méthylamines [Hippe et al., 1979 ; Nishio et al., 1984]. *Methanosarcina* sp. et *Methanotrix* sp. sont les espèces bactériennes connues capables de dégrader l'acétate [Zinder et Elias, 1985].

Le processus de dégradation de l'acétate contribue à lui seul à environ 70% du méthane produit [Smith et Mah, 1966] ; plus particulièrement Stadtman et Barker (1951) ont montré que le méthane provenait du groupement méthyle de l'acétate, du méthanol ou des méthylamines, et que ce groupement était transféré en bloc, selon les schémas réactionnels suivant :



L'utilisation de l'un ou l'autre de ces substrats est avant tout contrôlée par la disponibilité et la concentration de ceux-ci ; en effet la croissance sur l'acétate n'est possible qu'au dessus d'une concentration seuil, différente pour chaque espèce.

Bactéries méthanogènes hydrogénotrophes

Les bactéries hydrogénotrophes contribuent au reste de la production de méthane (environ 30%) en réduisant le couple H_2/CO_2 ou le formate en méthane. Toutes les bactéries méthanogènes sont capables de réduire H_2/CO_2 mais seulement certaines espèces dégradent également le formate.

Tableau I-3 Réactions de transfert inter-espèces du H_2 et du formate

Substrat	Réaction
H_2/CO_2	$4H_2 + CO_2 \longrightarrow CH_4 + 2H_2O$ (I. 19)
Formate	$4HCOOH + 2H_2O \longrightarrow CH_4 + 2H_2O + 3CO_2$ (I. 20)

3. Physico-chimie de la digestion anaérobie

La méthanogénèse est influencée par de nombreux facteurs environnementaux comme le pH, la température, les nutriments, les composés toxiques ou inhibiteurs [Hall et al., 1992].

3.1. Température

On répartit les organismes en trois catégories, selon la plage de températures à laquelle leur croissance est optimale :

- les psychrophiles dominant entre 4-20°C, avec un optimum de croissance vers 15°C,
- les sub-mésophiles et mésophiles dominant entre 20-45°C avec un optimum vers 37°C
- les thermophiles dominant entre 55-70°C, avec un optimum vers 60°C.

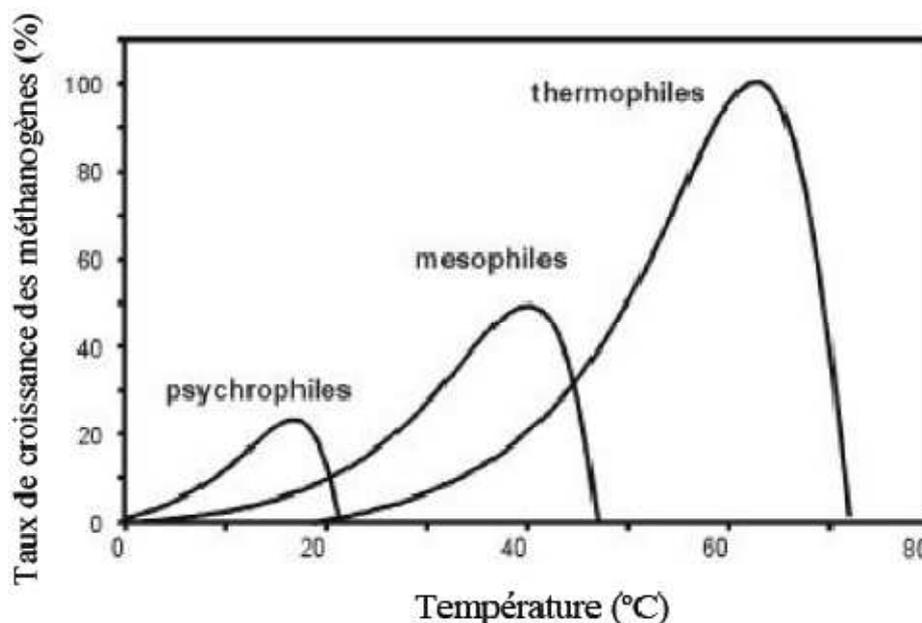


Figure I-2 : Effet de la température sur le taux de croissance des méthanogènes (extrait de IWA Task Group for Mathematical Modelling of Anaerobic Digestion Processes, 2002).

La figure I-2 montre les plages de températures où la croissance de ces trois populations est possible. La dépendance des taux de croissance à la température obéit à la loi d'Arrhénius, jusqu'à la température optimale, puis chute brutalement. La température peut affecter les réactions biochimiques au travers des cinétiques bactériennes. Plus spécifiquement, l'activité enzymatique reste faible jusqu'à une température minimale, puis augmente avec la température jusqu'à la température optimale. Aux températures extrêmes, les enzymes sont dénaturées et le taux de croissance des bactéries décroît. Córdoba et al. (1988) ont ainsi montré que la température améliorait les rendements épuratoires et la production de méthane. Dinopoulou et al. (1987) en s'intéressant plus particulièrement à l'acidogénèse ont constaté que le rendement d'acidification était croissant avec la température.

Karakashev et al. (2005) ont étudié l'effet de la température sur la complexité de l'écosystème méthanogène. Ils ont pu montrer que les réacteurs mésophiles présentaient une diversité bactérienne supérieure à celle des réacteurs thermophiles.

3.2. pH et alcalinité

Les organismes peuvent être séparés en fonction de leur pH optimal de croissance :

- les acidophiles : $1 < \text{pH} < 5,5$.

- les neutrophiles : $5,5 < \text{pH} < 8$.
- les alcalophiles : $8,5 < \text{pH} < 11,5$.

On considère habituellement que la gamme optimale de pH pour la digestion anaérobie se situe entre 6,7 et 7,3 [Barker, 1943 ; Braun, 2007]. Un écart du pH de cette gamme est en général le signe d'un mauvais fonctionnement du digesteur, et d'une accumulation d'acides ou de composés alcalins.

Un procédé opérant à un pH trop bas (en deçà de pH 4) ou trop élevé (au dessus de pH 9) aura tendance à inhiber l'activité bactérienne. La variation de la croissance bactérienne est liée à un changement d'activité enzymatique avec le pH ; le site réactionnel des enzymes comporte souvent des espèces ioniques, et un changement du pH du milieu de croissance modifiera la structure spatiale de l'enzyme ce qui la rendra inefficace [Bailey et Ollis, 1986]. C'est pour cette raison qu'il est conseillé de maintenir le pH d'un digesteur dans la gamme optimale pour la méthanisation.

Certains auteurs ont cependant mis en évidence l'adaptation de populations anaérobies à des pH inférieurs à 5. Jain et Mattiasson (1998) ont étudié l'adaptation d'une culture de bactéries méthanogènes à des pH aussi bas que 4. Ils ont montré que la production de méthane était fortement ralentie mais pas stoppée, et le rendement méthane restait suffisamment élevé (au minimum 16% de la situation de référence à pH=7) pour envisager de nouvelles perspectives pour le traitement d'effluents très acides comme les effluents de papeteries.

Le pH est fortement lié à l'alcalinité que l'on associe au pouvoir tampon, c'est à dire la capacité du milieu à absorber les protons. L'expression de l'alcalinité découle de l'équation d'électroneutralité de la phase liquide [Heinzle et al., 1993] :

$$\sum_i (\text{Cat}_i^+ \times \text{charge}_i) = \sum_j (\text{An}_j^- \times \text{charge}_j) \quad (1.21)$$

Dans la gamme de pH usuelle en digestion anaérobie (proche de la neutralité), les acides forts et bases fortes se retrouvent entièrement sous forme dissociée, et les bases et acides faibles sont partiellement dissociés. Les principaux couples acide/base à considérer sont pour un pH proche de 7 : $\text{CO}_2/\text{HCO}_3^-$;

HCO_3^- / CO_2^{-3} ; HAc / Ac^- ; H^+ / H_2O ; H_2O / OH^- . Le terme *HAc*, englobe les différents couples des acides faibles. L'équation (1.19) peut alors se réduire à l'équation suivante (Graef et Andrews, 1973) :

$$\sum_i (Cat_{i,autre}^+ \times charge_{i,autre}) = \sum_j (AN_{j,autre}^- \times charge_{j,autre} + Ac^- + HCO^-) \quad (1.22)$$

Les cations (K^+ , Ca^+ , Na^+ , NH_4^+ ...) et les anions (Cl^- , PO_4^{3-} , SO_4^{2-} , ...) proviennent majoritairement des acides forts et des bases fortes, et ils ne sont pas consommés au cours de la dégradation de la matière organique. De ce fait leur concentration varie peu sans apport extérieur, et on calcule l'alcalinité Z par l'équation 1.20.

$$Z = \sum_i (Cat_{i,autre}^+ \times charge_{i,autre}) - \sum_j (An_{j,autre}^- \times charge_{j,autre}) = Ac^- + HCO^{-3} \quad (1.23)$$

3.3. Les nutriments

La matière vivante est majoritairement composée d'atomes de carbone, d'hydrogène, d'oxygène, d'azote, de phosphore et de soufre. Ces constituants élémentaires doivent être présents dans le substrat selon les proportions de la formule empirique de la biomasse $C_2H_7O_2NP_{0.06}S_{0.1}$ [Braun, 2007]. Un déséquilibre de ces proportions dans le milieu risque de retarder la croissance bactérienne et donc de ralentir le processus global.

La charge en polluants organiques est habituellement mesurée par la demande chimique en oxygène (DCO), qui représente l'oxygène nécessaire à l'oxydation complète des substances organiques et minérales de l'eau par des oxydants chimiques forts. En règle générale les quantités de carbone à éliminer sont trop importantes pour qu'il y ait un équilibre C :N :P :S. Par exemple les effluents d'abattoir ou la biomasse végétale présentent des surplus en azote, alors que les effluents de papeterie sont plus pauvres en N. Il est possible de contrebalancer cette carence en apportant de manière contrôlée une solution de macro-nutriments ou en ayant recours à la co-digestion. Les proportions minimales peuvent être estimées à partir de la formule empirique ; l'azote représente environ 12% de la biomasse totale, le phosphore 1,5%, et on considère habituellement que 10% de la charge traitée sert à la croissance bactérienne (rendement de croissance de 0,1g de biomasse par gramme de DCO traité). Les quantités minimales en azote, phosphore, soufre se calculent comme suit :

Charge organique	5000 mgDCO.L ⁻¹
Rendement épuratoire	80%
Charge éliminée	$0,8 \times 5000 = 4000$ mgDCO.L ⁻¹
Biomasse formée	$0,1 \times 4000 = 400$ mg.L ⁻¹
Azote requis	$0,12 \times 400 = 48$ mg.L ⁻¹
Phosphore	$0,015 \times 400 = 6$ mg.L ⁻¹

Cependant le rendement épuratoire dépend de la configuration du procédé et les rendements de croissance peuvent varier. Les proportions idéales sont donc difficiles à quantifier. Hall et al. (1992) rapportent que des rapports DCO:N de 400 :7 et 1000 :7 sont suffisants pour le traitement de faibles et fortes charges, et que le rapport N :P doit être supérieur à 7. Moletta (2005) et Braun (2007) évoquent quant à eux un rapport DCO:N :P minimal de 800 :5 :1.

En dehors de ces macro-nutriments, les bactéries anaérobies ont besoin d'un grand nombre de micronutriments tels que des vitamines, des acides aminés. Seuls certains microorganismes méthanogènes comme *Methanobacterium thermoautotrophicum* sont capables de synthétiser l'ensemble de leurs composants cellulaires uniquement à partir d'un milieu inorganique [Murray et Zinder, 1985]. Pour les autres espèces le milieu de croissance doit contenir entre autres, des sels minéraux, et des vitamines [Zeikus, 1977].

4. Les procédés de la digestion anaérobie

4.1. Généralités

4.1.1. Avantages et limites de la digestion anaérobie

La digestion anaérobie constitue un moyen efficace pour traiter des eaux usées, des boues de stations d'épuration, des rejets de l'industrie agro-alimentaire, ou encore des déjections animales,... Différentes technologies de méthanisation ont été développées pour s'adapter au mieux aux effluents à traiter, pour simplifier le

procédé et en minimiser le coût, ou pour optimiser la production de biogaz. Le traitement d'effluents par digestion anaérobie présente de nombreux avantages par rapport à la technologie aérobie qui est plus largement répandue :

- **faible production de boues** ; la fermentation méthanogène produit en quantité 5 à 10 fois moins de biomasse que les procédés à boues activées (voir figure 1-3),
- **traitement des charges organiques élevées** ; de 2 à 80 kg DCO par mètre cube de réacteur et par jours, avec des rendements épuratoires de plus de 80%,
- **faible coût énergétique** ; contrairement aux procédés aérobies, il ne faut pas transférer de l'oxygène au milieu, action qui consomme beaucoup d'énergie,
- **valorisation énergétique** ; le biogaz produit peut servir de carburant.

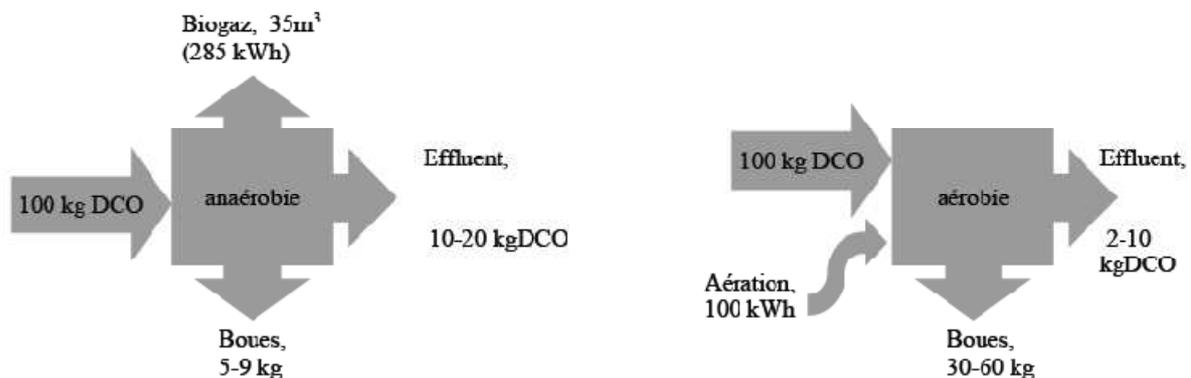


Figure I-3 : Comparatif des procédés anaérobie et à boues activées.

Cependant la méthanisation des déchets présente également certains inconvénients en comparaison aux procédés à boues activées :

- la faible vitesse de croissance des bactéries anaérobies impose une cinétique d'épuration lente,
- les populations bactériennes mises en jeu sont sensibles aux surcharges organiques et aux composés toxiques,

- une réputation d'instabilité liée à la sensibilité de la dynamique de croissance des bactéries,
- un post-traitement aérobie peut être nécessaire avant de rejeter l'effluent dans le milieu naturel.

4.1.2. Choix et dimensionnement d'un digesteur

Avant d'investir dans un procédé de digestion anaérobie il est essentiel d'effectuer une étude technico-économique. De nombreux paramètres sont à prendre en compte pour le dimensionnement d'un digesteur : la nature de l'effluent à traiter (solide, soluble,...), sa concentration (charge organique), le rendement épuratoire attendu, le mode de valorisation du biogaz,....

Pour assurer un fonctionnement optimal du digesteur il est nécessaire de déterminer certains critères.

La charge volumique appliquée ($CV A$) correspond à la charge organique traitée par jour et par unité de volume du digesteur. Ce paramètre doit être choisi pour assurer un effluent de sortie de qualité satisfaisante (en termes de charge organique restante). On définit la $CV A$ au moyen de la formule suivante,

$$CV A = \frac{DCO \times Q}{V}$$

Où :

- DCO est la concentration du substrat dans l'effluent à traiter,
- Q est le débit d'alimentation du bioréacteur,
- V est le volume du digesteur.

La DCO et le débit Q sont généralement imposés, ou tout du moins ils ne peuvent être choisis que dans une gamme restreinte. Une fois ces deux grandeurs et le rendement épuratoire déterminés il est possible de calculer le volume qui permettra de traiter dans de bonnes conditions la $CV A$ voulue.

En règle générale la concentration de l'effluent à traiter n'est pas le paramètre limitant et les procédés anaérobies s'accommodent de charges élevées (plus de 20 kg

DCO.m⁻³). Des procédés dits intensifs ont également été développés pour permettre le traitement de charges élevées avec de forts débits d'alimentation.

Le taux de dilution ($\frac{Q}{V}$), qui est l'inverse du temps de séjour hydraulique (TSH), doit être suffisant pour permettre la croissance des populations bactériennes. Selon la technologie utilisée pour le réacteur il sera différemment relié au temps de séjour des solides (TSS). L'inégalité représente une contrainte à respecter pour dimensionner le réacteur ; la technologie employée et les conditions appliquées doivent garantir un temps de séjour des solides supérieur au plus grand temps de doublement des populations bactériennes. Le non respect de cette contrainte entraîne la diminution progressive de la biomasse dans le réacteur ; on parlera alors de *lessivage*.

4.2. Mode d'alimentation des réacteurs de fermentation

Le mode opératoire des réacteurs batch est très simple puisque le digesteur est rempli avec la matière organique à traiter qui est laissée dans le réacteur jusqu'à l'épuisement du substrat à dégrader. Le temps de digestion est fonction de divers paramètres comme la température ou le type de substrat. Une fois la digestion effectuée, le digesteur est vidé et un nouveau cycle peut commencer.

Cette technique a l'avantage d'être simple et robuste ; lorsque l'objectif est la production de biomasse, la biomasse initiale est choisie faible. Le temps-mort nécessaire à l'initiation de la réaction après la vidange et le remplissage de la cuve, est un inconvénient de ce type de procédé.

Dans un réacteur continu la cuve est alimentée avec un débit constant, et le digestat est évacué par une action mécanique. Cette technologie est idéale pour les installations de grandes tailles. Les réacteurs utilisés peuvent être disposés aussi bien verticalement qu'horizontalement, et il existe également des procédés multi-cuves.

Le fermenteur semi-continu (appelé également fed-batch ou sequencing-batch reactor [SBR]), à mi-chemin entre ces deux technologies, cherche à associer les avantages de chacune d'entre-elles. Ce procédé fonctionne par cycles ; la cuve est remplie progressivement en fonction de l'avancement de la réaction pour éviter une surcharge organique et garantir des conditions de croissance optimales. A la fin de la

digestion une phase de décantation permet de séparer la phase liquide de la biomasse en suspension. Une partie du surnageant (de l'ordre de 10%) est évacué au cours de l'étape de vidange.

Les procédés SBR s'attachent à maintenir une concentration assez élevée en biomasse dans le digesteur.

Cette méthode est intéressante lorsque l'effluent à traiter présente un caractère inhibiteur. Elle est aussi bien adaptée à la digestion des déchets solides ; il est en effet plus difficile d'assurer un mélange homogène dans un digesteur continu, alors que ce point est essentiel pour assurer un contact optimal entre la biomasse et le substrat.

Une grande partie des bioréacteurs industriels sont continus et les sections suivantes concernent uniquement cette famille de digesteurs.

4.3. Solutions technologiques pour les réacteurs biologiques

4.3.1. Les digesteurs à cellules libres

Ces réacteurs continus sont parmi les plus anciens et les plus simples. Ici la biomasse est en suspension dans le réacteur. Parmi ces fermenteurs on trouve les réacteurs infiniment mélangés, appelé également CSTR (Continuous Stirred Tank Reactor), dans lesquels un brassage continu assure l'homogénéité du milieu, ce qui favorise le contact entre la biomasse et le substrat.

4.3.1.1. Digesteurs infiniment mélangés

Le mélange dans le digesteur peut être assuré mécaniquement par un système de pâles, ou bien en recirculant le contenu du digesteur. Une dernière solution consiste à réinjecter le biogaz au bas du réacteur (voir figure 1-4). Un mélange incomplet favorise l'accumulation de matière particulaire ce qui à long terme risque de diminuer le volume utile et de réduire les performances du procédé.

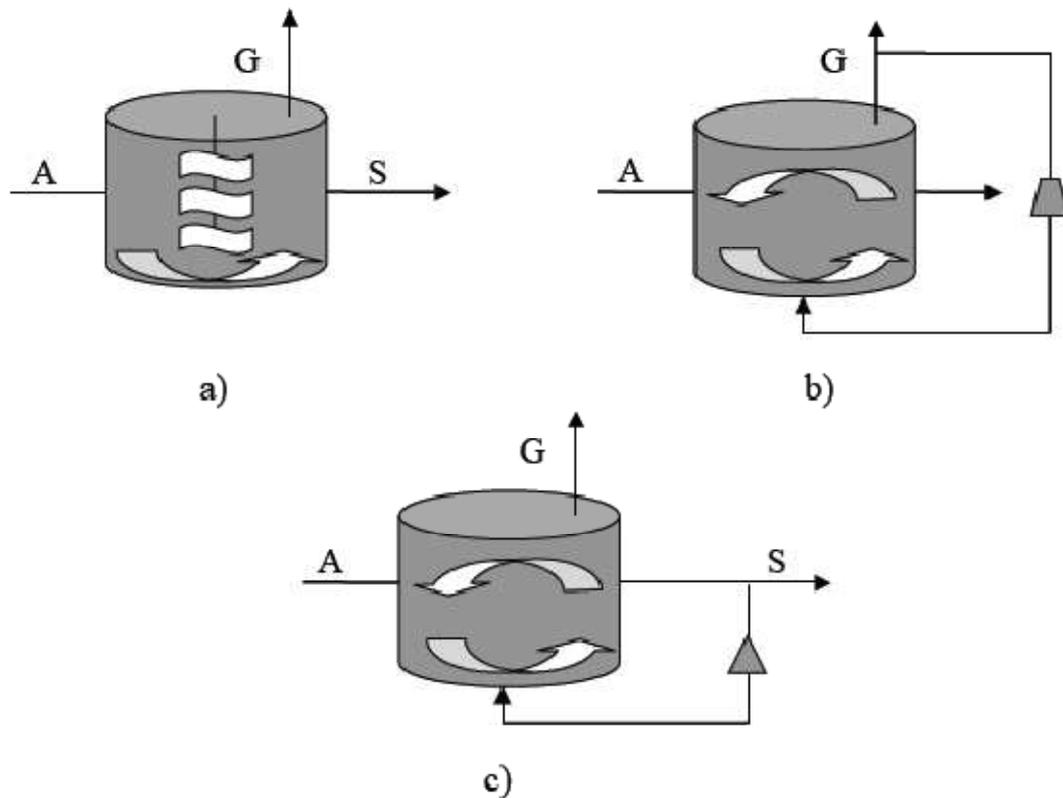


Figure I-4 : Schéma d'un digesteur infiniment mélangé : a) mécaniquement par pâles, b) par compression et recirculation du biogaz, c) par recirculation du milieu. A : alimentation, S : sortie, G : biogaz.

L'inconvénient majeur de ce type de digesteur est que le temps de séjour de la biomasse (TSS) est strictement égal au temps de séjour hydraulique (TSH). Compte-tenu de la lente croissance des organismes méthanogènes cette technologie limite donc les débits qui peuvent être appliqués en entrée du digesteur.

4.3.1.2. Digesteurs à contact

L'augmentation de la quantité de biomasse dans le digesteur permet d'améliorer la performance du système et ainsi d'accroître les débits entrant et sortant ou de réduire le volume de la cuve. Des technologies ont été développées pour découpler le temps de séjour hydraulique de celui des solides et favoriser l'accumulation de biomasse. La solution la plus simple consiste à placer en sortie du digesteur un système pour séparer la biomasse de l'effluent, et à recirculer la biomasse concentrée. La récupération de la matière particulaire du digestat peut se faire à l'aide d'un

décanteur ou bien grâce à une membrane. L'ajout de coagulants dans le décanteur peut faciliter la formation d'agrégats ou de floccs.

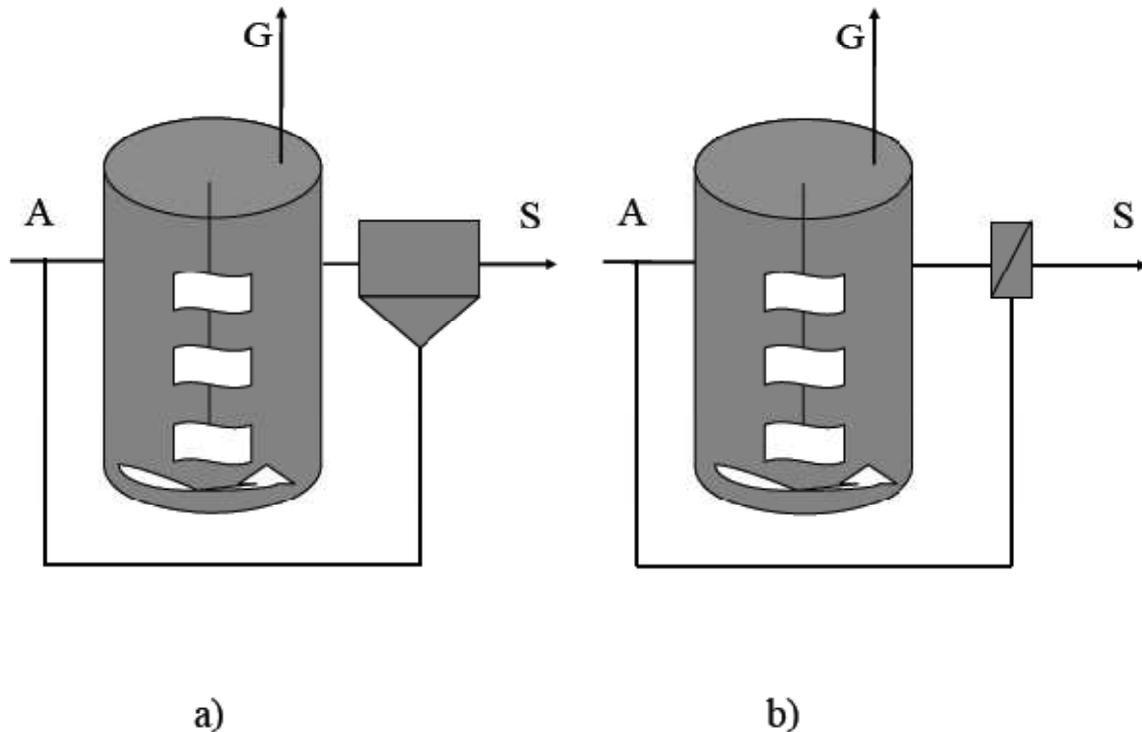


Figure I-5 : Schéma d'un digesteur à contact où la rétention est assurée par a) décanteur, b) membrane. A : alimentation, S : sortie, G : biogaz.

4.3.2. Les digesteurs à biofilm et à granules

Un biofilm est un groupe de microorganismes inclus dans une matrice de polymères biologiques. Les espèces qui composent le biofilm adhèrent entre elles et forment dans ce cas des granules. Les microorganismes peuvent également se développer sur un support mobile ou fixe. L'attachement de la biomasse permet d'appliquer des débits importants sans risquer de lessiver la biomasse ; ces digesteurs sont donc plus robustes face à des chocs hydrauliques que les réacteurs à cultures libres.

4.3.2.1. Réacteurs à lit fixe

Les digesteurs à lit fixe ont été développés vers la fin des années soixante sur la base des filtres aérobies.

Le réacteur est rempli d'un support inerte de nature variée (roche, verre, plastique,...) et pouvant se présenter sous différentes formes (lamelles, grille,...) sur lequel la biomasse peut se développer. L'alimentation se fait aussi bien par flux ascendant que descendant et l'effluent à traiter passe au travers du "filtre" formé par le support et la biomasse qu'il contient. Une grande partie de la biomasse présente est en réalité coincée entre les interstices du support plus que réellement attachée.

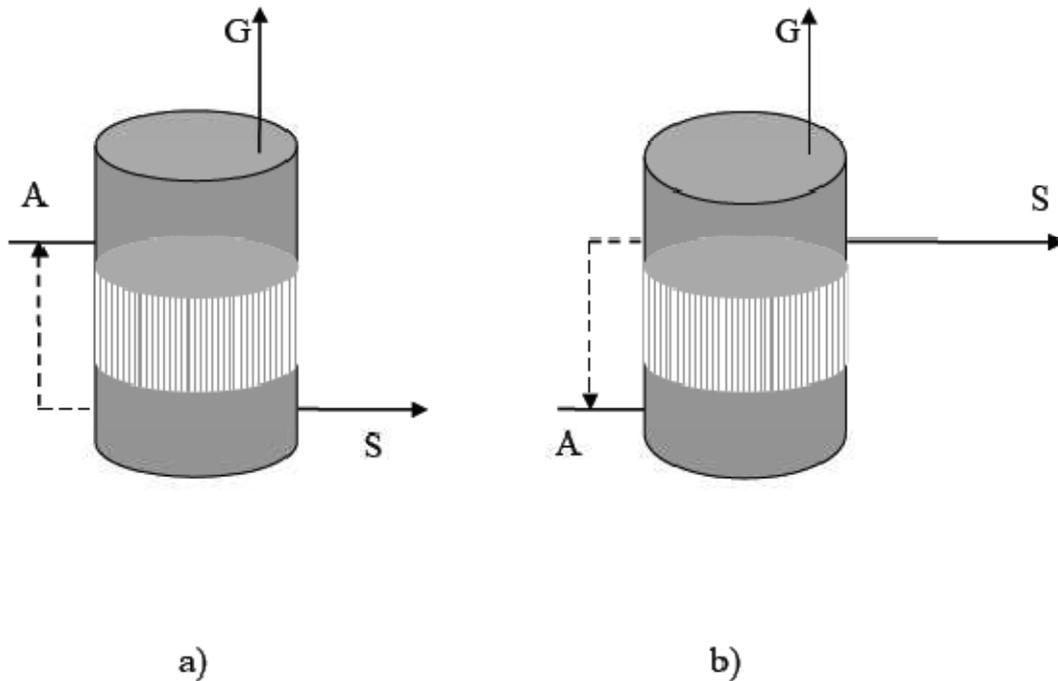


Figure I-6 : Schéma d'un digesteur à lit fixe : a) à flux descendant, b) à flux ascendant. A : alimentation, S : sortie, G : biogaz.

Ce procédé facile à mettre à place est intéressant car il nécessite moins de mélange, et est particulièrement robuste aux surcharges organiques. Cependant les risques de colmatage du support par la matière particulaire sont assez importants. L'application d'un flux descendant et la recirculation du biogaz sont fréquemment appliqués pour faciliter l'élimination du surplus de biomasse libre (non attachée au support), limitant ainsi les risques de bouchage. Ces méthaniseurs sont donc plus orientés vers le traitement d'effluents liquides à faibles proportions de matière en suspension. Pour éviter que ne se développent des chemins d'écoulements préférentiels, il est conseillé de choisir un support orienté offrant un grand rapport surface/volume, ce qui permet

le développement d'un biofilm important tout en laissant de la place à l'écoulement de la matière particulaire.

4.3.2.2. Réacteurs UASB

Ce procédé fut développé vers la fin des années 1970 par Gätze Lettinga et ses collaborateurs en parallèle avec des chercheurs d'Afrique du Sud lorsqu'ils travaillaient sur des systèmes de filtres anaérobies. Au cours de leurs recherches, ils ont remarqué que la biomasse libre avait tendance à former d'elle-même des granules d'un diamètre équivalent de quelques millimètres. Ils ont donc proposé d'utiliser cette autofloculation pour garantir un temps de séjour de la biomasse élevé sans utiliser un support.

Le procédé, basé sur ce principe, le plus répandu est le digesteur UASB (pour Upflow Anaerobic Sludge Blanket), où le flux ascendant équilibre la tendance des agrégats à sédimenter, et assure la mise en suspension de la biomasse. Un système de séparation liquide/gaz/solide placé au sommet du digesteur permet de retenir la biomasse dans le réacteur. La recirculation sert à agiter et à homogénéiser le milieu.

Les réacteurs à lit de boues expansé EGSB (pour Expanded Granular Sludge Bed) sont des digesteurs UASB dans lesquels le flux ascendant est nettement supérieur ce qui augmente la hauteur du lit de boue. Dans ce cas la cuve est plus haute, et le diamètre moindre.

Si les problématiques de l'hydrodynamique, des transferts de masse, du mélange du milieu dans un réacteur UASB sont grandement compris, la maîtrise du développement du biofilm reste un grand défi pour l'ingénierie des procédés à granules.

La structure microbienne des floes est complexe : des microorganismes fermentaires et méthanogènes syntrophes s'y retrouvent piégés ce qui réduit la distance les séparant. Il a été montré que cette proximité facilite les transferts inter-espèces d'hydrogène et de métabolites qui doivent s'opérer tout au long de la chaîne trophique méthanogène.

4.3.3. Réacteurs à support mobile

Les fermenteurs à support mobile constituent la dernière génération de digesteurs à biomasse fixée.

Ils ont été développés pour combiner les avantages des méthaniseurs à biomasse fixée (taux de rétention de la biomasse élevés autorisant de grands débits d'alimentation) et de ceux à cellules libres (faible risque de colmatage et bonne homogénéité du milieu).

Le digesteur est rempli avec un support inerte de faible taille sur lequel, et au sein duquel la biomasse peut se développer (voir figure 1.7). Le rapport surface/volume élevé du support et l'application de débits volumiques importants permet d'éviter le bouchage. Si le lit est expansé de moins de 20% on parlera de lit "expansé", et lorsque l'expansion du lit dépasse les 30% on parle de lit "fluidisé". La mobilité des supports est accrue dans le cas des lits fluidisés ce qui permet de limiter les colmatages et d'assurer un mélange efficace.

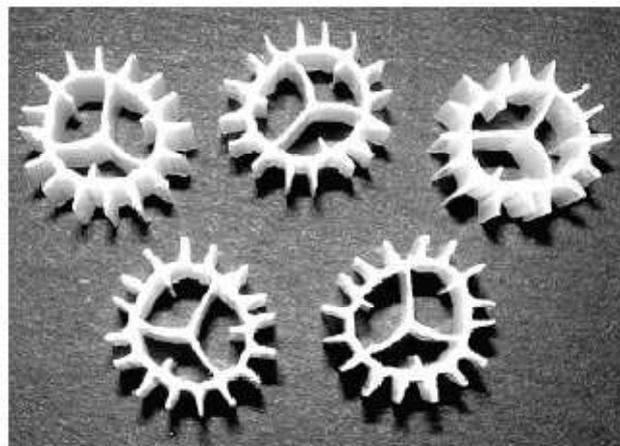


Figure I-7 : Exemple de support mobile

4.3.4. Réacteurs à deux étages

Dans un fermenteur classique, l'acidogénèse et la méthanogénèse se déroulent dans une même cuve, et en fonctionnement normal, les acides sont produits et consommés à la même vitesse. En cas de surcharge organique, ou dans le cas de substrats difficiles à dégrader, il peut arriver que l'acidogénèse génère les acides plus rapidement que les bactéries méthanogènes ne peuvent les éliminer. Ceci tient

principalement aux différences de conditions optimales de croissance des acidogènes et des méthanogènes ; Ghosh et Pohland (1974) ont montré que le taux de croissance des méthanogènes était nettement inférieur (près de dix fois) à celui des acidogènes. Les méthanogènes demandent un taux de dilution plus faible, pour leur laisser le temps de dégrader les acides. Par ailleurs les acidogènes s'accommodent mieux de pH faible ($\text{pH} < 6$) et leur dynamique de croissance rapide leur permet de mieux supporter des surcharges organiques. Dans les années 30, des chercheurs proposèrent de tirer profit de ces divergences en effectuant l'acidogénèse et la méthanogénèse dans deux réacteurs distincts.

La technologie des digesteurs à deux étages repose sur une vision en deux étapes du procédé de dégradation de la matière organique ;

1. Hydrolyse et acidogénèse.
2. Méthanogénèse.

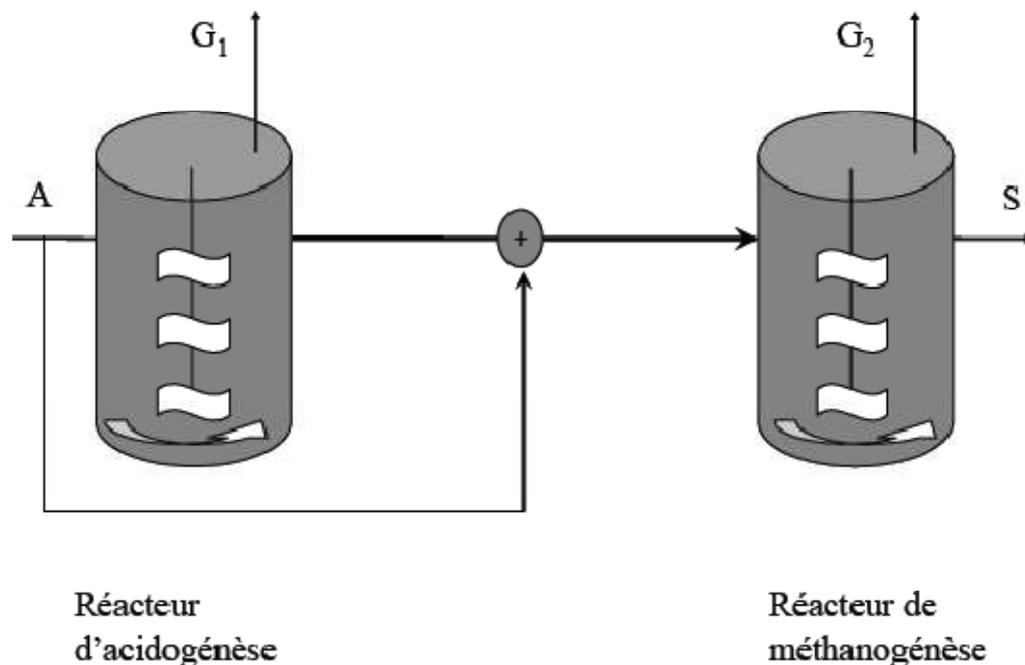


Figure I-8 : Schéma d'un digesteur à deux étages. A : alimentation, S : sortie, G_i : composés gazeux.

Ces deux étapes sont séparées spatialement ; l'acidogénèse se déroule dans un premier réacteur qui alimente le réacteur de méthanisation à proprement parlé.

L'intérêt de cette technologie est d'appliquer des conditions opératoires différentes. Lorsque l'effluent contient de fortes proportions de matière particulaire, l'hydrolyse est l'étape limitante et le taux de dilution dans le premier étage doit être adapté en fonction. Pour la dégradation de matière soluble, c'est la méthanogénèse qui est l'étape limitante et les taux de dilution doivent être choisis de façon à éviter l'intoxication des méthanogènes par un excès d'acides.

Ce procédé assure au réacteur de méthanisation une alimentation de qualité constante. Comme le montre la figure 1.8, une partie de l'effluent brut peut être directement injecté au niveau du second réacteur, pour adapter les ratios AGV/DCO en entrée du méthaniseur et garantir un fonctionnement optimal du procédé global. Le gaz produit dans le premier étage contient principalement du CO_2 (environ 70%), et la présence de méthane peut être la conséquence d'un choix de conditions opératoires n'excluant pas strictement les bactéries méthanogènes. Le gaz produit dans le réacteur de méthanisation est composé au minimum de 70% de méthane et sa composition est relativement stable, compte tenu de l'alimentation du deuxième étage avec une qualité constante. La combinaison d'une première étape thermophile pour accélérer la conversion de la matière organique en acides, suivit d'une étape mésophile est une solution souvent employée. Le choix d'un réacteur de méthanogénèse plus grand que le réacteur d'acidogénèse permet d'obtenir dans le deuxième étage un taux de dilution plus faible et donc plus favorable à la croissance des méthanogènes.

5. Caractéristiques du biogaz

Un des intérêts de la digestion anaérobie réside dans le biogaz produit qui est valorisable. Il est majoritairement composé de méthane (CH_4), de dioxyde de carbone (CO_2), et dans une moindre mesure de sulfure d'hydrogène (H_2S), diazote (N_2), voire de dihydrogène (H_2), de métaux et de composés volatils,... Ce mélange est en règle générale saturé en vapeur d'eau.

Les caractéristiques physico-chimiques du biogaz sont proches de celles du gaz naturel, et il peut être valorisé sous diverses formes :

- ✓ énergie thermique seule (chaudière ou groupe frigorifique),

- ✓ énergie de travail seule (moteur à gaz, turbine à vapeur, turbine à gaz et plus récemment pile à combustible),
- ✓ production simultanée d'énergie thermique (chaleur ou froid) et de travail par cogénération,
- ✓ production simultanée de chaleur, de travail et de froid par trigénération,
- ✓ carburant automobile (après compression et stockage),
- ✓ injection dans le réseau de gaz de ville.

Le pouvoir calorifique d'un composé combustible représente l'énergie dégagée par la combustion de ce dernier. Le méthane⁴ est le seul composé du biogaz qui soit énergétiquement intéressant et le pouvoir calorifique du mélange dépend uniquement de la pression partielle en méthane. Pour du méthane pur, le pouvoir calorifique est de 12,67 kWh.m⁻³, et pour un biogaz contenant 70% de CH₄ il sera donc de 8,87 kWh.m⁻³, soit 32 MJ.m⁻³.

Chapitre II

Modélisation des procédés de digestion anaérobie

Modélisation des procédés de digestion anaérobie

1. Modélisation des bioprocédés

1.1. Introduction

La notion de "modèle" évoque une représentation simplifiée d'un concept, ou d'un processus. La formulation mathématique de cette représentation par des équations conduit à la notion de modèle mathématique.

De façon schématique, un système dynamique transforme des entrées (u), en sortie (y), par un ensemble d'équations différentielles. Les sorties sont des grandeurs pouvant être mesurées, tandis que les entrées sont soit des commandes ou/et des perturbations extérieures (P).

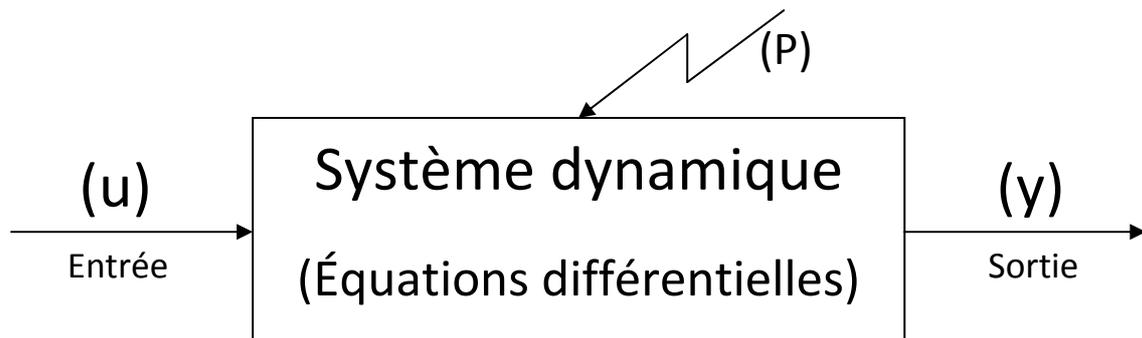


Figure II-1 : Schéma synoptique d'un système dynamique

Les modèles d'espace d'état considèrent un vecteur d'état, noté x , qui regroupe les biomasses et les composés, entre l'entrée et la sortie. A un instant t donné, la sortie (y) ainsi que les vitesses d'évolution des variables (\dot{x}) et (\dot{y}), dépendent de l'état des entrées (x) et des perturbations (P). Les équations générales d'évolution du processus sont données par le système suivant :

$$\begin{cases} \dot{x}(t) = f(x, t, u, \theta), & x(t=0) = x_0 \\ \dot{y}(t) = h(x, t, u, \theta) \end{cases}$$

Où f est la fonction de transition d'état, h la fonction d'observation, et θ le vecteur des paramètres.

Les modèles peuvent être classés en fonction de leur mode de conception :

- les modèles "**boîtes-blanche**" : ces modèles, dit également de connaissance (ou modèles mécanistes), sont obtenus à partir d'une analyse physique ou chimique en appliquant des lois générales de conservation (charge, masse, énergie,...) si elles existent, ou à partir de lois qui représentent les phénomènes intervenant *au sein* des processus étudiés.
- les modèles "**boîtes-noire**" : si le processus est trop complexe, et/ou si les phénomènes qui le régissent sont mal connus, il est impossible d'établir un modèle de connaissance. On est alors réduit à concevoir des modèles purement empiriques, à partir des mesures effectuées sur le processus. Dans ce cas le comportement interne du système n'a pas de sens physique, et les paramètres sont estimés à partir des données acquises.
- les modèles "**boîtes-grise**" : lorsque des connaissances exprimables sous forme d'équations, sont disponibles mais en quantités insuffisantes pour obtenir un modèle de connaissance satisfaisant, on peut avoir recours à un modèle *semi-physique*, qui prend en considération les connaissances et les mesures. Cette modélisation est à mi-chemin entre les modèles boîtes-noire et boîtes-blanche.

Un modèle peut être développé pour des fins très diverses. Il peut servir à reproduire ou à expliquer un comportement observé, à prédire un comportement, contrôler un système, etc. Un modèle n'est cependant utile que s'il permet de répondre aux questions que l'on se pose à propos du processus étudié.

Un modèle se caractérise également par un *domaine de validité* pour lequel l'accord entre les valeurs de sorties y du modèle et les mesures, est satisfaisant au regard des objectifs que l'on s'est fixés.

Ceci explique pourquoi, parmi l'infinité de modèles valides possibles, un modèle pourra être préféré aux autres, car il apportera des réponses aux questions posées.

La modélisation des processus biochimiques et *a fortiori* des bioprocédés, est un exercice délicat. Il n'existe pas en Biologie de lois ou de modèles universels, à la différence de la Physique où des modèles connus et validés depuis des siècles (attraction universelle, principes de thermodynamique, lois des gaz parfait,...) peuvent servir de base à la construction des modèles mécanistes. Les modèles de croissance bactérienne sont essentiellement empiriques.

1.2. Modèles de la digestion anaérobie

1.2.1. Modèle cinétique enzymatique

Les fondements de la cinétique microbienne dérivent de la cinétique enzymatique en Chimie, science qui émergea au début de 20e siècle. Malgré des conditions expérimentales non-idéales (milieu non tamponné, utilisation d'enzymes non purifiées) les premières recherches dans ce domaine mirent en évidence le rôle de catalyseur des enzymes au travers de complexes Enzyme-Substrat. Une première étape essentielle fut franchie lorsqu'un modèle mathématique fut proposé pour décrire la vitesse d'une réaction enzymatique v comme une fonction du substrat s :

$$v = V_m \frac{s}{K_s + s} \quad (\text{II.1})$$

où V_m est la vitesse maximale de réaction et K_s la concentration pour laquelle la vitesse est la moitié du maximum. Cette relation proposée initialement par Victor Henri en 1902, connue comme la relation de Michaelis-Menten, a été confirmée à de nombreuses reprises depuis son introduction [Bailey et Ollis, 1986].

Peu d'années après, vers 1925, John B. S. Haldane et George Edward Briggs, proposèrent une interprétation différente des travaux de Henri et introduisirent une équation représentant l'inhibition d'une réaction enzymatique par un excès de substrat :

$$v = V_m \frac{s}{K_s + s + \frac{s^2}{k_i}} \quad (\text{II.2})$$

où k_i est la constante d'inhibition.

Ces deux équations seront utilisées par la suite comme base pour construire des modèles de croissance bactérienne.

1.2.2. Du chémostat au méthaniseur

Au même titre que l'on peut chercher à contrôler un procédé chimique ou physique, les recherches sur la modélisation de la croissance bactérienne répondent à la volonté des scientifiques de comprendre et de décrire les processus microbiens en vue de les maîtriser.

Le premier modèle convaincant reliant le taux de croissance bactérienne μ à un substrat limitant s fut introduit par Monod (1942) qui prouva que le ralentissement et l'arrêt de la croissance des bactéries est lié à l'appauvrissement en substrat du milieu de culture. A partir de bilans de masse qu'il avait obtenus, il suggéra que la croissance bactérienne soit représentée par une fonction à deux paramètres μ_m et K_s selon l'équation :

$$\mu(s) = \mu_m \frac{s}{K_s + s} \quad (\text{II.3})$$

où le paramètre K_s représente l'affinité des microorganismes pour le substrat, et μ_m la vitesse maximale de croissance. Bien que ce modèle soit proche de l'équation de Michaelis-Menten pour la cinétique enzymatique, Monod ne fit le rapprochement que plus tard, vers 1950, en évoquant le rôle que jouent les enzymes dans la dégradation du substrat.

Monod formula également le principe selon lequel la vitesse croissance d'une population bactérienne pourrait toujours être représentée comme le produit de la biomasse vivante x , et d'un autre facteur μ qui serait le taux de croissance (Monod, 1942) :

$$\frac{dx}{dt} = \mu x \quad (\text{II.4})$$

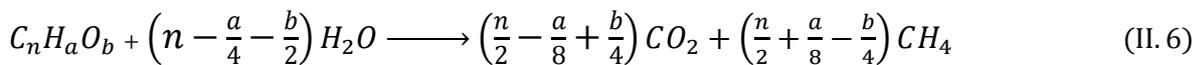
Par la suite il développa le premier modèle de chémostat. Il présenta les équations de conservation de deux variables, la concentration (densité) de biomasse x et le substrat limitant s , dans un bioréacteur continu en considérant les "sources" et "puits" pour

ces grandeurs, et il proposa le système II.5 pour décrire leur évolution :

$$\begin{cases} \frac{dx}{dt} = -Dx + \mu(s)x \\ \frac{ds}{dt} = D(s_{in} - s) + \frac{\mu(s)}{Y} x \\ \mu(s) = \frac{s}{K_s + s} \end{cases} \quad (\text{II.5})$$

où Y désigne le rendement de la conversion du substrat en biomasse, et S_{in} est la concentration du substrat organique dans l'alimentation du chémostat. Le taux de dilution D est défini comme le rapport du débit d'alimentation Q_{in} , au volume V du réacteur ; $D = \frac{Q_{in}}{V}$.

Concernant la modélisation des processus de fermentation, il faut remonter au début du 20^e siècle pour trouver les premières descriptions macroscopiques du phénomène. L'équation générale (II.6) de la dégradation de matière organique par fermentation constitue en quelque sorte un premier modèle qui permet, connaissant les caractéristiques de l'alimentation, de prédire les produits formés.



La fermentation étant un processus complexe, le choix des réactions à représenter constitue la première étape de la construction du modèle mathématique, et il faut ensuite obtenir les équations d'évolution des différentes variables. Malgré l'absence de lois universelles pour les cinétiques bactériennes, des principes comme la conservation de la matière, ou l'électroneutralité s'appliquent aux bioprocédés.

L'utilisation de bilans de matière constitue un outil puissant pour déduire les équations du modèle [Graef et Andrews, 1973 ; Bastin et Dochain, 1990 ; Bernard, 2002]. L'évolution de la masse M d'un constituant est définie par l'équation suivante

$$\frac{dM}{dt} = M_{Entrées} - M_{Sorties} + M_{Gaz\ Liquide} - M_{Liquide\ Gaz} + M_{Produite} - M_{Consommée} \quad (\text{II.7})$$

Un grand nombre de modèles reposent sur cette méthode, et les différences se situent principalement au niveau des choix de représentation des cinétiques bactériennes.

Les premiers modèles se sont surtout focalisés sur la méthanogénèse sous l'hypothèse qu'elle serait l'étape limitante dans le procédé global de digestion anaérobie. Andrews

(1968) proposa d'utiliser une fonction de Haldane (équation II.1) pour représenter l'inhibition de la croissance des méthanogènes aux fortes concentrations de substrat. Il étudia le système (II.8) dans le cas d'une culture fermée ($D = 0$) et d'une culture continue.

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dx}{dt} = -Dx + \mu(s)x \\ \frac{ds}{dt} = D(s_0 - s) + \frac{\mu(s)}{Y}x \\ \mu(s) = \frac{s}{K_s + s + \frac{s^2}{k_i}} \end{array} \right. \quad (\text{II.8})$$

Andrews relia le caractère instable de la digestion anaérobie à l'existence de deux points d'équilibres localement stables pour ce système. Il mit également en évidence l'idée de "lessivage" et de taux de dilution maximal, c'est à dire le taux de dilution au delà duquel le temps de séjour dans le bioréacteur est plus faible que le taux de croissance, et ne permet pas l'accumulation de biomasse.

Un modèle complet ne considérant qu'une seule espèce bactérienne, les méthanogènes, fut présenté par Graef et Andrews (1973). En considérant une formule moléculaire empirique de la biomasse bactérienne ($C_5H_7NO_2$), ils obtinrent une équation stoechiométrique représentant la conversion de l'acétate en biogaz et biomasse :



A la même époque Ierusalimsky s'intéressa à l'inhibition non-compétitive de la croissance sur un substrat simple, et introduisit l'équation (II.9) où I est la concentration de l'inhibiteur et K_i la constante d'inhibition :

$$\mu = \mu_m \frac{s}{K_s + s} \frac{K_i}{k_i + I} \quad (\text{II.9})$$

Par la suite la représentation du procédé a été améliorée en considérant des étapes supplémentaires. Sinechal et al. (1979) furent parmi les premiers à prendre en compte la solubilisation des composés organiques dans un modèle général de

digestion anaérobie. D'autres auteurs se sont intéressés à l'inhibition par des substrats différents des AGV, comme l'azote [Hill et Barth, 1977], l'hydrogène [Mosey, 1983].

Mosey (1983) ouvra la voie à des modèles toujours plus complexes en détaillant la représentation de l'acidogénèse. Il introduit un modèle impliquant 4 populations bactériennes et 7 réactions ;

- une population acidogène,
- une population acétogène,
- une population méthanogène acétotrophe,
- une population méthanogène hydrogénotrophe

Ce modèle est construit autour des voies métaboliques de l'acidogénèse et de l'acétogénèse pour rendre compte de l'inhibition de certaines populations bactériennes par l'hydrogène. De nombreux auteurs ont complété ce modèle [Costello et al., 1991; Ruzicka, 1996], en introduisant de nouveaux substrats comme le lactate [Costello et al., 1991], en prenant en compte la compétition entre espèces bactériennes [Kalyuzhnyi et al., 1998 ; Kalyuzhnyi et Fedorovich, 1998], ou encore en considérant les régimes de fonctionnement, psychro-, méso- ou thermophile [Kalyuzhnyi et al., 2001].

Finalement un modèle générique, baptisé ADM₁ [IWA Task Group for Mathematical Modelling of Anaerobic Digestion Processes, 2002], a été proposé par un groupe d'experts internationaux de la digestion anaérobie sous l'égide de l'*International Water Association* (IWA). Ce modèle très détaillé, incluant 7 espèces bactériennes et de nombreux substrats répond au besoin de disposer d'une plate-forme commune de travail ; il peut aussi bien servir de base à un procédé virtuel pour la mise en place d'unités de dépollution, que pour tester dans un cadre plus réaliste avant de les valider expérimentalement des stratégies de contrôle basées sur d'autres modèles plus simples. Si ce modèle est séduisant par l'exhaustivité des phénomènes qu'il permet de décrire, sa grande complexité (26 équations et plus de 80 paramètres) en font un système fortement non-linéaire difficile à appréhender. Cette complexité représente un frein à l'analyse mathématique du modèle et limite ses possibilités d'utilisation pour des stratégies de contrôle.

Un modèle plus synthétique, baptisé AM2 [Bernard et al., 2001], représente les principaux flux de masse en ne considérant que deux populations bactériennes ; les acidogènes et les méthanogènes. Sa structure simple (en comparaison du modèle ADM1) se prête plus aisément à des procédures de calibration et permet le développement de capteurs logiciels et de stratégies de contrôle [Mailleret et al., 2003].

2. Modèle ADM1

2.1. Structure du modèle ADM1

Ce modèle repose sur un bilan entrée/sortie de DCO. Il considère cinq étapes pour la digestion anaérobie impliquant 7 espèces bactériennes :

- deux étapes extracellulaires :
 1. la solubilisation de la matière particulaire,
 2. l'hydrolyse enzymatique extra cellulaire des matières solubles.
- et trois étapes intracellulaires :
 3. l'acidogénèse,
 4. l'acétogénèse,
 5. la méthanogénèse.

A ces processus biochimiques s'ajoutent les échanges physico-chimiques ;

- les équilibres acide/base,
- les transferts entre les phases liquide et gazeuse.

Les figures II.2 et II.3 schématisent les voies métaboliques et les processus modélisés dans ADM1, où dans une première étape la biomasse morte était recyclée en :

- une fraction de matière organique biodégradable,
- une fraction de composés dissous, mélange de lipides, protéines et sucres,
- une fraction de matière organique non-biodégradable (équivalent à la fraction particulaire inerte dans ADM1),
- une partie minérale non biodégradable (équivalent à la partie inerte soluble dans ADM1).

de Haldane. L'inhibition par un excès de substrats azotés est représentée au travers d'un des termes multiplicatifs I_i , et non comme chez Hill et Barth (1977) en modifiant l'équation de Haldane (équation II.9).

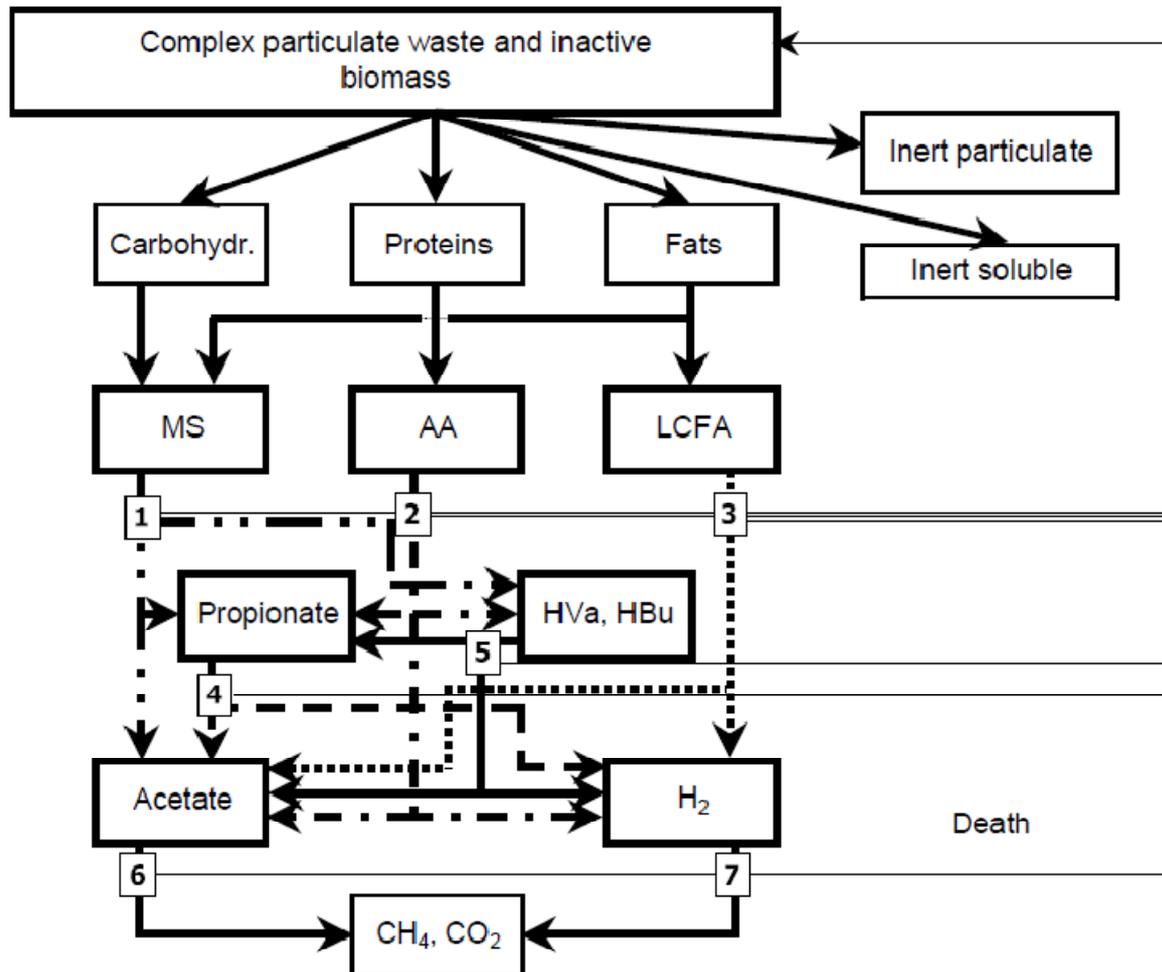


Figure II-3 : Processus biochimiques dans ADM1^[IWA,2002].

- (1) acidogénèse des sucres,
- (2) acidogénèse des acides aminés,
- (3) acétogénèse des acides gras à longue chaîne,
- (4) acétogénèse du propionate,
- (5) acétogénèse du butyrate et du valérate,
- (6) méthanogénèse acétoclastique,
- (7) méthanogénèse hydrogénéophile.

L'influence de la température, qui était déjà prise en compte dans le modèle de Sinechal et al. (1979), est aussi une caractéristique du modèle ADM1; cette dépendance des paramètres cinétiques et physicochimiques à la température permet d'adapter le modèle pour représenter soit un procédé mésophile, soit un procédé thermophile.

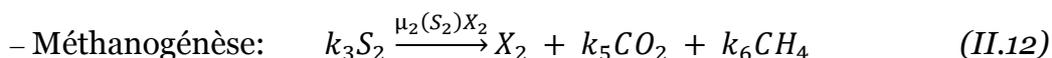
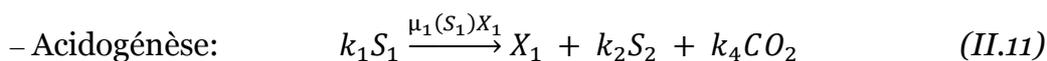
Concernant les échanges liquide/gaz, le modèle représente les transferts de matière pour les trois principaux gaz : le dihydrogène, le méthane et le dioxyde de carbone. Le modèle de transfert choisi repose sur la théorie des deux films [Graef et Andrews, 1974].

Les auteurs ont privilégié ces différents choix de modélisation en raison de leur souplesse qui permet de supprimer ou d'ajouter aisément de nouveaux substrats, des fonctions d'inhibition, ou encore des espèces pour rendre compte de compétition pour l'accès aux substrats (ex. les sulfato-réductants) [IWA, 2005]. L'incorporation des étapes d'hydrolyse et de solubilisation permet par exemple de représenter le recyclage de la biomasse morte, ou l'interconnexion du modèle ADM1 avec un modèle à boue activée [Rosen et al., 2006 ; Volecke et al., 2006].

3. Modèle AM2

Le modèle AM2 [Bernard et al., 2001] fut développé dans le cadre du projet européen AMOCO, sur la modélisation et le contrôle de procédés de digestion anaérobie. Ce modèle à bilan de masse dérive du modèle pour le réacteur infiniment mélangé présenté dans Bastin et Dochain (1990), mais il introduit un paramètre supplémentaire qui permet de rendre compte de l'attachement des biomasses sur le support du digesteur.

La digestion anaérobie est réduite à ses deux étapes centrales (acidogénèse et méthanogénèse), et seuls deux substrats et deux groupes bactériens sont considérés. On représente de façon macroscopique ce procédé par le schéma réactionnel suivant :



où $\mu_1(S_1)X_1$ et $\mu_2(S_2)X_2$ représentent les vitesses de réaction.

Durant la première étape la biomasse acidogène (X_1) transforme le substrat organique soluble S_1 (la DCO hors AGV) en dioxyde de carbone et en AGV (S_2). Par rapport au modèle ADM1, cela reviendrait regrouper les voies métaboliques [1], [2], [3], [4], [5] (figure II.3) en une seule réaction. Le modèle AM2 ne fait pas la distinction entre les différents AGV, et une seule variable S_2 les englobe. Au cours de la deuxième étape les bactéries méthanogènes (X_2) consomment les AGV et les transforment en méthane et CO_2 . Cette réaction correspond à la méthanogénèse acétotrophe dans le modèle ADM1 (voie métabolique [6] de la figure II.3). Ici la production et la consommation d'hydrogène au cours du processus global ne sont pas représentées.

La cinétique de croissance des bactéries acidogènes est représentée par l'équation de Monod (II.2), tandis que l'inhibition de la croissance des méthanogènes par les fortes concentrations d'AGV obéit à une cinétique de Haldane (équation II.2).

Chapitre III

Le modèle AM2

Le modèle AM2

Dans ce modèle, le processus a été simplifié en considérant deux populations de bactéries, le modèle est basé sur le bilan de masse qui prend en compte les réactions biologiques et chimiques, l'équilibre chimique et hydrodynamique du système. Les points d'équilibre de ce système ont été étudiés pour déterminer le rôle de chaque paramètre.

Dans ce travail la modélisation des débits de gaz a été présentée en détail en prenant compte de toutes les espèces biologiques et chimiques dans le fermenteur, ce qui a conduit à une description de débits de gaz qui diffère de la plupart des travaux publiés dans la littérature. De plus, dans ce travail un simple modèle a été considéré pour l'attachement des bactéries.

Un autre aspect important pris en compte dans le travail d'O. Bernard et al est la procédure d'étalonnage avec des données expérimentales à l'équilibre. Les résultats ont été utilisés pour étalonner et valider le modèle en utilisant les données expérimentales produites par un réacteur à lit fixe de 1 m³.

1. Dispositif expérimental

Les expériences ont été effectuées au Laboratoire de Biotechnologie de l'Environnement de l'INRA (LBE-INRA) situé à Narbonne. Ce centre de recherche fondamentale et appliquée dans le domaine de la dépollution s'articule autour de trois équipes intéressées dans la microbiologie moléculaire, l'ingénierie de procédé et le transfert technologique.

1.1. Le réacteur pilote

Le réacteur pilote utilisé est un digesteur anaérobie à lit fixe orienté et à flux ascendant de taille semi-industrielle (Figure III.1). Mis en place au LBE-INRA depuis une dizaine d'années, il est constitué d'une colonne de 3,5 m de hauteur¹ et 0,6 m de diamètre offrant ainsi un volume utile de l'ordre de 1 m³

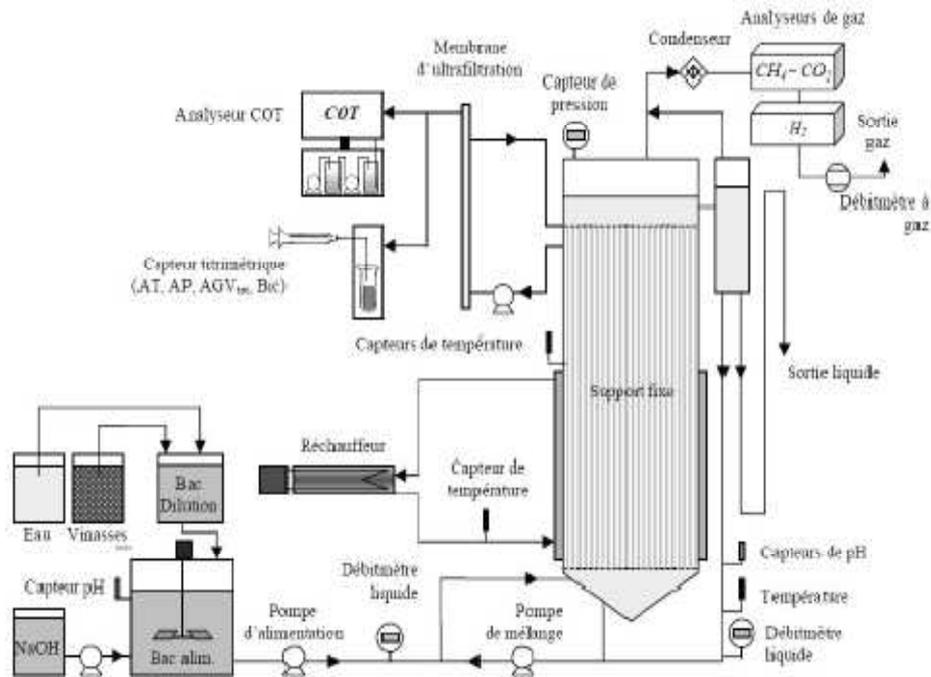


Figure III-1 : Synoptique du réacteur pilote pour le traitement des vinasses de distillerie et son instrumentation [Bernard et al., 2001].



Figure III-2 : photographie du réacteur pilote pour le traitement des vinasses de distillerie et son instrumentation [Bernard et al., 2001]

1.2. L'effluent

La station pilote est utilisée pour traiter des vinasses de distilleries, sous-produit de la production d'alcool, essentiellement constituées de vinasses de vin. Cet effluent est représentatif des problématiques posées par une grande partie des rejets de l'industrie agroalimentaire pour lesquels la charge polluante est principalement organique et facilement biodégradable. Dans le cas des vinasses la DCO est élevée et majoritairement sous forme soluble.

Tableau III-1 : Caractéristiques de l'effluent [Bernard et al., 2001].

Composant	Rangée
Acides gras volatiles (g/L)	[5.00-6.00]
% acétique	[35-55]
% propionique	[15-30]
% butyrique	[15-35]
% isobutyrique	[0-1]
% pentanoïque	[5-15]
% isopentanoïque	[0-0.1]
Carbone organique total (g/L)	[2.50-6.00]
DCO totale (g/L)	[9.00-17.4]
DCO soluble (g/L)	[7.60-16.0]
Matière en suspension totale	[2.40-5.00]
Matière en suspensions volatile	[1.20-2.70]
Alcalinité (mEq/L)	[30.8-62.4]
pH	[5.00-5.40]

1.3. Moyens de mesure

Le réacteur pilote est fortement instrumenté [Steyer et al., 2002], et permet la mesure *en-ligne*

– de variables « usuelles » pour les procédés industriels ; pH en entrée et sortie, débits d'entrée et de sortie, débit de gaz, température,

– mais également de grandeurs plus spécifiques ; bicarbonates, acides gras volatils, alcalinité totale et partielle, carbone inorganique total, carbone organique total, composition du gaz (*i.e.* CO_2 , CH_4 , H_2), nécessitant des appareils de mesures assez peu présents au niveau industriel.

Ces mesures sont complétées mesures en analysant *hors-ligne* des prélèvements effectués en divers points sur le digesteur en fonctionnement. Les différentes grandeurs mesurées et les techniques qui leur sont associées sont résumées dans le tableau III.2.

Tableau III.2 : Mesures pour le suivi analytique du fermenteur pilote et méthodes associées.

	Grandeur mesurée	Technique utilisée		
		En-ligne	Hors-ligne	
Entrées du réacteur	Phase liquide	Electrode pH Débitmètre électromagnétique	Spectrophotomètre Chromatographe	
	DCO AGV pH débit			
Sorties du réacteur	Phase liquide	COTmètre Sonde pH Titrimétrie Titrimétrie Titrimétrie sonde température	Spectrophotomètre Chromatographe	
	DCO AGV COT pH bicarbonate alcalinité totale alcalinité partielle Température			
	Phase gazeuse			Débitmètre à flotteur % (CO_2 , CH_4) Capteur de pression
	Débit Biogaz pression			

2. Hypothèses et description du modèle

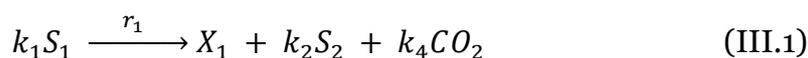
Le choix du nombre de populations de bactéries associées au processus de la digestion anaérobie est lié à la complexité du modèle. La première hypothèse est que les populations de bactéries peuvent être divisées en deux principaux groupes à caractères homogènes et que la digestion anaérobie peut être décrite par un système à deux étages. Dans la première étape (acidogénèse), puis les bactéries acidogènes (X_1) consomment le substrat organique (S_1) et produisent le CO_2 et les acides gras volatiles (AGV). La population de la méthanogénèse (X_2) utilisent les AGV comme substrat pour la croissance et produisent du CO_2 et le méthane.

2.1. Réactions biologiques

- **Acidogénèse**

La première étape est celle de l'acidogénèse modélisée par une population de bactéries acido-acétogènes de concentration X_1 qui décompose le substrat S_1 carboné (représenté par la demande chimique en oxygène) en acides gras volatiles (AGV qui devient le substrat), et en dioxyde de carbone. On considère dans ce modèle simplifié que les AGV sont uniquement présents sous forme non ionisée et se comportent comme de l'acide acétique. Notons que les deux substrats sont aussi présents dans l'alimentation du réacteur.

La réaction chimique modélisée est donc la suivante :



avec la vitesse de réaction : $r_1 = \mu_1 X_1$

μ_1 étant le taux spécifique de croissance des bactéries. La croissance de cette population de bactéries suit une cinétique de Monod :

$$\mu_1 = \mu_{1max} \frac{S_1}{S_1 + K_{S1}} \quad (\text{III.2})$$

μ_{1max} : taux maximum de la croissance biologique.

K_{S1} : taux de la semi saturation associée au substrat S_1 .

- **Méthanisation** (avec une vitesse de réaction $r_2 = \mu_2 \cdot X_2$)

La seconde étape est celle de la méthanogénèse modélisée par une population de bactéries méthanogènes acétoclastes de concentration X_2 qui transforment les AGV (substrat S_2 , provenant de l'alimentation et/ou issu de l'acidogénèse) en méthane et en dioxyde de carbone selon la réaction chimique suivante :



avec une vitesse de réaction $r_2 = \mu_2 \cdot X_2$

La croissance de cette population suit une cinétique de Haldane qui est une fonction de croissance avec inhibition par le substrat :

$$\mu_2 = \mu_{2max} \frac{S_2}{S_2 + K_{S2} + \frac{S_2^2}{K_{I2}}} \quad (\text{III.4})$$

μ_{2max} : taux maximum de la croissance biologique.

K_{S2} : constante de saturation associée au substrat S_2 .

K_{I2} : constante d'inhibition associée au substrat S_2 .

2.2. Processus physico-chimique

➤ Carbone inorganique

Essentiellement composé de CO_2 dissout, bicarbonate (B) et les carbonates. Dans des conditions opératoires normales le pH est entre 6 et 8 et la température entre 35 et 38°C, dans ces conditions la constante d'affinité carbonate/bicarbonate $K_c = 4.7 \cdot 10^{11} \text{ mol/L}$ ce qui implique que la concentration du carbonate est négligeable devant celle du bicarbonate.



Les concentrations des bicarbonates et du CO_2 dissout sont déterminées par la réaction suivante :



K_b étant la constante d'affinité de cette réaction : $K_b = 6.5 \cdot 10^{-7} \text{ mol/L}$.

$$K_b = \frac{[H^+].B}{CO_2} \quad (III.7)$$

➤ Acides gras volatiles

La concentration totale des acides gras volatiles est composée essentiellement en acétates (en ions S^-) et acide acétique (sous forme SH) :

$$S_2 = [SH] + S^- \quad (III.8)$$

K_a étant la constante d'affinité correspondante :

$$K_a = \frac{[H^+].[S^-]}{[S_2]} \quad (III.9)$$

La valeur de K_a avec le pH considéré est de l'ordre de $1.5 \cdot 10^{-5} \text{ mol/L}$ et montre que $[SH]$ est négligeable, donc :

$$[SH] \sim [S^-] \quad (III.10)$$

➤ Bilan ionique

L'alcalinité totale Z est définie par la somme des acides dissociés dans le milieu :

$$Z = B + [S^-] \quad (III.11)$$

Et à partir de l'équation (III.10) :

$$Z \sim B + S_2 \quad (III.12)$$

Remarque : Cette hypothèse n'est pas valide pour les effluents à faible pH . Nous devons donc calculer l'alcalinité de l'effluent en tenant en compte la concentration de bicarbonate et des AGV, B_{in} et S_{2in}

$$Z_{in} = B_{in} + \frac{K_a}{K_a + 10^{-pH}} S_{in} \quad (III.13)$$

B_{in} est négligeable pour des valeurs faibles de pH .

➤ Les gazes

Le gaz dégagé du système est considéré composé de CO_2 et de CH_4 . Le débit molaire du méthane est proportionnel au taux de la méthanisation :

$$q_M = k_6 \mu_2 X_2 \quad (III-14)$$

Le débit molaire du CO_2 est calculé à partir de la loi d'Henry :

$$q_C = k_L a (CO_2 - K_H P_C) \quad (III.15)$$

où

$K_L a$: coefficient de transfert liquide-gaz.

K_H : constante d'Henry.

P_C : la pression partielle du CO_2 .

En considérant que les pressions de gaz atteignent rapidement leur équilibre, nous obtenons une relation entre la pression partielle et les débits molaires grâce à la loi des gaz parfaits :

$$\frac{P_T - P_C}{q_M} = \frac{P_C}{q_M} \quad (III.16)$$

Donc :

$$K_H P_C^2 - \phi P_C + P_T C O_2 = 0 \quad (III.17)$$

Avec :

$$\phi = C O_2 + K_H P_T + \frac{q_M}{k_L a} \quad (III.18)$$

Calculant les racines de l'équation (III-15) qui est de la forme $\pi(P_C)=0$, la plus grande racine est supérieure à la pression totale, donc la seule solution admissible est la plus petite racine :

$$P_C = \frac{\phi - \sqrt{\phi^2 - 4K_H P_T C O_2}}{2K_H} \quad (III.19)$$

La concentration du CO_2 peut être calculée en combinant entre les équations (III.17) et (III.12):

$$C O_2 = C + S_2 - Z \quad (III.20)$$

3. Propriétés hydrodynamiques du réacteur

Le réacteur est constamment alimenté par l'effluent avec un taux de dilution D ce qui permet de maintenir le réacteur dans des conditions homogènes. En conséquent le comportement dynamique des espèces chimiques est directement influé par le taux de dilution du fermenteur D , défini comme étant le rapport entre le débit d'effluent et

le volume du réacteur ($D = \frac{Q}{V}$).

Dans un réacteur à lit fixe, la biomasse est attachée sur un support et quelques bactéries sont détachées du support par le débit liquide. Ce phénomène a été pris en compte dans le modèle hydrodynamique. Pour avoir une description mathématique de ce processus, une fraction α de la biomasse est considérée détachée.

4. Modélisation par bilan de matière

$\xi[X_1, X_2, Z, S_1, S_2, C]^T$ est le vecteur des variables du modèle et à partir des considérations des réactions (III.1), (III.3) et (III.6) nous obtenons :

$$\frac{dX_1}{dt} = [\mu_1(\xi) - \alpha D]X_1 \quad (\text{III.21})$$

$$\frac{dX_2}{dt} = [\mu_2(\xi) - \alpha D]X_2 \quad (\text{III.22})$$

$$\frac{dZ}{dt} = D(Z_{in} - Z) \quad (\text{III.23})$$

$$\frac{dS_1}{dt} = D(S_{1in} - S_1) - k_1\mu_1(\xi)X_1 \quad (\text{III.24})$$

$$\frac{dS_2}{dt} = D(S_{2in} - S_2) + k_2\mu_1(\xi)X_1 - k_3\mu_2(\xi)X_2 \quad (\text{III.25})$$

$$\frac{dC}{dt} = D(C_{in} - C) - q_C(\xi) + k_4\mu_1(\xi)X_1 + k_5\mu_2(\xi)X_2 \quad (\text{III.26})$$

Avec :

$$q_C = k_L a [C + S_2 - Z - K_H P_C(\xi)] \quad (\text{III.27})$$

P_C est calculé à partir des équations (12), (16), (17) et (18) comme suit :

$$P_C(\xi) = \frac{\emptyset - \sqrt{\emptyset^2 - 4K_H P_T (C + S_2 - Z)}}{2K_H} \quad (\text{III.28})$$

Avec :

$$\emptyset = C + S_2 - Z + K_H P_T + \frac{k_6}{k_L a} \mu_2(\xi) X_2 \quad (\text{III.29})$$

De plus, le modèle du débit gazeux de méthane et du pH sont déterminés à partir des équations (7), (10) et (17) :

$$q_M(\xi) = k_6 \mu_2(\xi) X_2 \quad (\text{III.30})$$

$$pH(\xi) = -\log_{10}\left(K_b \frac{C-Z+S_2}{Z-S_2}\right) \quad (\text{III.31})$$

Le modèle peut être réécrit sous la forme matricielle suivante :

$$\frac{d\xi}{dt} = K(\xi) - D\xi - Q + F \quad (\text{III.32})$$

Avec :

$$\xi = \begin{pmatrix} X_1 \\ X_2 \\ Z \\ S_1 \\ S_2 \\ C \end{pmatrix},$$

$$r(\xi) = \begin{pmatrix} \mu_1(\xi) X_1 \\ \mu_2(\xi) X_2 \end{pmatrix}, \quad (\text{III.33})$$

$$K = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \\ 0 & 0 \\ -k_1 & 0 \\ k_2 & -k_3 \\ k_4 & k_5 \end{pmatrix}$$

et

$$F = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ DZ_{in} \\ DS_{1in} \\ DS_{2in} \\ DC_{in} \end{pmatrix}, Q = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ qc(\xi) \end{pmatrix}, D = \begin{pmatrix} \alpha D & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \alpha D & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \alpha D & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \alpha D & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \alpha D & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \alpha D \end{pmatrix} \quad (\text{III.34})$$

5. Structure du modèle

Le modèle établi a une structure en cascade ce qui rend son analyse et son utilisation plus simple.

Le système d'équations (III.21) et (III.24) peut être calculé séparément. Ce qui signifie que X_I et S_I ne sont pas influencés par d'autres variables.

Selon les travaux de Smith et Waltman, 1995, ce système a deux points d'équilibre, pour des conditions d'effluent constantes et pour des valeurs de D appropriées l'équilibre non trivial est stable et l'équilibre trivial ($X_I=0$, $S_I=0$) est instable.

Le bilan de masse de Z représenté par l'équation (III.23) est indépendant des autres équations et peut donc être analysé séparément, c'est une équation linéaire son seul point d'équilibre est stable car D est positif.

D'une manière similaire, le système composé des équations (III.22) et (III.25) peut aussi être considéré indépendamment. Selon Smith et Waltman ce système d'équations possède trois points d'équilibre.

6. Détermination et stabilité des états d'équilibre du modèle

Afin d'obtenir le point d'équilibre s'un système on cherchera les points où la dérivée correspondante est nulle, c'est-à-dire où la fonction correspondante est constante (régime permanent).

✓ Dans le système d'équations (III.21), (III.24) :

$$\frac{dX_1}{dt} = [\mu_1(\xi) - \alpha D]X_1$$

$$\frac{dS_1}{dt} = D(S_{1in} - S_1) - k_1\mu_1(\xi)X_1$$

Les régimes permanents (ou états stationnaires, ou positions d'équilibre...) s'obtiennent lorsque :

$$0 = [\mu_1(\xi) - \alpha D]X_1$$

$$0 = D(S_{1in} - S_1) - k_1\mu_1(\xi)X_1$$

De la première équation on déduit :

$$X_1 = 0 \text{ ou } \mu_1 = \alpha D$$

A l'état stationnaire $X_1^* = 0$ correspond, en utilisant la première équation, l'état $S_1^* = S_{1in}$. Le régime permanent correspondant est le lessivage ($S_1^* = S_{1in}$, $X_1^* = 0$).

Supposons maintenant que l'équation $\mu_1(S_1) = \alpha D$ admet une solution S_1^* vérifiant la propriété $S_1^* < S_{1in}$. Alors le système d'équation (III.21) et (III.24) admet un deuxième équilibre. En effet, en l'état stationnaire S_1^* tel que $\mu_1(S_1^*) = \alpha D$, la deuxième s'écrit :

$$0 = D(S_{1in} - S_1^*) - k_1 \alpha D X_1^*$$

On en déduit donc que

$$X_1^* = \frac{S_{1in} - S_1^*}{\alpha k_1} \text{ qui est bien positif car } S_1^* < S_{1in}.$$

$$\text{Et } S_1^* = K_{S1} \frac{\alpha D}{\mu_{1max} + \alpha D}$$

Le régime permanent correspondant est l'équilibre positif

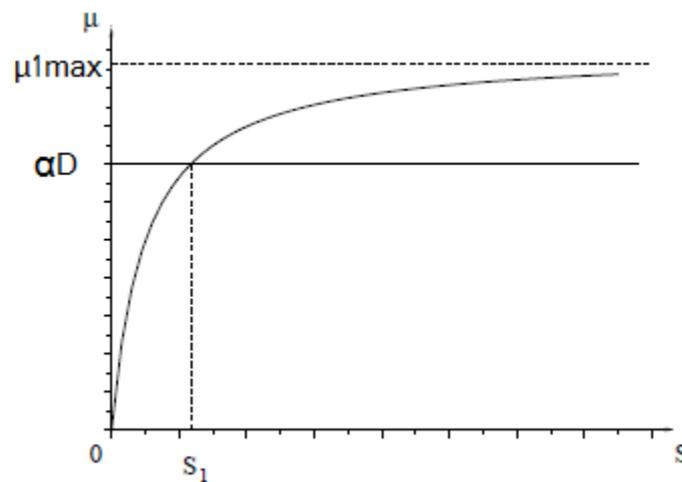


Figure III-3 : Taux de croissance en fonction du substrat d'une population bactérienne régit par une cinétique de Monod.

La linéarisation de ce système en un équilibre (S_1^*, X_1^*) est le système linéaire

$$\frac{dS_1}{dt} = aS_1 + bX_1$$

$$\frac{dX_1}{dt} = cS_1 + dX_1$$

Où $\begin{bmatrix} a & b \\ c & d \end{bmatrix}$ est la matrice jacobienne évaluée en (S_1^*, X_1^*) , c'est-à-dire

$$\begin{bmatrix} a & b \\ c & d \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -D - k_1 \mu_1'(S_1^*) X_1^* & -k_1 \mu_1(S_1^*) \\ \mu_1'(S_1^*) X_1^* & -\alpha D + \mu_1(S_1^*) \end{bmatrix}$$

- En $(S_1^* = S_{1in}, X_1^* = 0)$, on obtient la matrice

$$\begin{bmatrix} -D & -k_1 \mu_1(S_{1in}) \\ 0 & -\alpha D + \mu_1(S_{1in}) \end{bmatrix}$$

Les valeurs propres de cette matrice sont : $\lambda_1 = -D$ et $\lambda_2 = -\alpha D + \mu_1(S_{1in})$. Par conséquent elles sont négatives lorsque $\mu_1(S_{1in}) < \alpha D$, c'est à dire que le régime permanent $(S_1^* = S_{1in}, X_1^* = 0)$ est localement asymptotiquement stable. Par contre si $\mu_1(S_{1in}) > \alpha D$, la valeur propre λ_1 est positive, le régime permanent $(S_1^* = S_{1in}, X_1^* = 0)$ est instable

- En $(S_1^*, X_1^* = \frac{S_{1in} - S_1^*}{\alpha k_1})$, avec $\mu_1(S_1) = D$, on obtient la matrice A

$$A = \begin{bmatrix} -D - k_1 \mu_1'(S_1^*) X_1^* & -k_1 \alpha D \\ \mu_1'(S_1^*) X_1^* & 0 \end{bmatrix}$$

Les valeurs propres de cette matrice λ_1 et λ_2 vérifient les conditions

$$\lambda_1 + \lambda_2 = \text{trace}(A) < 0, \quad \lambda_1 \lambda_2 = \det(A) > 0,$$

Donc le régime permanent $(S_1^*, X_1^* = \frac{S_{1in} - S_1^*}{\alpha k_1})$ est localement asymptotiquement stable.

Conclusion

Notons par $\alpha D_{crit} = \mu_1(S_{1in})$. En fonction de la valeur de D nous pouvons distinguer deux cas pour ce système :

- 1- Si $D > D_{crit}$ le système possède un seul point d'équilibre : le lessivage

$(S_1^* = S_{1in}, X_1^* = 0)$ qui est stable.

- 2- Si $D < D_{crit}$ le système possède deux régimes permanents : le lessivage

$(S_1^* = S_{1in}, X_1^* = 0)$ qui est instable et l'équilibre $(S_1^*, X_1^* = \frac{S_{1in} - S_1^*}{\alpha k_1})$ qui est stable.

✓ Le système d'équations (III.22) et (III.25)

$$\frac{dX_2}{dt} = [\mu_2(\xi) - \alpha D] X_2$$

$$\frac{dS_2}{dt} = D(S_{2in} - S_2) + k_2\mu_1(\xi)X_1 - k_3\mu_2(\xi)X_2$$

Comme le premier système, ce système d'équation est un modèle de chemostat avec un débit en substrat $S'_{2in} = S_{2in} + \frac{k_2\mu_1(\xi)X_1}{D}$ et une cinétique bactérienne régie par le modèle de Haldane, qui représente une cinétique avec inhibition par le substrat.

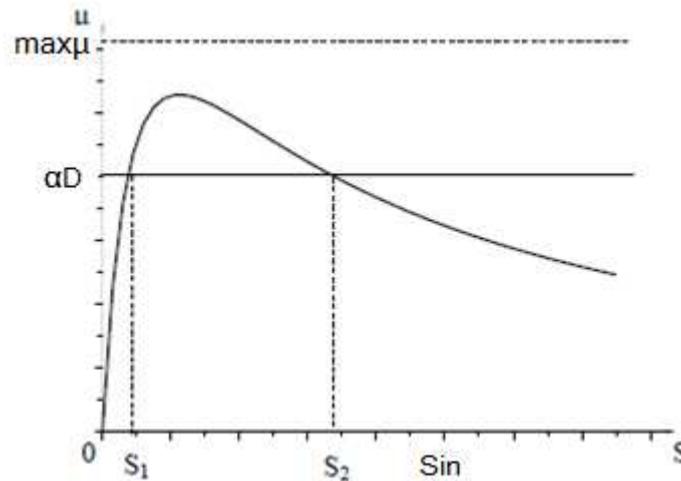


Figure III-4 : Taux de croissance en fonction du substrat d'une population bactérienne régit par une cinétique de Haldane.

En régime permanent :

$$0 = [\mu_2(\xi) - \alpha D]X_2$$

$$0 = D(S'_{2in} - S_2) - k_3\mu_2(\xi)X_2$$

Nous avons deux solutions : $X_2 = 0$ qui correspond au lessivage

$$(S_2^* = S_{2in}, X_2^* = 0) \text{ ou } \mu_2(S_2) = \alpha D.$$

Dans le cas où $\alpha D < \mu_2(S_2)$ l'équation $\mu_2(S_2) = \alpha D$ a deux solutions (S_2^*, X_2^*) et

$$(S_2^\dagger, X_2^\dagger) \text{ t.q. } S_2^* < S_2^\dagger \text{ et :}$$

$$X_2^* = \frac{1}{\alpha k_3} \left(S_{2in} - S_2^* + \frac{k_2}{k_1} (S_{1in} - S_1^*) \right) \quad (\text{III.35})$$

$$X_2^\dagger = \frac{1}{\alpha k_3} \left(S_{2in} - S_2^\dagger + \frac{k_2}{k_1} (S_{1in} - S_1^*) \right) \quad (\text{III.36})$$

S_2^* et (S_2^\dagger) sont solutions de l'équation

$$\frac{S_2^2}{K_{12}} + \left(1 - \frac{\mu_{2max}}{\alpha D}\right) S_2 + K_{S_2} = 0 \quad (\text{III.37})$$

En fonction de S_{2in} nous distinguons trois cas possibles :

- (1) $S_{2in} > S_2^\dagger$: trois équilibres : $(S_1^* = S_{1in}, X_1^* = 0)$, (S_2^*, X_2^*) et $(S_2^\dagger, X_2^\dagger)$.
- (2) $S_2^* < S_{2in} < S_2^\dagger$: deux équilibres : $(S_1^* = S_{1in}, X_1^* = 0)$, (S_2^*, X_2^*) .
- (3) $S_{2in} < S_2^*$: un seul équilibre, le lessivage $(S_1^* = S_{1in}, X_1^* = 0)$.

La matrice jacobienne évaluée en (S_2^*, X_2^*) est :

$$\begin{bmatrix} a & b \\ c & d \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -D - k_3 \mu_1'(S_2^*) X_2^* & -k_1 \mu_2(S_2^*) \\ \mu_1'(S_2^*) X_2^* & -\alpha D + \mu_2(S_2^*) \end{bmatrix}$$

- En $(S_2^* = S'_{2in}, X_2^* = 0)$, on obtient la matrice

$$\begin{bmatrix} -D & -k_2 \mu_2(S'_{2in}) \\ 0 & -\alpha D + \mu_2(S_{2in}) \end{bmatrix}$$

En (1) et (3) $\mu_2(S_{2in}) < \alpha D$ donc $-\alpha D + \mu_2(S_{2in}) < 0 \Rightarrow \lambda_1 < 0$ et $\lambda_2 < 0$ donc c'est un équilibre stable.

En (2) $\mu_2(S_{2in}) > \alpha D$ donc $\lambda_1 < 0$ et $\lambda_2 > 0$ donc équilibre instable.

- En (S_2^*, X_2^*) ou $(S_2^\dagger, X_2^\dagger)$, on obtient la matrice A

$$A = \begin{bmatrix} -D - k_3 \mu_2'(S_2^*) X_2^* & -k_3 \alpha D \\ \mu_2'(S_2^*) X_2^* & 0 \end{bmatrix}$$

Trace (A) = $\lambda_1 + \lambda_2 < 0$

$$\text{Det}(A) = \lambda_1 \lambda_2 : \begin{cases} < 0 \text{ en } (S_2^*, X_2^*) \text{ donc équilibre stable} \\ > 0 \text{ en } (S_2^\dagger, X_2^\dagger) \text{ équilibre instable} \end{cases}$$

7. Valeurs des débits gazeux à l'équilibre

Sachant que le débit du méthane produit est :

$$q_M(\xi) = k_6 \mu_2(\xi) X_2$$

Et qu'en équilibre $\mu_2(S_2) = \alpha D$

$$\text{Donc } q_M^* = k_6 \alpha D X_2^*$$

En considérant les équations

$$q_C = k_L a (C O_2 - K_H P_C)$$

$$\frac{dC}{dt} = D(C_{in} - C) - q_C(\xi) + k_4 \mu_1(\xi) X_1 + k_5 \mu_2(\xi) X_2$$

À l'état d'équilibre, nous obtenons le carbone total à l'équilibre

$$q_C^* = k_L a (C O_2^* - K_H P_C^*) = D(C_{in} - C^*) + k_4 \alpha D X_1^* + k_5 \alpha D X_2^*$$

Et à partir de l'équation (III.20) nous obtenons

$$C^* = C O_2^* - S_2^* + Z^*$$

$$C O_2^* = \frac{1}{K_L a + D} (K_L a K_H P_C^* + D \psi^*)$$

$$\text{Avec } \psi^* = C_{in} - Z^* + S_2^* + k_4 \alpha D X_1^* + k_5 \alpha D X_2^*$$

En injectant cette relation entre $C O_2^*$ et P_C^* dans l'équation (III.16) nous obtenons

$$K_H P_C^{*2} - \omega^2 P_C^* + P_T^* \psi^{*2}$$

$$\omega^* = K_H P_T + \psi^* + \frac{K_L a + D}{K_L a} + k_6 \alpha X_2^*$$

Cette équation possède deux solutions dont la plus grande est supérieure à la pression totale P_T ce qui n'est pas physiquement admissible, donc nous retenons la solution

$$P_C^* = \frac{\omega^* - \sqrt{\omega^{*2} - 4K_H P_T \psi^*}}{2K_H}$$

Chapitre IV

Identification des paramètres

Chapitre IV

Identification des paramètres du modèle AM2

Lors des travaux d'O. Bernard et al., les résultats expérimentaux ont été divisés en deux groupes : l'un destiné pour l'identification des paramètres et l'autre pour la validation du modèle.

L'un des objectifs primaires de ce modèle est d'élaborer un modèle capable de prédire proprement les états d'équilibre du processus. Pour cela un ensemble de valeurs à l'état d'équilibre a été sélectionné pour le calibrage.

La structure du modèle est composée de combinaisons entre termes hydrodynamiques, termes de transfert liquide-gaz et de termes de conversion (cinétique et rendement). Les termes de conversion et de transfert liquide-gaz contiennent des paramètres à calibrer, par contre les termes liés à l'hydrodynamique sont caractérisés par les valeurs (connues) des débits d'effluent et d'effluents.

Vu la complexité du système et les problèmes d'identification pratiques une approche a été adoptée basée sur deux points :

1. L'estimation des paramètres a été découpée en 3 groupes : paramètres cinétiques (μ_{1max} , K_{S1} , μ_{2max} , K_{S2} , K_{12} , α), le coefficient K_{La} et les coefficients de rendement (k_i , $i=1$ à 6).
2. Le travail est focalisé sur les états d'équilibre, puis des ajustements sont établis utilisant les régressions linéaires des moindres carrés de façon à imposer au modèle de prédire correctement l'équilibre atteint par le processus.

1. Procédure d'identification des paramètres cinétiques

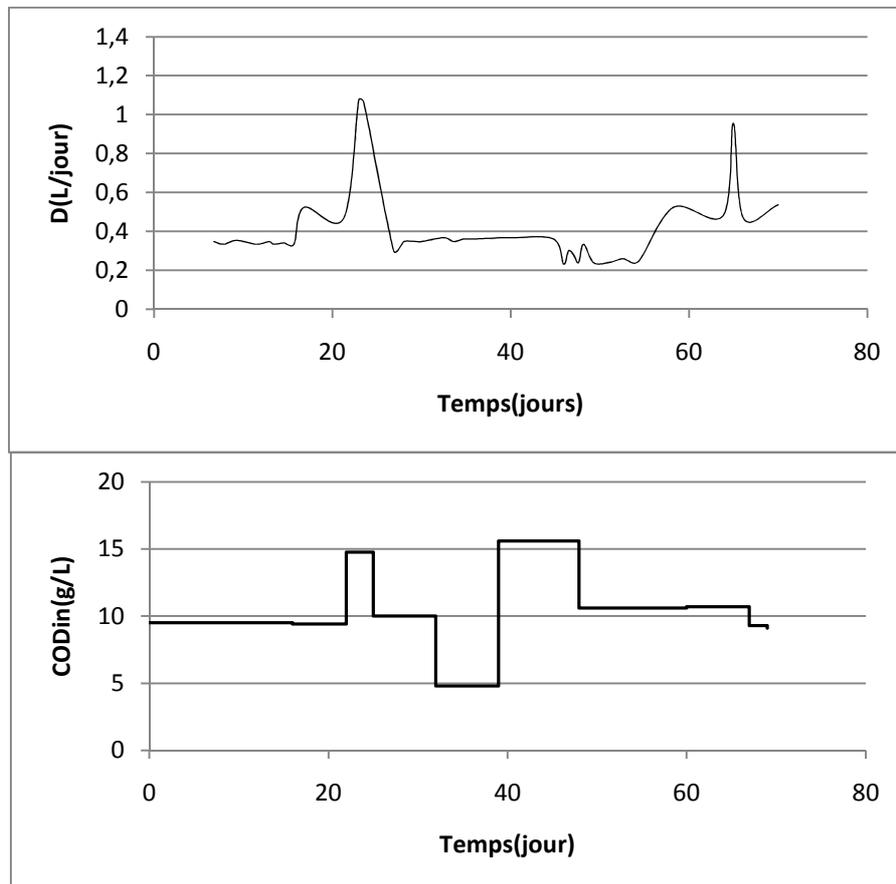
A partir des équations $\mu_1(S_1) = \alpha D$ et $\mu_2(S_2) = \alpha D$ nous avons :

$$\frac{1}{D} = \frac{\alpha}{\mu_{1max}} + K_{S1} \frac{\alpha}{\mu_{1max}} \frac{1}{\bar{S}_1}$$

$$\frac{1}{D} = \frac{\alpha}{\mu_{2max}} + K_{S2} \frac{\alpha}{\mu_{2max}} \frac{1}{\bar{S}_2} + \frac{1}{K_{12}} \frac{\alpha}{\mu_{2max}} \bar{S}_2$$

\bar{S}_1 et \bar{S}_2 sont les valeurs de S_1 et S_2 à l'équilibre.

Cette relation peut être utilisée avec des mesures des valeurs d'équilibre de S_1 et S_2 pour estimer les paramètres α/μ_{1max} , K_{S1} , α/μ_{1max} , K_{S2} et K_{I2} par le biais d'une régression linéaire.



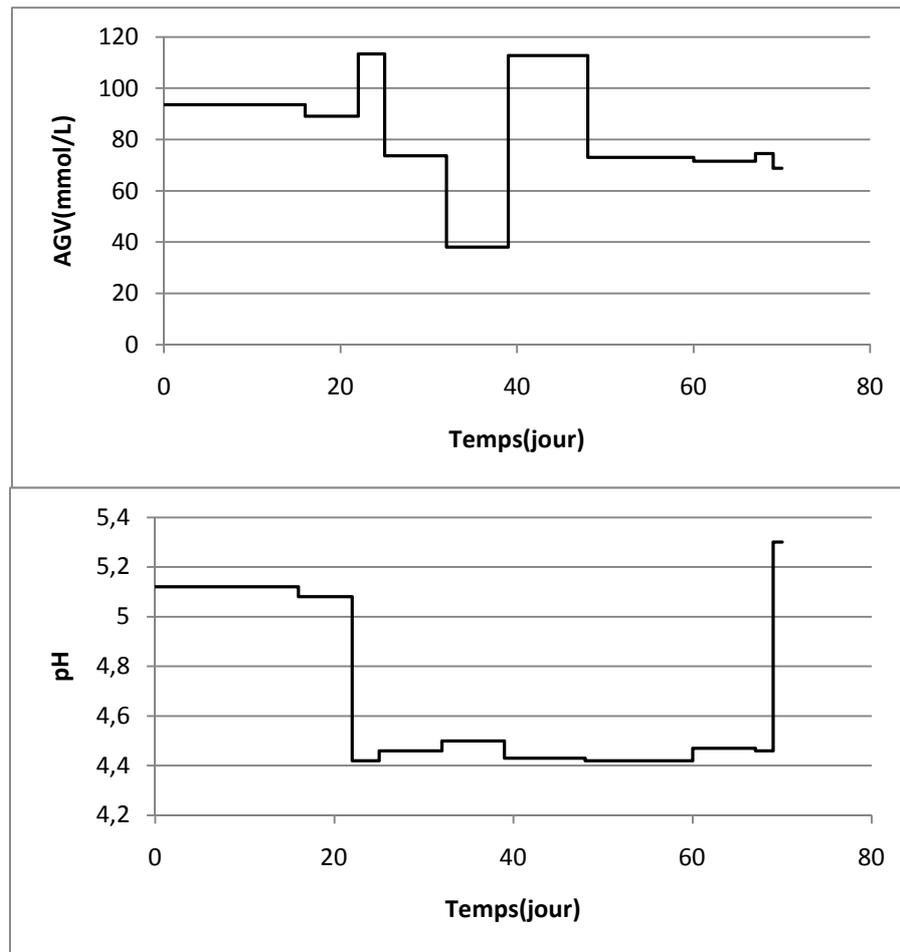


Figure IV-1 : Caractéristiques de l'effluent durant la période expérimentale^[Bernard et al.,2001].

Tableau IV-1 : Caractéristique de l'effluent aux états d'équilibre^[Bernard et al.,2001].

$D(j^{-1})$	$COD_{in}(g/L)$	$AGV(mmol/L)$	pH_{in}
0.34	9.5	93.6	5.12
0.35	10	73.68	4.46
0.35	4.8	38.06	4.49
0.36	15.6	112.7	4.42
0.26	10.6	72.98	4.42
0.51	10.7	71.6	4.47
0.53	9.1	68.78	5.30

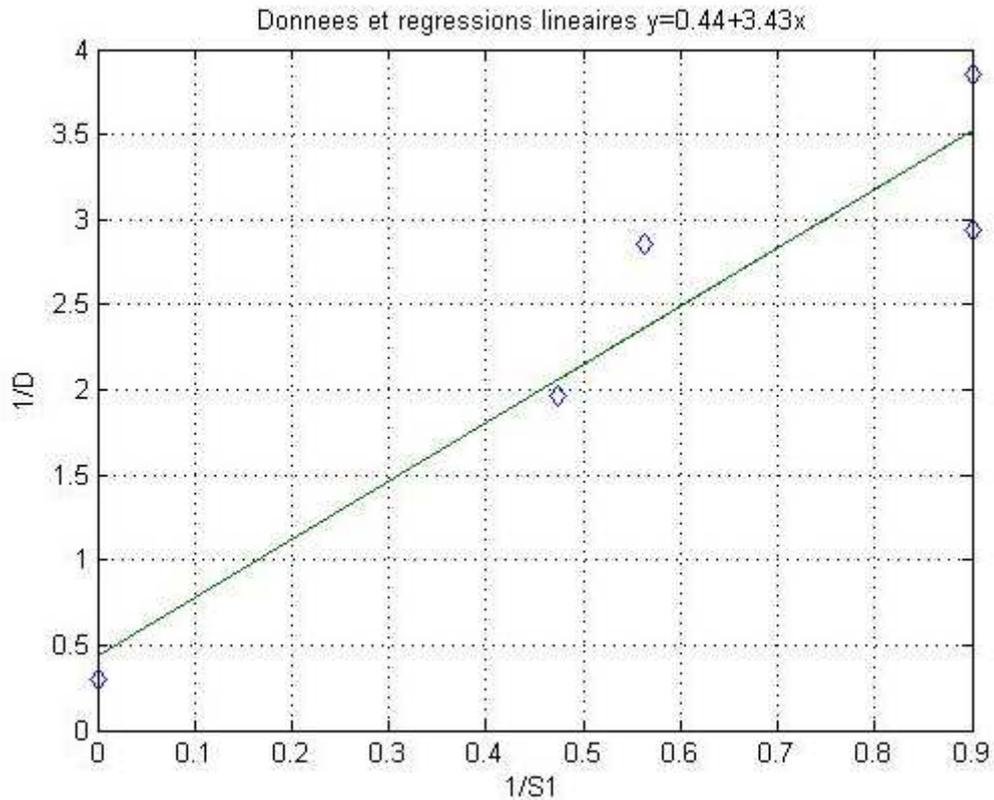


Figure IV-2: régression linéaire entre les valeurs de D et S_1 à l'équilibre

Les paramètres α et μ_{1max} ne peuvent pas être distingués à partir de cette relation. Nous sélectionnons les résultats bibliographiques de μ_{1max} classiques (Ghosh et Pohland, 1974) : $\mu_{1max}=1.2 j^{-1}$ et on obtient :

$$\alpha = 0,528$$

$$K_{S1} = 7.79 \text{g/L.}$$

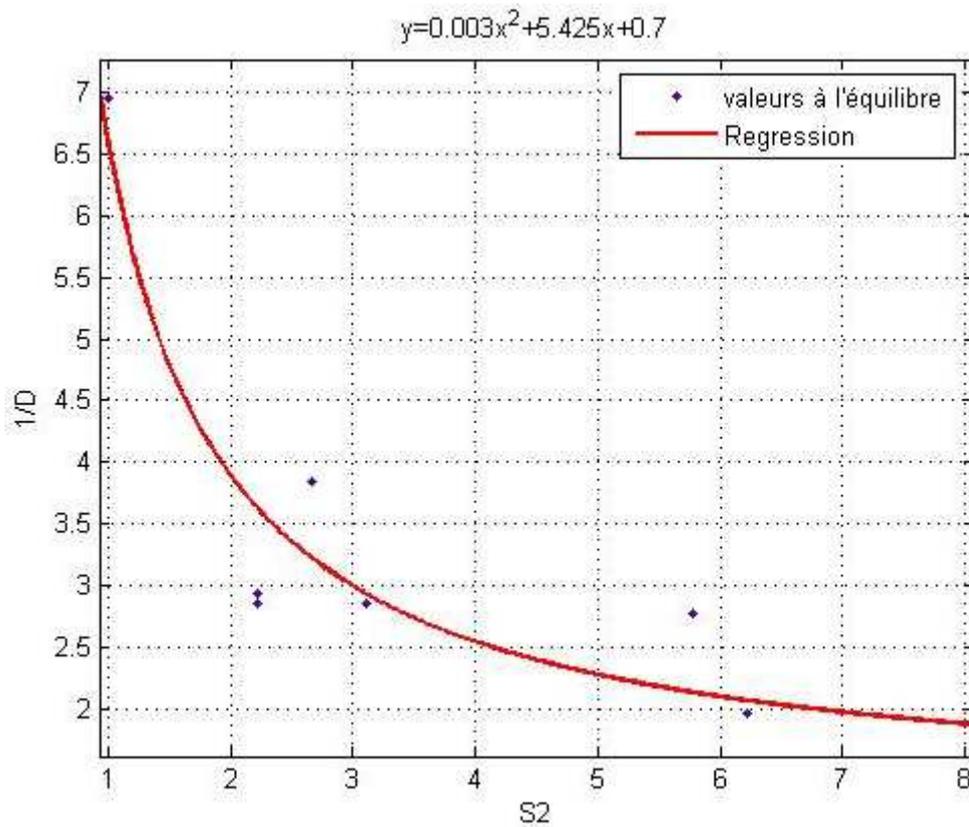


Figure IV-3 : Régression linéaire entre les valeurs de D et S_2 à l'équilibre.

A partir de la seconde régression nous obtenons les valeurs suivantes :

$$\mu_{2max} = 0.74 \text{ j}^{-1};$$

$$K_{S2} = 9.28 \text{ mmol/L};$$

$$K_{I2} = 256 \text{ mmol/L}.$$

Tableau IV-2 : Valeurs des paramètres cinétiques estimées [Bernard et al., 2001].

Paramètre	valeur	unité
μ_{1max}	1.2	j^{-1}
K_{S1}	7.1	g/L
μ_{2max}	0.74	j^{-1}
K_{S2}	9.28	mmol/L
K_{I2}	256	mmol/L
α	0.5	mmol/L

2. Procédure d'identification du coefficient K_La

Pour estimer la valeur du coefficient de transfert liquide-gaz K_La , nous utilisons la relation :

$$q_C = k_L a (C O_2 - K_H P_C)$$

$$\text{Sachant que } C O_2 = \frac{C}{1 + \frac{[K_b]}{[H^+]}}$$

Nous pouvons écrire :

$$C O_2 = C f(pK_b, pH)$$

$$\text{Avec } pK_b = -\log_{10}(K_b)$$

Et

$$C f(pK_b, pH) = \frac{1}{1 + 10^{pH - pK_b}}$$

Et donc

$$q_C = k_L a C f(pK_b, pH) - k_L a K_H P_C$$

A partir des mesures du pH , C , les débits et la pression partielle du CO_2 à l'état d'équilibre, nous pouvons utiliser la régression suivante pour estimer K_La (avec $K_H = 16 \text{ mmol/L par atm}$).

$$K_La = 19.8 j^{-1}.$$

3. Procédure d'identification des coefficients de rendement

L'identification des coefficients de rendement a été établie en deux étapes :

- ✓ d'abord estimation des rapports de coefficients de rendement structurellement identifiables : $\frac{k_6}{k_3}, \frac{k_2}{k_1}, \frac{k_5}{k_3}, \frac{k_4}{k_1}$
- ✓ ensuite, utilisation de données de solides volatils en suspension (SVS) pour déterminer les valeurs de chaque coefficient de rendement.

L'estimation des rapports de coefficient de rendement s'est faite sur la base des équations de bilan en régime permanent, qui peuvent se réécrire comme suit après élimination de X_1 et X_2 :

$$\bar{q}_M = D \frac{k_6}{k_3} \left(S_{2in} - \bar{S}_2 + \frac{k_2}{k_1} (S_{1in} - \bar{S}_1) \right)$$

$$\frac{\bar{q}_C}{D} - (C_{in} - \bar{C}) = \frac{k_4}{k_1} (S_{1in} - \bar{S}_1) + \frac{k_5}{k_6} \frac{\bar{q}_M}{D}$$

A partir des régressions [bernard et al.,2001]:

$$\bar{q}_M = 1.64(S_{2in} - \bar{S}_2) + 4.0034(S_{1in} - \bar{S}_1)$$

$$\frac{k_6}{k_3} = 1.62$$

$$\frac{k_2}{k_1} = 2.72 \text{ mmol/L}$$

$$\frac{k_5}{k_3} = 1.28$$

$$\frac{k_4}{k_1} = 1.18 \text{ mmol/L}$$

La détermination des coefficients s'est alors faite sur la base des mesures de SVS. En effet, les SVS sont un indicateur approximatif de $X_1 + X_2$. La détermination de la répartition des SVS entre les deux populations bactériennes s'est faite en considérant un rapport ($v = 0,2$) entre les bactéries acidogènes X_1 et la biomasse totale $X_1 + X_2$, tiré de la littérature (Sanchez et al.,1994).

Considérant les relations

$$X_1^* = \frac{S_{1in} - S_1^*}{\alpha k_1}$$

$$X_2^* = \frac{1}{\alpha k_3} \left(S_{2in} - S_2^* + \frac{k_2}{k_1} (S_{1in} - S_1^*) \right)$$

$$v = \frac{X_1}{X_1 + X_2}$$

Et $VSS = X_1 + X_2$ nous obtenons

$$k_1 = \frac{1}{\alpha v} \frac{S_{1in} - \bar{S}_1}{VSS}$$

$$k_3 = k_1 \frac{v}{1-v} \left(\frac{S_{2in} - \bar{S}_2}{S_{1in} - \bar{S}_1} + \frac{k_2}{k_1} \right)$$

Connaissant les ratios $\frac{k_6}{k_3}, \frac{k_2}{k_1}, \frac{k_5}{k_3}, \frac{k_4}{k_1}$ nous déduisons les valeurs estimées de k_2, k_4, k_5 et k_6 .

Tableau IV-3 : Valeurs estimées des ratios de coefficients de rendement [Bernard et al.,2001].

Ratio	valeur	unité
$\frac{k_2}{k_1}$	2.72	mmol/g
$\frac{k_6}{k_3}$	1.62	
$\frac{k_5}{k_3}$	1.28	
$\frac{k_4}{k_1}$	1.18	mmol/g

Tableau IV-4 : Valeurs estimées des coefficients de rendement [Bernard et al.,2001].

Paramètre	valeur	unité
k_1	42.14	
k_2	116.5	mmol/g
k_3	268	mmol/g
k_4	50.6	mmol/g
k_5	343.6	mmol/g
k_6	453.0	mmol/g

Chapitre V

*Résultats et
discussions*

Chapitre V

Résultats et discussions

Le réacteur a été alimenté pendant une période de 83 jours avec différentes caractéristiques des effluents : charge organique qui a varié entre 4.3 et 15.6 g DCO/L, la concentration des AGVs et le pH (entre 68 et 113 g/L, 4.42 à 5.12 respectivement) et le taux de dilution D (entre 0.25 et 1.08 j⁻¹).

Les concentrations de la demande chimique en oxygène et des acides gras volatiles ont été mesurées régulièrement toutes les 15 minutes.

1. Résultats expérimentaux et simulés du pH

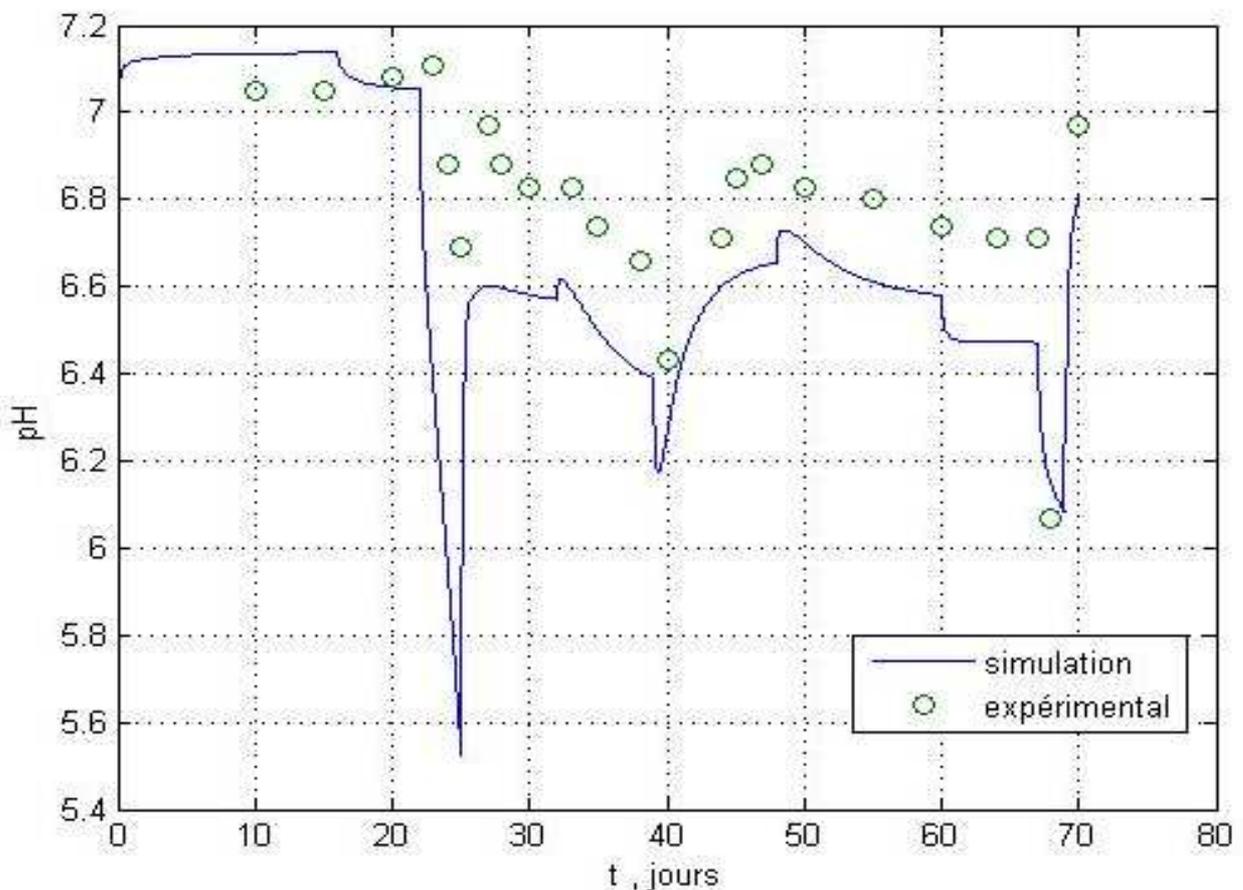


Figure V-1 : pH simulé et pH mesuré

Nous pouvons remarquer sur la **Figure V-1** que le modèle simulé prédit correctement les valeurs du pH dans le réacteur.

Les valeurs du pH restent optimales ($6 < \text{pH} < 7$) dans l'expérimentation et la simulation, malgré que l'hyperacidité ($4.42 < \text{pH} < 5.12$) de l'effluent. Ceci s'explique par l'activité des méthanogènes qui consomment les acides gras volatiles.

2. Alcalinité et carbone inorganique

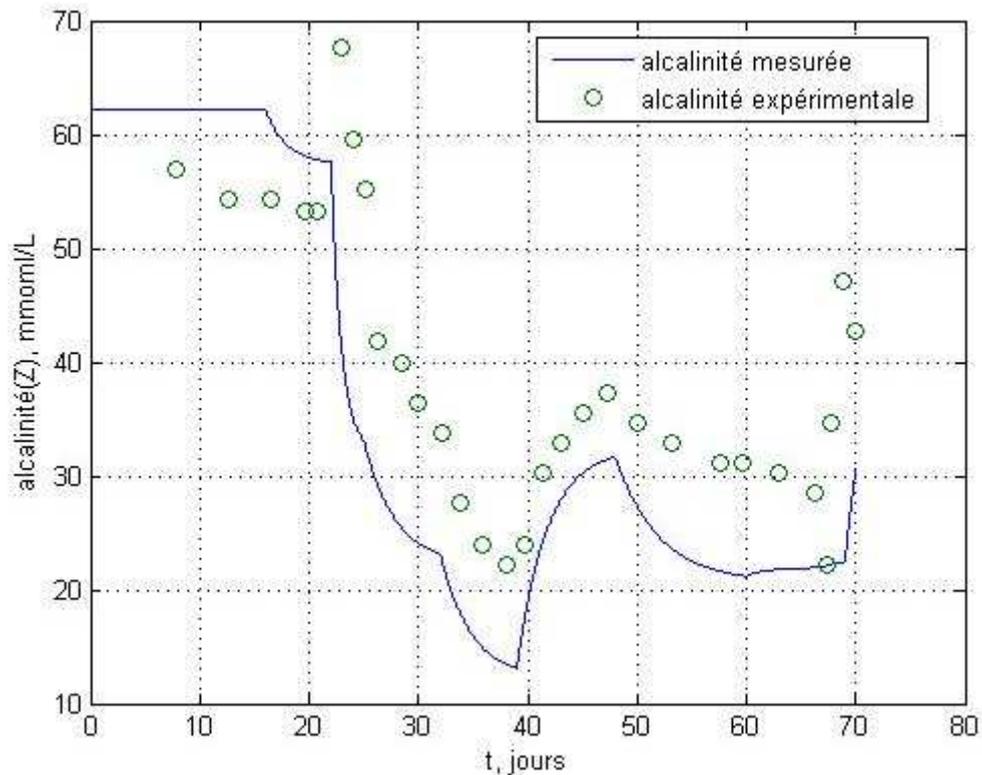


Figure V-2 : Résultats expérimentaux et simulés de l'alcalinité.

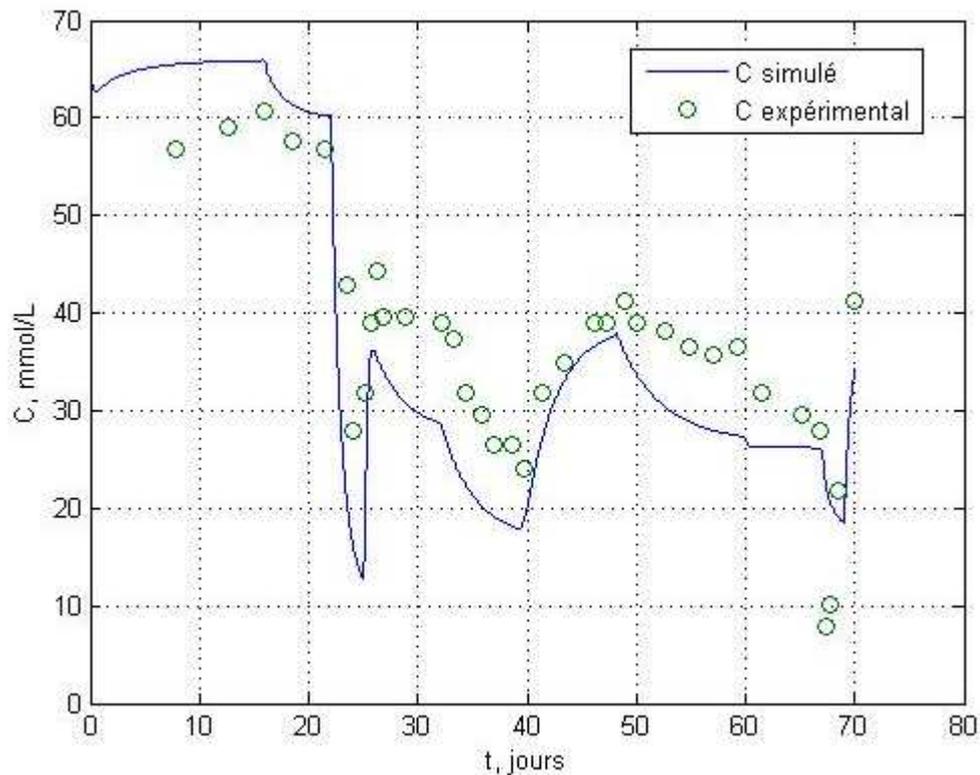


Figure V-3 : Concentrations simulées et expérimentales du carbone inorganique

Les résultats de la simulation et celles mesurées ont le même profil, avec une légère différence entre les valeurs qui peut être expliquée par l'acidité de l'effluent ce qui influe directement sur les incertitudes sur l'opération de titration pour la mesure de l'alcalinité de l'effluent.

Même explication pour la concentration du carbone inorganique car les valeurs des concentrations du carbone inorganique de l'effluent étaient calculées à partir de l'alcalinité.

3. Concentration de la demande chimique en oxygène DCO et des acides gras volatiles(AGV)

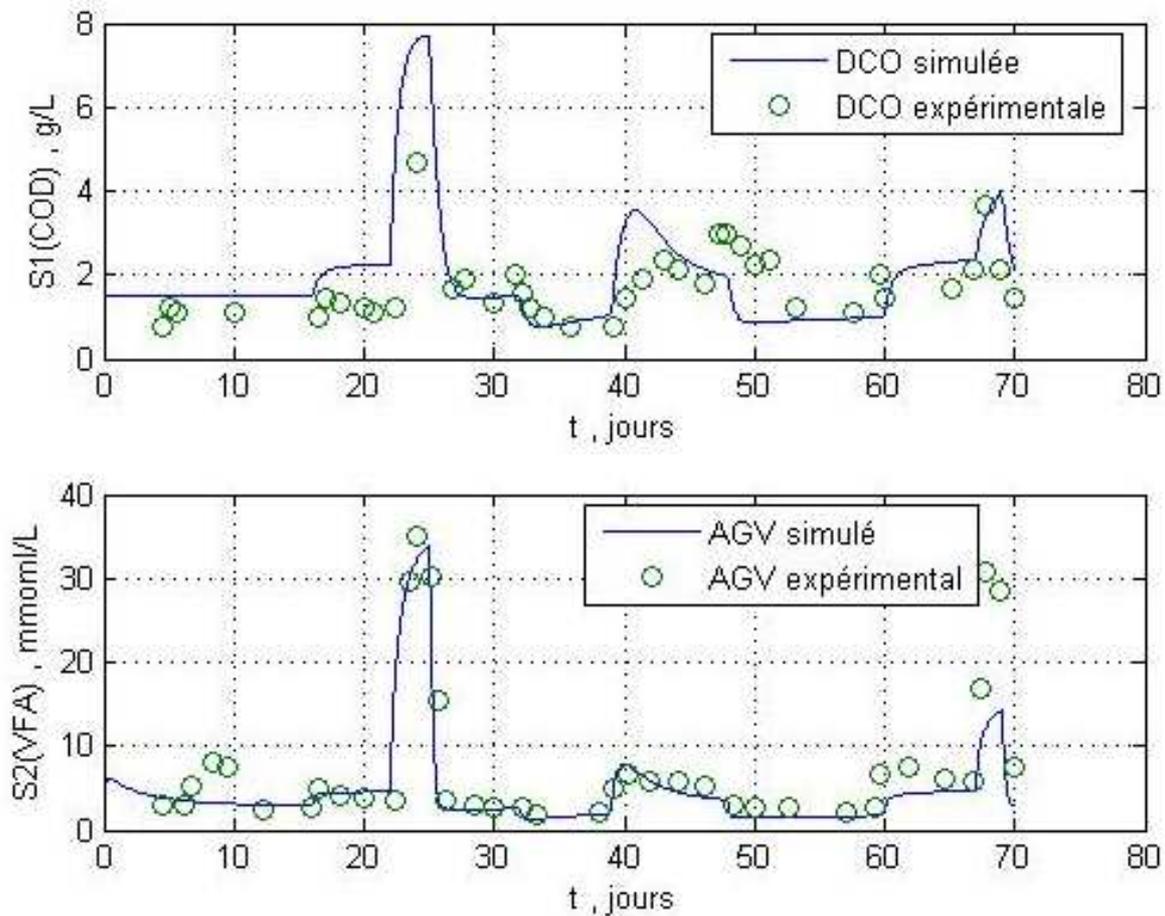


Figure V-4 : Concentrations mesurées et simulées de la DCO et des AGV

Les simulations sont aussi performantes pour les paramètres obtenus par des mesures hors-ligne.

Malgré que la concentration de la DCO représente différents composants qui peuvent varier lors de l'expérimentation, le modèle reproduit d'une manière satisfaisante ce paramètre. Nous remarquons que la simulation n'a pas prédit l'augmentation observée le 48^{ème} jour. Cette hausse de concentration ne peut pas être expliquée biochimiquement, car lors de cette période de l'expérience il n'y a pas eu une augmentation de la charge organique de l'effluent.

En comparant les concentrations entre l'entrée et la sortie du réacteur nous remarquons une grande efficacité du procédé à éliminer la matière organique, jusqu'à 90% de charge éliminée.

Nous pouvons déduire la même chose pour les valeurs des AGV. Notons aussi qu'au 68^{ème} jour le processus montre une augmentation de la concentration que le modèle n'a pas bien reproduite. Nous pouvons expliquer cette différence par le fait que le processus réagit plus rapidement aux augmentations de la charge organique que le modèle.

4. Les débits gazeux

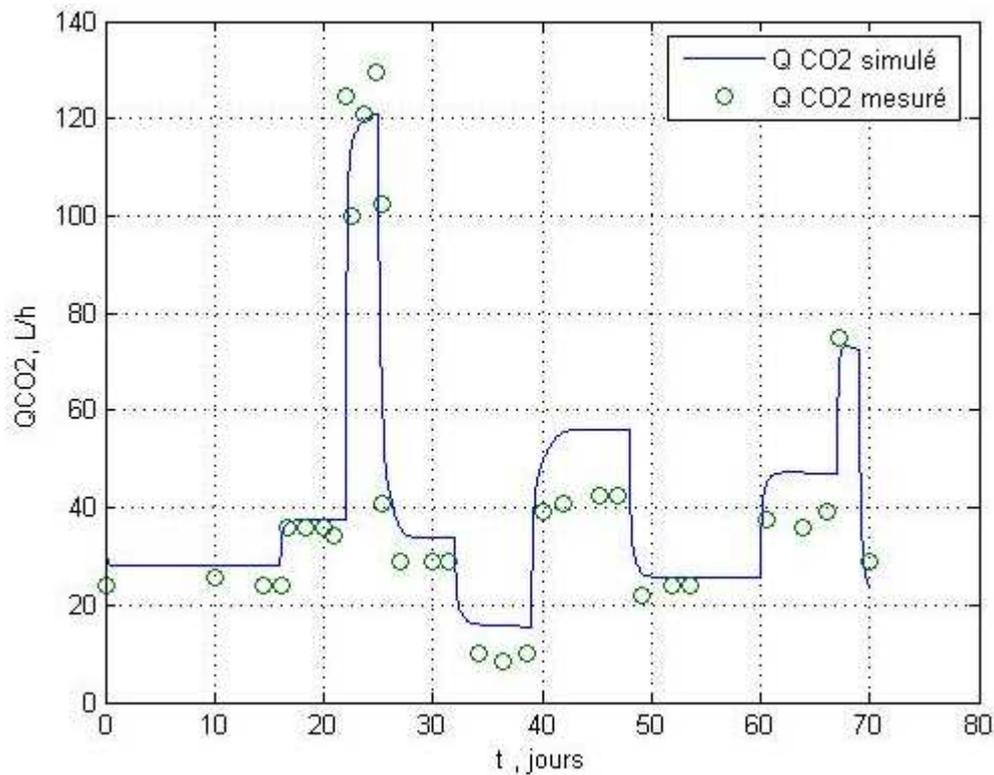


Figure V-5 : Débit de dioxyde de carbone produit.

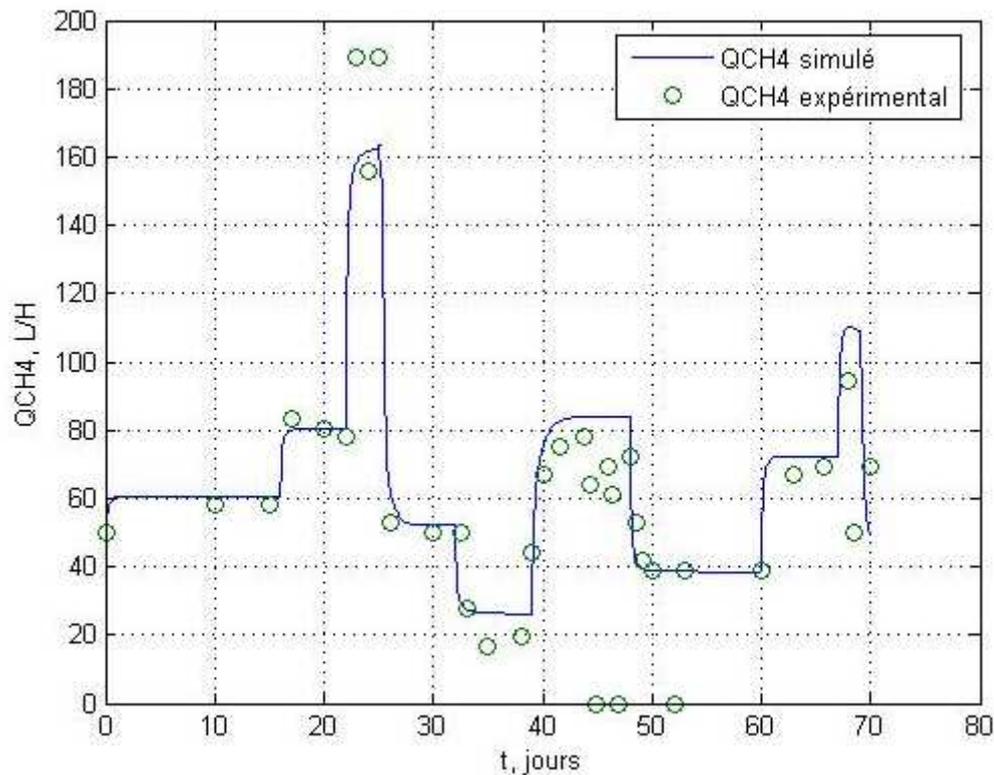


Figure V-6 : Débit du méthane produit.

La comparaison des résultats expérimentaux et ceux simulés nous permet de déduire que la simulation réalisée a une grande capacité de prédire les débits gazeux à la sortie du réacteur.

5. Conclusion

L'intérêt principal de la simulation du modèle AM3 sous environnement matlab, calibré à partir des données du régime permanent, est la prédiction des variations des paramètres qui définissent le processus de traitement des eaux par digestion anaérobie en régime dynamique.

La capacité du modèle à reproduire de près la réaction du processus aux différentes sollicitations (caractéristiques de l'effluent, débit d'alimentation) permet son intégration dans un processus de contrôle pour le procédé de traitement des eaux par digestion anaérobie.

Conclusion générale
et
perspectives

Conclusion générale

L'épuisement annoncé des ressources énergétiques fossiles, allié au problème environnemental du réchauffement climatique ont renforcé l'intérêt pour les énergies renouvelables et les alternatives qu'elles peuvent offrir. Les politiques mises en place abondent dans ce sens, en fixant des objectifs et des échéances pour les remplir (Livre Blanc, Directives *Electricité Renouvelable* et *Biocarburant*,...).

Les enjeux des énergies renouvelables sont vastes ; elles permettent d'une part de limiter l'augmentation des émissions de gaz à effet de serre en se substituant aux énergies fossiles. D'autre part elles offrent des moyens de production d'énergies à une échelle locale, réduisant de fait la dépendance aux combustibles fossiles. Parmi les multiples sources d'énergies renouvelables (solaire, éolien, thermique,...) le biogaz produit par digestion anaérobie, occupe une place particulière ; l'utilisation contrôlée de ce phénomène naturel permet de valoriser les déchets organiques en produisant du biogaz qui pourra se substituer au gaz naturel pour de nombreuses applications (cogénération, chauffage, moteur à gaz, carburant automobile). Une utilisation croissante de la digestion anaérobie s'inscrit ainsi dans une politique de développement durable. Les gisements de matière organique pouvant servir à produire du biogaz sont nombreux (effluents industriels et agricoles, déjections animales, déchets ménagers,...), mais ils restent néanmoins sous-exploités.

Les défis à relever pour populariser les procédés de digestion anaérobie sont de *garantir la pérennité* des installations en dépit de variations des effluents à traiter, et de *permettre l'amélioration* du procédé pour optimiser sa rentabilité et ce grâce à une meilleure connaissance des phénomènes agissant dans le processus de digestion anaérobie.

L'expérimentation est la meilleure solution pour définir ces processus, malheureusement elle reste fastidieuse et très onéreuse. A cet effet, de part le monde, les laboratoires de recherche élaborent des modèles régissant les phénomènes physico-chimiques et biologiques de ces process et simulent les différents paramètres pour remplacer l'expérimentation.

Dans le présent travail nous avons fait dans une première étape une étude bibliographique de la digestion anaérobie et de la modélisation de ce phénomène dans les bioprocédés. Dans une deuxième étape nous avons fait une simulation des phénomènes dynamiques (physiques, chimiques et biologiques) de ce procédé en utilisant le modèle AM2 sous environnement matlab.

Le modèle AM2 résume les processus biologiques en deux principales réactions : acidogénèse et méthanisation.

Ce modèle basé sur un bilan de matière a comme point fort l'estimation des différents paramètres du modèle (cinétiques, transfert-gaz-liquide et coefficients de rendement des réactions biologiques) au point d'équilibre (régime permanent) ce qui permet au modèle une excellente reproduction de la réaction du processus de digestion anaérobie face à différentes charges d'effluents à l'état d'équilibre.

Dans les deux premiers chapitres nous avons fait une étude bibliographique pour voir l'état d'art de la digestion anaérobie et la modélisation de ses processus.

Le troisième chapitre a été consacré à l'étude de la modélisation AM2 [...], plus simple que le modèle ADM1 et mieux adaptée à l'automatisation et contrôle.

Dans le quatrième et cinquième chapitre nous avons procédé à la simulation des phénomènes dynamique de la digestion anaérobie par le modèle AM2 sous environnement matlab en calant ses paramètres par les résultats expérimentaux à l'équilibre réalisés par le Professeur Olivier BERNARD à LBE – INRA Narbonne France, sur un réacteur pilote.

A travers nos travaux et les calculs effectués par notre simulation, la modélisation choisie s'est montré très performante pour la prédiction de différents paramètres à l'intérieur du réacteur (la DCO, les AGV, l'alcalinité et le carbone inorganique), ainsi que ceux à la sortie du réacteur (débits gazeux) lors des périodes de déstabilisation du procédé.

Perspectives

Le modèle AM2 souvent utilisé par les ingénieurs automaticiens nous a permis de nous familiariser avec le calcul et la numérisation de la digestion anaérobie.

Dans nos travaux à venir, nous projetons de simuler le même procédé par le modèle ADM1, plus performant et plus adapté à la biologie et à la chimie de l'eau.

Par ailleurs, de nombreuses recherches ont montré que l'association de ce procédé avec la filtration membranaire est plus efficace pour la dégradation de la matière organique et pour la production de biogaz et ce par la rétention de la biomasse dans le réacteur. Par conséquent, dans le cadre des projets de recherche 3+3 et Aires sud ainsi que mes travaux en collaboration avec le laboratoire de l'environnement de l'école polytechnique de Milan, où j'ai déjà effectué un stage de trois mois, nous comptons axer nos recherches de modélisation plus vers la filtration membranaire, pour mieux modéliser le phénomène de colmatage.

Annexe

Annexe

- Caractéristiques de l'effluent lors des expérimentations

temps(j)	CODin(g/L)	AGV(mmol/L)	pH
0-16	9,5	93,6	5,12
16-22	9,4	89,1	5,08
22-25	14,75	113,3	4,42
25-32	10	73,68	4,46
32-39	4,8	38,06	4,5
39-48	15,6	112,7	4,43
48-60	10,6	72,98	4,42
60-67	10,7	71,6	4,47
67-69	9,3	74,5	4,46
69-70	9,1	68,78	5,3

- Taux de dilution

temps (j)	D (j ⁻¹)	temps (j)	D (j ⁻¹)
6,72	0,29072	35,84	0,68384
7,84	0,30584	40	0,74
9,24	0,32474	44,8	0,8048
11,48	0,35498	45,92	0,81992
12,88	0,37388	46,48	0,82748
13,44	0,38144	47,04	0,83504
14,56	0,39656	47,6	0,8426
15,68	0,41168	48,16	0,85016
16,8	0,4268	49,28	0,86528
21,28	0,48728	50,96	0,88796
22,96	0,50996	52,64	0,91064
23,52	0,51752	54,32	0,93332
26,88	0,56288	58,24	0,98624
28	0,578	63,84	1,06184
30	0,605	64,96	1,07696
32,48	0,63848	66,08	1,09208
33,6	0,6536	70	1,145
34,72	0,66872		

- Valeurs expérimentales**- Valeurs du pH mesurées**

temps	pH mesuré	temps	pH mesuré
10	7,05	40	6,43
15	7,05	44	6,71
20	7,08	45	6,85
23	7,11	47	6,88
24	6,88	50	6,83
25	6,69	55	6,80
27	6,97	60	6,74
28	6,88	64	6,71
30	6,83	67	6,71
33	6,83	68	6,07
35	6,74	70	6,97

- Mesures de la demande chimique en oxygène au réacteur

temps	COD(g/L)	temps	COD(g/L)
4,6	0,78	40,0	1,44
5,1	1,22	41,4	1,89
5,7	1,11	43,0	2,33
10,0	1,11	44,1	2,11
16,5	1,00	46,2	1,78
17,0	1,44	47,3	3,00
18,1	1,33	47,8	3,00
20,0	1,22	48,9	2,67
20,8	1,11	50,0	2,22
22,4	1,22	51,1	2,33
24,1	4,67	53,2	1,22
26,8	1,67	57,6	1,11
27,8	1,89	60,0	1,44
30,0	1,33	59,7	2
31,6	2,00	65,1	1,67
32,2	1,56	66,8	2,11
32,7	1,22	67,8	3,67
33,8	1,00	68,9	2,11
35,9	0,78	70,0	1,44
39,2	0,78		

- Concentrations des acides gras volatiles mesurées

temps(j)	AGV (mmol/L)	Temps(j)	AGV (mmol/L)
4,6	3,11	38,1	2,22
6,2	3,11	39,2	4,89
6,8	5,33	40,3	6,67
8,4	8,00	41,9	5,78
9,5	7,56	44,1	5,78
12,2	2,44	46,2	5,33
15,9	2,67	48,4	3,11
16,5	4,89	50,0	2,67
18,1	4,00	52,7	2,67
20	3,78	57,0	2,22
22,4	3,56	59,2	2,67
23,5	29,78	59,7	6,67
24,1	35,11	61,9	7,56
25,1	30,22	64,6	6,22
25,7	15,56	66,8	5,78
26,2	3,56	67,3	16,89
28,4	3,11	67,8	30,67
30,0	2,67	68,9	28,44
32,2	2,67	70,0	7,56
33,2	1,78		

- Carbone inorganique et alcalinité mesurés

temps(j)	C (mmol/L)	temps(j)	C (mmol/L)	temps(j)	Z (mmol/L)	temps(j)	Z (mmol/L)
7,8	56,78	39,7	24,11	7,8	56,89	39,7	24,00
12,7	59,11	41,4	31,89	12,7	54,22	41,4	30,22
15,9	60,67	43,5	35,00	16,5	54,22	43,0	32,89
18,6	57,56	46,2	38,89	19,7	53,33	45,1	35,56
21,4	56,78	47,3	38,89	20,8	53,33	47,3	37,33
23,5	42,78	48,9	41,22	23,0	67,56	50,0	34,67
24,1	28,00	50,0	38,89	24,1	59,56	53,2	32,89
25,1	31,89	52,7	38,11	25,1	55,11	57,6	31,11
25,7	38,89	54,9	36,56	26,2	41,78	59,7	31,11
26,2	44,33	57,0	35,78	28,4	40,00	63,0	30,22
26,8	39,67	59,2	36,56	30,0	36,44	66,2	28,44
28,9	39,67	61,4	31,89	32,2	33,78	67,3	22,22
32,2	38,89	65,1	29,56	33,8	27,56	67,8	34,67
33,2	37,33	66,8	28,00	35,9	24,00	68,9	47,11
34,3	31,89	67,3	7,78	38,1	22,22	70,0	42,67
35,9	29,56	67,8	10,11				

37,0	26,44	68,4	21,78
38,6	26,44	70,0	41,22

- Débits de gaz produit

temps (j)	Qch4 (L/h)	temps (j)	Qch4 (L/h)	temps (j)	qCO2 (L/h)	temps (j)	qCO2(L/h)
0	50	43,8	77,78	0,00	23,86	21,47	28,98
10	58,33	44,3	63,89	10,00	25,57	24,22	10,23
15	58,33	44,8	0,00	14,40	23,86	26,42	8,52
17	83,33	45,9	69,44	16,06	23,86	28,62	10,23
20	80,56	46,4	61,11	16,61	35,80	40,00	39,20
22	77,78	47,0	0,00	18,26	35,80	31,93	40,91
23	188,89	48,0	72,22	20,00	35,80	35,23	42,61
24	155,56	48,6	52,78	21,01	34,09	36,88	42,61
25	188,89	49,1	41,67	12,11	124,43	39,08	22,16
26	52,78	50	38,89	12,66	100	41,83	23,86
30	50	52	0,00	13,76	121,02	43,49	23,86
32,5	50	53	38,89	14,86	129,55	50,64	37,50
33,0	27,78	60	38,89	15,41	102,27	53,94	35,80
35	16,67	63,0	66,67	15,41	40,91	56,15	39,20
38	19,44	65,7	69,44	17,06	28,98	57,25	75,00
39	44,44	67,9	94,44	30,00	28,98	70,00	28,98
40	66,67	68,4	50				
41,6	75,00	70	69,44				

- Code du calcul

```

t=0;%initiation temps
i=0;
pas=1/(2*24);%résolution des eqts diff chaque 30 min
duree=70;
zed=[1.5;0.38;5.3;0.45;62.16;65];%initiation vecteur d etat avec les valeurs obtenues au premier
regime permanent
alk=12.96;
pH=7.04;
mu1max=1.2;
mu2max=0.74;
kb=6.5E-7;
KLa=19.8;
KH=16;
PT=1.013;
ks1=9.1;
ks2=9.28;
k6=453;
k12=256;
while t<=duree
    [T,Z] = ode45('odevetat',[t t+pas],zed);
    t=t+pas;
    i=i+1;
    zed(1) = Z(end,1);
    zed(2) = Z(end,2);

```

```
zed(3) = Z(end,3);
zed(4) = Z(end,4);
zed(5) = Z(end,5);
zed(6) = Z(end,6);
tps(i)=t;
w(i)=zed(1);
m(i)=zed(2);
l(i)=zed(3);
n(i)=zed(4);
p(i)=zed(5);
ac(i)=zed(6);
figure(1)
subplot(2,1,1),plot(tps,w,tpS1,S1exp,'o'),grid
xlabel('t , jours'),ylabel('S1(COD) , g/L')
subplot(2,1,2),plot(tps,l,tvfa,VFAexp,'o'),grid
xlabel('t , jours'),ylabel('S2(VFA) , mmoml/L')
figure(2)
subplot(2,1,1),plot(tps,m),grid
xlabel('t , jours'),ylabel('X1 , g/L')
subplot(2,1,2),plot(tps,n),grid
xlabel('t , jours'),ylabel('X2 , g/L')
figure(3)
subplot(2,1,1),plot(tps,p,tZ,Zexp,'o'),grid
xlabel('t , jours'),ylabel('alk , mmol/L')
subplot(2,1,2),plot(tps,ac,tC,Cexp,'o'),grid
xlabel('t , jours'),ylabel('C , mmol/L')
figure(4)
subplot(2,1,1),plot(tps,qCa*22.4/24,tCO2,CO2exp,'o'),grid
xlabel('t , jours'),ylabel('QCO2, L/h ')
subplot(2,1,2),plot(tps,aqM*22.4/24,tqM,qMexp,'o'),grid
```

Bibliographie

Bibliographie

AND INTERNATIONAL, « *Le marché de la méthanisation en France. Hypothèses d'évolution À 5 et 10 ans* », Rapport technique, GDF - ADEME, 2007.

J. F. ANDREWS, « *A Mathematical Model for the Continuous Culture of Microorganisms Utilizing Inhibitory Substrates* », *Biotechnology and Bioengineering*, vol. 10, no 6, p. 707–723, 1968.

J. E. BAILLEY & D. F. OLLIS, « *Biochemical engineering fundamentals* », vol. McGraw-Hill Chemical Engineering Series, McGraw-Hill, second edition édition, 1986.

J. A. BARNETT, « *Beginnings of microbiology and biochemistry : the contribution of yeast research* », *Microbiology*, vol. 149, p. 557–567, 2003.

D. J. BATSTONE, J. KELLER, I. ANGELIDAKI, S. V. KALYUZHNYI, S. G. PAVLOSTATHIS, A. ROZZI, W. T. M. SANDERS, H. SIEGRIST & V. A. VAVILLIN, « *The IWA Anaerobic Digestion Model No 1 (ADM1)* », *Water Science and Technology*, vol. 45, no 10, p. 65–73, 2002.

O. BERNARD, Z. HADJ-SADOK, D. DOCHAIN, A. GENOVESI & J.-P. STEYER, « *Dynamical model development and parametric identification for an anaerobic wastewater treatment process* », *Biotechnology and Bioengineering*, vol. 75, no 4, p. 424–438, November 2001.

D. R. BOONE & M. P. BRYANT, « *Propionate-Degrading Bacterium, Syntrophobacter wolinii sp. nov. gen., from Methanogenic Ecosystems* », *Applied and Environmental Microbiology*, vol. 40, no 3, p. 626–632, 1980.

R. BRAUN, « *Improvement of Crop Plants for Industrial End Uses* », chap. *Anaerobic digestion : a multi-faceted process for energy, environmental, management and rural development*, p. 335–416,

Springer, 2007.

R. H. CLARK & R. E. SPEECE, « *The pH tolerance of anaerobic digestion* », *Advances in Water Pollution Research*, vol. 1, p. 1–13, 1971.

G. DINOPOULOU, T. RUDD & J. LESTER, « *Anaerobic Acidogenesis of a Complex Wastewater : I. The Influence of Operational Parameters on Reactor Performance* », *Biotechnology & Bioengineering*, vol. 31, no 9, p. 958–968, 1987.

H. N. GAVAL, I. ANGELIDAKI & B. H. AHRING, *Biomethanation I*, vol. 81 de *Advances in Biochemical Engineering and Biotechnology*, chap. *Kinetics and Modeling of Anaerobic Digestion Process*, p. 57–93, Springer Berlin / Heidelberg, 2002.

S. GHOSH & F. G. POHLAND, « *Kinetics of substrate assimilation and product formation in anaerobic digestion* », *Water Pollution Control Federation*, vol. 46, p. 748–759, 1974.

H. GIJZEN, « *Anaerobic digestion for sustainable development : a natural approach* », *Water Science and Technology*, vol. 45, no 10, p. 321–328, 2002.

J.-J. GODON, E. ZUMSTEIN, P. DABERT, F. HABOUZIT & R. MOLETTA, « *Molecular Microbial Diversity of an Anaerobic Digester as Determined by Small-Subunit rDNA Sequence Analysis* », *Applied Environmental Microbiology*, vol. 63, no 7, p. 2802–2013, 1997.

S. GOSH, « *Anaerobic digestion for renewable energy and environmental restoration* », Dans *Proceedings of the 8th IWA International Conference on Anaerobic Digestion*, vol. 1, p. 9–15,

25-29 May 1997.

S. P. GRAEF & J. F. ANDREWS, « *Mathematical modeling and control of anaerobic digestion* »,

Dans *Water*, vol. 70 de *AIChE Symposium Series*, 1973.

E. R. HALL, L. W. HULSHOFF, G. LETTINGA, J. F. MALINA & J. F. G. POHLAND, «*Design of anaerobic processes for the treatment of industrial and municipal wastes*», vol. 7 de Water Quality Management Library, Technomic Publishing Company, 1992.

D. T. HILL & C. L. BARTH, «*A dynamic model for simulation of animal waste digestion* », Journal WPCF, vol. 10, p. 2129–2143, October 1977.

H. HIPPE, D. CASPARI, K. FIEBIG & G. GOTTSCHALK, «*Utilization of trimethylamine and other N-methyl compounds for growth and methane formation by Methanosarcina barkeri* », Proc. N. A. S., vol. 76, no 1, p. 494–498, 1979.

IEA, «*Key World Energy Statistics* », Rapport technique, IEA (International Energy Agency), 2007.

IWA TASK GROUP FOR MATHEMATICAL MODELLING OF ANAEROBIC DIGESTION PROCESSES, «*Anaerobic digestion model no. 1 (adm1)* », Rapport technique, IWA (International Water Association), February 2002.

S. JAIN & B. MATTIASSON, «*Acclimatization of methanogenic consortia for low ph biomethanation process* », Biotechnology Letters, vol. 20, no 8, p. 771–775, 1998.

S. KALYUZHNYI, V. FEDOROVICH, P. LENS, L. H. POL & G. LETTINGA, «*Mathematical modelling as a tool to study population dynamics between sulfate reducing and methanogenic bacteria* », Biodegradation, vol. 9, p. 187–199, 1998.

H. F. KASPAR & K. WUHRMANN, «*Kinetics Parameters and Relative Turnovers of Some Important Catabolic Reactions in Digesting Sludge* », Applied and Environmental Microbiology, vol. 36, no 1, p. 1–7, 1978.

P. L. MCCARTY & F. E. MOSEY, «*Modelling of anaerobic digestion processes (a discussion of concepts)* », Water Science and Technology, vol. 24, no 8, p. 17–33, 1991.

P. MEYNELL, *Methane : Planning a Digester*, Prism Press, 1976.

R. MOLETTA, « *Winery and distillery wastewater treatment by anaerobic digestion* », *Water Science and Technology*, vol. 51, no 1, p. 137–144, 2005.

J. MONOD, *Recherches sur la croissance des cultures bactériennes*, Hermann & cie, 1942.

F. E. MOSEY, « *Mathematical modelling of the anaerobic digestion process : regulatory mechanisms for the formation of short-chain volatile acids from glucose* », *Water Science and Technology*, vol. 15, p. 209–232, 1983.

P. A. MURRAY & S. ZINDER, « *Nutritional Requirements of Methanosarcina sp. Strain TM-1* », *Applied and Environmental Microbiology*, vol. 50, no 1, p. 49–55, 1985.

N. NISHIO, TAPAN KUMAR MAZUMDER & S. NAGAI, « *Methane Production from Formate, Methanol and Acetate in Chemostat Cultures* », *Journal of Fermentation Technology*, vol. 62, no 5, p. 487–491, 1984.

W. PARAWIRA, M. MURTO, J. S. READ & B. MATTIASSON, « *Profile of hydrolases and biogas production during two-stage mesophilic anaerobic digestion of solid potato waste* », *Process Biochemistry*, vol. 40, no 9, p. 3412–3418, November 2005.

I. SIEGERT & C. BANKS, « *The effect of volatile fatty acid additions on the anaerobic digestion of cellulose and glucose in batch reactors* », *Process Biochemistry*, vol. 40, no 11, p. 3412–3418, November 2005.

X. J. SINECHAL, M. J. INSTALLE & E.-J. NYNS, « *Differentiation between acetate and higher volatile acids in the modeling of the anaerobic biomethanation process* », *Biotechnology Letters*, vol. 1, no 8, p. 309–314, 1979.

P. H. SMITH & R. A. MAH, « *Kinetics of acetate metabolism during sludge digestion* », *Applied Microbiology*, vol. 14, no 3, p. 368–371, 1966.

J.-P. STEYER, C. ACEVES, I. RAMIREZ, A. ELIAS, J. HESS, O. BERNARD, H. B. NIELSEN, K. BOE & I. ANGELIDAKI, « *Optimizing biogas production from anaerobic digestion* », Dans *Proceedings of WEFTEC.06*, Dallas, US, 2006.

P. VANROLLEGHEM & D. LEE, « *On-line monitoring equipment for wastewater treatment process : state of the art* », *Water Science and Technology*, vol. 47, no 2, p. 1–34, 2003.

A. VEEKEN, S. KALYUZHNYI, H. SCHARFF & B. HAMELERS, « *Effect of pH and VFA on Hydrolysis of Organic Solid Waste* », *Journal of Environmental Engineering*, vol. 126, no 12, p. 1076–1081, 2000.

J. G. ZEIKUS, « *Chemical and fuel production by anaerobic bacteria* », *Annual Review in Microbiology*, vol. 34, p. 423–464, 1980.