



HAL
open science

La méthanisation par voie sèche agricole appliquée aux fumiers de bovins : optimisation de la recirculation des lixiviats

Axelle Degueurce

► **To cite this version:**

Axelle Degueurce. La méthanisation par voie sèche agricole appliquée aux fumiers de bovins : optimisation de la recirculation des lixiviats. Autre. Université de Rennes, 2016. Français. NNT : 2016REN1S016 . tel-01379423

HAL Id: tel-01379423

<https://theses.hal.science/tel-01379423>

Submitted on 11 Oct 2016

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

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

THÈSE / UNIVERSITÉ DE RENNES 1
sous le sceau de l'Université Bretagne Loire

pour le grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE RENNES 1

Mention : Chimie

Ecole doctorale SDLM

présentée par

Axelle Degueurce

Préparée à l'unité de recherche
Gestion environnementale et traitement biologique des déchets (GERE)
IRSTEA

**La méthanisation par
voie sèche agricole
appliquée aux
fumiers de bovins :
optimisation de la
recirculation des
lixiviats**

**Thèse soutenue à Rennes
le 12 Mai 2016**

devant le jury composé de :

Renaud ESCUDIÉ

Chargé de Recherche, INRA-LBE Narbonne /
rapporteur

Rémy GOURDON

Professeur, INSA Lyon / *rapporteur*

Sébastien POMMIER

Ingénieur de Recherche, CRITT GPTE /
examineur

Thierry RIBEIRO

Enseignant-Chercheur, LaSalle-Beauvais /
examineur

Pascal PEU

Ingénieur de Recherche, Irstea Rennes /
examineur

José MARTINEZ

Directeur de Recherche, Irstea Rennes / *directeur
de thèse*

THÈSE / UNIVERSITÉ DE RENNES 1
sous le sceau de l'Université Bretagne Loire

pour le grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE RENNES 1

Mention : Chimie

Ecole doctorale SDLM

présentée par

Axelle Degueurce

Préparée à l'unité de recherche
Gestion environnementale et traitement biologique des déchets (GERE)
IRSTEA

**La méthanisation par
voie sèche agricole
appliquée aux
fumiers de bovins :
optimisation de la
recirculation des
lixiviats**

**Thèse soutenue à Rennes
le 12 Mai 2016**

devant le jury composé de :

Renaud ESCUDIÉ

Chargé de Recherche, INRA-LBE Narbonne /
rapporteur

Rémy GOURDON

Professeur, INSA Lyon / *rapporteur*

Sébastien POMMIER

Ingénieur de Recherche, CRITT GPTE /
examineur

Thierry RIBERO

Enseignant-Chercheur, Lassalle-Beauvais /
examineur

Pascal PEU

Ingénieur de Recherche, Irstea Rennes /
examineur

José MARTINEZ

Directeur de Recherche, Irstea Rennes / *directeur
de thèse*

Remerciements

Je remercie tout d'abord Renaud Escudié et Rémi Gourdon pour avoir accepté d'évaluer mon travail de doctorat en tant que rapporteurs et membres du jury de soutenance, ainsi que les examinateurs, Thierry Ribeiro et Sébastien Pommier.

Je souhaite également remercier José Martinez, mon directeur de thèse, pour ses conseils et la confiance qu'il m'a accordée au cours de ces trois années. Un grand merci à Pascal Peu, co-directeur de thèse, pour son implication, son expertise, son soutien et tout le temps qu'il a passé à m'initier et me former sur des sujets aussi divers et variés que la soudure, la plomberie ou encore le maniement d'une clé à molette (c'était vraiment pas gagné d'avance). Je salue aussi ta réactivité lorsque les choses ont failli tourner au vinaigre car c'est en grande partie grâce à toi que j'ai pu finaliser mes travaux. Merci également à Fabrice Béline et Véronique Bellon-Maurel d'avoir œuvré pour que cette thèse puisse s'achever avec le soutien financier de l'Irstea.

Je remercie aussi Pierre Buffière, Laurent Oxarango, Fabrice Béline, Céline Druilhe, Romain Girault, Sylvain Moreau et Rémi Clément pour avoir participé aux discussions et recadré ou étoffé les réflexions autour de ce travail lors des différents comités de pilotage. Je remercie particulièrement Céline pour son aide expérimentale et littéraire ainsi que Rémi et Sylvain pour leur disponibilité et leur initiation à la géophysique, que ce soit au laboratoire, sur le terrain ou pendant les phases d'écriture. Je tiens aussi à remercier Marie-Line Daumer et Anne Trémier pour leur aide et conseils quant à l'utilisation des plans d'expériences.

Merci à Nair qui a mis la main à la patte lors de son stage, aux filles du labo, Mylène, Patricia, Sylvie, Sophie et à Julie, fille du hall, pour avoir eu la patience de répondre à mes nombreuses questions pratiques et pour leur disponibilité.

Mes remerciements vont aussi à tous ceux qui font que l'ambiance au centre Irstea de Rennes est agréable au café, à midi, pendant les soirées jeux et autres événements Mosaique. Merci donc à Brigitte, Asma, Nicolas, Lionel, Sylvain, Yannick, Amaury (pour tes blagues qui font mouche !), Mylène (pour les MàJ de OUAT), Lynda (pour les mollets de Brad), Romain G (pour le copyright), Pascal, Thierry, Claire, les Fabrice, Patrick, Anne-Marie, Christelle (co-bureau d'exception !), Henry, Romain C (bédéiste de talent), Simon, Anne-Laure, Younes, Benjamin, Guillaume et bien sûr, la seule et l'unique Christine ! (et son pull à poils...) Je remercie tout particulièrement Julie et Sophie, ou plus simplement les Morues, pour leurs propos bienveillants et chaleureux au détour d'un couloir, d'un

labo, d'un bureau... A mon compte à rebours attiré, Pascal, mieux réglé qu'un coucou Suisse, qui m'a régulièrement rappelé qu'un jour venait de s'écouler avec toujours 0 articles au compteur...

Merci à ceux grâce à qui les soirées à La Cité D'Ys, et plus tard au Gazo, sont devenues incontournables et inoubliables: Lucas, Faustine, Arnaud, Jordan, Etienne, Samig, Clément, Anthony, Nicolas, Cyril et Jérémy avec leurs + unes. Merci au palet (je ne parle pas des biscuits !), aux galettes saucisses du marché des lices et à la bonne bière.

Aux trégorrois pour m'avoir fait partagé leur culture et leur terroir à travers la musique, les lieux, les fest-noz, les mariages, les débats et philosophies de vie... ah oui et l'humour aussi (c'est l'histoire d'un bigouden et d'un léonard,... bref !). Merci donc à Daniel, Françoise, Aline, Antonin, Vio, Arnaud, Tomig, Anné, Erwan, Tim & Anne, Joanne, Norig et Anaïs. Et à ceux qui ne sont pas du Trégor mais grâce à qui les week-ends et vacances ont pu être si relaxants : Tom, Camille, Brendan, François, Evan, Brieg, Antoine, Gaëlle et Aurélie. Et surtout, merci à Jonas Lössl, sans qui les soirées foot de l'EAG ne seraient plus les mêmes.

Merci à mes amis qui m'ont encouragée jusqu'au bout et qui ont bienheureusement croisé ma route un jour. Merci à Didy Pouet, celle qui suit, un peu par hasard, le même chemin que moi depuis de nombreuses années ; à Jean-Gui, mon coloc' toujours au taquet, parfois difficile à canaliser mais qui a bien d'autres qualités (je parle de ton humour ...) ; à ma gueuse, Méla, et son accent chantant ; à Mich, merci notamment pour Penmarc'h et Soldat Louis ;) ; à Dodo, Eugénie, Tau, Zean, Corentin, Fanoo et la grand-mère de Dodo, pour VénéZan !

Enfin, merci à ma maman, sans qui je ne serais pas là aujourd'hui. Merci pour ton soutien indéfectible, ta présence pendant toutes ces années passées et celles à venir. Merci à mes frères, Yann et Arnaud, qui sont toujours là pour moi qu'importe la distance et le temps qui passe. A vous trois : merci d'exister ! Je ne remercierai jamais assez Sam, une de mes plus belles rencontres, qui n'est pas étranger à mon évolution et ma réussite. Merci pour ta patience, tes paroles apaisantes et ton implication à mes côtés en cette fin de thèse (et aussi pour m'avoir nourrie !!!).

Liste des communications relatives à cette thèse

Publications scientifiques

Degueurce, A., Tomas, N., Le Roux, S., Martinez, J., Peu, P. 2016. Biotic and abiotic roles of leachate recirculation in batch mode solid-state anaerobic digestion of cattle manure. *Bioresource Technology*, 200, 388-395.

Degueurce, A., Trémier, A., Peu, P. 2016. Dynamic effect of leachate recirculation on batch solid state anaerobic digestion: influence of recirculated volume, liquid to solid ratio and recirculation periodicity. *Soumis à Bioresource Technology*.

Degueurce, A., Clément, R., Moreau, S., Peu, P. 2016. On the value of electrical resistivity tomography for monitoring leachate injection in solid state anaerobic digestion plants at farm scale. *Soumis à Waste Management*.

Communications orales

Degueurce, A., Druilhe, C., Kliber, S., Martinez, J., Peu, P. A new design tool for solid-state anaerobic digestion. 5th International Conference on Engineering for Waste and Biomass Valorisation, Rio de Janeiro, Brazil, August 25-28, 2014.

Degueurce, A., Druilhe, C., Kliber, S., Martinez, J., Peu, P. Optimiser la méthanisation par voie sèche discontinue par la recirculation du lixiviat. Journées Recherche Industrie Biogaz Méthanisation, Rennes, 3-5 Février 2015.

Capdeville, J., Peu, P., Perrot, C., Bioteau, T., Degueurce, A. Fumiers de bovins, un gisement à fort potentiel pour le secteur de la méthanisation en France. Journées Recherche Industrie Biogaz Méthanisation, Rennes, 3-5 Février 2015.

Clément, R., Degueurce, A., Moreau, S., Peu, P. 2015. First leachate injection monitoring in farm scale solid state anaerobic digestion plant by electrical resistivity tomography. 3rd International Workshop on Geoelectrical Monitoring, Vienna, Austria, November 4 - 26, 2015.

Communications affichées

Degueurce, A., Kliber, S., Martinez, J., Peu, P. Optimiser la méthanisation par voie sèche discontinue par la recirculation du lixiviat. Journée des Doctorants 2015 – Ecole Doctorale SDLM.

Peu, P., Degueurce, A., Tomas, N., Le Roux, S., Martinez, J. Leachate biotic and abiotic effects on solid state anaerobic digestion of cow manure. 14th World Congress on Anaerobic Digestion, Viña del Mar, Chile, November 15 – 18, 2015.

Publication technique

Degueurce, A., Capdeville, J., Perrot, C., Bioteau, T., Martinez, J., Peu, P. 2016. Fumiers de bovins, une ressource à fort potentiel pour la filière de méthanisation en France ? Science, Eaux et Territoire, hors-série numéro 24.

Table des matières

Remerciements.....	5
Liste des communications relatives à cette thèse	7
Table des matières	9
Liste des abréviations	15
Liste des figures	17
Liste des tableaux	21
Introduction Générale.....	25
Chapitre 1 : Synthèse bibliographique.....	31
1. La méthanisation : une filière en développement.....	33
1.1. Définition et historique.....	33
1.2. Etat des lieux de la digestion anaérobie en France.....	35
1.2.1. Contexte réglementaire et enjeux environnementaux	35
1.2.2. Les gisements de substrats disponibles	36
1.2.3. Evolution et répartition des unités de méthanisation.....	37
2. Le processus de la digestion anaérobie	39
2.1. Description des étapes	39
2.1.1. L'hydrolyse.....	40
2.1.2. L'acidogenèse.....	41
2.1.3. L'acétogenèse	41
2.1.4. La méthanogenèse	42
2.2. L'environnement réactionnel.....	42
2.2.1. La température.....	43
2.2.2. Le pH	44
2.2.3. L'alcalinité.....	44
2.2.4. Les co-facteurs.....	45

2.3.	Les principaux inhibiteurs	45
2.3.1.	Les acides gras volatils.....	45
2.3.2.	L'ammoniac.....	46
2.3.3.	Le sulfure d'hydrogène.....	47
2.3.4.	Les ions métalliques	47
2.4.	Les spécificités de la digestion anaérobie par voie sèche.....	48
2.4.1.	Le ratio C/N.....	49
2.4.2.	Le taux d'humidité	49
2.4.3.	L'inoculation	50
2.4.4.	La taille des particules.....	51
2.5.	Conclusion intermédiaire.....	52
3.	Les procédés de méthanisation par voie sèche	52
3.1.	Les différentes technologies	52
3.2.	Cas particulier des réacteurs discontinus avec recirculation du lixiviat.....	54
3.2.1.	Présentation générale du dispositif.....	54
3.2.2.	Importance et bénéfices de la recirculation du lixiviat.....	56
3.2.3.	Le choix du lixiviat.....	63
3.2.4.	Les paramètres de recirculation.....	63
3.3.	Conclusion intermédiaire.....	72
4.	Efficacité de la recirculation du lixiviat à grande échelle	73
4.1.	Propriétés physiques d'un milieu poreux : effet sur l'écoulement du lixiviat.....	74
4.1.1.	La porosité	74
4.1.2.	La conductivité hydraulique à saturation	75
4.1.3.	La masse volumique	76
4.2.	Influence du système d'injection du lixiviat pour les méthaniseurs de type « bateau horizontal ».....	78
4.2.2.	Les puits verticaux.....	81
4.2.3.	Les banquettes perméables.....	82
4.3.	Conclusion intermédiaire.....	84
5.	Objectifs de la thèse et stratégie développée.....	84

Références	87
Chapitre 2 : Rôle du lixiviat pour la digestion anaérobie de fumiers de bovins.....	97
1. Introduction	102
2. Materials and methods.....	104
2.1. Characteristics of the manure, leachate and digestate	104
2.2. Analytical method	105
2.3. Design of the reactors.....	105
2.4. Experimental setups.....	107
2.5. Microbial analysis	108
2.5.1. DNA extraction and qPCR analysis	108
2.5.2. Community analysis using single strand conformation polymorphism (SSCP)	109
2.5.3. Statistical analysis	109
3. Results and discussion.....	110
3.1. Effect of the origin of the leachate on methane production	110
3.1.1. Cumulative methane production.....	110
3.1.2. Methane production rate, VFA concentration kinetics and changes in pH.....	113
3.2. Structure of the microbial communities in the liquid and solid fractions	117
3.2.1. Microbial growth.....	117
3.2.2. Relationship between microbial communities.....	118
4. Conclusion.....	120
References	123
Chapitre 3 : Optimisation de la recirculation du lixiviat dans un réacteur de digestion anaérobie par voie sèche	127
1. Matériel et méthodes	131
1.1. Présentation des substrats, du lixiviat et de l'inoculum	131
1.2. Le pilote de méthanisation par voie sèche.....	132
1.3. Les plans d'expériences.....	134
1.3.1. Définitions	135
1.3.2. Plan factoriel à fraction irrégulière à deux niveaux.....	136

1.3.3.	Plan fractionnaire composite étoile	138
2.	Résultats	139
2.1.	Exemple de cinétiques de production de méthane pour différents substrats agricoles	139
2.1.1.	Présentation de l'expérience.....	139
2.1.2.	Les performances de la digestion anaérobie par voie sèche de différents substrats agricoles	141
2.2.	Performances du pilote de digestion anaérobie	144
2.3.	Optimisation de la recirculation du lixiviat	146
2.3.1.	Détermination des facteurs influençant la production de méthane	147
2.3.2.	Effet de la recirculation sur la forme des cinétiques	152
3.	Conclusions et perspectives.....	177
	References	180
Chapitre 4 : Caractérisation des transferts hydrodynamiques dans un réacteur de digestion anaérobie par voie sèche		185
1.	Matériel et méthodes	189
1.1.	Rappel sur la composition des substrats.....	189
1.2.	Détermination des masses volumiques.....	190
1.3.	Le perméamètre à charge constante	192
1.4.	La tomographie de résistivité électrique (ERT)	194
1.4.1.	Principe général de la mesure de résistivité électrique.....	194
1.4.2.	Les différents paramètres influençant la résistivité.....	195
1.4.3.	Mesures de tomographie de résistivité électrique 2D/3D.....	196
2.	Résultats	198
2.1.	Effet de la profondeur du massif sur les masses volumiques	198
2.2.	Evolution de la perméabilité hydraulique selon la compaction.....	200
2.3.	Utilisation de l'ERT pour décrire l'infiltration du lixiviat à travers un substrat agricole	202
2.3.1.	Introduction	206
2.3.2.	Materials and methods.....	208
2.3.3.	Results and discussion.....	221
2.3.4.	Conclusion	230

3. Perspectives de dimensionnement.....	232
3.1. Loi de Torricelli ou loi des orifices	232
3.2. Amélioration du système d'injection.....	233
4. Conclusions et perspectives.....	236
Références	238
Conclusions et perspectives	243
Annexe 1	253
Annexe 2	255

Liste des abréviations

ADEME : Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie

AGV : Acides gras volatils

BMP : potentiel méthanogène (de l'anglais Biochemical Methanogenic Potential)

COT : Carbone organique total

EMAA : plan Energie Méthanisation Autonomie Azote

ERT : Tomographie de résistivité électrique (de l'anglais Electrical Tomography Resistivity)

IAA : industrie agro-alimentaire

ISDND : Installations de Stockage des Déchets Non Dangereux

LBR : Leach bed reactor

L/S : ratio lixiviat/substrat

MB : matière brute

MS : matière sèche

MV : matière volatile

OM : ordures ménagères

OPHA : Obligate Hydrogen Producing Acetogens

Liste des figures

Figure 1 : Projection des ressources mobilisables pour la méthanisation en 2030 (ADEME, 2013b)...	36
Figure 2 : Répartition par secteur des unités de méthanisation installées ou en projet au 1 ^{er} juillet 2013 (ADEME, 2013a)	38
Figure 3 : Evolution du nombre d'unités de méthanisation en service au 31 décembre 2014 (d'après la base de données <i>Sinoé</i> ® couplée à des données internes <i>Irstea</i>)	38
Figure 4 : Processus simplifié de la digestion anaérobie des matières organiques (Demirel & Scherer, 2008; Pavlostathis & Giraldo-Gomez, 1991)	40
Figure 5 : Schéma d'une unité de méthanisation par voie sèche avec recirculation du lixiviat.....	55
Figure 6 : Exemple du profil de production de méthane dans le cas de réacteurs fonctionnant en discontinu	56
Figure 7 : Ordre de grandeur des coefficients de perméabilités selon le type de sol d'après Holtz and Kovacs (1991)	76
Figure 8 : Schéma d'un centre de stockage de déchets ménagers équipé d'un système d'injection du lixiviat de type tranchées horizontales (Grellier et al., 2003) et photo d'un drain perforé dans une tranchée remplie de pneus broyés (Townsend et al., 2015)	79
Figure 9 : Exemple de profils de saturation de lixiviat en centre de stockage avec différentes configurations des tranchées horizontales (Giri & Reddy, 2015)	80
Figure 10 : Représentation d'un centre de stockage de déchets ménagers équipé d'un système d'injection du lixiviat de type puits verticaux (Grellier et al. (2003)).....	81
Figure 11 : Photos de banquettes perméables installées en surface de centres de stockage composées de verre pilé (à gauche) et de pneus broyés (à droite).....	83
Figure 12 : Schematic diagram of lab-scale leach-bed reactors	106

Figure 13 : Methane production rate, total VFA concentration and changes in pH during SSAD of cow manure with the four different leachates. ((A): Leachate L1; (B): Leachate L2; (C): Leachate L3, (D): Leachate L4).....	113
Figure 14 : Quantification by quantitative real-time PCR of the 16 S rDNA copy number for (A) bacterial and (B) archaeal communities during SSAD of manure with leachate L1 (L: leachate; MH: highest layer of manure; MM: middle layer of manure; MD: deepest layer of manure)	118
Figure 15 : Photo d'une partie du pilote de méthanisation par voie sèche	132
Figure 16 : (A) vue schématique d'une cellule ; (B) Vue détaillée de la répartition du lixiviat sur la grille perforée supérieure d'un réacteur	133
Figure 17 : Cinétiques de production de méthane de différents substrats agricoles	142
Figure 18 : Répétabilité des cinétiques de production de méthane pour le mélange « hiver »	146
Figure 19 : Exemple de cinétiques de production de méthane pour les essais 4 (bleu) et 6 (vert)	150
Figure 20 : Schematic diagram of lab-scale leach-bed reactors	159
Figure 21 : Example of MPR profile and determination of the start and duration of stabilisation period (t_{plateau} and Δ_{plateau})	162
Figure 22 : Influence of recirculation periodicity and recirculated volume on the estimated cumulated methane for different normalized L/S ratios ((a) L/S = -1.68; (b) L/S = 0; (c) L/S = 1.68). Axis of factors “Periodicity” and “ $V_{\text{recirculated}}$ ” are presented for normalized values.....	169
Figure 23 : Influence of recirculation periodicity and recirculated volume on the estimated duration of plateau for different normalized L/S ratios ((a) L/S = -1.68; (b) L/S = 0; (c) L/S = 1.68). Axis of factors “Periodicity” and “ $V_{\text{recirculated}}$ ” are presented for normalized values.....	173
Figure 24 : Photographie du dispositif "Schaub-Szabo"	190
Figure 25 : Résumé de la procédure de détermination des masses volumiques.....	191
Figure 26 : Schémas d'un perméamètre à charge constante	192
Figure 27 : Photo du perméamètre à charge constante.....	193
Figure 28 : Principe de la mesure de la résistivité avec quatre électrodes (Knödel et al., 2007)	194
Figure 29: Schéma explicatif de l'acquisition d'un panneau électrique 2D (Loke & Barker, 1996) ...	197

Figure 30 : Evolution de la masse volumique des mélanges « été » et « hiver » en fonction de la profondeur du massif.....	200
Figure 31 : Effet de la profondeur sur le coefficient perméabilité des mélanges "été" et "hiver"	202
Figure 32 : Photos of (a) the summer mixture and (b) the winter mixture.....	210
Figure 33 : a) picture of the laboratory cell; b) electrodes geometry, c) example of a vertical quadripole array	212
Figure 34 : a) Location of the study site; b) photo of full anaerobic digester; c) 3D schematic diagram of the digester showing the distribution of measurement points	217
Figure 35 : Error estimation with full direct and reciprocal quadrupole	219
Figure 36 : Experimental values of electrical resistivity as a function of densities and water contents for (a) the summer mixture and (b) the winter mixture at laboratory scale	222
Figure 37 : Time lapse of electrical resistivity variation during leachate injection focusing on section (AA') and section (BB') extracted from the 3D inversion. Blue dashed lines represent the piezometric level recorded during the experiment	224
Figure 38 : (a) photo of local independent quadripole; (b) comparison of resistivity measurements between ERT method and local method for two different manure areas	227
Figure 39 : Height of the leachate measured with piezometers at different Y positions during injection	227
Figure 40 : Time lapse of the leachate infiltration through the manure substrate obtained with MICS	228
Figure 41 : Response of the wet manure volume generated from the injected leachate quantity	230
Figure 42 : Schématisation de la répartition des orifices et des volumes mouillés correspondants pour application de la loi des orifices	234

Liste des tableaux

Tableau 1 : Caractéristiques des ressources mobilisables en 2030 d'après l'ADEME (2013b)	37
Tableau 2 : Les ions métalliques inhibiteurs d'après Chen et al. (2008)	48
Tableau 3 : Exemple d'unités de méthanisation par voie sèche et de leurs performances	53
Tableau 4 : Aperçu des différentes conditions de recirculation du lixiviat appliquées dans la littérature	65
Tableau 5 : General chemical characterization of leachates and manure.....	104
Tableau 6 : Cumulative methane production and reactor performances with the four leachates tested	112
Tableau 7 : Diversity indexes of bacterial and archaeal communities in the manure and leachate fractions calculated with StatFingerprints	120
Tableau 8 : Microbial structure of leachate and manure communities using ANOSIM. (MH: highest layer of manure; MM: middle layer of manure; MD: deepest layer manure)	120
Tableau 9 : Détails des substrats solides introduits dans chaque réacteur	140
Tableau 10 : Caractéristiques physico-chimiques des substrats.....	140
Tableau 11 : Production de méthane cumulée selon le substrat valorisé	143
Tableau 12 : Analyse des performances des réacteurs	145
Tableau 13 : Caractéristiques physico-chimiques des substrats et lixiviats utilisés pour le plan de screening.....	147
Tableau 14 : Domaine expérimental pour chaque facteur étudié avec le plan factoriel à fraction irrégulière	148
Tableau 15 : Liste des essais pour le plan factoriel fractionnaire (plan de screening).....	149
Tableau 16 : Synthèse des réponses observées pour chaque essai	151
Tableau 17 : Coefficients et significativités des réponses modélisées	152
Tableau 18 : General chemical characterization of initial leachate and manure for run 1 and run 2....	158

Tableau 19 : Central composite factor design with normalized levels and correspondence with values of factors	161
Tableau 20 : Reactors performances in terms of VS removal and COD mass balance	164
Tableau 21 : Y responses for manure digestion depending on experimental trial	165
Tableau 22 : Modelled coefficients and significance of normalized levels for all responses studied (V_{cum} , $t_{plateau}$, $\Delta_{plateau}$ and MPR_{av})	166
Tableau 23 : Masses volumiques des mélanges « été » et « hiver » en fonction de la profondeur	199
Tableau 24 : Coefficients de perméabilité des mélanges « été » et « hiver » en fonction de la masse volumique	201
Tableau 25 : Experimental parameters and characteristics of the substrates	213
Tableau 26 : Experimental electrode arrays	215
Tableau 27 : Récapitulatif des caractéristiques d'un nouveau brin d'injection du lixiviat	235

Introduction Générale

En un siècle, la température moyenne mesurée à la surface de la Terre a augmenté de 0,63°C et, pour la France métropolitaine, de 0,70°C¹. Sur les vingt-cinq dernières années, la vitesse d'élévation de la température à l'échelle planétaire a été la plus forte du siècle. Les conséquences de ce changement climatique sont multiples avec notamment : une élévation continue du niveau des mers depuis les années 1900, une augmentation du nombre d'événements climatiques extrêmes, une diminution de la surface neigeuse réduisant la capacité à réfléchir l'énergie solaire de la Terre et contribuant à l'augmentation des températures, etc.

Plusieurs phénomènes naturels (activité solaire, éruptions volcaniques,...) et anthropiques (liés à l'activité humaine) sont à l'origine de ce changement climatique. Cependant, la hausse moyenne des températures depuis 1965 est principalement due aux émissions de gaz à effet de serre (GES) qui ne cesse d'augmenter, passant de 25 à 49 milliards de tonnes équivalent CO₂ entre 1965 et 2010². En France en 2012, 72% des émissions de GES sont attribuées à la production d'énergie, tous secteurs confondus (industrie de l'énergie, transports, industrie manufacturière et construction, secteur résidentiel tertiaire)¹.

Compte tenu de ces chiffres, la lutte contre le réchauffement climatique passe aujourd'hui par un changement du modèle de production énergétique mondial. La France a récemment montré son engagement dans cette voie par de multiples actions politiques (plan énergie climat, plan EMAA, loi sur la transition énergétique) et par sa volonté de développer un modèle énergétique Français très largement porté par le développement des énergies renouvelables et en particulier par le développement de la méthanisation.

L'un des avantages du procédé de méthanisation provient de la possibilité de produire de l'énergie à partir de différents substrats organiques et notamment des déchets ménagers, agricoles ou industriels. En France, le secteur agricole est particulièrement concerné puisqu'il produit près de 92%

¹ Chiffres clés du climat France et Monde - Édition 2015 – Ministère de l'Ecologie, du Développement durable et de l'Énergie - www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr

² GIEC, 1^{er} groupe de travail, 2007

de déchets valorisables par méthanisation dont 72% d'effluents d'élevage³. Les fumiers de bovins représentent à eux seuls 60% de la totalité des effluents collectés. La configuration actuelle des installations de méthanisation (par voie humide, infiniment mélangé, pour la très grande majorité) n'est cependant pas adaptée aux caractéristiques physico-chimiques des fumiers de bovins, qui sont des substrats à forte teneur en matière sèche (> 20%). Afin de valoriser ces derniers dans la filière existante, il faudrait soit ajouter des quantités importantes d'eau, soit mettre en œuvre un procédé original : la méthanisation par voie sèche / voie solide ou encore appelée voie pâteuse. Ce procédé de méthanisation est actuellement en cours de développement et commence à être installé sur les unités de valorisation de la fraction fermentescible des ordures ménagères et également sur des exploitations agricoles. Plusieurs technologies peuvent être mises en place soit, en réacteur continu-mélangé, soit en réacteur batch-séquentiel.

Pour le secteur agricole, plusieurs constructeurs commencent à proposer ces types de procédés de méthanisation par voie sèche mais la technique la plus adaptée aux fumiers de bovins semble être le procédé discontinu (par bâchées), en une étape, sans agitation mécanique mais avec recirculation d'une phase liquide, le lixiviat. Ce type d'unité de méthanisation à la ferme reste cependant rare sur le territoire français à cause d'un manque de connaissances et de recul quant à la stratégie de prise en main du procédé.

L'objectif de cette thèse est donc d'optimiser le procédé de méthanisation par voie sèche discontinu des substrats agricoles, c'est-à-dire de déterminer les conditions favorables à la production d'un maximum de méthane (biogaz), de façon constante et en un minimum de temps, en prenant en compte les contraintes du procédé. Cette optimisation passe par quatre étapes développées dans chacun des quatre chapitres que contient ce manuscrit de thèse.

Le premier chapitre propose une synthèse bibliographique reprenant les processus généraux de la digestion anaérobie puis les particularités du procédé de méthanisation par voie sèche. L'importance de la recirculation du lixiviat est ensuite discutée, compte tenu des précédents travaux publiés, en cherchant à identifier les paramètres pouvant influencer la production de méthane. Enfin, les différents facteurs influençant l'écoulement du lixiviat à grande échelle seront présentés.

³ ADEME, 2013. Estimation des gisements potentiels de substrats utilisables en méthanisation.

Les résultats expérimentaux sont ensuite exposés, analysés et discutés à travers les chapitres 2, 3 et 4 avec pour objectifs :

(i) une meilleure compréhension des rôles biologique et physico-chimique du lixiviat dans les performances du procédé de méthanisation par voie sèche ;

(ii) l'identification des paramètres de recirculation du lixiviat qui ont une influence sur les cinétiques de production de méthane pour permettre leur optimisation ;

(iii) l'étude de différentes géométries de recirculation du lixiviat et l'identification de celle permettant une répartition homogène du lixiviat dans le massif de substrats agricoles.

Enfin, une dernière partie synthétise et met en perspective les différents résultats obtenus.

Chapitre 1 : Synthèse bibliographique

Cette synthèse bibliographique, organisée en cinq parties, présente les bases scientifiques qui ont été nécessaires au développement de ce travail de thèse. Tout d'abord, des éléments de contexte généraux sur la filière méthanisation et les gisements disponibles sont exposés. La deuxième partie se focalise sur le processus de digestion anaérobie (étapes biologiques et environnement réactionnel), puis exposera les particularités du processus pour les substrats solides à haute teneur en matière sèche. Plusieurs procédés permettant de valoriser ces substrats seront brièvement présentés dans la troisième partie. La suite de celle-ci s'intéressera plus précisément au procédé discontinu avec recirculation des lixiviats, et portera une attention particulière au rôle et aux modes de recirculation. La quatrième partie présente les systèmes d'injection du lixiviat disponibles à grande échelle, et discute l'influence des paramètres physiques des substrats sur la distribution du lixiviat. Enfin, la dernière partie explicite les objectifs de la thèse et la stratégie développée pour répondre à ces problématiques.

1. La méthanisation : une filière en développement

1.1. Définition et historique

La digestion anaérobie, plus communément appelée méthanisation, est un processus biologique permettant la transformation de la matière organique en un biogaz, principalement composé de méthane et de dioxyde de carbone, en l'absence d'oxygène.

En 1776, Alessandro Volta montre l'existence d'un gaz inflammable, produit naturellement dans les marais du lac majeur en Italie (Moletta & Verstraete, 2008). C'est la découverte du méthane et du processus de digestion anaérobie. Le biogaz formé naturellement dans les milieux propices, tels que les fonds des lacs et marécages, sera d'abord collecté et utilisé comme combustible. Ce n'est qu'à la fin du 19^e siècle que le procédé de digestion anaérobie est utilisé pour le traitement des eaux usées et des déchets solides (Gljzen, 2002). Longtemps considéré comme un procédé instable, peu efficace

et lent, il a fallu attendre les années 1970 (premier choc pétrolier) et l'augmentation des coûts des énergies fossiles pour voir se développer la recherche autour de la méthanisation (Gljzen, 2002).

De nos jours, dans un contexte mondial où la demande en énergie est croissante, le changement climatique avéré et les démarches de développement durable nécessaires, la méthanisation est un choix judicieux pour répondre à ces problématiques car elle comporte plusieurs avantages (ADEME, 2015):

- la production d'énergie renouvelable,
- la production d'un digestat présentant une valeur agronomique,
- la réduction des gaz à effet de serre (GES) par captage direct du méthane émis par les déchets organiques ou par substitution du biogaz à l'énergie fossile, et du digestat aux engrais minéraux chimiques,
- la diminution de la quantité de déchets organiques, et en particulier ceux non valorisables par une filière de compostage car trop humides (graisses)

Aujourd'hui en France, relancée par un contexte politique favorable (plan EMAA⁴) et un tarif de rachat du biogaz compétitif, la méthanisation ne cesse de se développer, permettant la valorisation d'un large éventail de déchets de différents secteurs : agricole, collectivités, industries... (ADEME, 2013b).

⁴ Le plan Energie Méthanisation Autonomie Azote (EMAA), publié en 2013 par les Ministères de l'écologie du développement durable et de l'énergie et le Ministère de l'agriculture, de l'agroalimentaire et de la forêt, sera explicité à la page suivante.

1.2. Etat des lieux de la digestion anaérobie en France

1.2.1. Contexte réglementaire et enjeux environnementaux

En France, depuis 2004, la mise en place du plan climat⁵ a permis d'identifier la méthanisation comme une source d'énergie durable. Plusieurs mesures ont donc suivi afin de développer cette filière prometteuse. En 2006, 2011 et 2015, les tarifs de rachat du biogaz ont été augmentés et finalement garantis stables pour les 15 prochaines années. En 2010, la méthanisation est reconnue comme une activité agricole à part entière. Plus récemment, en 2013, le gouvernement a montré sa volonté de développer un modèle français de méthanisation agricole par la mise en place du plan EMAA, visant à atteindre le nombre de 1 000 méthaniseurs d'ici 2020. Deux ans plus tard (2015), la loi sur la transition énergétique⁶ porte ce nombre à 1 500 à l'horizon 2030.

Le plan EMMA porte l'accent sur la possibilité de gestion de l'azote par les agriculteurs, souvent rendus responsables des phénomènes d'eutrophisation et de marées vertes, grâce à la méthanisation. En effet, la méthanisation permet de minéraliser l'azote contenu dans les substrats valorisés et donne au digestat un rôle de fertilisant. Ceux-ci peuvent donc être partiellement substitués aux engrais synthétiques, voire exportés (après un post traitement tel que le compostage) vers des zones déficitaires, réduisant ainsi l'impact local de l'agriculture sur l'environnement. Cet impact positif sur l'environnement doit néanmoins être relativisé au regard de ceux possibles sur l'ensemble du cycle de vie de la filière. Parmi eux, il faut citer les émissions liées au transport de digestat ou de co-substrats depuis ou vers les unités de méthanisation (GES et émissions de polluants atmosphériques) ou encore les impacts générés par l'étape de post-traitement du digestat, nécessaire

⁵ Le plan climat, édité pour la première fois en 2004, par le Ministère de l'écologie et du développement durable, suite au protocole de Tokyo, a pour objectif de stabiliser les émissions de GES sur la période 2008-2012 par rapport aux niveaux de 1990.

⁶ Loi n° 2015-992 du 17 août 2015 relative à la transition énergétique pour la croissance verte qui fixe plusieurs objectifs tels que la division par quatre des GES émis d'ici 2050 (par rapport à 2012) et l'augmentation de la part des énergies renouvelables dans le mix énergétique français (32% en 2030).

pour son exportation. Ainsi, une évaluation environnementale multicritère à l'échelle territoriale apparaît comme une nécessité.

1.2.2. Les gisements de substrats disponibles

Selon l'ADEME (2013b), d'ici 2030, 132 millions de tonnes de déchets seraient mobilisables en France pour la filière méthanisation, représentant un potentiel de 55 900 GWh d'énergie primaire et permettant de couvrir 3% de notre consommation électrique⁷. Ces déchets se divisent en cinq grandes catégories : les déjections d'élevage, les résidus de culture, les CIVE, les matières issues de l'IAA et des commerces et enfin, les déchets des ménages et des collectivités. Parmi ces ressources, les effluents d'élevage représenteraient 72% de la part mobilisable. Dans sa globalité, le secteur agricole produirait même jusqu'à 92% des déchets (Figure 1).

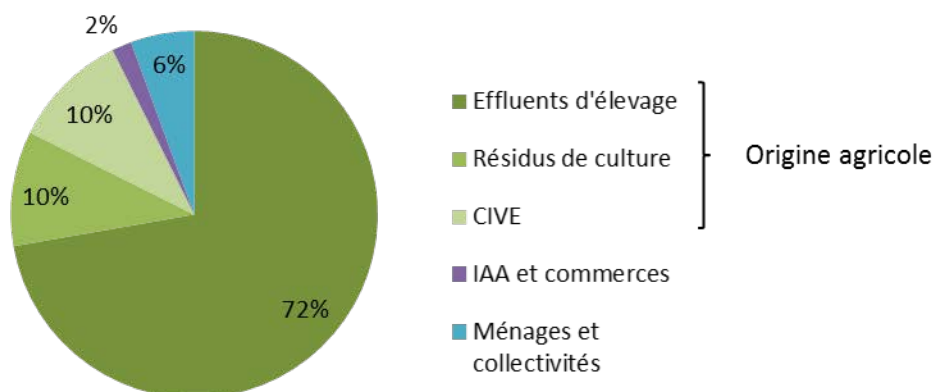


Figure 1 : Projection des ressources mobilisables pour la méthanisation en 2030 (ADEME, 2013b)

Les fumiers de bovins, en particulier, représentent une grande part des déjections animales disponibles. L'Annexe 1 (page 253) présente une étude détaillée de ce gisement co-écrite avec l'Institut de l'élevage (IDELE). Il en ressort que la totalité des déjections bovines s'élève à 87 Mt/an, dont 69 Mt/an sous forme de fumiers, et 18 Mt/an sous forme de lisier. La particularité des fumiers de bovins réside dans leur forte teneur en matière sèche (MS), supérieure à 18% de la matière brute (MB)

⁷ Pour ce calcul, on fait l'hypothèse est faite que la totalité du biogaz produit est valorisé par cogénération avec un rendement moyen de 30% en énergie électrique. D'autre part, la consommation électrique de la France en 2030 s'élèverait à 575 TWh selon l'Ifremer (2008).

disponible. De façon plus générale, mis à part les lisiers, les déchets produits par le secteur agricole ont une teneur en matière sèche comprise entre 16 et 88% (Tableau 1). La majorité du gisement mobilisable pour la méthanisation se présente donc sous forme solide.

Tableau 1 : Caractéristiques des ressources mobilisables en 2030 d'après l'ADEME (2013b)

	MS (%MB)	BMP (m³ CH₄/t_{MB})
Déjections d'élevage		
Fumiers	17 - 60	29 - 144
Lisiers	5 - 15	12 - 36
Résidus de cultures		
Autres résidus de cultures	16 - 88	220
Pailles de céréales	88	103 - 223
CIVE	22	11
IAA et commerces		
IAA	8 - 84	63 - 280
Marchés	30	-
Distribution	30	-
Restauration	80	-
Ménages et collectivités		
Biodéchets des ménages	30 - 58	50 - 95
Déchets verts	40	100 - 150
Assainissement	3 - 20	40 - 230

1.2.3. Evolution et répartition des unités de méthanisation

Depuis le 31 mai 2011, les porteurs de projets d'unité de méthanisation doivent remettre un dossier d'identification à l'ADEME avant la demande de raccordement au réseau public d'électricité. Cette initiative permet de suivre et de faciliter le recensement des projets et de leur installation. Au 1^{er} juillet 2013, ce sont donc 242 projets construits ou en cours de construction qui sont recensés, pour une puissance électrique totale de 1 026 GW, tous secteurs confondus (ADEME, 2013a). La méthanisation agricole représente à elle seule 58% des installations recensées (Figure 2).

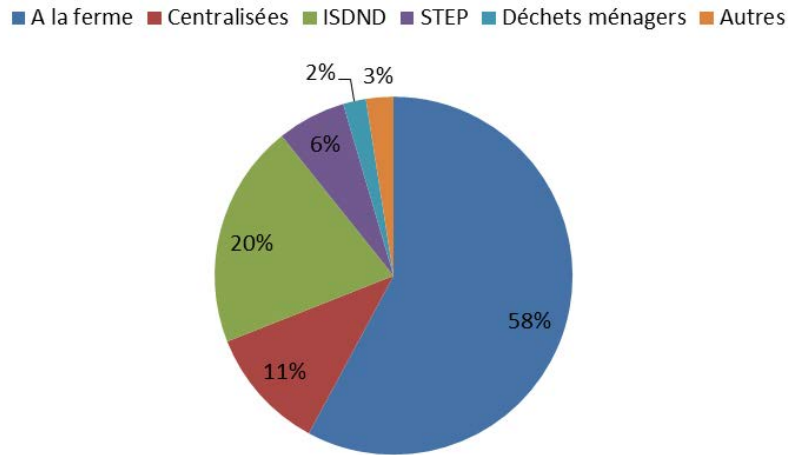


Figure 2 : Répartition par secteur des unités de méthanisation installées ou en projet au 1^{er} juillet 2013 (ADEME, 2013a)

Les réglementations successives, fixant le tarif d'achat de l'électricité produite par les unités de méthanisation, ont permis un développement soutenu de la filière durant la dernière décennie. Ainsi, entre 2010 et 2014, le nombre d'unités de méthanisation « à la ferme » a quintuplé, passant de 31 à 166 installations sur le territoire français (Figure 3).

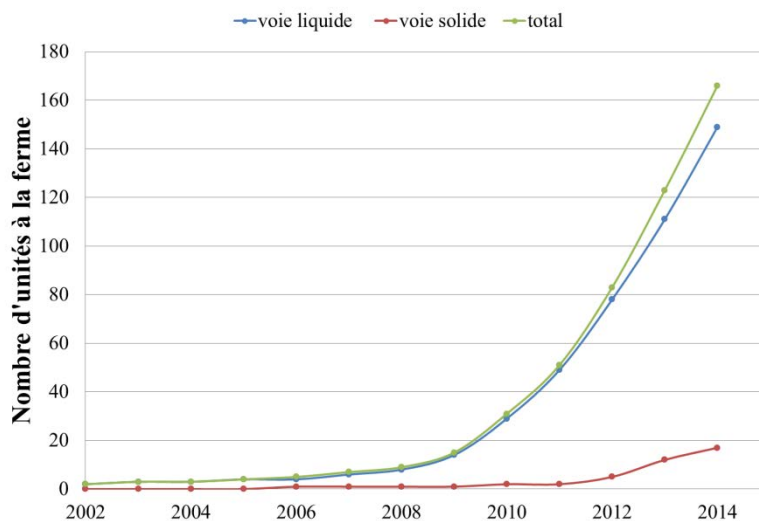


Figure 3 : Evolution du nombre d'unités de méthanisation en service au 31 décembre 2014 (d'après la base de données Sinoé® couplée à des données internes Irstea)

Ce nombre progresse toutefois à deux vitesses selon le type de procédé mis en œuvre : par voie liquide/humide ou par voie solide/sèche. Le choix de la mise en œuvre de l'un ou de l'autre procédé est régi par le taux de MS des substrats à valoriser. Les substrats avec un taux de MS supérieur à 15% (kg/kg) seront valorisés en voie sèche, et inversement (De Baere, 2000; Mata-Alvarez et al., 2000; Weiland, 2010). La Figure 3 montre que la méthanisation par voie liquide est très développée, avec 149 projets enregistrés fin 2014. Au contraire, seulement 17 installations par voie solide sont répertoriées à la même date. Pourtant, comme montré au paragraphe 1.2.2, le gisement de déchets valorisables en France présente de fortes teneurs en MS. La valorisation de ce gisement nécessitera donc l'utilisation de procédés dédiés à ces substrats particuliers : les procédés de méthanisation par voie sèche ou solide.

2. Le processus de la digestion anaérobie

Quel que soit le procédé appliqué (voie humide ou voie sèche), la méthanisation repose toujours sur le même processus de dégradation de la matière organique : la digestion anaérobie.

2.1. Description des étapes

La digestion anaérobie est une réaction biologique multi-étapes impliquant une multitude de micro-organismes qui forment un réseau trophique. Quatre grandes étapes permettent la transformation de la matière organique complexe en molécules simples que sont le méthane et le dioxyde de carbone : l'hydrolyse, l'acidogénèse, l'acétogénèse et la méthanogénèse (Figure 4). A chacune de ces étapes, des micro-organismes particuliers sont impliqués et les « déchets » des uns alimentent les autres (Godon, 2008). Une description rapide et simplifiée de ces étapes est donnée dans les paragraphes qui suivent.

2.1.1. L'hydrolyse

L'hydrolyse est la première étape de la digestion anaérobie. Au cours de celle-ci, les molécules complexes sont transformées en molécules plus simples, de type monomère. Les polysaccharides (cellulose, hémicellulose) sont ainsi découpés en sucres simples comme le glucose, les protéines en acides aminés et les lipides en acides gras.

Les micro-organismes impliqués dans l'étape d'hydrolyse sont des bactéries à métabolisme anaérobie strict ou facultatif (Godon, 2008). La présence d'enzymes extra-cellulaires telles que les cellulases, xylanases, amylases ou lipases permet de faciliter la décomposition des matières complexes, et d'accélérer cette étape (Kothari et al., 2014). Dans la grande majorité des modèles cinétiques existants, l'étape d'hydrolyse est l'étape limitante de la digestion anaérobie (Pavlostathis & Giraldo-Gomez, 1991).

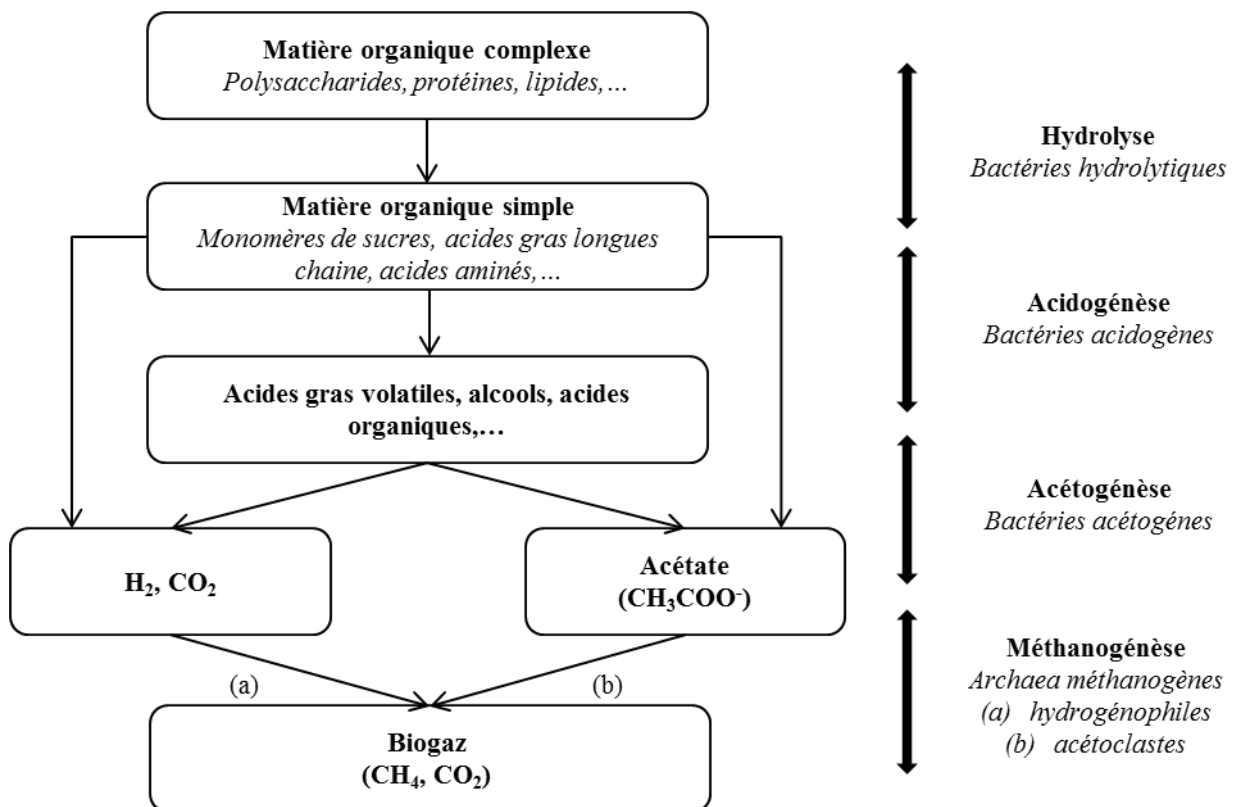


Figure 4 : Processus simplifié de la digestion anaérobie des matières organiques (Demirel & Scherer, 2008; Pavlostathis & Giraldo-Gomez, 1991)

2.1.2. L'acidogenèse

Cette étape permet de transformer les monomères produits pendant l'hydrolyse en acides gras volatils (AGV) (acétate, propionate, butyrate,...), en alcool (éthanol), en hydrogène et en dioxyde de carbone. Elle est réalisée par des bactéries anaérobies facultatives (Gujer & Zehnder, 1983). Cette biomasse est la même que pour l'étape d'hydrolyse. L'acidogenèse est un mécanisme intracellulaire qui nécessite que les molécules pénètrent dans la membrane des bactéries. Son rendement énergétique étant élevé, cette réaction reste possible à des concentrations en produits (AGV, alcool,...) élevées, soit à des pH faibles.

En cas de surcharge organique, l'acidogenèse peut provoquer l'inhibition totale ou partielle de la digestion anaérobie. En effet, la cinétique de l'acidogenèse étant beaucoup plus élevée que celles des autres étapes (Pavlostathis & Giraldo-Gomez, 1991; Shimizu et al., 1993), elle peut provoquer une accumulation d'acides gras volatils (AGV), et par suite, une diminution du pH défavorable à la croissance des microorganismes méthanogènes. Ceci peut être évité à condition qu'une communauté microbienne adaptée soit présente lors du démarrage de la digestion anaérobie (McMahon et al., 2004).

2.1.3. L'acétogenèse

Cette étape intracellulaire regroupe l'ensemble des réactions conduisant à la production d'acétate. Deux groupes de bactéries dites acétogènes sont impliqués lors de cette étape.

Le premier groupe impliqué est constitué des bactéries acétogènes productrices obligées d'hydrogène (OPHA : Obligate Hydrogen Producing Acetogens). La thermodynamique de l'acétogenèse ne permet pas une consommation spontanée des AGV ($\Delta G^0 > 0$) (Godon, 2008) à moins de réduire la pression partielle de l'hydrogène dans le milieu réactionnel, c'est-à-dire de

consommer instantanément l'hydrogène produit. Cette voie métabolique n'est donc possible qu'en présence de microorganismes consommateurs d'hydrogène, comme les méthanogènes.

Le deuxième groupe de bactéries acétogènes est constitué des bactéries dites homoacétogènes. Elles produisent l'acétate à partir de substrats carbonés ou de dioxyde de carbone et d'hydrogène. En consommant l'hydrogène présent dans le milieu réactionnel, elles participent au maintien des conditions optimales de fonctionnement des OPHA.

2.1.4. La méthanogenèse

Les micro-organismes impliqués dans cette dernière étape ont un métabolisme anaérobie strict et appartiennent au domaine des *Archaea*. Elles permettent la production de méthane à partir des produits des étapes précédentes selon deux voies métaboliques principales : la méthanogenèse hydrogénéophile et la méthanogenèse acétoclastique.

Les méthanogènes hydrogénéophiles produisent du méthane à partir de dioxyde de carbone et d'hydrogène, participant également au maintien d'une faible pression en hydrogène pour le développement des bactéries acétogènes.

Les méthanogènes acétoclastes utilisent de l'acide acétique, du méthanol et des méthylamines pour fabriquer du méthane (Garcia et al., 2000). Dans un digesteur, 60% à 70% de la production de méthane provient des méthanogènes acétoclastes (Abbassi-Guendouz et al., 2012; Godon, 2008).

2.2. L'environnement réactionnel

Les quatre étapes complémentaires de la digestion anaérobie présentées précédemment se déroulent en parallèle dans un seul et même milieu réactionnel. La grande diversité des microorganismes impliqués rend l'équilibre de ce système biologique très fragile et sensible aux conditions physico-chimiques ambiantes, détaillées ici.

2.2.1. La température

Plusieurs gammes de températures permettent la mise en œuvre du processus de digestion anaérobie.

Dans les conditions psychrophiles, le milieu réactionnel est maintenu à des températures comprises entre 10 et 20°C (Jha et al., 2011; Wellinger, 1999). Historiquement, ce procédé était très utilisé dans les années 1980 lorsque le biogaz servait pour le chauffage (Kothari et al., 2014).

Entre 20 et 45°C, on parle de digestion anaérobie mésophile qui est la plus employée de nos jours (Kothari et al., 2014) et en particulier par les unités de méthanisation à la ferme. Généralement équipées de co-génératrices, ces unités utilisent la chaleur produite sur site pour maintenir les digesteurs à une température comprise entre 35 et 40°C (Wellinger, 1999).

Au-delà de 45°C et jusqu'à 65°C, la digestion est dite thermophile (Kothari et al., 2014). Ce type de procédé nécessite plus d'énergie pour le maintien des conditions de température, mais présente des avantages sanitaires, permettant l'élimination d'un plus grand nombre de germes pathogènes que les réacteurs mésophiles et psychrophiles (Weiland, 2010). Du fait de leur réglementation sanitaire plus stricte, les unités de méthanisation centralisées travaillent souvent en conditions thermophiles (Kothari et al., 2014; Wellinger, 1999).

Les conditions mésophiles et thermophiles sont équivalentes en terme de rendement de méthane produit sur une grande variété de substrats (Cecchi et al., 1993; Shi et al., 2013 ; Wellinger, 1999). En conditions psychrophiles en revanche, les rendements rapportés sont plus faibles : 30% en moins pour les fumiers de bovins et 22% en moins pour les boues de station d'épuration (Wellinger, 1999).

Travailler en conditions thermophiles permet d'augmenter les cinétiques de production de méthane par rapport aux conditions psychrophiles et mésophiles. Ainsi, le temps de séjour des solides peut être raccourci (Kothari et al., 2014 ; Wellinger, 1999) et le volume de digesteur diminué (Bouallagui et al., 2004; Kothari et al., 2014). Ces conditions permettent également de favoriser l'étape d'hydrolyse (Bouallagui et al., 2004) qui peut toutefois être à l'origine d'une accumulation d'AGV et inhiber le système s'il n'est pas bien contrôlé (Shi et al., 2013).

2.2.2. *Le pH*

A chaque étape de la digestion anaérobie correspond un pH optimal de fonctionnement pour les microorganismes impliqués. Les étapes d'hydrolyse et d'acidogénèse montrent de meilleures performances à des pH compris entre 5,5 et 6,5 (Jha et al., 2011 ; Kothari et al., 2014). L'acétogénèse a un pH de fonctionnement alcalin compris entre 8 et 11 et avec une production maximale d'acétate à pH 8 selon Nie et al. (2007). La dernière étape (la méthanogénèse) trouve son optimum autour de la neutralité. Plusieurs gammes de pH sont citées dans la littérature qui sont très proches les unes des autres : Jha et al. (2011) parlent d'un pH compris entre 6,8 et 7,6 alors que Ward et al. (2008) mentionnent un pH de 6,5 à 8,5. Le pH optimal de la méthanisation se situe donc entre 6,5 et 8,5 (Bernet & Buffière, 2008).

Ces valeurs de pH sont à mettre en relation avec la présence de certains composés chimiques potentiellement inhibiteurs. Un pH alcalin par exemple favorisera la formation d'ammoniac sous forme de NH_3 , qui est l'un des principaux composés inhibiteurs de la digestion anaérobie (Chen et al., 2008). A l'inverse, les pH faibles conduisent à la formation de sulfure d'hydrogène (H_2S), également inhibiteur de la réaction (Bernet & Buffière, 2008).

2.2.3. *L'alcalinité*

L'alcalinité d'un réacteur, souvent assimilée à son pouvoir tampon, renseigne sur sa capacité à maintenir un pH stable dans le milieu réactionnel au cours de la digestion anaérobie. La force du pouvoir tampon est principalement liée à la présence du couple bicarbonate / dioxyde de carbone ($\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2$) (Ward et al., 2008). D'autres ions peuvent toutefois participer au pouvoir tampon, comme l'ammonium (Murto et al., 2004). Molinuevo-Salces et al. (2010) ont également montré que l'alcalinité dépend du ratio substrat/biomasse introduit dans les réacteurs.

Comme pour le pH, la force du pouvoir tampon doit être judicieusement choisie. Selon une étude de Murto et al. (2004), les réacteurs avec un pouvoir tampon élevé (entre 17,2 et 19,8 gCaCO₃.L⁻¹) supportent un taux de charge organique élevé mais peuvent être sujets à une inhibition par l'azote ammoniacal. A l'inverse, les réacteurs avec un pouvoir tampon plus faible (entre 1,5 et 2,0 gCaCO₃.L⁻¹) ont vu leur quantité d'AGV augmenter et leur pH chuter jusqu'à l'inhibition du système.

2.2.4. *Les co-facteurs*

Les micro-organismes de la digestion anaérobie utilisent la matière organique comme source de carbone et d'énergie mais ont cependant besoin d'autres éléments pour se développer. Ceux-ci sont des macroéléments, comme l'azote et le phosphore, et des microéléments, comme le fer, le nickel, le zinc, le magnésium, le calcium, le sodium et le cobalt (Bernet & Buffière, 2008; Godon, 2008). Les études actuelles ne permettent pas de donner avec précision les besoins des microorganismes concernant ces éléments, mais une carence peut causer un dysfonctionnement de la digestion.

2.3. Les principaux inhibiteurs

L'équilibre physico-chimique d'un réacteur de méthanisation dépend d'un grand nombre de facteurs. Chaque déséquilibre entraîne l'accumulation de différents composés inhibiteurs et un potentiel dysfonctionnement de la chaîne trophique.

2.3.1. *Les acides gras volatils*

Les acides gras volatils (AGV) sont des intermédiaires réactionnels de la réaction de méthanisation dont la concentration influe sur le pH des digesteurs. Parmi tous les AGV, l'acide propionique est considéré comme le plus toxique pour la digestion anaérobie (Hanaki et al., 1994) et agit principalement sur l'étape d'hydrolyse (Jha et al., 2011). Pour des concentrations en acide

propionique supérieures à 1 g.L^{-1} , Ward et al. (2008) préconisent un ratio acide propionique / acide acétique inférieur à 1 afin d'éviter de possibles inhibitions étant donné la faible vitesse de consommation de l'acide propionique par rapport aux autres AGV (Amani et al., 2011). De façon générale, l'accumulation d'AGV indique une charge organique trop importante dans un digesteur (Ward et al., 2008).

2.3.2. L'ammoniac

Lors de la digestion anaérobie, l'ammoniac (NH_3) est principalement produit par dégradation de la matière organique azotée, comme les protéines ou l'urée (Chen et al., 2008). Pour des pH inférieurs à 9,2, on le trouve majoritairement sous sa forme ionisée, l'ammonium (NH_4^+). La membrane des microorganismes étant perméable au NH_3 , cette forme est la plus inhibitrice (de Baere et al., 1984), agissant directement sur le pH intracellulaire et sur certaines réactions enzymatiques (Wittmann et al., 1995).

Entre $1,7$ et 14 g.L^{-1} d'ammoniac, le volume de méthane produit diminue de 50% selon le substrat et les conditions de dégradation imposées (Chen et al., 2008). Une augmentation de la température, par exemple, augmente la toxicité de l'ammoniac (Ward et al., 2008). Pourtant, l'ammoniac est également un nutriment indispensable au développement des microorganismes. Procházka et al. (2012) a montré que pour des concentrations inférieures à $0,2 - 0,5 \text{ g.L}^{-1}$, le manque d'ammoniac est responsable des faibles performances de la digestion.

Les microorganismes méthanogènes ont été identifiées comme étant les plus sensibles à l'inhibition par l'ammoniac (Kayhanian, 1994). Cette inhibition empêche la consommation d'AGV, et en particulier de l'acétate, pouvant conduire à leur accumulation, accompagnée d'une baisse de pH. La baisse de pH peut elle-même permettre une transformation du NH_3 en NH_4^+ et donc baisser le pouvoir inhibiteur du NH_3 . Un état « stable inhibé » peut donc se mettre en place grâce à l'interaction entre l'ammoniac, les AGV et le pH (Angelidaki et al., 1993). Par ailleurs, plusieurs auteurs ont montré que la présence de certains ions, comme le sodium, le calcium et le magnésium, permettait d'abaisser la toxicité de l'ammoniac (Chen et al., 2008).

2.3.3. *Le sulfure d'hydrogène*

Le sulfure d'hydrogène (H_2S) est la forme protonée de l'ion sulfure (S^{2-}), lui-même produit à partir des formes oxydées du soufre (sulfate (SO_4^{2-}), sulfure (SO_3^{2-}) ou thiosulfate ($\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$)) lors de la digestion anaérobie. Ce gaz soluble dans l'eau, à l'odeur caractéristique « d'œuf pourri », est mortel pour l'homme à des concentrations supérieures à 700 ppm dans l'atmosphère.

Lors de la dégradation de matière organique, la réduction des formes oxydées du soufre est réalisée par des bactéries sulfato-réductrices (BSR). Les BSR participent également à la dégradation des AGV, de l'éthanol et de l'hydrogène, entrant ainsi en compétition avec les acétogènes microorganismes et méthanogènes (Godon, 2008). Cette compétition peut entraîner une pénurie d'intermédiaires réactionnels et un dysfonctionnement de la chaîne trophique, allant jusqu'à l'arrêt de production de méthane (Harada et al., 1994).

Au-delà de ce phénomène, le sulfure d'hydrogène est toxique pour les microorganismes. Le mécanisme n'est pas bien déterminé et plusieurs théories existent. Certains montrent que la forme non-ionisée (H_2S) est la forme toxique qui agit par dénaturation des protéines à l'intérieur des cellules tandis que d'autres affirment que la toxicité est due à la concentration totale de soufre, toutes formes confondues (Chen et al., 2008). Les concentrations inhibitrices sont quant à elles plutôt bien définies et varient entre 100 et 800 mg.L^{-1} en ion sulfure (Parkin et al., 1990).

2.3.4. *Les ions métalliques*

Les ions métalliques sont nécessaires au développement des microorganismes (cf. paragraphe 2.2.4) mais peuvent devenir inhibiteurs au-delà d'une certaine concentration. Les anions, en particulier, ont été identifiés comme les inhibiteurs prédominants (McCarty & McKinney, 1961). Le Tableau 2 synthétise les concentrations optimales et inhibitrices des principaux ions affectant la digestion anaérobie à savoir le calcium, le magnésium, le potassium et le sodium. Cependant, pour

chacun de ces ions, des phénomènes d'acclimatation des microorganismes permettent de repousser les seuils de toxicité. Par exemple, Chen et al. (2003) ont montré qu'après acclimatation, les microorganismes méthanogènes étaient totalement inhibés pour des concentrations en sodium comprises entre 12,7 et 22,8 g.L⁻¹, contre 4,1 à 12,0 g.L⁻¹ avant acclimatation.

Tableau 2 : Les ions métalliques inhibiteurs d'après Chen et al. (2008)

Ions	Seuil optimal (g.L ⁻¹)	Inhibition modérée (50%) (g.L ⁻¹)	Inhibition totale (g.L ⁻¹)	Références
Ca ²⁺	< 7	-	-	Jackson-Moss et al. (1989); Kugelman and McCarty (1965)
	< 0,2	2,5 à 4,0	8,0	Kugelman and McCarty (1965)
Mg ²⁺	< 0,3	-	2,4	Schmidt and Ahring (1993)
K ⁺	< 0,4	5,9 – 28,9	-	Kugelman and McCarty (1965)
Na ⁺	0,1 – 0,2	3,5 - 5,5	8,0	Chen et al. (2008)

La chaîne de transformation de la matière organique est donc complexe et soumise aux contraintes du vivant. Par conséquent, l'équilibre physico-chimique d'un réacteur de méthanisation est un point sensible pour la réussite des transformations successives de la matière et doit donc être maîtrisé.

2.4. Les spécificités de la digestion anaérobie par voie sèche

Les conditions décrites dans la partie précédente s'appliquent quel que soit le procédé de méthanisation utilisé. Cependant, d'autres paramètres, tels que le ratio C/N, le taux d'humidité, l'inoculation ou la taille des particules, influencent le déroulement du processus de digestion anaérobie. Chacune des voies solide ou liquide possède ses propres spécificités concernant ces derniers. Dans ce paragraphe, seules les influences sur la voie solide seront présentées.

2.4.1. *Le ratio C/N*

Le ratio C/N donne une indication sur l'équilibre nutritif des substrats à valoriser. Le carbone sera utilisé par les microorganismes comme source d'énergie et l'azote est un nutriment essentiel pour le développement de ces mêmes microorganismes. Si la quantité d'azote est trop faible, la croissance des microorganismes sera ralentie, la dégradation de la matière organique sera freinée et le rendement en méthane amoindri. Dans le cas contraire, une concentration en azote trop élevée peut conduire à une accumulation d'azote ammoniacal, toxique pour les microorganismes (cf. § 2.3.2).

Plusieurs auteurs s'accordent à donner un ratio optimal compris entre 20 et 30 (Jha et al., 2011; Kothari et al., 2014; Wang et al., 2014). Hills (1979) préconise un ratio de 25 pour la digestion de fumiers de vaches laitières. D'autres études mentionnent des ratios C/N optimaux inférieurs à 20, laissant penser que le ratio optimal dépend du substrat digéré. La co-digestion de boues de STEP et d'oignons, par exemple, est optimale pour un ratio C/N de 15 (Romano & Zhang, 2008). Celle d'ordures ménagères et de canne de maïs présente un ratio optimal entre 15 et 18 (Kothari et al., 2014). Dans tous les cas, l'équilibre des nutriments, et en particulier le ratio C/N, peut être ajusté par ajout de co-substrats (Callaghan et al., 1999; Zhang et al., 2008).

L'efficacité du ratio C/N est également dépendante du procédé mis en œuvre. Wang et al. (2014) ont montré que le ratio C/N optimal était corrélé à la température. Pour un même mélange de fumiers de bovins, de fientes de volailles et de paille de riz, les ratios C/N optimum étaient de 26 et 31 en conditions mésophiles (35°C) et thermophiles (55°C) respectivement. L'augmentation de la température accélère la dégradation et la solubilisation de l'azote organique, qui doit être contrebalancée par un ajout de carbone pour éviter l'inhibition de la digestion anaérobie.

2.4.2. *Le taux d'humidité*

Pour être assimilés par les microorganismes, les nutriments doivent être dissous dans une phase aqueuse, faisant de l'eau un élément essentiel au bon fonctionnement de la digestion anaérobie

(Lay et al., 1997). De ce fait, augmenter le taux d'humidité permet d'augmenter le taux de croissance des microorganismes (Pommier et al., 2007), et en particulier des méthanogènes (Lay et al., 1997). La biodégradation de la matière organique se trouve accélérée et les rendements de méthane améliorés (Pohland & Kang, 1975). Le taux d'humidité influence particulièrement les phases de croissance et de stabilisation de la digestion par voie sèche (Motte et al., 2013).

Du point de vue physique, un taux d'humidité trop faible peut causer des problèmes d'accessibilité de la matière (organique, métabolites et nutriments) et de transfert de masse (Abbassi-Guendouz et al., 2012; Pommier et al., 2007; Yang et al., 2015). Le modèle de Martin (2001) permet de bien comprendre ces phénomènes. Le massif solide est représenté sous forme de six couches empilées et linéaires où les échanges de matière se font par diffusion. La première couche est un noyauensemencé autour duquel les conditions sont très acides et les dernières couches regroupent les méthanogènes, suffisamment éloignées du noyau acide pour être actives. Dans un tel modèle, le manque d'humidité ralentit fortement la diffusion des métabolites et par conséquent la dégradation de la matière organique. Bollon et al. (2013) appuient d'ailleurs ces hypothèses avec des données numériques : en augmentant le taux de MS d'un substrat de 8 à 25%, le coefficient de diffusion d'un traceur, l'iode, est 50 à 185 fois plus petit que dans l'eau pure.

Pour permettre une dégradation optimale, l'humidité pour la méthanisation par voie sèche correspond à la capacité au champ du substrat, c'est-à-dire à sa capacité maximale de rétention d'eau (Benbelkacem et al., 2010), ce qui permet la dilution de composés inhibiteurs dans le solide (Sanphoti et al., 2006).

2.4.3. L'inoculation

L'inoculation d'un réacteur de méthanisation permet d'introduire l'ensemble des microorganismes responsables de la digestion anaérobie dans le substrat, et en particulier les microorganismes méthanogènes actifs. La présence de ces dernières permet d'éviter une inhibition due à une acidogenèse trop importante et une accumulation d'AGV (Chugh et al., 1998). Elle se fait le plus souvent par l'ajout d'un digestat (liquide ou solide) au substrat brut à dégrader (Ward et al., 2008; Xu

et al., 2013). L'utilisation de la biomasse contenue dans le rumen bovin est aussi souvent utilisée comme inoculum pour faciliter la dégradation de substrats lignocellulosiques et de fumiers (Budiyono et al., 2009; Hu & Yu, 2006; Kivaisi et al., 1992). L'efficacité de l'utilisation d'un inoculum liquide par rapport à un inoculum solide n'a été que très rarement étudiée. Seules deux études ont été recensées avec des résultats différents selon le substrat valorisé. Han et al. (2014) ont montré que dans le cas de paille de maïs, l'utilisation d'un inoculum liquide permettait d'augmenter de 26% le volume de méthane cumulé par rapport à un inoculum solide, pour des ratios équivalents en termes de matière volatile. Dans l'étude de Xu et al. (2016) les réacteurs chargés avec des déchets verts ont montré des performances équivalentes quel que soit le type d'inoculum employé. Dans les travaux cités ci-après, le choix d'un inoculum solide ou liquide n'est pas justifié mais l'importance du ratio substrat / inoculum (S/X) a été discutée.

Le ratio S/X agit principalement sur la phase de démarrage d'un digesteur, aussi appelée phase d'adaptation (Motte et al., 2013; Ward et al., 2008). Un ratio S/X élevé (peu d'inoculum), allonge la durée de la phase d'adaptation (Fernández et al., 2001; Motte et al., 2013). Dans le cas de réacteurs « batch », le manque d'inoculum liquide induit une accumulation d'AGV et un faible rendement de méthane pour des substrats lignocellulosiques, type résidus de culture (Motte et al., 2013).

Cependant, les quantités d'inoculum ajoutées dépendent du substrat valorisé. Alors que les fumiers de bovins ne nécessitent que 10% en volume d'inoculum solide (El-Mashad et al., 2006), la valorisation des cultures énergétiques demande plus de 70% en volume d'inoculum (Weiland, 2010). Par ailleurs, El-Mashad et al. (2006) préconisent un ajout régulier d'inoculum solide, associé à un mélange homogène S/X pour favoriser la dégradation des fumiers de bovins dans des réacteurs continus ou semi-continus.

2.4.4. La taille des particules

Le broyage des substrats est un prétraitement souvent utilisé sur les unités de méthanisation à grande échelle (Barakat et al., 2013). Il permet d'améliorer le rendement de biogaz et d'accélérer la dégradation de la matière organique en facilitant la solubilisation des intermédiaires réactionnels, en

augmentant la surface d'échange avec les microorganismes et en facilitant l'homogénéisation du substrat (Sharma et al., 1988; Silva & Rouau, 2011; Yang et al., 2015).

Plusieurs études montrent cependant des résultats contradictoires. Palmowski and Müller (2000) ont montré que l'effet du broyage était avéré surtout sur les substrats difficilement biodégradables tels que les feuilles d'érables. D'autres substrats comme des pommes, des carottes ou des pommes de terre n'ont montré aucune augmentation de leur production de méthane après broyage. Pour les déchets de cuisine, Izumi et al. (2010) mentionnent une taille de particules optimale de 0.6 mm, un broyage plus fin engendrant une accumulation d'AGV et une inhibition des réacteurs. D'autres substrats ne montrent aucune amélioration, comme le carton et le papier pour des tailles comprises entre 10 et 1 mm (Pommier et al., 2010).

2.5. Conclusion intermédiaire

Cette partie a permis de rappeler les étapes de la digestion anaérobie et les conditions réactionnelles nécessaires au bon déroulement du processus. Quelques particularités de fonctionnement du procédé de méthanisation par voie sèche ont également été mises en évidence. Il en ressort que le taux d'humidité des solides à valoriser est l'un des points clé pour la mise en œuvre de ce procédé. La suite de cette synthèse s'intéressera particulièrement à la gestion de ce paramètre.

3. Les procédés de méthanisation par voie sèche

3.1. Les différentes technologies

Pour répondre aux contraintes particulières du procédé de méthanisation par voie sèche, plusieurs technologies ont été développées (Tableau 3). On distingue deux grands groupes de procédés : les procédés continus et les procédés discontinus. Parmi les technologies en continu, Valorga, Dranco et Kompogas sont les plus connues. Dans chaque cas, la matière entrante subit un

broyage et est ramenée à un taux de matière sèche compris entre 30 et 40% par mélange de différents intrants. De cette façon, le réacteur est alimenté par un piston permettant l'entière automatisation de l'unité (Fruteau de Laclos et al., 1997; Six & De Baere, 1992; Wellinger et al., 1993). Le mélange du digesteur se fait soit par recirculation du digestat, soit par recirculation du biogaz. Dans le cas des procédés discontinus, aucun mélange de matière n'est possible à l'intérieur du digesteur après chargement et fermeture de celui-ci. L'agitation du réacteur est remplacée par la recirculation d'une phase liquide, le lixiviat, permettant le déplacement des intermédiaires réactionnels à travers le massif solide (Martin, 1999). Pour ces procédés, au minimum trois digesteurs doivent fonctionner en parallèle, avec un chargement différé, pour obtenir la production de méthane la plus constante possible dans le temps (Weiland, 2010).

Tableau 3 : Exemple d'unités de méthanisation par voie sèche et de leurs performances

Site	Tilburg, Pays-Bas	Gent, Belgique	Suisse	Cholet, France
Technologie	Valorga	Dranco	Kompogas	Batch avec lixiviation
Chargement	Continu	Continu	Continu	Discontinu
Géométrie	Cylindre vertical	Cylindre vertical (bas conique)	Cylindre horizontal	Bateaux horizontal
Mélange	Recirculation du biogaz par le bas	Recirculation du digestat	Recirculation du digestat	Recirculation du lixiviat
Température	40°C	55°C	55°C	37 – 40°C
Matière sèche	30% en entrée	32% en réacteur	27% en réacteur	30% en entrée
Temps de séjour (jours)	20 - 50	18 -21	17 - 40	40 - 120
Charge	8 – 24 kg _{MB} .m ³ .j ⁻¹	2 – 3 kg _{MB} .m ³ .j ⁻¹	2 - 4 kg _{MB} .m ³ .j ⁻¹	10 kg _{MB} .m ³ .j ⁻¹
Source	Fruteau de Laclos et al. (1997)	Six and De Baere (1992)	Wellinger et al. (1993)	ADEME et al. (2010)

La configuration des réacteurs discontinus avec recirculation du lixiviat, également appelés LBR (Leach Bed Reactor), permet d'obtenir des rendements en méthane équivalents aux réacteurs infiniment mélangés liquides, avec un coût énergétique inférieur aux réacteurs continus (Weiland, 2010). Son faible coût d'investissement en fait une technologie particulièrement adaptée aux unités de méthanisation à la ferme (Vandevivere et al., 2002).

3.2. Cas particulier des réacteurs discontinus avec recirculation du lixiviat

3.2.1. Présentation générale du dispositif

Les unités de méthanisation discontinues sont des systèmes biphasiques comportant une phase liquide, le lixiviat, et une phase solide, l'effluent à valoriser. Au lancement de la digestion, l'effluent est chargé dans un digesteur hermétiquement fermé. Le lixiviat, initialement stocké dans une cuve, est régulièrement injecté dans le digesteur où il percole à travers l'effluent jusqu'à atteindre le fond du digesteur (Figure 5). Selon les dispositifs, le lixiviat peut être réintroduit dans la cuve initiale ou laissé dans le digesteur en attendant la recirculation suivante. Le biogaz produit est alors valorisé par cogénération, afin de produire de l'électricité et/ou de la chaleur, ou injecté dans le réseau de gaz national. Afin d'assurer une production de biogaz continue et la plus constante possible, plusieurs digesteurs fonctionnent en parallèle. Lorsque le premier digesteur ne produit plus de biogaz, il est vidé puis rechargé de matière fraîche. Le cycle continue ensuite de la même façon avec les autres digesteurs.

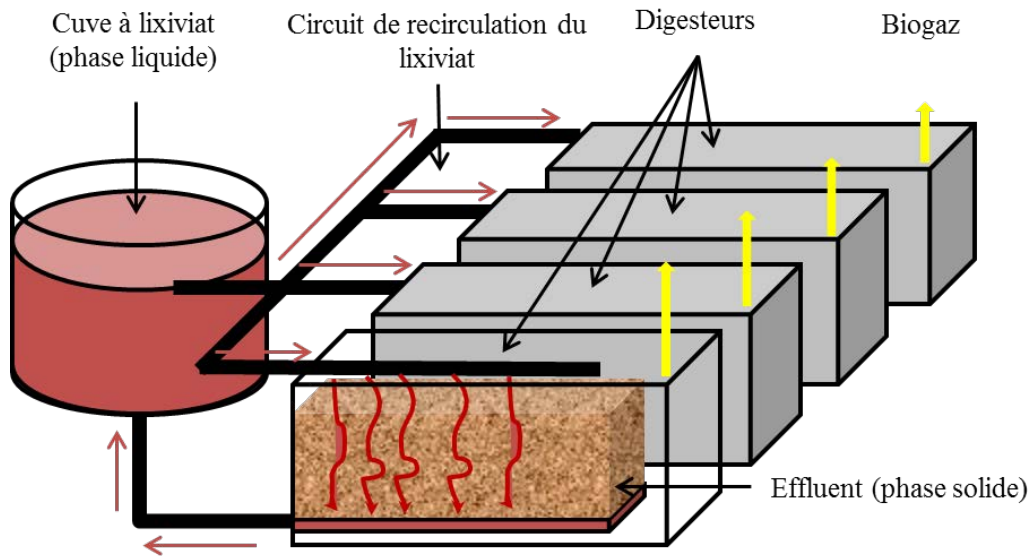


Figure 5 : Schéma d'une unité de méthanisation par voie sèche avec recirculation du lixiviat

La Figure 6 illustre la production de méthane observée sur ce type d'installations dans le cas de quatre digesteurs fonctionnant avec un décalage de deux semaines (simulation obtenue avec du fumier de bovins). Pendant la première quinzaine, un seul réacteur fonctionne impliquant une faible production de méthane. Au fur et à mesure du temps, la production de méthane augmente avec le chargement des autres digesteurs jusqu'à atteindre une production stable 40 jours après le démarrage du premier réacteur. On remarque cependant que la production de méthane, bien que continue, n'est pas constante. En effet, des minimums et maximums de production sont atteints au même rythme que les chargements et déchargements des digesteurs. Ces variations peuvent être problématiques au moment de la valorisation du biogaz par cogénération notamment. En effet, une sous-production de biogaz peut entraîner l'arrêt de la cogénératrice alors qu'une surproduction obligerait le torchage de l'excédent de biogaz. Dans les deux cas, une perte pécuniaire en découlerait.

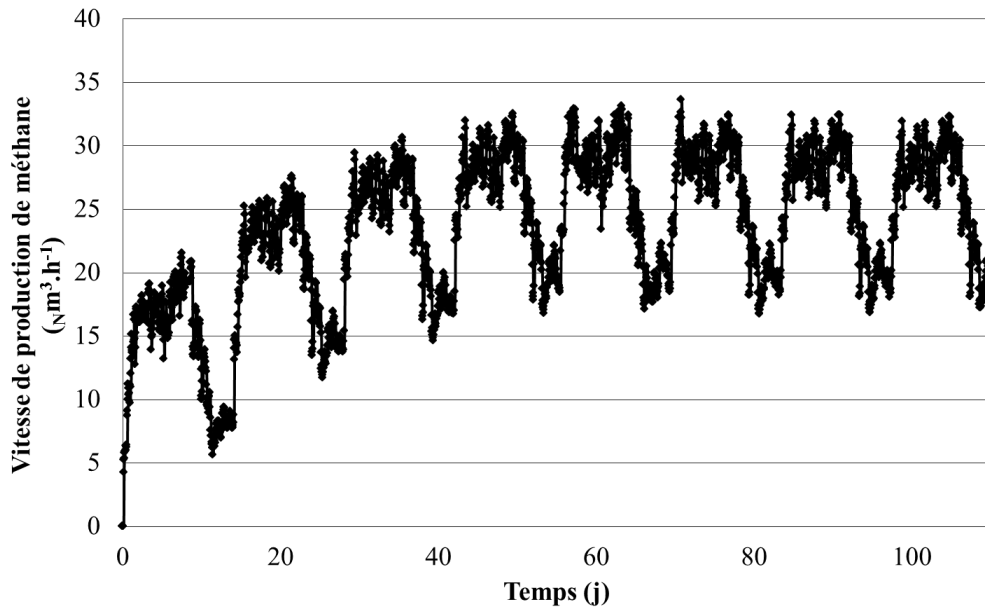


Figure 6 : Exemple du profil de production de méthane dans le cas de réacteurs fonctionnant en discontinu

Afin d'éviter ce problème, le temps de séjour des solides pourrait être raccourci, gommant ainsi les périodes de sous-production. Cependant, les substrats ne seraient pas valorisés à leur maximum et la quantité de substrats initialement disponibles ne serait pas suffisante pour assurer le fonctionnement de l'unité sur une année complète. L'autre solution consisterait à optimiser les cinétiques de production de biogaz afin de prolonger la phase de production maximale. Sur ce type d'installation, seule la recirculation du lixiviat peut être facilement maîtrisable, d'où l'intérêt de comprendre son effet sur les cinétiques de production de méthane.

3.2.2. Importance et bénéfices de la recirculation du lixiviat

Peu de documents sont disponibles sur le procédé de digestion anaérobie par voie sèche discontinu, avec recirculation du lixiviat (Motte et al., 2013). Les centres de stockage de déchets ménagers, dont est inspiré ce procédé (Vandevivere et al., 2002), sont par ailleurs très documentés. Le recyclage du lixiviat, en particulier, est étudié depuis près de 40 ans et est largement reconnu comme bénéfique pour la stabilisation des centres de stockage et l'amélioration des performances de la

digestion anaérobie (Leckie et al., 1979; Pohland & Kang, 1975; Reinhart & Al-Yousfi, 1996; Stegmann, 1983). Plus récemment, les travaux de Sponza and Ağdağ (2004) et Francois et al. (2007) confirment l'importance de la recirculation avec des essais en laboratoire, en montrant que la quantité de méthane produite par des déchets ménagers était plus importante lorsque du lixiviat était recirculé. Dans l'article de Francois et al. (2007), après 200 jours d'expérimentations avec des déchets ménagers frais, le volume de méthane produit a doublé, passant de 14,5 à 32,2 L.kg_{MB}⁻¹ grâce à la recirculation du lixiviat. Les bénéfices de la recirculation du lixiviat sont attribués à plusieurs mécanismes complémentaires (Komilis et al., 1999) : l'apport d'humidité dans le solide pour favoriser la croissance microbienne, la substitution au mélange mécanique qui permet le transport des nutriments à travers le massif, et l'inoculation du déchet pour un démarrage plus rapide de la digestion. Chaque mécanisme est détaillé ci-après.

3.2.2.1. Apport d'humidité

L'importance du taux d'humidité pour le fonctionnement de la digestion anaérobie par voie sèche a déjà été discutée au paragraphe 2.4.2. Pour rappel, l'humidité sert notamment à la croissance microbienne au sein du massif de déchets et est optimale à la capacité au champ. D'autre part, un taux d'humidité élevé permet de faciliter la diffusion des intermédiaires réactionnels depuis et vers les microorganismes.

La recirculation du lixiviat est un bon moyen d'atteindre progressivement l'humidité suffisante permettant le démarrage de la digestion anaérobie (Chugh et al., 1998; Kulkarni & Reddy, 2012). Cependant, la création de chemins préférentiels dans les massifs solides est un phénomène souvent observé (Blight et al., 1992; Korfiatis et al., 1984; Zeiss, 1999; Zeiss & Ugucioni, 1997) qui ne permet pas une distribution homogène du lixiviat dans tout le massif de déchets et qui conduit à la formation de zones relativement sèches. A court terme, cela contribue à allonger la phase de démarrage des digesteurs, passant de 53 à 65 jours pour les réacteurs les plus touchés, ainsi qu'à la réduction des vitesses de production de méthane (1,8 à 0,8 Nm³.t_{MB}⁻¹.j⁻¹) (Benbelkacem et al., 2010). Selon les mêmes auteurs, pour éviter ces problèmes de chemins préférentiels, le massif de déchets

devrait être préalablement noyé pendant 12h pour permettre une distribution homogène de l'humidité dans le solide. A long terme, le réacteur ayant subi ce traitement aurait produit $240,5 \text{ Nm}^3 \cdot \text{t}_{\text{MB}}^{-1}$ de méthane contre 147,6 et $163,3 \text{ Nm}^3 \cdot \text{t}_{\text{MB}}^{-1}$ dans les autres cas, et ce sans aucune recirculation ultérieure. Les effets de l'inondation initiale du massif solide avaient déjà été discutés par Martin (2001). Selon cet auteur, même si un taux d'humidité élevé est indéniablement bénéfique pour le procédé, un noyage du solide qui ne serait pas suivi d'un drainage ne montrerait pas d'effet positif sur les performances de la digestion. D'autres phénomènes liés à la recirculation semblent donc jouer un rôle dans l'optimisation de ce procédé.

3.2.2.2. *Substitution au mélange*

Un autre avantage de la recirculation du lixiviat est de remplacer le mélange mécanique du substrat, qui ne peut avoir lieu dans le cas d'un procédé discontinu par bâchées. Klink and Ham (1982) font partie des premiers auteurs à avoir mis en évidence l'importance du déplacement de liquide dans un massif solide là où tous les bénéfices de la recirculation étaient attribués au taux d'humidité. Ainsi, le déplacement du lixiviat a permis d'améliorer la production de méthane de déchets ménagers de 25 à 50%, selon le débit de recirculation appliqué et selon le type d'échantillon, comparé au même échantillon avec le même taux d'humidité et sans aucun déplacement de liquide.

Plus tard, Martin (1999) et Kalyuzhnyi et al. (2000), à travers leurs modèles, mettent en évidence des problèmes de transfert de masse au sein de réacteurs de digestion anaérobie par voie sèche. Selon eux, plusieurs microréacteurs acidogènes et méthanogènes cohabitent dans un même substrat. Pour produire du méthane, les acides générés par les microréacteurs acidogènes doivent donc diffuser jusqu'aux microréacteurs méthanogènes. La recirculation du lixiviat permettrait donc de s'affranchir des phénomènes de diffusion, d'accélérer le transport des nutriments et finalement d'améliorer les rendements de méthane (Martin, 1999). Cette théorie sera expérimentalement vérifiée peu après par Veeken and Hamelers (2000). Dans un réacteur, plusieurs couches successives d'inoculum (réacteur méthanogène) et de déchets frais (réacteur acidogène) ont été empilées avec possibilité d'échantillonnage de chaque couche pour suivre l'évolution des AGV et de la DCO. Sans

recirculation de lixiviat, les AGV se sont accumulés dans le déchet frais jusqu'à inhibition des acidogènes, et très peu de méthane a été produit. Avec recirculation du lixiviat, aucune inhibition n'a été observée et 10 fois plus de méthane a été produit. Le rôle du lixiviat comme vecteur de nutriments a ainsi été démontré. Plus largement, il permet également d'éviter l'accumulation de substances toxiques en un point du réacteur.

La recirculation du lixiviat comme substitut au mélange mécanique permet également de transporter et de distribuer les différents microorganismes de la digestion anaérobie à travers le solide (Chugh et al., 1998; Reinhart, 1996). Ce phénomène a été modélisé en 2002 par Vavilin et al., en prenant en compte l'effet d'une recirculation continue sur la concentration et la distribution des microorganismes méthanogènes et des AGV dans un réacteur à une dimension (1D). Dans le cas où le microréacteur méthanogène se trouve au centre du réacteur 1D, les résultats ont montré que la colonisation des méthanogènes se faisait dans le même sens que la recirculation du lixiviat. En amont de la zone initialement inoculée, la concentration en microorganismes est plus faible qu'en aval, montrant la difficulté des microorganismes à coloniser le solide à contre sens de la recirculation. Ces phénomènes sont d'autant plus marqués que le débit de recirculation est élevé. Expérimentalement, d'autres auteurs tels que Xu et al. (2014a) ont observé l'effet de la recirculation sur la distribution des microorganismes dans un déchet de cuisine. Dans un réacteur type LBR, la concentration en microorganismes dans le lixiviat a été suivie pendant 16 jours. Chaque jour, entre 5 et 100% du lixiviat recueilli a été remplacé par de l'eau. Les réacteurs dont les plus grandes proportions de lixiviat ont été remplacées par de l'eau ont été les plus touchés par la diminution du nombre de microorganismes, tout en montrant de faibles rendements en méthane. Dans ce cas, les microorganismes de la phase solide ont été entraînés par le lixiviat sans être remplacés. En conséquence, la recirculation du lixiviat est étroitement liée aux performances d'un réacteur de digestion anaérobie par voie sèche.

En plus de son rôle de vecteur de nutriments, d'AGV et de microorganismes, la recirculation du lixiviat permet d'uniformiser la température du réacteur (Chugh et al., 1998). Aujourd'hui, le rôle de la recirculation comme substitut au mélange, selon les mécanismes développés dans ce paragraphe,

est largement accepté par la communauté scientifique (Browne et al., 2013; Jha et al., 2011; Šan & Onay, 2001; White et al., 2011; Xu et al., 2015)

3.2.2.3. Aide à l'inoculation

En plus des deux premiers rôles précédemment développés, il est souvent admis que l'introduction d'un lixiviat permet d'inoculer un déchet solide (Jha et al., 2011; Kusch et al., 2012; Li et al., 2016; Xu et al., 2013). En cherchant à accélérer la dégradation de déchets municipaux, Chugh et al. (1999) ont montré que la biomasse d'un lixiviat pouvait engendrer une diminution du temps nécessaire au démarrage de la digestion anaérobie. Dans cette étude, deux LBR fonctionnaient en parallèle, l'un étant chargé de déchets ménagers stabilisés et l'autre chargé de déchets frais. Le lixiviat sortant du déchet frais était envoyé dans le réacteur stabilisé puis de nouveau dans le réacteur frais, jusqu'à ce que le pH du lixiviat en sortie du réacteur frais soit supérieur à 6,5. A partir de ce moment, le réacteur frais est devenu le réacteur stabilisé et un nouveau réacteur frais a été mis en place. Après 4 cycles, la phase de démarrage de la digestion anaérobie est passée de 21 jours à 8 jours, mettant ainsi en évidence l'importance du lixiviat comme inoculum à condition qu'il contienne une biomasse adaptée à la dégradation du déchet considéré. Cette dernière idée a été confirmée par Xu et al. (2013) qui ont testé l'effet de différents effluents liquides comme source d'inoculum sur les performances de la digestion de paille de blé, mais sans recirculation. Il a été démontré que le meilleur rendement en méthane a été obtenu pour le lixiviat provenant d'une digestat de fumier de bovins (comparé aux digestats de déchets de cuisine et de déchets ménagers) car il contenait plus de bactéries cellulolytiques et xylanolytiques (adaptées à la dégradation de la paille) que les deux autres lixiviats.

Pourtant, d'autres résultats semblent indiquer une tendance contraire. Xu et al. (2014a), dont une première partie des résultats a été discuté dans le paragraphe précédent (remplacement du lixiviat par différents ratio d'eau et suivi de l'effet sur l'évolution des microorganismes dans un déchet de cuisine), ont également remplacé le lixiviat de l'un des réacteurs par un digestat biologiquement actif. Au bout de 16 jours, bien que la concentration en *Archaea* du lixiviat sortant du réacteur « inoculé » soit très supérieure à celle sortant du réacteur « non inoculé » (4.10^4 cellules.mL⁻¹ contre 1.10^2

cellules.mL⁻¹), le volume de méthane cumulé était équivalent, s'élevant à 0.22 L CH₄.g_{MV}⁻¹ pour le réacteur « inoculé » et 0.21 L CH₄.g_{MV}⁻¹ pour le réacteur « non inoculé ». Dans un autre cas, l'effet du ratio substrat/effluent liquide « actif » a été testé sur de la paille de blé (Shi et al., 2014). Il s'agit ici de stériliser une partie de l'effluent liquide (digestat mésophile de boues de STEP) à 121°C pendant 60 minutes, avant introduction dans le réacteur afin de diminuer son activité microbienne et son pouvoir d'inoculation. Plusieurs mélanges de liquide stérilisé et de liquide « actif », à différents ratios, ont été testés, sans recirculation du liquide à travers la paille. Après 38 jours de tests, tous les essais ont produit la même quantité de méthane, ne montrant pas d'effet de l'inoculation par la phase liquide.

Ces résultats contraires semblent indiquer que d'autres facteurs, tels que les caractéristiques physico-chimiques du lixiviat, peuvent jouer un rôle sur les rendements de méthane. Par ailleurs, aucune comparaison entre la croissance des microorganismes du solide et du liquide n'a été trouvée pour appuyer l'une ou l'autre des théories. Le rôle biotique du lixiviat dans la digestion anaérobie par voie sèche reste encore flou.

3.2.2.4. Limites de la recirculation

La recirculation du lixiviat ne présente cependant pas que des avantages. Même si elle permet de recycler et de dégrader un maximum de matière organique du système (Chugh et al., 1999; Komilis et al., 1999), les composés inhibiteurs sont également stockés et recyclés sans être évacués des réacteurs. Ainsi, dans le cas de déchets ménagers, l'accumulation d'ions chlorure et ammonium a été observée dans le lixiviat (Francois et al., 2007). Dans ce cas, la recirculation semble concentrer ces composés inhibiteurs au lieu de les diluer. Pour pallier l'accumulation de chlorure, le renouvellement du lixiviat semble être la solution la plus efficace (Francois et al., 2007). Dans le cas de l'accumulation d'ammonium, une solution pourrait être l'aération du lixiviat, oxydant ainsi l'ammonium en nitrates qui serait ensuite consommés par dénitrification (Francois et al., 2007).

L'accélération de la dégradation d'un déchet par recirculation du lixiviat, considérée comme bénéfique dans les paragraphes antérieurs, peut aussi s'avérer désavantageuse pour le bon fonctionnement du procédé. En effet, dans le cas de déchets municipaux, une recirculation intensive

peut accélérer les phases d'hydrolyse et d'acidification, entraînant l'accumulation d'AGV et l'inhibition de la méthanogenèse (Kusch et al., 2012; Sponza & Ağdağ, 2004; Xu et al., 2015). Ce phénomène a également été observé avec les déchets de cuisine (Xu et al., 2014a). Plusieurs solutions ont été proposées pour prévenir l'inhibition de la digestion par les AGV :

- la mise en place d'un procédé en deux étapes, constitué d'un réacteur acidogène puis d'un réacteur méthanogène où le lixiviat permet le transport de la matière organique entre les deux réacteurs (Komilis et al., 1999),
- l'aération du substrat avant digestion, pour transformer rapidement une partie de la matière facilement dégradable et ainsi limiter l'apparition et l'accumulation d'AGV (Charles et al., 2009),
- le contrôle de la cadence de recirculation du lixiviat, permettant de limiter la propagation des AGV à travers le solide (Veeken & Hamelers, 2000).

Le lessivage des microorganismes peut également survenir lors de la recirculation du lixiviat et causer un faible rendement de méthane (Cysneiros et al., 2012; Xu et al., 2014a). Cependant, maintenir le pH du lixiviat à une valeur supérieure à 6,5 permettrait de diminuer cet impact. En effet, les microorganismes bénéficient ainsi des conditions optimales de croissance et peuvent maintenir une population suffisamment nombreuse pour éviter l'inhibition du réacteur (Cysneiros et al., 2012).

Des problèmes d'ordre physique ont également été rapportés. Lors du choix des substrats et co-substrats et lors du chargement des réacteurs, une compaction trop élevée du solide peut ralentir l'écoulement du lixiviat (Chugh et al., 1998). Ceci se traduit généralement par le colmatage des pores du déchet solide, par la formation de chemins préférentiels du lixiviat, et par la formation de zones du solide complètement noyées où le mouvement induit par la recirculation ne peut avoir lieu (Šan & Onay, 2001). Par conséquent, les productions de méthane se trouvent ralenties et amoindries (Benbelkacem et al., 2010; Valencia et al., 2009).

Pour prévenir l'inhibition de la digestion anaérobie par voie sèche, le lixiviat doit donc être choisi soigneusement compte tenu de son activité biologique et de ses caractéristiques physico-chimiques.

3.2.3. *Le choix du lixiviat*

Les précédents paragraphes ont permis de montrer que la qualité du lixiviat pouvait influencer les performances de la digestion anaérobie. La présence d'une communauté bactérienne adaptée permet notamment d'accélérer la dégradation de la matière organique et d'augmenter les rendements de méthane (Charles et al., 2009; Xu et al., 2013). Cependant, les caractéristiques physico-chimiques du lixiviat semblent également jouer un rôle dans l'efficacité du procédé.

Plusieurs auteurs ont montré l'importance de l'alcalinité du lixiviat pour stabiliser un réacteur et augmenter la dégradation de la matière organique pour différents substrats (Browne et al., 2013; Charles et al., 2009; Cysneiros et al., 2012; Li et al., 2016). Dans le cas de la paille de maïs, le pouvoir tampon du lixiviat a permis de repousser la limite d'inhibition des AGV. Les réacteurs dont le lixiviat a été remplacé par un tampon ont vu leur concentration en AGV augmenter tout en montrant des taux de dégradation de matière organique plus élevés (Cysneiros et al., 2012). Des résultats similaires ont été observés lors de la digestion de déchets de cuisine par Browne et al. (2013). Enfin, Charles et al. (2009) ont montré une augmentation de la production de méthane à partir de déchets municipaux en présence d'un lixiviat tamponné.

La concentration initiale en ammoniac du lixiviat, quant à elle, a été rapportée comme inhibitrice de la méthanogenèse entre 1500 – 3000 mg/L dans les centres de stockage (Francois et al., 2007). Cependant, les résultats précédents laissent penser que cette limite pourrait aussi être dépassée grâce à l'alcalinité du lixiviat.

A ce jour, aucun autre aspect physico-chimique du lixiviat n'a été identifié comme pouvant affecter les performances de la digestion anaérobie par voie sèche avec recirculation du lixiviat.

3.2.4. *Les paramètres de recirculation*

Dans le procédé de digestion anaérobie par voie sèche discontinue, la recirculation du lixiviat permet une meilleure dégradation de la matière organique et un meilleur rendement de méthane (cf.

paragraphes 3.2.2 et 3.2.3). En plus de l'utilisation d'un lixiviat adapté, certains auteurs ont émis l'idée que le débit de recirculation du lixiviat, tout comme le volume de lixiviat recirculé, avaient aussi une influence sur la production de méthane (Benbelkacem et al., 2010; Vavilin et al., 2002; Veeken & Hamelers, 2000). Pourtant, dans la littérature, les modes de recirculation proposés sont variables d'une étude à l'autre : il n'existe pas de consensus sur la méthode de recirculation des lixiviats. Une partie de ces résultats figure dans le Tableau 4. A première vue, plusieurs paramètres semblent poser question comme l'influence d'une recirculation continue par rapport à une recirculation discontinue, l'importance des recirculations croisées, l'influence du ratio lixiviat/substrat (L/S) appliqué au réacteur (i.e. le volume total de lixiviat initialement introduit dans le réacteur par rapport au volume de substrat), le volume de lixiviat effectivement recirculé (qui peut être différent du volume initialement introduit), ou encore le temps écoulé entre deux recirculations. La suite de cette synthèse s'attache donc à exposer et discuter l'influence de chacun des paramètres précédemment cités.

Tableau 4 : Aperçu des différentes conditions de recirculation du lixiviat appliquées dans la littérature

Substrat	Capacité du réacteur (L)	Durée du batch (jours)	Température	Recirculation continue ou discontinue	Périodicité de la recirculation	Ratio L/S	Volume recirculé (L)	Débit (L.h ⁻¹)	Source
Déchets municipaux	71	215 à 225	35°C	continue	-	0,1 à 0,3 (L/L)	-	0,4 et 0,9	Sponza and Ağdağ (2004)
	11	300	30°C	discontinue	1 à 3 fois/jour	-	0,25	-	Xu et al. (2015)
	27	69	38°C	aucune ou discontinue	1 fois/semaine	-	0,5	-	Chan et al. (2002)
	35 000	350	15 à 35°C	discontinue	1 fois/semaine	0,03 à 0,05 (L/L)	1 600 à 100	-	Jiang et al. (2007)
	100	400 à 500	38°C	discontinue	saturation de 2h puis 1 fois/jour	0,7 (kg/kg)	0,5	-	Francois et al. (2007)
	1000	200	35°C	discontinue	1 fois/semaine	-	4,25 à 17	-	Benbelkacem et al. (2010)
	200	72	38°C	discontinue	1 fois/jour	0,02 à 0,3 (L/L)	3 à 45	130	Chugh et al. (1998)

Substrat	Capacité du réacteur (L)	Durée du batch (jours)	Température	Recirculation continue ou discontinue	Périodicité de la recirculation	Ratio L/S	Volume recirculé (L)	Débit (L.h ⁻¹)	Source
Déchets de cuisine	4,6	16	35°C	continue ou discontinue	1 fois/jour	0,5 à 1,0 (kg/kg)	1,0 à 0,5	0,3	Xu et al. (2014b)
	4,6	16	35°C	discontinue	1 fois/jour ou 2 fois/jour	0,2 (L/L)	1,0	-	Xu et al. (2014a)
Maïs ensilé	50	42 à 56	35°C	continue ou discontinue	2 fois/jour	0,5 (kg/kg)	70 L en 15 minutes	280	Kusch et al. (2012)
Paille de maïs	1	30	37°C	aucune	-	0,2 à 0,5 (kg _{MV} /kg _{MV})	-	-	Xu et al. (2013)
	1	38	36°C	aucune	-	0,2 à 0,5 (kg _{MV} /kg _{MV})	-	-	Li et al. (2016) Shi et al. (2014)
	4	28	35°C	continue	-	0,7 (L/L)	-	0,08	Cysneiros et al. (2012)
Fumier de bovins	2	135	22°C	discontinue	1 fois/3h	6,0 (kg/kg)	0,08	0,17	Myint and Nirmalakhandan (2009)
	50	28	40°C	discontinue	1 fois/2h	6,3 (kg/kg)	-	-	Korazbekova and Bakhov (2014)
	60	32	37°C	discontinue	1 fois/h ou 1 fois/2h	1,0 (kg/kg)	3,3	100	André et al. (2015)

3.2.4.1. Recirculation continue VS discontinue

Pour une majorité des études recensées dans le Tableau 4, le choix de l'utilisation d'une recirculation discontinue par rapport à une recirculation continue n'est pas clairement justifié. Quelques auteurs ont cependant apporté des éléments de réponse.

Xu et al. (2014b) ont comparé les effets d'une recirculation intermittente ou continue pendant la phase d'hydrolyse de déchets de cuisine selon plusieurs ratios L/S. La recirculation discontinue a eu lieu une fois par jour et la totalité du liquide initialement introduit a été recirculé, soit 1 ou 0,5 litres. Dans le cas de la recirculation continue, un débit de 5mL/min a été appliqué pour chaque ratio L/S, ce qui équivaut à 7,2 litres de lixiviat recirculés par jour. Chaque jour, 50% du lixiviat a été remplacé par un tampon carbonate. Après 16 jours de tests, les réacteurs avec recirculation continue ont montré des taux de dégradation de MV et de carbone organique total (COT) plus élevés que les réacteurs avec une recirculation intermittente, s'accompagnant d'une meilleure production d'AGV. Ces résultats ont été attribués à une meilleure distribution des nutriments et un meilleur maintien du taux d'humidité et du pH dans les réacteurs avec une recirculation continue des lixiviats.

Dans le cas de la digestion de maïs ensilé en une seule étape, Kusch et al. (2012) n'ont pas noté d'effet bénéfique de la recirculation continue par rapport à une recirculation discontinue. Pour les réacteurs avec recirculation intermittente, le lixiviat a été recirculé deux fois par jour à un débit de 4,7 L/min pendant 15 minutes. Le même débit a été appliqué continuellement dans les autres réacteurs. Une partie des résultats est en accord avec l'étude discutée précédemment : une recirculation continue a permis de favoriser l'étape d'hydrolyse dans le cas où la méthanogenèse était limitante (début de batch), phénomène non désiré dans un réacteur en une seule étape. Dans le cas d'un réacteur stabilisé, les deux types de recirculations ont montré des performances similaires.

Une recirculation continue permet donc de favoriser l'étape d'hydrolyse de la digestion anaérobie par voie sèche. Une fois la méthanogenèse établie, aucun des deux modes de recirculation ne semble être plus bénéfique que l'autre. Dans le cas d'un procédé en une seule étape, une recirculation discontinue semble plus adaptée puisqu'elle permet de limiter l'étape d'hydrolyse et d'économiser de l'énergie par une moindre utilisation des pompes de recirculation.

3.2.4.2. Recirculation croisée

Le principe de la recirculation croisée est d'échanger les lixiviats de deux réacteurs. Alors qu'un réacteur chargé de déchets frais reçoit le lixiviat d'un réacteur stabilisé, le réacteur stabilisé reçoit le lixiviat du réacteur le plus jeune. De cette façon, les composés acides pouvant causer l'inhibition de la digestion (contenus dans le lixiviat jeune) sont consommés par les microorganismes méthanogènes du réacteur stabilisé. Le risque d'acidification pendant la phase de démarrage de la digestion est ainsi amenuisé dans le réacteur jeune (Weiland, 2006). Ce type d'installation a permis d'améliorer la dégradation de déchets de cuisine selon Juanga et al. (2007), qui ont enregistré une production de méthane équivalente à 84% du BMP en 28 jours de dégradation.

L'autre avantage de cette configuration est de diminuer la phase de démarrage de la digestion en créant une population microbienne adaptée au déchet à valoriser. C'est le travail qu'ont exposé Chugh et al. (1999) et qui a déjà été abordé au paragraphe 3.2.2.3.

Bien qu'efficace du point de vue des rendements de méthane et de la dégradation de la matière organique, cette configuration complique les opérations sur le terrain où un risque de fuite de biogaz est possible suite aux ouvertures et fermetures successives des vannes liées à la recirculation (Browne et al., 2013).

3.2.4.3. Ratio lixiviat/substrat (L/S)

Le ratio lixiviat/substrat (L/S) correspond au rapport entre la quantité de lixiviat et la quantité de substrat initialement introduites dans un réacteur. Ce ratio n'est pas une grandeur normée et peut être exprimée en différentes unités selon les auteurs considérés (L/L, kg/kg ou $\text{kg}_{\text{MV}}/\text{kg}_{\text{MV}}$). Dans ce paragraphe, toutes les unités n'ont pas pu être harmonisées par manque de données adéquates dans les articles pris en compte.

Il est également important de noter que le volume de lixiviat initialement introduit (servant au calcul du ratio L/S), est différent du volume de lixiviat effectivement recirculé, dont l'effet sera

discuté dans le paragraphe suivant. D'ailleurs, dans certains cas, aucune recirculation n'est appliquée et le ratio L/S correspond simplement à l'inverse du ratio S/X (ratio substrat/inoculum liquide).

A la lecture du Tableau 4, le ratio lixiviat/substrat (L/S) appliqué en digestion anaérobie par voie sèche est très variable que l'on compare des substrats différents ou non. Dans le cas des déchets municipaux par exemple, on trouve des ratios compris entre 0,02 et 0,5 (L/L) alors que pour des fumiers de bovins, ce ratio est compris entre 1,0 et 6,3 (kg/kg).

Malgré le large panel de ratios L/S trouvé dans la littérature, son effet sur les performances de la digestion anaérobie n'a été que rarement discuté. A quelques années d'écart, Xu et al. (2013), Shi et al. (2014) et Li et al. (2016) se sont intéressés à ce ratio pour la digestion de paille de maïs dans des réacteurs batch, sans recirculation. Différents ratios L/S compris entre 0,2 et 0,5 (exprimés dans ce cas en $\text{kg}_{\text{MV}}/\text{kg}_{\text{MV}}$ et comparables au ratio S/X) ont été testés. Les trois études s'accordent sur un ratio optimal proche de 0,5. Dans le cas de Xu et al. (2013), la production de méthane passe de 4 à 240 $\text{L.kg}_{\text{MV}}^{-1}$ avec des ratios de 0,2 et 0,5 respectivement. Shi et al. (2014) ont enregistré une production de 18 $\text{L.kg}_{\text{MV}}^{-1}$ pour un ratio de 0,2 et 100 $\text{L.kg}_{\text{MV}}^{-1}$ pour un ratio de 0,5. Dans tous les cas, un faible ratio L/S a entraîné une acidification des réacteurs et un arrêt complet de la digestion anaérobie. Ces résultats s'expliquent par une plus grande quantité de microorganismes méthanogènes introduite dans les réacteurs à ratios élevés, permettant ainsi la consommation régulière d'AGV. L'effet du ratio n'a cependant pas été étudié avec recirculation du lixiviat.

Les travaux de Xu et al. (2014b) donnent de premiers résultats sur l'effet du ratio L/S lorsqu'une recirculation du lixiviat est mise en place sur des déchets de cuisine. Cependant, seule l'étape d'hydrolyse a été étudiée. Dans ce cas, un ratio de 1,0 (kg/kg) a permis d'améliorer la dégradation de la MV par rapport à un ratio de 0,5 (kg/kg), passant de 45,5 à 67,8%. Les productions de méthane qui en découleraient n'ont pas été mesurées.

Dans le cadre de travaux impliquant des réacteurs avec recirculation du lixiviat, d'autres ratios ont été appliqués à d'autres substrats sans que l'objet d'étude soit le ratio L/S en lui-même. Dans le cas de déchets ménagers par exemple, des ratios de L/S compris entre 0,02 et 0,3 (L/L) ont été appliqués (Chugh et al., 1998; Jiang et al., 2007; Sponza & Ağdağ, 2004). Ici, c'est l'effet du volume de lixiviat recirculé qui était visé et le volume initialement introduit dans le réacteur est le même que

le volume recirculé. Dans cette synthèse, les résultats sont restitués en termes de ratio L/S. Ces résultats ont montré que des ratios de 0,3, 0,1 et 0,05 (L/L) donnaient de meilleurs rendements de méthane pour Chugh et al. (1998), Sponza and Ağdağ (2004) et Jiang et al. (2007) respectivement.

Dans l'étude de Francois et al. (2007), un ratio de 0,7 (kg/kg) a été appliqué sans plus de justification. Pour la digestion de fumier de bovins, trois études ont travaillé avec trois ratios différents de 1,0, 6,0 et 6,3 (kg/kg) en ne justifiant pas non plus ces choix (André et al., 2015; Korazbekova & Bakhov, 2014; Myint & Nirmalakhandan, 2009). Enfin, Kusch et al. (2012) ont utilisé un ratio de 0,5 (kg/kg) sur du maïs ensilé, là encore sans justification.

Compte tenu de ces résultats, il apparaît que le ratio L/S a une influence sur l'inoculation du déchet solide. Cependant, le ratio utilisé est rarement optimisé ou non justifié et choisi à priori arbitrairement. De plus, l'effet de la recirculation couplée au ratio L/S reste sans réponse actuellement.

3.2.4.4. Volume recirculé

Le volume recirculé est l'un des paramètres les plus étudiés pour améliorer les performances de la digestion anaérobie. Dans le cas des déchets municipaux, plusieurs volumes de lixiviat ont été identifiés comme améliorant sensiblement les productions de méthane. Selon Chugh et al. (1998), de meilleures performances ont été enregistrées pour un volume de lixiviat recirculé représentant 30% du volume de déchet, Sponza and Ağdağ (2004) parlent de 13% du volume de déchets, Jiang et al. (2007) de 5% et enfin Benbelkacem et al. (2010) de 0,5% du volume de déchets. De grandes différences existent donc selon les auteurs et trouvent peut-être une explication avec le paragraphe précédent. Il a en effet été mentionné que le volume recirculé est souvent le même que le volume initialement introduit, représenté par le ratio L/S (exception faite pour Benbelkacem et al. (2010)). Puisqu'aucun découplage n'est proposé entre ces deux paramètres, une confusion peut apparaître. Les rendements de méthane plus élevés peuvent donc être l'effet soit du volume recirculé, soit du volume initialement introduit (ratio L/S) ou d'une interaction entre ces deux paramètres. Aucune étude ne permet, à l'heure actuelle, de lever l'ambiguïté.

Le même type de confusions apparaît dans le cas de la digestion anaérobie de déchets de cuisine (Xu et al., 2014b). La différence entre les taux de dégradation de la MV est entièrement attribuée aux différents volumes de lixiviat recirculés sans prendre en compte les différents ratios L/S que cela engendre.

Dans le cas des fumiers de bovins, l'effet du volume recirculé n'est que peu discuté. Quelques valeurs sont toutefois disponibles. Par exemple, le protocole de Myint and Nirmalakhandan (2009) permettait de recirculer 80 mL de lixiviat pour 250 g de déchets environ, ce qui représente 32% de la masse de déchet introduite avec un ratio L/S de 6,0 (Tableau 4). Dans le cas de André et al. (2015), l'équivalent de 16% de lixiviat était recirculé par rapport à la masse de déchet et pour un ratio L/S de 1,0. Dans ces exemples, le volume initial de lixiviat introduit dans le réacteur est bien découplé du volume de lixiviat recirculé mais la problématique n'était pas d'étudier l'effet du volume de lixiviat recirculé sur les performances de la digestion anaérobie. Par conséquent, les volumes appliqués n'ont pas varié et leurs effets n'ont pas été discutés.

3.2.4.5. Périodicité entre deux recirculations

Contrairement au ratio L/S et au volume recirculé, la périodicité entre deux recirculations est un paramètre très peu étudié au premier abord. Quelques auteurs ont toutefois rapidement discuté son effet sur les performances de la digestion anaérobie. C'est le cas de Xu et al. (2014a) avec des déchets de cuisine. Ici, deux régimes de recirculations ont été testés : une recirculation toutes les 24 heures, ou une recirculation toutes les 12 heures. Les résultats n'ont pas montré de différence significative quant au volume de méthane produit entre ces deux conditions pendant les 16 jours de suivi ($0,22 \pm 0,01$ $L_{CH_4} \cdot g_{MV}^{-1}$ et $0,23 \pm 0,01$ $L_{CH_4} \cdot g_{MV}^{-1}$ respectivement). Dans le cas de la digestion de fumiers de bovins, deux autres conditions ont été discutées : une recirculation toutes les heures ou une recirculation toutes les deux heures. Les auteurs ont observé une augmentation de la production de méthane de 22%, après 32 jours de suivi quand la recirculation avait lieu toutes les heures par rapport à une recirculation toutes les deux heures. Cependant, les bénéfices d'une recirculation fréquente n'ont été observés que pendant le pic de production de méthane. Après cette phase intensive de production, les paramètres

physiques du substrat ayant changé, aucun des deux modes de recirculation ne semble avoir d'effet sur la production de méthane. Enfin dans le cas de déchets municipaux, il est recommandé de recirculer 4 fois par semaine au chargement du réacteur puis, plus que 1 à 2 fois par semaine lorsque le réacteur est stabilisé (Šan & Onay, 2001). Ces résultats très variables peuvent être dus au type de substrat considéré, mais aussi probablement aux ratios L/S appliqués et aux volumes de lixiviats recirculés (cf. paragraphes 3.2.4.3 et 3.2.4.4).

D'ailleurs, les données du

Tableau 4, concernant les déchets municipaux, laissent penser que la périodicité entre chaque recirculation peut affecter les rendements de méthane. En effet, chacun des trois auteurs ayant identifié un volume de lixiviat optimum pour la digestion de leur substrat (Benbelkacem et al., 2010; Chugh et al., 1998; Jiang et al., 2007) ont travaillé à différentes fréquences de recirculation. Dans le cas de Benbelkacem et al. (2010) et de Jiang et al. (2007), la recirculation n'avait lieu qu'une fois par semaine pour des volumes de lixiviat recirculés optimaux de 0,5 et 5% du volume de déchet respectivement. Pour un volume optimal de 30% (Chugh et al., 1998), la recirculation avait lieu une fois par jour. La multitude de paramètres différenciant d'une étude à l'autre, rend difficile l'identification du paramètre à l'origine des écarts de production de méthane observés.

3.3. Conclusion intermédiaire

Les différents résultats discutés dans le paragraphe 3 montrent que dans le cas de procédés discontinus, le rôle du lixiviat est multiple. Il permet à la fois d'apporter de l'humidité au substrat solide à valoriser et de se substituer au mélange mécanique pour distribuer les différents nutriments et métabolites dans le solide. L'efficacité et l'influence du lixiviat pour l'inoculation du substrat solide ne sont cependant pas claires. De plus, les caractéristiques physico-chimiques du lixiviat semblent également influencer les performances de la digestion anaérobie. Mieux comprendre les rôles biotiques et abiotiques du lixiviat permettrait donc de définir les caractéristiques essentielles que doit réunir un lixiviat pour une production de méthane optimale.

D'autre part, il n'existe pas de stratégie claire et uniforme concernant le mode de recirculation. La disparité des conclusions apportées par les différents auteurs peut s'expliquer par les confusions faites entre les effets des différents paramètres de recirculation. Ceci est surtout vrai dans le cas des volumes de lixiviat recirculé ou des ratios lixiviat/substrat introduits. Par ailleurs, l'effet du temps écoulé entre les recirculations n'est que peu étudié. Les connaissances de ces paramètres opérationnels ont donc besoin d'être complétées et affinées afin de pouvoir proposer une stratégie de recirculation permettant là encore d'optimiser les productions de méthane.

4. Efficacité de la recirculation du lixiviat à grande échelle

Cette synthèse bibliographique montre que la recirculation du lixiviat et le choix de ce dernier sont étroitement liés aux performances du réacteur. Cependant, les substrats solides utilisés en digestion anaérobie semblent souvent très hétérogènes, limitant l'obtention d'une distribution homogène du lixiviat au sein de ces milieux poreux. D'autre part, le système d'injection du lixiviat peut également influencer la répartition du lixiviat dans le massif : un système mal dimensionné peut conduire à une mauvaise distribution du lixiviat et une baisse des rendements de méthane induite par un manque d'humidité.

Dans la suite de cette synthèse, nous chercherons donc à identifier les propriétés physiques des substrats solides qui peuvent influencer l'écoulement du lixiviat. Puis, dans un deuxième temps, différents systèmes d'injection, à échelle industrielle, seront discutés afin de déterminer les systèmes les plus adaptés à la distribution du lixiviat.

Initialement, une troisième étape de modélisation des transferts hydrodynamiques aurait dû compléter ces travaux de thèse et cette synthèse bibliographique. Les aléas du projet, et notamment la liquidation judiciaire de l'entreprise finançant ces travaux, ont conduit à une réorganisation des objectifs.

4.1. Propriétés physiques d'un milieu poreux : effet sur l'écoulement du lixiviat

4.1.1. La porosité

La première caractéristique importante d'un milieu poreux est sa porosité totale, notée ϕ (sans unité), définie par l'équation (1). Elle représente la fraction de l'espace qui n'est pas occupée par du solide et donc disponible pour les phases liquide et gazeuse.

$$\phi = V_v/V_t \quad (1)$$

où V_v et V_t (en m^3) représentent respectivement le volume occupé par le vide potentiel total et le volume total de déchets.

Plusieurs auteurs ont montré que cette grandeur influe sur la qualité de dégradation des substrats solides, dans le cas d'un procédé avec recirculation du lixiviat. Selon Valencia et al. (2009), augmenter la porosité totale du milieu permet d'augmenter les rendements de méthane. Dans cette étude, les tests ont été effectués sur des déchets municipaux où trois réacteurs fonctionnaient avec différentes porosités matérialisées par l'ajout de gravier (valeurs de porosités non précisées dans l'étude). Dans le premier réacteur, des graviers étaient mélangés au déchet. Dans l'autre, des graviers et le déchet étaient empilés en plusieurs couches successives. Le dernier réacteur, servant de contrôle, fonctionnait sans ajout de matière extérieure. Au bout de 250 jours de digestion, le contrôle avait produit $8 m^3$ de biogaz contre 11 et $19 m^3$ pour les réacteurs remplis en couches successives et avec mélange homogène respectivement. Les résultats ont été attribués à une meilleure distribution du lixiviat dans les réacteurs avec une porosité élevée. Myint and Nirmalakhandan (2009) ont également montré de meilleures performances de l'étape d'hydrolyse du fumier de bovins lorsque la porosité du milieu était plus élevée. Dans leur cas, l'augmentation de la porosité du solide a été réalisée par l'ajout

de coquilles de pistaches (valeurs de porosité non précisées dans l'étude). Cet ajout a permis de doubler la production d'AGV par rapport à un réacteur sans coquille.

En parallèle, les changements de structure du solide au cours de la digestion anaérobie par voie sèche peuvent induire une diminution de la porosité du milieu. Ainsi, la porosité totale du fumier de bovins peut passer de $0,911 \pm 0,0001$ à $0,892 \pm 0,0001$, après 32 jours de digestion, favorisant la création de chemins préférentiels pour le passage du lixiviat et pouvant aller jusqu'à rendre le solide imperméable à la recirculation du lixiviat (André et al., 2015).

4.1.2. La conductivité hydraulique à saturation

La conductivité hydraulique à saturation K_s ($m.s^{-1}$), ou coefficient de perméabilité, d'un milieu poreux caractérise son aptitude à laisser passer l'eau sous l'effet d'un gradient de charge hydraulique H . Cette conductivité est décrite, en conditions saturées en 1D, par la loi de Darcy :

$$q = K_s.A.\frac{\Delta H}{L} \quad (2)$$

avec q le débit volumique du liquide (en $m^3.s^{-1}$), A la section de l'échantillon (en m^2), L la longueur de l'échantillon (en m) et ΔH la perte de charge hydraulique (en m).

La conductivité hydraulique est influencée par plusieurs propriétés du solide comme la taille des particules qui le constituent, l'arrangement des particules ou le volume des pores (Murray, 1995). Cette influence se reflète dans l'ordre de grandeur du coefficient de perméabilité. La Figure 7 illustre ces ordres de grandeurs en fonction des caractéristiques de drainage et du type de sols.

1	Coefficient de perméabilité m/s (échelle logarithmique)											
	10 ⁻¹	10 ⁻²	10 ⁻³	10 ⁻⁴	10 ⁻⁵	10 ⁻⁶	10 ⁻⁷	10 ⁻⁸	10 ⁻⁹	10 ⁻¹⁰	10 ⁻¹¹	
Propriétés relatives au drainage			Bon drainage				Faible drainage			Presque imperméable		
Types de sol	Graviers propres		Sables propres, mélanges de sables et de graviers propres			Sables très fins, silts organiques et inorganiques, mélanges de sables, de silt et d'argile, tills glaciaires, dépôts d'argile stratifiés, etc.			Sols « imperméables » comme les argiles homogènes sous la zone d'altération			

Figure 7 : Ordre de grandeur des coefficients de perméabilités selon le type de sol d'après Holtz and Kovacs (1991)

Dans le cas de substrats utilisés en digestion anaérobie, il a été montré que la conductivité hydraulique est fonction de la profondeur du solide (centre de stockage des déchets ménagers) et de son degré de dégradation. Généralement, le coefficient Ks des déchets municipaux varie entre 10⁻⁹ et 10⁻⁴ m.s⁻¹ (Bleiker et al., 1995; Lanini, 1998; Olivier & Gourc, 2007) et diminue lorsque la profondeur augmente, ce qui signifie que le lixiviat percole moins vite dans les couches profondes du massif (Oweis & Khera, 1990). La dégradation du solide joue aussi sur le coefficient de perméabilité. Selon André et al. (2015), dans le cas de fumiers de bovins et après 19 jours de digestion anaérobie, ce coefficient est passé de 1,7 ± 0,1 x 10⁻³ m.s⁻¹ à 2,7 ± 0,1 x 10⁻⁴ m.s⁻¹. Ces résultats montrent donc que la perméabilité d'un substrat solide évolue dans l'espace et le temps, montrant la complexité des phénomènes impliqués dans l'écoulement du lixiviat.

4.1.3. La masse volumique

La masse volumique d'un déchet solide évolue au cours du temps : (i) sous l'effet du tassement primaire, lors du chargement du massif de déchets, et (ii) sous l'effet du tassement secondaire, conséquence de la biodégradation de la matière organique (Huet, 2012). Dans le cas d'un procédé à grande échelle (compostage, digestion anaérobie en centre de stockage), la masse volumique d'une couche donnée conditionne la charge exercée sur les couches sous-jacentes, ce qui favorise les

hétérogénéités spatiales, en particulier dans le sens de la profondeur. Ainsi la compaction induit un gradient de masse volumique dans un massif solide, impactant à la fois la porosité de ce solide et sa conductivité hydraulique (Chen & Chynoweth, 1995; Huet et al., 2012).

Il a ainsi été montré par Stoltz et al. (2012) que la teneur en eau maximale de déchets ménagers diminue lorsque la densité augmente. Cela signifie que la fraction des pores disponible à l'écoulement diminue lorsque le degré de compaction augmente. De la même façon, Shewani et al. (2015) ont mis en évidence une diminution de la porosité totale, passant de 0,92 à 0,88 lorsque que le volume initial de l'échantillon de fumier de bovins était réduit de 30% par compaction (augmentation de la masse volumique), diminuant donc le nombre de pores disponibles pour la percolation du lixiviat.

D'autre part, Chen and Chynoweth (1995) ont étudié l'effet de la masse volumique de déchets municipaux sur la conductivité hydraulique. Pour une augmentation de la masse volumique de 160 à 480 kg.m⁻³, la conductivité hydraulique a diminué, passant de 9,6.10⁻² à 4,7.10⁻⁵ cm.s⁻¹. Ces résultats sont attribués à un changement de structure du massif de déchet, se traduisant par une réorganisation de la répartition et de la taille des pores dans le solide.

Au regard de ces différentes études, il apparait que la porosité, la masse volumique (ou compaction) et la conductivité hydraulique d'un solide poreux sont étroitement liés. De ce fait, les caractéristiques de l'écoulement du lixiviat à travers un substrat solide sont très influencées par les paramètres physiques de ce substrat. A grande échelle, seule la compaction du solide peut être contrôlée par les opérateurs. La masse volumique devient par conséquent un paramètre clé pour la gestion du procédé de digestion anaérobie par voie sèche. Pourtant, peu d'études sont aujourd'hui disponibles sur l'effet de ce paramètre sur la percolation du lixiviat à travers des effluents agricoles, en situation réelle. L'acquisition de données supplémentaires serait donc profitable pour la compréhension des phénomènes d'écoulements hydriques en méthanisation par voie sèche, et en particulier pour les effluents agricoles.

4.2. Influence du système d'injection du lixiviat pour les méthaniseurs de type « bateau horizontal »

Les paramètres physiques intrinsèques au substrat à valoriser jouent un rôle primordial sur l'efficacité de distribution du lixiviat en digestion anaérobie. La compaction du substrat permettrait à priori de contrôler partiellement la percolation du lixiviat à travers un substrat donné. L'autre moyen d'assurer une distribution homogène du lixiviat serait le dimensionnement de son système d'injection pour une installation donnée. De façon intuitive, il est aisé de comprendre que pour des digesteurs de type « bateau », un seul point d'injection à une extrémité ou au centre du digesteur ne permet pas une répartition optimale du lixiviat, d'où l'importance du choix du système d'injection à installer. Aucune étude discutant les systèmes d'injection disponibles et optimaux pour le procédé de digestion anaérobie par voie sèche discontinu n'a jusqu'à présent été recensée. Ce manque d'information pousse une fois encore à se tourner vers un procédé semblable et mieux connu : les centres de stockage de déchets ménagers. Dans ce cadre, trois grands types de systèmes ont été identifiés : les tranchées horizontales, les puits verticaux et les banquettes perméables. Dans cette partie, chacun de ces trois systèmes sera présenté puis discuté compte tenu des contraintes spécifiques d'une installation de type « bateau horizontal », ayant pour modèle l'unité de méthanisation de Cholet, encore appelée GAEC du Bois-Joly (Tableau 3, page 53).

4.2.1.1. Les tranchées horizontales

La Figure 8 schématise la configuration d'un centre de stockage de déchets ménagers équipé d'un système d'injection appelé tranchées horizontales. Le lixiviat, récupéré par le fond du casier, est stocké dans une cuve avant d'être réinjecté en surface des déchets via des drains perforés posés en surface ou enterrés dans le massif. Ce système est le plus couramment utilisé (Bareither et al., 2010).

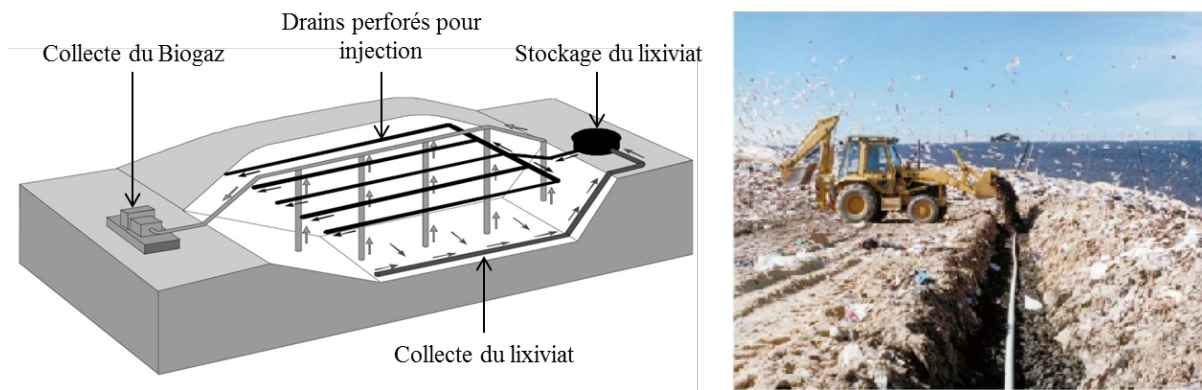


Figure 8 : Schéma d'un centre de stockage de déchets ménagers équipé d'un système d'injection du lixiviat de type tranchées horizontales (Grellier et al., 2003) et photo d'un drain perforé dans une tranchée remplie de pneus broyés (Townsend et al., 2015)

De manière générale, les drains sont fabriqués à partir de tuyaux en PVC ou en PEHD, de diamètres compris entre 0,05 et 0,15 m (Haydar & Khire, 2005), imbriqués dans des tranchées remplies de matériaux grossiers et très perméables (graviers, verre pilé, pneus usagés broyés...) comme le montre la Figure 8 (Grellier et al., 2007; Haydar & Khire, 2005; Reinhart, 1996; Valencia et al., 2009). La section des tranchées peut varier de 0,6 à 1,2 m de large et de 1 à 1,8 m de haut (Maier & Vasuki, 1996; Reinhart & Carson, 1993). Ce système peut être disposé soit à la surface des déchets, soit enterré au sein du massif de déchets. Son principal avantage réside dans la simplicité de mise en œuvre. Au contraire, il présente le désavantage de pouvoir être facilement colmaté de par la finesse des perforations le long des tubes perforés. La taille des perforations n'a pas fait l'objet d'études précises et n'est pas particulièrement décrite dans la littérature. Benson et al. (2007) parlent tout de même de perforations de l'ordre de 12-13 mm de diamètre espacées de 100 à 150 mm.

La configuration des tranchées (nombre et distance entre les tranchées) est un peu plus étudiée (Giri & Reddy, 2015; Haydar & Khire, 2005). Ces auteurs ont modélisé l'écoulement du lixiviat à une dimension selon différentes configurations de drains enterrés. Pour un casier de 100 m de large et 20 m de profondeur, Haydar and Khire (2005) ont montré que des tranchées espacées de 10 m, disposées sur une même couche horizontale, permettent une meilleure distribution de lixiviat qu'un espacement de 15 m. L'effet du nombre de couches équipées de tranchées horizontales n'a pas été étudié. Dans le cas de l'étude de Giri and Reddy (2015), le casier modélisé était long de 175 m et profond de 50 m.

Quatre configurations ont été étudiées comportant 2 ou 3 couches de tranchées réparties en profondeur, et espacées de 15 ou 30 m dans le sens de la largeur. Les résultats de la simulation, après un an de recirculation, sont disponibles en Figure 9. Comme pour l'étude de Haydar and Khire (2005), la distribution la plus rapide et homogène de lixiviat a été obtenue pour des petits écarts entre les tranchées. Cette distribution est encore plus homogène lorsqu'on utilise trois couches de tranchées (HT-C4, Figure 9).

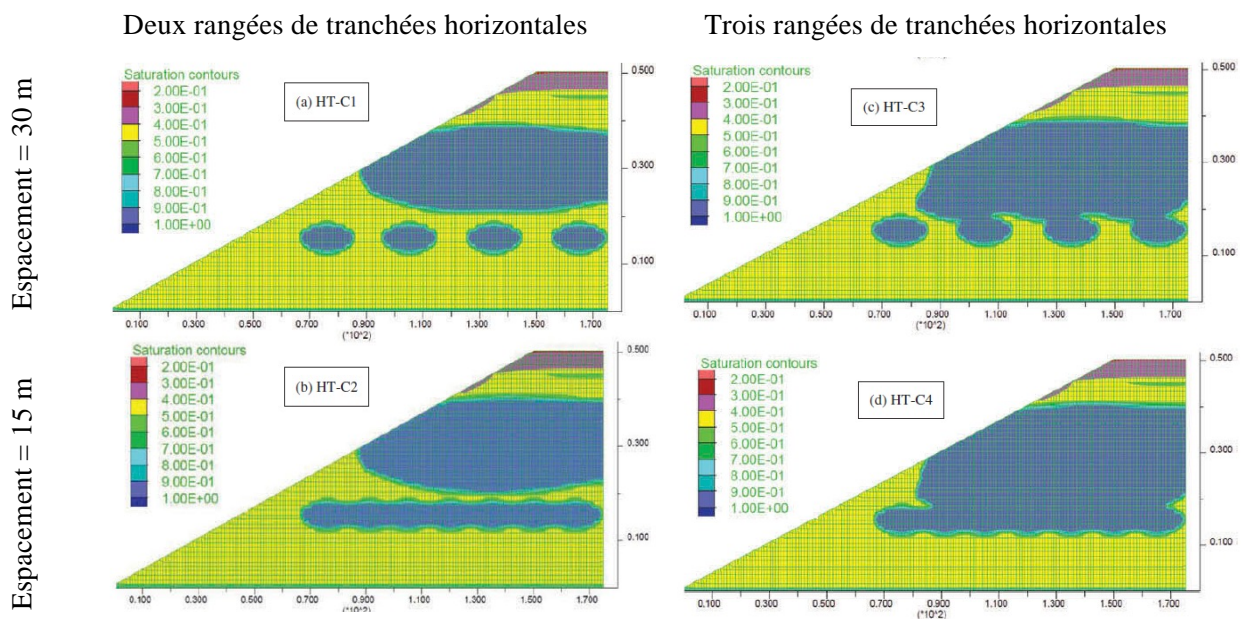


Figure 9 : Exemple de profils de saturation de lixiviat en centre de stockage avec différentes configurations des tranchées horizontales (Giri & Reddy, 2015)

La transposition de ces résultats à l'échelle d'un réacteur de méthanisation n'est pas simple étant donné la différence de dimension entre ces deux procédés. En prenant pour référence l'unité de méthanisation du GAEC du Bois-Joly (Vendée, France), un digesteur mesure 25 m de long, 5 m de large et 2,4 m de profondeur (ADEME et al., 2010) contre 100 m de long et 20 m de profondeur (minimum) pour les centres de stockage modélisés précédemment. Pourtant, si on se réfère strictement à ces résultats de modélisation, il semblerait qu'un seul brin positionné en surface du réacteur de méthanisation suffise à distribuer le lixiviat de façon homogène, à condition que le débit d'injection appliqué soit adapté. D'autre part, les modélisations étant réalisées pour un écoulement à une seule

dimension, la distance entre les perforations et la taille de celles-ci n'ont pas été renseignées, induisant un manque d'information sur le choix de ces paramètres. Le dimensionnement de ce système d'injection, dans le cas d'un réacteur de type « bateau », reste à faire entièrement.

4.2.2. Les puits verticaux

Le deuxième système d'injection utilisé dans les centres de stockage utilise des « puits verticaux » (Figure 10).

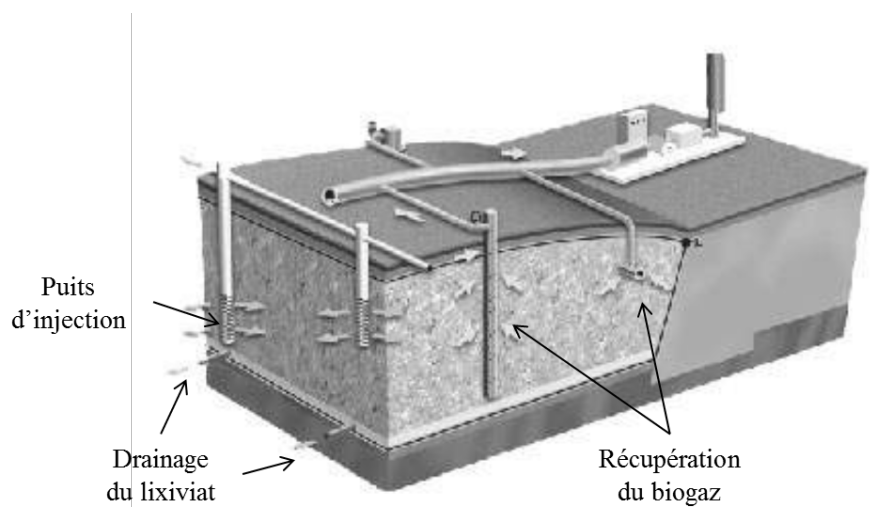


Figure 10 : Représentation d'un centre de stockage de déchets ménagers équipé d'un système d'injection du lixiviat de type puits verticaux (Grellier et al. (2003))

Les puits sont construits avec des buses en béton, de diamètre variant entre 0,6 et 1,20 m (Reinhart, 1996) et sont implantés dans les déchets dans le sens de la profondeur. Des ouvertures latérales permettent l'infiltration du lixiviat à travers le massif de déchets alors que l'extrémité ensevelie est obturée afin d'empêcher des écoulements verticaux de lixiviat (Grellier et al., 2003; Reinhart, 1996). Des matériaux granulaires drainant sont souvent introduits dans les buses afin d'obliger le lixiviat à percoler uniformément le long des puits et éviter la création de chemins préférentiels en sortie (Jain et al., 2014; Khire & Mukherjee, 2007; Reinhart, 1996). Dans un même centre de stockage, plusieurs puits de différentes longueurs sont répartis au cœur des déchets, permettant ainsi une distribution du lixiviat sur différents niveaux horizontaux et verticaux.

Le nombre de puits et leur disposition pour un site donné est fonction d'un grand nombre de paramètres, comme les propriétés physiques des déchets (porosité, conductivité, anisotropie), les dimensions du puits ou la pression d'injection du lixiviat (Jain et al., 2010). Pour donner un ordre d'idée, un centre de stockage d'une surface de 4 ha et d'une profondeur de 20 m, est équipé de 134 puits (6, 12 ou 18 m de profondeur) c'est-à-dire un puit pour un carré de 17 m de côté environ, pour un débit de lixiviat compris entre $5,6 \cdot 10^{-8}$ et $3,6 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (Jain et al., 2014). Dans ce cas, les auteurs ont montré que le lixiviat s'étend horizontalement sur un cercle d'un rayon minimum de 8 m permettant une bonne distribution du lixiviat. Le diamètre du puits en revanche ne semble pas avoir d'effet sur la quantité de déchet mouillée, puisqu'elle dépend surtout de la conductivité hydraulique de ce déchet (Jain et al., 2014; Khire & Mukherjee, 2007).

Dans le cas d'un digesteur anaérobie de type bateau, ce type de système semble difficile à mettre en œuvre. La structure en béton des puits implique une fixation au sol gênant le chargement et le déchargement des digesteurs qui, dans le cas d'une unité à la ferme, se fait à l'aide d'un chargeur. L'étroitesse du digesteur (5 m) ne permettrait pas le passage de cet engin autour du puits.

4.2.3. Les banquettes perméables

Les banquettes perméables consistent en une superposition de matériaux recyclés perméables au liquide et recouverts, au-dessus et en dessous, d'un géotextile drainant, posé directement à la surface du substrat solide à valoriser (Figure 11). L'épaisseur de la couche perméable dépend du matériau utilisé (pneus broyés, gravier, verre pilé, etc.), des spécificités dimensionnelles du site et des paramètres de recirculation (Haydar & Khire, 2007). Elle varie de 15 à 45 cm (Haydar & Khire, 2007). Le géotextile permet de séparer la couche de matériaux drainants du déchet poreux et d'éviter ainsi des problèmes de colmatage de la banquette perméable (Townsend et al., 2015). Un tuyau perforé, intégré à la banquette, distribue le lixiviat à travers elle selon un chemin préférentiel défini tout en se dispersant progressivement et de façon homogène dans le matériau perméable (Reddy et al., 2014; Townsend et al., 2015). Un matériau possédant une conductivité hydraulique élevée facilitera le passage et la distribution horizontale du lixiviat (Reddy et al., 2014). La gravité permettra ensuite au

lixiviats de s'écouler verticalement à travers le déchet à une distance relativement élevée du point d'injection initial.



Figure 11 : Photos de banquettes perméables installées en surface de centres de stockage composées de verre pilé (à gauche) et de pneus broyés (à droite)

Etant donné leur facilité de mise en place par rapport aux tranchées horizontales et aux puits verticaux, les dimensions de la banquette peuvent être adaptées à chaque type de casier (Townsend et al., 2015). En cas de besoin, plusieurs tuyaux peuvent être intégrés à l'intérieur de la banquette (Haydar & Khire, 2007). Le principal avantage de ce système est son coût relativement faible par rapport aux tranchées horizontales et aux puits verticaux avec une meilleure efficacité de mouillage des déchets (Haydar & Khire, 2007).

Malgré les meilleures performances de ce système par rapport aux tranchées horizontales, il ne semble pourtant pas adapté à la digestion anaérobie par voie sèche. En effet, dans le cas d'une installation utilisant quatre digesteurs en parallèle, le faible temps de séjour des solides en digestion sèche (environ 2 mois) implique que la banquette doit être minutieusement retirée de la surface du digestat toutes les deux semaines environ, avant épandage. Cette opération ne pourrait pas s'effectuer de façon automatisée pour des raisons techniques (impossibilité de circuler sur la surface du massif), ce qui rend cette étape chronophage et incompatible avec une activité agricole à plein temps.

4.3. Conclusion intermédiaire

Cette partie a montré qu'une distribution homogène de lixiviat à travers un massif solide dépendait d'un grand nombre de paramètres intrinsèques au substrat ou dépendant de la configuration du procédé. La porosité, la conductivité hydraulique et la masse volumique du solide jouent un rôle dans cette distribution. D'un point de vue technique, le système d'injection de type les tranchées horizontales semble le plus adapté à des digesteurs de type « bateau horizontal ».

5. Objectifs de la thèse et stratégie développée

Au regard de la volonté de l'état Français de développer la digestion anaérobie au cours des prochaines années, et compte tenu de la spécificité du gisement disponible sur notre territoire (provenant majoritairement de l'agriculture), la méthanisation agricole par voie sèche a un fort potentiel de développement. Parmi les technologies existantes, le procédé batch séquencé avec recirculation du lixiviat semble le mieux adapté aux effluents agricoles.

De plus en plus de travaux sont disponibles et permettent d'appréhender les différents aspects de ce procédé d'un point de vue microscopique jusqu'à l'échelle macroscopique. Cependant, la grande majorité des recherches publiées sur le procédé de digestion anaérobie par voie sèche ont été effectuées sur des déchets ménagers, induisant un manque de connaissances quant au comportement des substrats agricoles vis-à-vis de ce procédé.

La synthèse bibliographique effectuée lors de ce travail de thèse a permis de mettre en évidence plusieurs pistes de recherches qui permettraient d'étoffer et d'affiner nos connaissances sur le sujet. Dans un premier temps, il a été clairement montré que la recirculation du lixiviat permet d'améliorer les rendements de bioconversion en méthane des substrats solides. Les hypothèses formulées pour expliquer ces bénéfices restent cependant confuses car une multitude de paramètres concernant les aspects biotiques et abiotiques du lixiviat sont à prendre en compte. Un complément

d'étude serait donc utile afin de mieux comprendre le rôle du lixiviat dans le procédé de méthanisation par voie sèche. Dans un deuxième temps, la synthèse bibliographique a montré que le mode de recirculation du lixiviat est un paramètre clé qui permettrait de contrôler les cinétiques de production de méthane et dont l'optimisation n'a pas été clairement effectuée. Enfin, l'optimisation de ce procédé passe inévitablement par la caractérisation des écoulements hydriques du lixiviat à travers le solide pour s'assurer de la distribution homogène du lixiviat dans les substrats agricoles.

Ces travaux de thèse se sont donc appuyés sur ces observations pour tenter de compléter les connaissances de ce procédé. Le manuscrit qui en découle est structuré en trois parties distinctes comportant notamment les articles scientifiques soumis ou publiés au cours de ces trois années, ainsi qu'une conclusion générale.

Le Chapitre 2 présente une analyse des paramètres biotiques et abiotiques du lixiviat qui ont un effet sur les cinétiques de production de méthane de fumiers de bovins. Dans ce cadre, un pilote de méthanisation par voie sèche a été construit. Quatre lixiviats aux propriétés physico-chimiques et biologiques différentes ont été utilisés sur un même échantillon de fumier. Les cinétiques de production de méthane ont été enregistrées et discutées afin de mettre en évidence les liens entre les paramètres biotiques et abiotiques du lixiviat et leurs effets sur les profils de production de méthane. Ces travaux font l'objet d'un article publié dans la revue *Bioresource Technology*.

Le Chapitre 3 s'intéresse au mode de recirculation du lixiviat et de son effet sur les cinétiques de production de méthane. Dans un premier temps, plusieurs effluents agricoles ont été méthanisés dans le but de déterminer un profil cinétique type pour chaque effluent et pour leurs mélanges. Puis, un plan d'expérience dit de « screening » a été réalisé pour identifier les paramètres ayant ou non un effet sur les cinétiques de production de méthane. Enfin un plan d'expérience dit « plan de surface de réponse » a permis de lier la forme des cinétiques à chacun des différents paramètres de recirculation. Cette dernière étape a fait l'objet d'une soumission à la revue *Bioresource Technology*, intégrée à ce chapitre en anglais.

Le Chapitre 4 porte sur la caractérisation de l'écoulement du lixiviat à travers différents effluents agricoles. Une partie « matériels et méthodes » vient tout d'abord introduire cette partie. Les effets de la compaction et de la teneur en eau des effluents agricoles sur leurs conductivités

hydrauliques et électriques ont été étudiés au laboratoire. Puis, une expérimentation à grande échelle a permis d'évaluer l'efficacité d'un système d'injection de type « tranchées horizontales » à distribuer de façon homogène le lixiviat à travers un mélange d'effluents agricoles. Ce système d'injection a ensuite fait l'objet d'un redimensionnement théorique afin d'optimiser la distribution du lixiviat. Une partie des résultats a été soumise à la revue Waste Management et est présentée en anglais.

Enfin, dans une dernière partie, les différents résultats obtenus sont synthétisés et mis en perspectives.

Références

- Abbassi-Guendouz, A., Brockmann, D., Trably, E., Dumas, C., Delgenès, J.P., Steyer, J.P., Escudié, R. 2012. Total solids content drives high solid anaerobic digestion via mass transfer limitation. *Bioresource Technology*, **111**, 55-61.
- ADEME. 2013a. Bilan National des projets biogaz au 1er juillet 2013.
- ADEME. 2013b. Estimation des gisements potentiels de substrats utilisables en méthanisation.
- ADEME. 2015. Fiche Technique - Méthanisation.
- ADEME, Biomasse-Normandie, APESA. 2010. Suivi expérimental de l'installation de méthanisation du GAEC du Bois-Joly.
- Amani, T., Nosrati, M., Sreerkrishnan, T.R. 2011. A precise experimental study on key dissimilarities between mesophilic and thermophilic anaerobic digestion of waste activated sludge. *International Journal of Environmental Research*, **5**(2), 333-342.
- André, L., Durante, M., Pauss, A., Lespinard, O., Ribeiro, T., Lamy, E. 2015. Quantifying physical structure changes and non-uniform water flow in cattle manure during dry anaerobic digestion process at lab scale: Implication for biogas production. *Bioresource Technology*, **192**, 660-669.
- Angelidaki, I., Ellegaard, L., Ahring, B.K. 1993. A mathematical model for dynamic simulation of anaerobic digestion of complex substrates: Focusing on ammonia inhibition. *Biotechnology and Bioengineering*, **42**(2), 159-166.
- Barakat, A., de Vries, H., Rouau, X. 2013. Dry fractionation process as an important step in current and future lignocellulose biorefineries: A review. *Bioresource Technology*, **134**, 362-373.
- Bareither, C., Benson, C., Barlaz, M., Edil, T., Tolaymat, T. 2010. Performance of North American Bioreactor Landfills. I: Leachate Hydrology and Waste Settlement. *Journal of Environmental Engineering*, **136**(8), 824-838.
- Benbelkacem, H., Bayard, R., Abdelhay, A., Zhang, Y., Gourdon, R. 2010. Effect of leachate injection modes on municipal solid waste degradation in anaerobic bioreactor. *Bioresource Technology*, **101**(14), 5206-5212.
- Benson, C.H., Barlaz, M.A., Lane, D.T., Rawe, J.M. 2007. Practice review of five bioreactor/recirculation landfills. *Waste Management*, **27**(1), 13-29.
- Bernet, N., Buffière, P. 2008. Caractérisation de la mise en oeuvre de la méthanisation. in: *La Méthanisation*, (Ed.) Lavoisier, pp. 87-113.
- Bleiker, D.E., Farquhar, G., McBean, E. 1995. Landfill settlement and the impact on site capacity and refuse hydraulic conductivity. *Waste Management and Research*, **13**(5), 533-554.
- Blight, G.E., Ball, J.M., Blight, J.J. 1992. Moisture and suction in sanitary landfills in semiarid areas. *Journal of Environmental Engineering (United States)*, **118**(6), 865-877.
- Bollon, J., Benbelkacem, H., Gourdon, R., Buffière, P. 2013. Measurement of diffusion coefficients in dry anaerobic digestion media. *Chemical Engineering Science*, **89**, 115-119.

- Bouallagui, H., Haouari, O., Touhami, Y., Ben Cheikh, R., Marouani, L., Hamdi, M. 2004. Effect of temperature on the performance of an anaerobic tubular reactor treating fruit and vegetable waste. *Process Biochemistry*, **39**(12), 2143-2148.
- Browne, J.D., Allen, E., Murphy, J.D. 2013. Improving hydrolysis of food waste in a leach bed reactor. *Waste Management*, **33**(11), 2470-2477.
- Budiyono, Widiassa, I.N., Johari, S., Sunarso. 2009. Influence of inoculum content on performance of: Anaerobic reactors for treating cattle manure: Using rumen fluid inoculum. *International Journal of Engineering and Technology*, **1**(3), 109-116.
- Callaghan, F.J., Wase, D.A.J., Thayanithy, K., Forster, C.F. 1999. Co-digestion of waste organic solids: batch studies. *Bioresource Technology*, **67**(2), 117-122.
- Cecchi, F., Pavan, P., Musacco, A., Alvarez, J.M., Vallini, G. 1993. Digesting The Organic Fraction Of Municipal Solid Waste: Moving From Mesophilic (37°C) To Thermophilic (55°C) Conditions. *Waste Management and Research*, **11**(5), 403-414.
- Chan, G.Y.S., Chu, L.M., Wong, M.H. 2002. Effects of leachate recirculation on biogas production from landfill co-disposal of municipal solid waste, sewage sludge and marine sediment. *Environmental Pollution*, **118**(3), 393-399.
- Charles, W., Walker, L., Cord-Ruwisch, R. 2009. Effect of pre-aeration and inoculum on the start-up of batch thermophilic anaerobic digestion of municipal solid waste. *Bioresource Technology*, **100**(8), 2329-2335.
- Chen, T.-h., Chynoweth, D.P. 1995. Hydraulic conductivity of compacted municipal solid waste. *Bioresource Technology*, **51**(2-3), 205-212.
- Chen, W.H., Han, S.K., Sung, S. 2003. Sodium inhibition of thermophilic methanogens. *Journal of Environmental Engineering*, **129**(6), 506-512.
- Chen, Y., Cheng, J.J., Creamer, K.S. 2008. Inhibition of anaerobic digestion process: A review. *Bioresource Technology*, **99**(10), 4044-4064.
- Chugh, S., Chynoweth, D.P., Clarke, W., Pullammanappallil, P., Rudolph, V. 1999. Degradation of unsorted municipal solid waste by a leach-bed process. *Bioresource Technology*, **69**(2), 103-115.
- Chugh, S., Clarke, W., Pullammanappallil, P., Rudolph, V. 1998. Effect of recirculated leachate volume on MSW degradation. *Waste Management and Research*, **16**(6), 564-573.
- Cysneiros, D., Banks, C.J., Heaven, S., Karatzas, K.-A.G. 2012. The effect of pH control and 'hydraulic flush' on hydrolysis and Volatile Fatty Acids (VFA) production and profile in anaerobic leach bed reactors digesting a high solids content substrate. *Bioresource Technology*, **123**, 263-271.
- De Baere, L. 2000. Anaerobic digestion of solid waste: State-of-the-art. in: *Water Science and Technology*, Vol. 41, pp. 283-290.
- de Baere, L.A., Devocht, M., Van Assche, P., Verstraete, W. 1984. Influence of high NaCl and NH₄Cl salt levels on methanogenic associations. *Water Research*, **18**(5), 543-548.
- Demirel, B., Scherer, P. 2008. The roles of acetotrophic and hydrogenotrophic methanogens during anaerobic conversion of biomass to methane: A review. *Reviews in Environmental Science and Biotechnology*, **7**(2), 173-190.

- El-Mashad, H.M., van Loon, W.K.P., Zeeman, G., Bot, G.P.A., Lettinga, G. 2006. Effect of Inoculum Addition Modes and Leachate Recirculation on Anaerobic Digestion of Solid Cattle Manure in an Accumulation System. *Biosystems Engineering*, **95**(2), 245-254.
- Fernández, B., Porrier, P., Chamy, R. 2001. Effect of inoculum-substrate ratio on the start-up of solid waste anaerobic digesters. in: *Water Science and Technology*, Vol. 44, pp. 103-108.
- Francois, V., Feuillade, G., Matejka, G., Lagier, T., Skhiri, N. 2007. Leachate recirculation effects on waste degradation: Study on columns. *Waste Management*, **27**(9), 1259-1272.
- Fruteau de Laclos, H., Desbois, S., Saint-Joly, C. 1997. Anaerobic digestion of municipal solid organic waste: Valorga full-scale plant in Tilburg, The Netherlands. *Water Science and Technology*, **36**(6-7), 457-462.
- Garcia, J.-L., Patel, B.K.C., Ollivier, B. 2000. Taxonomic, Phylogenetic, and Ecological Diversity of Methanogenic Archaea. *Anaerobe*, **6**(4), 205-226.
- Giri, R.K., Reddy, K.R. 2015. Slope stability of bioreactor landfills during leachate injection: Effects of geometric configurations of horizontal trench systems. *Geomechanics and Geoengineering*, **10**(2), 126-138.
- Gljzen, H.J. 2002. Anaerobic digestion for sustainable development: a natural approach. *Water Science and Technology*, **45**(10), 321-328.
- Godon, J.-J. 2008. Aspects biochimiques et microbiologiques de la méthanisation. in: *La Méthanisation*, (Ed.) Lavoisier, pp. 62-85.
- Grellier, S., Guérin, R., Munoz, M.-L., Robain, H. 2003. Etude de la recirculation de lixiviats dans une décharge par la méthode des panneaux électriques. in: *Geofcan*. Paris.
- Grellier, S., Reddy, K.R., Gangathulasi, J., Adib, R., Peters, C.C. 2007. Correlation between electrical resistivity and moisture content of municipal solid waste in Bioreactor landfill. *Geotechnical Special Publication*(163).
- Gujer, W., Zehnder, A.J.B. 1983. Conversion processes in anaerobic digestion. *Water Science and Technology*, **15**(8-9), 127-167.
- Han, M., Zhu, J., Zhang, G. 2014. Effects of different inoculums on solid state anaerobic digestion of corn stover. *Huanjing Kexue Xuebao/Acta Scientiae Circumstantiae*, **34**(10), 2586-2591.
- Hanaki, K., Hirunmasuwan, S., Matsuo, T. 1994. Protection of methanogenic bacteria from low pH and toxic materials by immobilization using polyvinyl alcohol. *Water Research*, **28**(4), 877-885.
- Harada, H., Uemura, S., Momonoi, K. 1994. Interaction between sulfate-reducing bacteria and methane-producing bacteria in UASB reactors fed with low strength wastes containing different levels of sulfate. *Water Research*, **28**(2), 355-367.
- Haydar, M., Khire, M. 2005. Leachate Recirculation Using Horizontal Trenches in Bioreactor Landfills. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, **131**(7), 837-847.
- Haydar, M., Khire, M. 2007. Leachate Recirculation Using Permeable Blankets in Engineered Landfills. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, **133**(4), 360-371.
- Hills, D.J. 1979. Effects of carbon: Nitrogen ratio on anaerobic digestion of dairy manure. *Agricultural Wastes*, **1**(4), 267-278.
- Holtz, R.D., Kovacs, W.D. 1991. *Introduction à la géotechnique*. Montréal : Éditions de l'École polytechnique de Montréal, 2005, 808p.

- Hu, Z.H., Yu, H.Q. 2006. Anaerobic digestion of cattail by rumen cultures. *Waste Management*, **26**(11), 1222-1228.
- Huet, J. 2012. Caractérisation physique des déchets organiques solide : étude des hétérogénéités spatiales et de l'évolution temporelle de la structure physique en compostage, Thèse préparée à Irstea Rennes.
- Huet, J., Druilhe, C., Trémier, A., Benoist, J.C., Debenest, G. 2012. The impact of compaction, moisture content, particle size and type of bulking agent on initial physical properties of sludge-bulking agent mixtures before composting. *Bioresource Technology*, **114**, 428-436.
- Izumi, K., Okishio, Y.-k., Nagao, N., Niwa, C., Yamamoto, S., Toda, T. 2010. Effects of particle size on anaerobic digestion of food waste. *International Biodeterioration & Biodegradation*, **64**(7), 601-608.
- Jackson-Moss, C.A., Duncan, J.R., Cooper, D.R. 1989. The effect of calcium on anaerobic digestion. *Biotechnology Letters*, **11**(3), 219-224.
- Jain, P., Ko, J.H., Kumar, D., Powell, J., Kim, H., Maldonado, L., Townsend, T., Reinhart, D.R. 2014. Case study of landfill leachate recirculation using small-diameter vertical wells. *Waste Management*, **34**(11), 2312-2320.
- Jain, P., Townsend, T.G., Tolaymat, T.M. 2010. Steady-state design of vertical wells for liquids addition at bioreactor landfills. *Waste Management*, **30**(11), 2022-2029.
- Jha, A.K., Li, J.Z., Nies, L., Zhang, L.G. 2011. Research advances in dry anaerobic digestion process of solid organic wastes. *African Journal of Biotechnology*, **10**(65), 14242-14253.
- Jiang, J., Yang, G., Deng, Z., Huang, Y., Huang, Z., Feng, X., Zhou, S., Zhang, C. 2007. Pilot-scale experiment on anaerobic bioreactor landfills in China. *Waste Management*, **27**(7), 893-901.
- Juanga, J.P., Visvanathan, C., Tränkler, J. 2007. Optimization of anaerobic digestion of municipal solid waste in combined process and sequential staging. *Waste Management and Research*, **25**(1), 30-38.
- Kalyuzhnyi, S., Veeken, A., Hamelers, B. 2000. Two-particle model of anaerobic solid state fermentation. in: *Water Science and Technology*, Vol. 41, pp. 43-50.
- Kayhanian, M. 1994. Performance of a high-solids anaerobic digestion process under various ammonia concentrations. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, **59**(4), 349-352.
- Khire, M.V., Mukherjee, M. 2007. Leachate injection using vertical wells in bioreactor landfills. *Waste Management*, **27**(9), 1233-1247.
- Kivaisi, A.K., Gijzen, H.J., Op den Camp, H.J.M., Vogels, G.D. 1992. Conversion of cereal residues into biogas in a rumen-derived process. *World Journal of Microbiology & Biotechnology*, **8**(4), 428-433.
- Klink, R.E., Ham, R.K. 1982. Effects of moisture movement on methane production in solid waste landfill samples. *Resources and Conservation*, **8**(1), 29-41.
- Komilis, D.P., Ham, R.K., Stegmann, R. 1999. The effect of landfill design and operation practices on waste degradation behavior: A review. *Waste Management and Research*, **17**(1), 20-26.
- Korazbekova, K.U., Bakhov, Z.K. 2014. Performance of leach-bed reactor with immobilization of microorganisms in terms of methane production kinetics. *Journal of Biological Sciences*, **14**(4), 258-266.
- Korfiatis, G.P., Demetrapoulos, A.C., Bourodimos, E.L., Nawy, E.G. 1984. Moisture transport in a solid waste column. *Journal of Environmental Engineering (United States)*, **110**(4), 780-796.

- Kothari, R., Pandey, A.K., Kumar, S., Tyagi, V.V., Tyagi, S.K. 2014. Different aspects of dry anaerobic digestion for bio-energy: An overview. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, **39**, 174-195.
- Kugelman, I.J., McCarty, P.L. 1965. Cation Toxicity and Stimulation in Anaerobic Waste Treatment. *Journal (Water Pollution Control Federation)*, **37**(1), 97-116.
- Kulkarni, H., Reddy, K. 2012. Moisture Distribution in Bioreactor Landfills: A Review. *Indian Geotechnical Journal*, **42**(3), 125-149.
- Kusch, S., Oechsner, H., Jungbluth, T. 2012. Effect of various leachate recirculation strategies on batch anaerobic digestion of solid substrates. *International Journal of Environment and Waste Management*, **9**(1-2), 69-88.
- Lanini, S. 1998. Analyse et modélisation des transferts de masse et de chaleur au sein des décharges d'ordures ménagères, Vol. PhD, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Lay, J.J., Li, Y.Y., Noike, T., Endo, J., Ishimoto, S. 1997. Analysis of environmental factors affecting methane production from high-solids organic waste. *Water Science and Technology*, **36**(6-7), 493-500.
- Leckie, J.O., Pacey, J.G., Halvadakis, C. 1979. Landfill management with moisture control. *J. ENVIRON. ENG. DIV. AM. SOC. CIV. ENG.*, **105**(2 EE2), 337-355.
- Li, Y.-F., Shi, J., Nelson, M.C., Chen, P.-H., Graf, J., Li, Y., Yu, Z. 2016. Impact of different ratios of feedstock to liquid anaerobic digestion effluent on the performance and microbiome of solid-state anaerobic digesters digesting corn stover. *Bioresource Technology*, **200**, 744-752.
- Maier, T., Vasuki, N. 1996. Expected benefits of a full-scale bioreactor landfill. *Proc., Wastecon 1996*, 179-185.
- Martin, D.J. 1999. Mass transfer limitations in solid-state digestion. *Biotechnology Letters*, **21**(9), 809-814.
- Martin, D.J. 2001. The Site of Reaction in Solid-State Digestion: A New Hypothesis. *Process Safety and Environmental Protection*, **79**(1), 29-37.
- Mata-Alvarez, J., Macé, S., Llabrés, P. 2000. Anaerobic digestion of organic solid wastes. An overview of research achievements and perspectives. *Bioresource Technology*, **74**(1), 3-16.
- McCarty, P.L., McKinney, R.E. 1961. Salt Toxicity in Anaerobic Digestion. *Journal (Water Pollution Control Federation)*, **33**(4), 399-415.
- McMahon, K.D., Zheng, D., Stams, A.J.M., Mackie, R.I., Raskin, L. 2004. Microbial population dynamics during start-up and overload conditions of anaerobic digesters treating municipal solid waste and sewage sludge. *Biotechnology and Bioengineering*, **87**(7), 823-834.
- Moletta, R., Verstraete, W. 2008. La Méthanisation dans la problématique énergétique environnementale. in: *La méthanisation*, (Ed.) Lavoisier, pp. 3-8.
- Molinuevo-Salces, B., García-González, M.C., González-Fernández, C., Cuetos, M.J., Morán, A., Gómez, X. 2010. Anaerobic co-digestion of livestock wastes with vegetable processing wastes: A statistical analysis. *Bioresource Technology*, **101**(24), 9479-9485.
- Motte, J.C., Escudí, R., Bernet, N., Delgenes, J.P., Steyer, J.P., Dumas, C. 2013. Dynamic effect of total solid content, low substrate/inoculum ratio and particle size on solid-state anaerobic digestion. *Bioresource Technology*, **144**, 141-148.
- Murray, E.J. 1995. Prediction of permeability of granular materials. *Unbound Aggregates in Road Construction*, Ed. Dawson, A.R. and Jones, R.H., University of Nottingham, UK, pp 371-376.

- Murto, M., Björnsson, L., Mattiasson, B. 2004. Impact of food industrial waste on anaerobic co-digestion of sewage sludge and pig manure. *Journal of Environmental Management*, **70**(2), 101-107.
- Myint, M.T., Nirmalakhandan, N. 2009. Enhancing anaerobic hydrolysis of cattle manure in leachbed reactors. *Bioresource Technology*, **100**(4), 1695-1699.
- Nie, Y.Q., Liu, H., Du, G.C., Chen, J. 2007. Acetate production by acidification-homoacetogenesis two-phase coupling process: Effect of initial pH. *Shengwu Gongcheng Xuebao/Chinese Journal of Biotechnology*, **23**(4), 686-691.
- Olivier, F., Gourc, J.-P. 2007. Hydro-mechanical behavior of Municipal Solid Waste subject to leachate recirculation in a large-scale compression reactor cell. *Waste Management*, **27**(1), 44-58.
- Oweis, I.S., Khera, R.P. 1990. *Geotechnology of waste management*. Butterworths, London (UK).
- Palmowski, L.M., Müller, J.A. 2000. Influence of the size reduction of organic waste on their anaerobic digestion. in: *Water Science and Technology*, Vol. 41, pp. 155-162.
- Parkin, G.F., Lynch, N.A., Kuo, W.-C., Van Keuren, E.L., Bhattacharya, S.K. 1990. Interaction between Sulfate Reducers and Methanogens Fed Acetate and Propionate. *Research Journal of the Water Pollution Control Federation*, **62**(6), 780-788.
- Pavlostathis, S.G., Giraldo-Gomez, E. 1991. Kinetics of anaerobic treatment. *Water Science and Technology*, **24**(8), 35-59.
- Pohland, F.G., Kang, S.J. 1975. Sanitary landfill stabilization with leachate recycle and residual treatment. *AIChE Symposium Series*(145).
- Pommier, S., Chenu, D., Quintard, M., Lefebvre, X. 2007. A logistic model for the prediction of the influence of water on the solid waste methanization in landfills. *Biotechnology and Bioengineering*, **97**(3), 473-482.
- Pommier, S., Llamas, A.M., Lefebvre, X. 2010. Analysis of the outcome of shredding pretreatment on the anaerobic biodegradability of paper and cardboard materials. *Bioresource Technology*, **101**(2), 463-468.
- Procházka, J., Dolejš, P., MácA, J., Dohányos, M. 2012. Stability and inhibition of anaerobic processes caused by insufficiency or excess of ammonia nitrogen. *Applied Microbiology and Biotechnology*, **93**(1), 439-447.
- Reddy, K.R., Giri, R.K., Kulkarni, H.S. 2014. Two-Phase Modeling of Leachate Recirculation Using Drainage Blankets in Bioreactor Landfills. *Environmental Modeling & Assessment*, **20**(5), 475-490.
- Reinhart, D., Carson, D. 1993. Experiences with full-scale application of landfill bioreactor technology. *Thirty-First Annual Solid Waste Exposition of the Solid Waste Association of North America*.
- Reinhart, D.R. 1996. Full-scale experiences with leachate recirculating landfills: Case studies. *Waste Management and Research*, **14**(4), 347-365.
- Reinhart, D.R., Al-Yousfi, A.B. 1996. The impact of leachate recirculation on municipal solid waste landfill operating characteristics. *Waste Management and Research*, **14**(4), 337-346.
- Romano, R.T., Zhang, R. 2008. Co-digestion of onion juice and wastewater sludge using an anaerobic mixed biofilm reactor. *Bioresource Technology*, **99**(3), 631-637.
- Šan, I., Onay, T.T. 2001. Impact of various leachate recirculation regimes on municipal solid waste degradation. *Journal of Hazardous Materials*, **87**(1-3), 259-271.

- Sanphoti, N., Towprayoon, S., Chaiprasert, P., Nopharatana, A. 2006. The effects of leachate recirculation with supplemental water addition on methane production and waste decomposition in a simulated tropical landfill. *Journal of Environmental Management*, **81**(1), 27-35.
- Schmidt, J.E., Ahring, B.K. 1993. Effects of magnesium on thermophilic acetate-degrading granules in upflow anaerobic sludge blanket (UASB) reactors. *Enzyme and Microbial Technology*, **15**(4), 304-310.
- Sharma, S.K., Mishra, I.M., Sharma, M.P., Saini, J.S. 1988. Effect of particle size on biogas generation from biomass residues. *Biomass*, **17**(4), 251-263.
- Shewani, A., Horgue, P., Pommier, S., Debenest, G., Lefebvre, X., Gandon, E., Paul, E. 2015. Assessment of percolation through a solid leach bed in dry batch anaerobic digestion processes. *Bioresource Technology*, **178**, 209-216.
- Shi, J., Wang, Z., Stiverson, J.A., Yu, Z., Li, Y. 2013. Reactor performance and microbial community dynamics during solid-state anaerobic digestion of corn stover at mesophilic and thermophilic conditions. *Bioresource Technology*, **136**(0), 574-581.
- Shi, J., Xu, F., Wang, Z., Stiverson, J.A., Yu, Z., Li, Y. 2014. Effects of microbial and non-microbial factors of liquid anaerobic digestion effluent as inoculum on solid-state anaerobic digestion of corn stover. *Bioresource Technology*, **157**, 188-196.
- Shimizu, T., Kudo, K., Nasu, Y. 1993. Anaerobic waste-activated sludge digestion - A bioconversion mechanism and kinetic model. *Biotechnology and Bioengineering*, **41**(11), 1082-1091.
- Silva, G.G.D., Rouau, S.G.X. 2011. Successive centrifugal grinding and sieving of wheat straw. *Powder Technology*, **208**(2), 266-270.
- Six, W., De Baere, L. 1992. Dry anaerobic conversion of municipal solid waste by means of the Dranco process. *Water Science and Technology*, **25**(7), 295-300.
- Sponza, D.T., Ağdağ, O.N. 2004. Impact of leachate recirculation and recirculation volume on stabilization of municipal solid wastes in simulated anaerobic bioreactors. *Process Biochemistry*, **39**(12), 2157-2165.
- Stegmann, R. 1983. New aspects on enhancing biological processes in sanitary landfill. *Waste Management & Research*, **1**(3), 201-211.
- Stoltz, G., Tinet, A.J., Staub, M.J., Oxarango, L., Gourc, J.P. 2012. Moisture retention properties of municipal solid waste in relation to compression. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, **138**(4), 535-543.
- Townsend, T.G., Powell, J., Jain, P., Xu, Q., Tolaymat, T., Reinhart, D.R. 2015. *Sustainable practices for landfill design and operation*. Springer-Verlag New York.
- Valencia, R., van der Zon, W., Woelders, H., Lubberding, H.J., Gijzen, H.J. 2009. The effect of hydraulic conditions on waste stabilisation in bioreactor landfill simulators. *Bioresource Technology*, **100**(5), 1754-1761.
- Vandevivere, P., de Baere, L., Varstraete, W. 2002. Types of anaerobic digester for solid wastes. in: *Biomethanization of the Organic Fraction of Municipal Solid Waste*, (Ed.) Mata-Alvarez, IWA Publishing Company, pp. 111-140.
- Vavilin, V.A., Shchelkanov, M.Y., Rytov, S.V. 2002. Effect of mass transfer on concentration wave propagation during anaerobic digestion of solid waste. *Water Research*, **36**(9), 2405-2409.

- Veeken, A.H.M., Hamelers, B.V.M. 2000. Effect of substrate-seed mixing and leachate recirculation on solid state digestion of biowaste. in: *Water Science and Technology*, Vol. 41, pp. 255-262.
- Wang, X., Lu, X., Li, F., Yang, G. 2014. Effects of temperature and Carbon-Nitrogen (C/N) ratio on the performance of anaerobic co-digestion of dairy manure, chicken manure and rice straw: Focusing on ammonia inhibition. *PLoS ONE*, **9**(5).
- Ward, A.J., Hobbs, P.J., Holliman, P.J., Jones, D.L. 2008. Optimisation of the anaerobic digestion of agricultural resources. *Bioresource Technology*, **99**(17), 7928-7940.
- Weiland, P. 2010. Biogas production: Current state and perspectives. *Applied Microbiology and Biotechnology*, **85**(4), 849-860.
- Weiland, P. 2006. Biomass digestion in agriculture: A successful pathway for the energy production and waste treatment in Germany. *Engineering in Life Sciences*, **6**(3), 302-309.
- Wellinger, A. 1999. Process design of agricultural digesters. Nova Energie GmgH.
- Wellinger, A., Wyder, K., Metzler, A.E. 1993. Kompogas - A new system for the anaerobic treatment of source separated waste. *Water Science and Technology*, **27**(2), 153-158.
- White, J.K., Beaven, R.P., Powrie, W., Knox, K. 2011. Leachate recirculation in a landfill: Some insights obtained from the development of a simple 1-D model. *Waste Management*, **31**(6), 1210-1221.
- Wittmann, C., Zeng, A.P., Deckwer, W.D. 1995. Growth inhibition by ammonia and use of a pH-controlled feeding strategy for the effective cultivation of *Mycobacterium chlorophenicum*. *Applied Microbiology and Biotechnology*, **44**(3-4), 519-525.
- Xu, F., Shi, J., Lv, W., Yu, Z., Li, Y. 2013. Comparison of different liquid anaerobic digestion effluents as inocula and nitrogen sources for solid-state batch anaerobic digestion of corn stover. *Waste Management*, **33**(1), 26-32.
- Xu, F., Wang, F., Lin, L., Li, Y. 2016. Comparison of digestate from solid anaerobic digesters and dewatered effluent from liquid anaerobic digesters as inocula for solid state anaerobic digestion of yard trimmings. *Bioresource Technology*, **200**, 753-760.
- Xu, Q., Tian, Y., Wang, S., Ko, J.H. 2015. A comparative study of leachate quality and biogas generation in simulated anaerobic and hybrid bioreactors. *Waste Management*, **41**, 94-100.
- Xu, S., Selvam, A., Karthikeyan, O.P., Wong, J.W.C. 2014a. Responses of microbial community and acidogenic intermediates to different water regimes in a hybrid solid anaerobic digestion system treating food waste. *Bioresource Technology*, **168**(49-58).
- Xu, S.Y., Karthikeyan, O.P., Selvam, A., Wong, J.W.C. 2014b. Microbial community distribution and extracellular enzyme activities in leach bed reactor treating food waste: Effect of different leachate recirculation practices. *Bioresource Technology*, **168**, 41-48.
- Yang, L., Xu, F., Ge, X., Li, Y. 2015. Challenges and strategies for solid-state anaerobic digestion of lignocellulosic biomass. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, **44**, 824-834.
- Zeiss, C. 1999. Landfill leachate recirculation methods - Effects on leachate flow patterns and degradation. *Journal of Environmental Systems*, **27**(3), 209-227.
- Zeiss, C., Uguccioni, M. 1997. Modified Flow Parameters for Leachate Generation. *Water Environment Research*, **69**(3), 276-285.

Zhang, P., Zeng, G., Zhang, G., Li, Y., Zhang, B., Fan, M. 2008. Anaerobic co-digestion of biosolids and organic fraction of municipal solid waste by sequencing batch process. *Fuel Processing Technology*, **89**(4), 485-489.

Chapitre 2 : Rôle du lixiviat pour la digestion anaérobie de fumiers de bovins

Avant-propos

Ce chapitre est consacré à l'étude des rôles biotique et abiotique du lixiviat dans le cas de la méthanisation par voie sèche des fumiers de bovins. Le rôle biotique du lixiviat est défini comme sa capacité à inoculer le substrat solide (fumier), c'est-à-dire la capacité des microorganismes du lixiviat à coloniser le solide en vue de sa dégradation biologique. Le rôle abiotique est défini comme étant la capacité du lixiviat à apporter et réunir les conditions physico-chimiques nécessaires au développement de la biomasse impliquée dans le processus de la digestion anaérobie.

Afin de répondre à cette problématique, les travaux ont consisté à utiliser quatre lixiviats distincts pour la méthanisation d'un même substrat. Ces lixiviats présentaient (i) des différences d'activité microbienne et (ii) des différences de composition chimique. Les suivis des cinétiques de production de méthane et de l'évolution des populations microbiennes, pendant quatre semaines, ont permis d'identifier les caractéristiques biotiques et abiotiques que doit réunir un lixiviat pour permettre une biodégradation anaérobie optimale de la matière organique contenue dans les fumiers de bovins.

Biotic and abiotic roles of leachate recirculation in batch mode solid-state anaerobic digestion of cattle manure

Axelle Degueurce^{a,b}, Nair Tomas^{a,b}, Sophie Le Roux^{a,b}, José Martinez^{a,b}, Pascal Peu^{a,b,*}

^a Irstea, UR GERE, 17 av. de Cucillé, CS 64427, F-35044 Rennes, France

^b Université Européenne de Bretagne, F-35044 Rennes, France

* Corresponding authors: e-mail: pascal.peu@irstea.fr

Tel: +33223482121; Fax: +33223482115

ABSTRACT

Solid state anaerobic digestion, with leachate recirculation, is suitable for exploiting manure with a high solid content. The biotic and abiotic effects of the leachates were studied in lab-scale leach bed reactors (LBRs). LBRs were fed with cow manure and four leachates either biologically active or inert. The biotic impact of leachate was assessed by monitoring the microbial communities in the manure and in the leachates. LBRs with biologically active leachates, regardless to their origin, produced equivalent methane volumes (114.52 ± 19.05 and 99.79 ± 6.4 NL/kg_{VS}) while LBRs with inert leachates produced half less methane (60.22 ± 5.71 and 58.87 ± 13.2 NL/kg_{VS}) attesting to the biotic role of leachate. Moreover, its beneficial abiotic role is mainly due to its initial nutrient content, pH, and buffering capacity. The microbial community in the manure was strongly involved in methane production, and no transfer of microorganisms from the liquid phase was found ($p < 0.05$).

Keywords: Leach bed reactor; manure; anaerobic digestion; methane production rate; leachate; single strand conformation polymorphism

1. Introduction

Anaerobic digestion (AD) is one of the key elements in the current energy transition as it is both a waste treatment technology and source of renewable energy. Organic wastes are of particular interest, given the European Union's (EU) objective of producing 20% of its consumed energy from renewable sources by 2020. In France, it is planned to build 1,000 collective anaerobic digestion plants by 2020 for the treatment of agricultural feedstock including manure, crop residues, and intermediate crops with a total solid (TS) content of more than 20%.

Depending on the total solid content, AD takes place in the liquid or solid state. Liquid AD processes are used with substrates whose TS content is less than 15% (w/w) and solid state AD (SSAD) is used with substrates whose TS content is more than 15% (Mata-Alvarez et al., 2000). Among all SSAD technologies, leach bed reactors (LBRs) have the advantage of being robust, simple to run and require limited investment (Vandevivere et al., 2002). Adapted from landfill technologies (Vandevivere et al., 2002), LBRs use different feedstocks including industrial, municipal and agricultural wastes. However, the high TS content of these feedstocks leads to handling and mixing difficulties making the recirculation of a leachate (liquid phase) through the media necessary to improve biogas production and to achieve maximum degradation of organic matter.

Indeed, the moisture content of the media during anaerobic degradation has been shown to be a key parameter to enhance SSAD performances with many substrates (Motte et al., 2013) as it creates favourable conditions for microbial development (Benbelkacem et al., 2010). In landfills, the beneficial role of leachate recirculation to control moisture content was already identified 40 years ago (Pohland & Kang, 1975), whereas leachate recirculation has only recently been applied to cattle manure (El-Mashad et al., 2006). However, intensive recirculation of leachate may also inhibit methanogenesis (Ledakowicz & Kaczorek, 2004) as in particular, it can enhance acidogenesis and lead to the accumulation of volatile fatty acids (VFA), which are toxic for methanogens. Previous research concluded that the successful operation of SSAD is the result of interactions between the moisture content of the media and recirculation of the leachate.

Inoculum to substrate ratio has also been reported to significantly influence the methane yields (Saady & Massé, 2015; Xu et al., 2013) and to start-up SSAD reactors successfully (Charles et al., 2009; Motte et al., 2013). These studies showed that increasing the concentration of anaerobic inoculum increased the amount of active methanogens in the reactor, hence limiting the accumulation of VFAs. Recent studies investigated the effect of using liquid anaerobic digestion effluent as inoculum, and pointed to the importance of the buffering capacity of the liquid and the presence of an appropriate microbial community (Charles et al., 2009; Shi et al., 2014; Xu et al., 2013). However, these studies were conducted in a batch reactor by simply mixing the solid effluent and the liquid phase in a steady state, with no recirculation of the leachate. Xu et al. (2014a) discussed the effect of leachate recirculation on microbial growth when part of the leachate was replaced with water or “methanogenic effluent”. They reported a decrease in the quantity of microorganisms in the liquid phase, the exception being when substituted with methanogenic effluent, where the quantity of microorganisms remained stable. However, changes in microbial communities in the solid phase were not studied. Wang et al. (2010) compared the distribution of the microbial community in the liquid and solid phases of grass silage in a two-stage process (LBR-Upflow Sludge Anaerobic Blanket), but only during anaerobic hydrolysis (LBR), and observed the development of distinct communities in the two phases.

Based on our review of the literature, the role of leachate recirculation in SSAD required further investigation, particularly when cattle manure is used as feedstock. The aim of this study was thus to focus on the biotic and abiotic effects of the leachate on SSAD with leachate recirculation. The role of the leachate was investigated by recording the kinetics of methane production with four different types of leachate and the same cattle manure. Bacterial and archaeal community characteristics and changes were also investigated with one leachate to improve the understanding of leachate recirculation in SSAD.

2. Materials and methods

To study the role of leachate in LBRs, batch experiments were carried out at laboratory scale under controlled conditions. Analysis of the kinetics of methane production and of the mass balances enabled assessment of the performance of anaerobic digestion. Molecular microbiology analyses were conducted to highlight the biotic effect of the leachate.

2.1. Characteristics of the manure, leachate and digestate

For the experiments, manure was sampled from a conventional dairy farm located close to Rennes (Brittany, France). The average values of the physical-chemical characteristics of the manure are listed in Tableau 5. The cow manure, which had 22.2% TS, contained 171 gVS and 240 gCOD per kg of wet manure. The ratio of COD to VS was 1.4. The high VS to TS ratio (77%) shows that a large part of TS was potentially biodegradable and could serve as feedstock for biogas production. The C/N ratio of the cow manure, close to 17, was low compared to the optimal ratio expected from the literature (20 to 30 according to Ward et al. (2008)). However, in the present study the nitrogen content was calculated with the TKN value, which does not accurately reflect the ammonium content, which could inhibit the process (Chen et al., 2008).

Tableau 5 : General chemical characterization of leachates and manure

	Origin	pH	TS g/Kg ^a	VS g/Kg	COD gO ₂ /Kg	NH ₄ gN/Kg	TKN gN/Kg	F:I ^b	BMP N _L /Kg _{VS} ^c
Initial manure		- ^d	222	171	240.0	1.14	5.98	-	175
Leachate 1	SSAD plant	8.5	26	12	30.7	1.86	2.63	12.9	-
Leachate 2	WWTP digestate	7.7	15	9	13.9	0.53	1.34	18.6	-
Leachate 3	Synthetic	7.2	9	0	-	0.00	0.00	-	-
Leachate 4	Sterilised L1	9.9	30	15	37.6	1.15	1.95	-	-

^a Wet weight

^b Feedstock to Inoculum ratio calculated with respective VS content

^c N_L is for « normo-liter » i.e. litres in standard temperature and pressure conditions

^d no data available

All four leachates were fresh or prepared the day before the experiment began. Leachate 1 (L1) was sampled from an agricultural SSAD biogas plant located in La Verrie (Vendée, France), operating in batch mode and fed with dairy cow manure as substrate, plus supermarket wastes as co-substrates. L1 was first filtered through a 1 mm mesh sieve. Leachate 2 (L2) came from an anaerobic continuously stirred tank reactor fed with sludge from the wastewater treatment plant (WWTP) located in Rennes. Before the experiment began, L2 was diluted 1:2 to reach the same concentration of volatile solids as L1 and convenient fluidity. Leachate 3 (L3) was a balanced and isotonic saline phosphate buffer (PBS), with physiological pH (7.2) non toxic for microorganism. PBS chemical formulation (Sigma Aldrich) for 1 litre of 8 g NaCl, 0.2 g KCl, 1.44 g Na₂HPO₄ and 0.24 g KH₂PO₄ (pKa=7.2). Leachate 4 (L4) was L1 but autoclaved at 100 °C for one hour.

2.2. Analytical method

For all the experiments, the chemical oxygen demand (COD), total solids (TS), volatile solids (VS), total Kjeldahl nitrogen (TKN) and alkalinity of the initial manure and leachate, and final digestates and leachates were analysed using standard methods (APHA, 2012). The total organic carbon content of the cow manure was calculated from VS content according to Iglesias Jiménez and Pérez García (1992). The biochemical methane potential (BMP) of the cow manure was measured in parallel as described by Girault et al. (2012a) (Tableau 5). The feedstock to inoculum ratio (F:I) was calculated with the total VS content of manure and leachate introduced in reactors (Sunarso et al., 2010).

2.3. Design of the reactors

Six leach bed reactors were constructed in PVC tubes for the experiments. Each tube had an internal diameter of 11.3 cm, a height of 60 cm and a total capacity of 7.7 L. The reactors were divided into two parts: the upper part contained the solid phase and the bottom part held the leachate (Figure 12). The liquid and solid phases were separated by a grid. Each LBR was equipped with an automated

pumping device that recirculated 500 mL of leachate for 20 seconds once an hour. The leachate spread over the entire top surface of the manure. In this way, the leachate stored at the bottom fed the manure in the upper part, passed through the solids and dropped back to the bottom of the reactors. As described in previous study (Shewani et al., 2015) permeability of solid cow manure allows this LBR process design without any clogging effects. The lids of the reactors were directly connected to biogas meters and biogas production was recorded in real time while its composition was analysed semi-continuously (every day during the first week and then three times a week until the end of the experiment) to measure the methane production rate (Lucas et al., 2007). Liquid sampling points were located on the leachate recirculation lines. Immediately after biogas was sampled, 7 mL of leachate was collected (0.4% of total leachate volume) to determine pH and VFA content. The entire cell was immersed in a water bath at 35 °C to maintain mesophilic conditions. For each experiment, cells were filled with 1.5 kg of solid manure (0.415 density) and 1.7 L of leachate and incubated for 28 days.

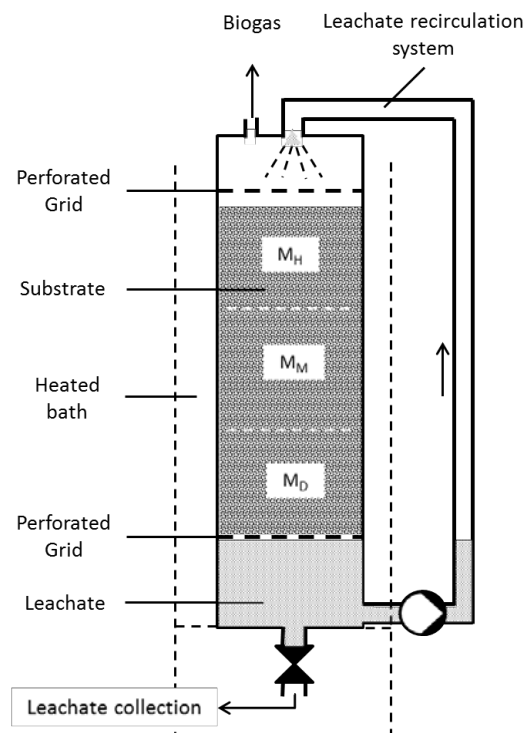


Figure 12 : Schematic diagram of lab-scale leach-bed reactors

To quantify the proportion of biogas produced by the leachate only, BMP-like tests were performed: 250 g of each leachate was incubated in 500 mL glass bottles at 35 °C for 28 days. Before incubation, the bottles were flushed with nitrogen gas. Biogas production was monitored daily by measuring the increase in pressure inside the bottles. Whenever necessary (i.e. when the bottles were emptied because the pressure became too high), biogas was sampled and analysed to determine methane content (Lucas et al., 2007). All leachate methane production was tested in triplicate.

2.4. Experimental setups

The experiments were performed in two different runs. In run 1, L1 (SSAD plant), L2 (WWTP), L3 (chemically prepared) and L4 (L1 sterilised) were performed in triplicate. At the beginning of the experiment, leachate was loaded into the top of the reactors, followed by manure (1.5 kg with 0.415 density). The methane production rate (MPR) recording started when 500 mL of the leachate was recirculated for the first time. Biogas composition of each reactor (CH₄ and carbon dioxide contents) was analysed by gas chromatography (GC) (Lucas et al., 2007). The VFA contents (acetate, propionate, butyrate, isobutyrate and isovalerate) of the leachates were analysed by high performance liquid chromatography (HPLC) (Peu et al., 2004). The COD and TKN mass balances of all the LBRs were calculated to identify possible reactor failures according to the equations presented below:

$$\text{COD mass balance} = \frac{\text{effluent leachate COD} + \text{effluent manure COD} + \text{CH}_4 \text{COD}}{\text{inffluent leachate COD} + \text{inffluent manure COD}}$$

$$\text{TKN mass balance} = \frac{\text{effluent leachate TKN} + \text{effluent manure TKN}}{\text{inffluent leachate TKN} + \text{inffluent manure TKN}}$$

with :

$\text{inffluent leachate COD}$: chemical oxygen demand of the leachate initially loaded in LBRs

$\text{inffluent manure COD}$: chemical oxygen demand of the cattle manure initially loaded in LBRs

effluent leachate COD: chemical oxygen demand of the leachate at the end of the experiment

effluent manure COD: chemical oxygen demand of the manure at the end of the experiment

CH₄ COD: chemical oxygen demand calculated from the methane produced during the experiment

influent leachate TKN: total Kjeldahl nitrogen of the leachate initially loaded in LBRs

influent manure TKN: total Kjeldahl nitrogen of the cattle manure initially loaded in LBRs

effluent leachate TKN: total Kjeldahl nitrogen of the leachate at the end of the experiment

effluent manure TKN: total Kjeldahl nitrogen of the manure at the end of the experiment

Run 2 was performed with L1 using all 6 LBRs in parallel. At days 4, 9, 14, 18, 23 and 28, the reactors were stopped one after another. The manure in the LBRs was sampled by dividing the media into three 12 cm thick layers: the deepest layer of manure is denoted M_D, the middle layer M_M and the top (highest) layer of manure M_H. Fresh representative samples (50 g) from each layer plus initial manure were mixed with liquid nitrogen and milled for 1 min with a ball mill (300 Dangoumill, Prolabo) into a homogeneous powder. For leachates, preparation was limited to agitation before sampling. All the samples were then stored at -80 °C until further qualitative and quantitative microbial analyses.

2.5. Microbial analysis

2.5.1. DNA extraction and qPCR analysis

Total DNA was extracted from 250 mg of ground manure, or homogenised leachates, using the Macherey Nagel DNA NucleoSpin Soil kit according to the manufacturer's instructions (Zeng et al., 2012). The extracted DNA was eluted in 100 µL of sterile water and stored at 20 °C until further analyses. The concentration and purity of the DNA were checked by spectrophotometry (ND-1000, NanoDrop Tech.). DNA quality was analysed on 0.7% agarose gel in tris borate EDTA (TBE 1) buffer.

The archaeal and bacterial communities in each sample were quantified using qPCR techniques targeting the 16S rRNA. All real-time PCR amplifications were carried out using the iQ SYBR Green Supermix 2X (Bio-Rad) and the Chromo 4 thermocycler (BioRad) according to the supplier's instructions. The PCR reactions ran in a 25 μ L final working volume by mixing 12.5 μ L SYBR Green Supermix (BioRad), 1.5 μ L (10 μ M) each of GE116 (5'-ATGGCTGTCGTCAGCT-3') and GE 117 (5'-ACGGGCGGTGTGTAC-3') primers for bacteria, or 0.5 μ L (10 μ M) each of GE118 (5'-ATTAGATACCCSBGTAGTCC-3') and GE119 (5'-GCCATGCACCWCCTCT-3') primers for *Archaea*, 2 μ L of previously extracted DNA and completed with water. To check for potential inhibitors of PCR amplification, each measurement was made in triplicate on 10- and 100-fold diluted DNA samples. The amplification programme for bacteria was as follows: initial denaturation at 95°C for 10 min followed by 45 amplification cycles at 95 °C for 30 s, at 60 °C for 50 s and at 72 °C for another 30 s. For *Archaea*, the amplification programme was: initial denaturation at 95 °C for 15 min followed by 45 amplification cycles at 95 °C for 15 s, at 50 °C for 20 s and at 72 °C for one minute.

The gene copy numbers were calculated by comparison with DNA standards of known concentration.

2.5.2. *Community analysis using single strand conformation polymorphism (SSCP)*

Bacterial and archaeal communities were analysed by PCR-SSCP amplification of the 16S rRNA gene V3 region. Amplification was performed with a MJ Mini thermocycler (BioRad). The resulting PCR products were then separated by SSCP capillary electrophoresis (CE-SSCP) with an ABI 310 genetic analyser (Applied Biosystems) as described by Delbès et al. (2000).

2.5.3. *Statistical analysis*

StatFingerprints was used for the analysis of CE-SSCP profiles obtained by ABI sequencers. This R software package is used to align profiles with the main goals of obtaining digital data for standard statistical analysis and of estimating diversity indexes (Michelland et al., 2009).

The Simpson diversity index was calculated by taking into account the number of species and their relative abundance as described by (Michelland et al., 2010). Global analysis of similarity (ANOSIM) was performed to identify the differences between the microbial populations in the different types of samples (manure and leachate). The effects of time and sample depth on changes in the microorganisms during the SSAD process were also tested with ANOSIM. It was performed on the distance matrix using 10 000 Monte Carlo permutations (Michelland et al., 2010). The ANOSIM-R value shows how far the sample groups are extended ($R > 0.75$: well separated groups; $0.75 > R > 0.50$: separated but overlapping groups; $0.50 > R > 0.25$: separated but strongly overlapping groups; $R < 0.25$: barely separated groups; (Michelland et al., 2010)). Analysis of variance (ANOVA) was performed to assess the significance of the results ($p\text{-value} < 0.05$).

The community similarity analysis between leachate and manure, over time and at depth, was also estimated with the construction of hierarchical clustering (dendrogram) using StatFingerprints, according to the Euclidian proximity index and the average algorithm calculations (Michelland et al., 2009).

3. Results and discussion

3.1. Effect of the origin of the leachate on methane production

3.1.1. Cumulative methane production

The cumulative production of methane in all the reactors with each leachate tested are listed in Tableau 6. The TKN and COD mass balances revealed no reactor failures as the output/input ratios were 90% or higher. Overall, removal of VS ranged from 26 to 39% and COD removal from 20 to

27% (Tableau 6) attesting to the successful degradation of the cow manure. Methane production from leachates only was measured and subtracted from the total cumulative methane produced (i) to ensure that leachate activity had no influence on the final results and (ii) to calculate the specific methane yield (SMY) of manure. For LBRs L1 and L2, methane production from leachate represented only 1% and 3% of the methane produced from the manure respectively, showing that organic matter from the leachate has a limited influence on the process. All others leachates tested (L3 and L4) showed no methane production.

Depending on the leachate tested, SMY can be divided into two groups. On the one hand, LBRs L1 and L2 presented comparable SMYs with 114.5 ± 19.0 NL/kgVS and 99.8 ± 6.4 NL/kgVS respectively. On the other hand, similar SMYs were recorded for LBRs L3 and L4 which were lower than LBRs L1 and L2 (60.2 ± 5.7 NL/kgVS and 58.9 ± 13.2 NL/kgVS respectively). Compared to the initial manure BMP test, all the reactors showed lower methane yields. Manure loaded with L1 and L2 reached 66 and 59% of the BMP respectively, while L3 and L4 reached only 34%. The short residence time of solids in the LBRs (28 days instead of 35 to 100 days in conventional SSAD studies according to Saady and Massé (2015)) may explain the low BMP recovery in all the experiments (El-Mashad et al., 2006). The feedstock to inoculum ratio (F:I) in each reactor could explain the differences in SMYs. Indeed, LBRs loaded with L1 and L2 (the highest SMYs) had a F:I ratio of 12.9 and 18.6 respectively (Tableau 1) while LBRs loaded with L3 and L4 (lowest SMY) were not inoculated (the added VS for L4 was biologically inert due to the autoclaving procedure). These results show that inoculated leachates significantly affect the production of biogas. Similar trends were observed by Sunarso et al. (2010), who inoculated cattle manure with rumen fluid. Their study showed that a range of F:I ratios between 17 and 35 notably increased the production of biogas from cattle manure, while only half total biogas production was measured with manure only, with no biological inoculum. These consistent results highlight the beneficial role of leachate as inoculum in a SSAD process using cow manure. However, even with biologically inert leachates (L3 and L4), anaerobic digestion occurred, reaching close to half the SMY measured with LBRs L1 and L2. These results show that active microorganisms present in the original manure are sufficient to start the anaerobic procedure and are definitely involved in methane production.

Tableau 6 : Cumulative methane production and reactor performances with the four leachates tested

LBR	Cumulative methane production			BMP reached	VS removal	COD removal	TKN mass balance	COD mass balance
	Manure + leachate (NL ^a)	Leachate only (NL)	SMY (NL/kg _{VS})					
Leachate 1	31.26 ± 4.83	0.28 ± 0.01	114.52 ± 19.05	66 ± 11%	30 ± 2%	23 ± 5%	90 ± 3%	98 ± 4%
Leachate 2	32.26 ± 2.30	0.88 ± 0.01	99.79 ± 6.4	59 ± 5%	39 ± 3%	27 ± 4%	89 ± 6%	92 ± 4%
Leachate 3	12.48 ± 1.51	0.00	60.22 ± 5.71	34 ± 3%	28 ± 3%	20 ± 2%	97 ± 1%	91 ± 1%
Leachate 4	12.27 ± 2.15	0.00	58.87 ± 13.2	34 ± 4%	26 ± 4%	20 ± 2%	92 ± 8%	88 ± 1%

^a NL is for « normo-liter » i.e. litres in standard temperature and pressure conditions

^b Specific methane yield

3.1.2. Methane production rate, VFA concentration kinetics and changes in pH

MPR and VFA concentration kinetics for all the leachates tested are presented in Figure 13.

Depending on the leachate used, different MPR and total VFA profiles were recorded.

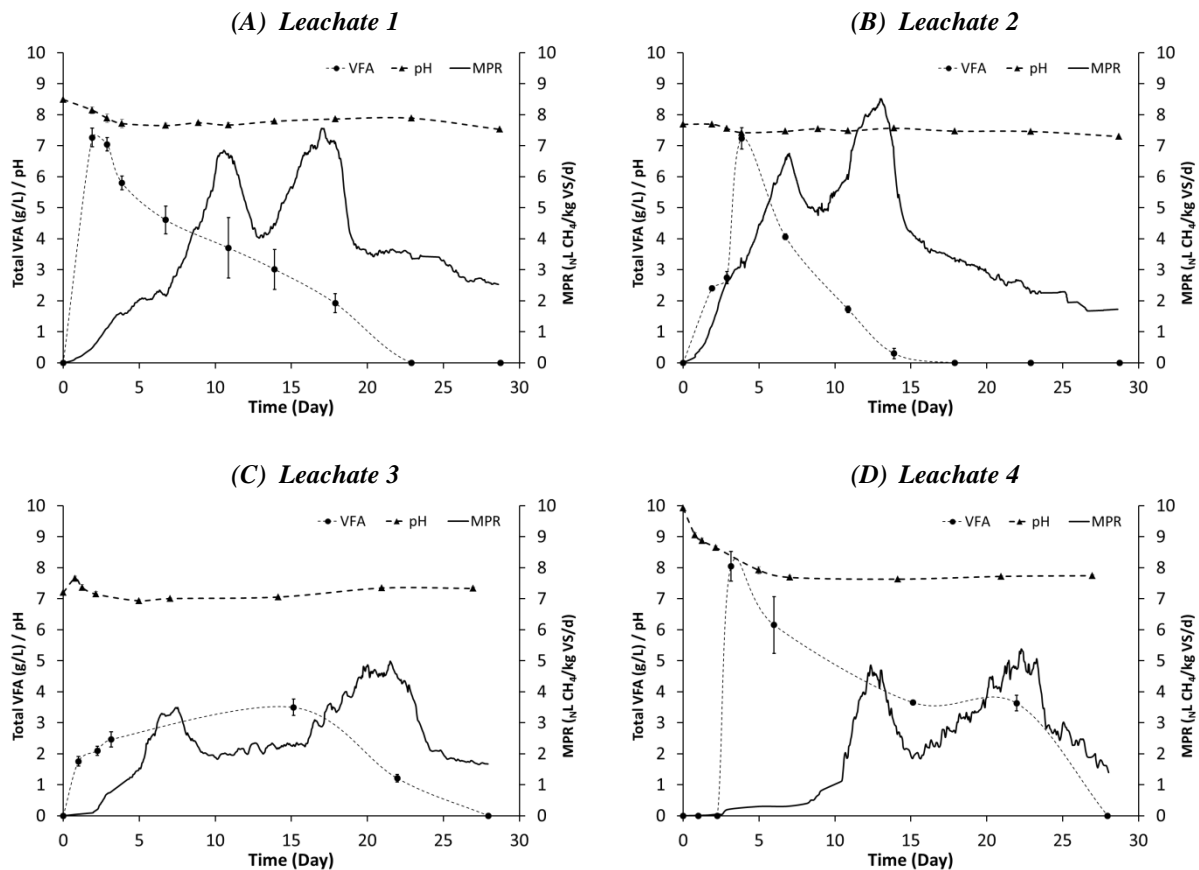


Figure 13 : Methane production rate, total VFA concentration and changes in pH during SSAD of cow manure with the four different leachates. ((A): Leachate L1; (B): Leachate L2; (C): Leachate L3, (D): Leachate L4)

LBRs L1 and L2 had similar MPR profiles with two consecutive production peaks. Maximum MPRs averages were close and reached 7 N L/kg VS/d and 8 N L/kg VS/d respectively. However, the peaks occurred at different times, with the first peaks appearing at days 10.9 and 6.5 after the experiment began respectively, and second peaks after 17.2 and 13.3 days. These typical patterns involve the digestion of different kinds of biodegradable VS in the manure (Girault et al., 2012b). The most easily biodegradable VS likely produced the first peak, while the second peak could involve cellulose and

hemicellulose colonization (Motte et al., 2013). The last part is linked to the slowly biodegradable compounds. MPR averages measured during the whole run reached more than 4 $\text{N}_\text{L}/\text{kg}_{\text{VS}}/\text{d}$ in both experiments. Leachates (L1 and L2) contributions to MPR were limited and not explained fully the first MPR peaks. Thus, the methane production from the leachates only represented less than 2.6 and 9.8 % of the methane production from the first peaks after 13 and 8 days respectively.

For LBRs L3 and L4, MPR averages were lower, ranging between 2.5 and 3.5 $\text{N}_\text{L}/\text{kg}_{\text{VS}}/\text{d}$. In these assays, the profiles were similar to LBRs L1 and L2 with two methane production peaks, but at lower intensities. According to Chen et al. (2008), the reduced MPR measured for LBR L4 after loading may be caused by ammonia inhibition. In our case, L4 had an initial ammonia concentration of 1.15 g $\text{NH}_4\text{-N}/\text{L}$ and a pH of 9.9, which can greatly reduce the acetate removal rate by inhibiting methanogenesis (Chen et al., 2008). Anyway, methane production kinetics began when the pH dropped below 8, because of the accumulation of acetate in the leachate (Figure 13D).

Depending on the leachate used, total VFA were produced and consumed with different kinetics in the triplicate bioreactors. Total leachates VFA balances are presented in Figure 13. Immediately after digesters were loaded and SSAD started, the total VFA concentration peaked at 7.3 g/L for LBRs L1 and L2 (inoculated leachates) and at 8.0 g/L for LBRs L4 (sterilised leachate). This rapid build-up reflected the washing effect of the leachates, which caused the removal of VFA precursors or VFAs accumulated in the cow manure mass during the process (Michele et al., 2015). Similar trends were reported by Myint and Nirmalakhandan (2009). In their study they focused on hydrolysis/acidogenesis steps by using a LBR to treat cattle manure. They recorded a rapid VFA production within 10 days after loading. In the present study, after VFA peakings, total VFA levels reached the limits of detection of the instrument (50 mg/L), at days 23, 17 and 27 with LBRs L1, L2 and L4 respectively. With LBRs L1 and L2, only acetic and propionic acids were measured. The kinetic profiles of propionate were similar to those of acetate and thus, similar to total VFA profiles. The maximum concentration of the propionic acid was 1.8g/L for LBR L1 (day 2) and 2.7 g/L for LBR L2 (day 4). Except during VFA production peaks, propionic acid never exceed 33% of the total accumulated VFA. Five days after the reactors started, propionate concentrations fell below the detection limit of the instrument with LBRs L1 and L2. Acetic acid was then the only VFA left in

leachates L1 and L2. With LBRs L4, the concentration of propionate never reached the detection limit and only acetate was detected. The concentrations of other volatile fatty acids (butyric-, isobutyric-, and isovaleric-acid) were all less than 50 mg/L. The rapid consumption of propionate, butyrate and other VFA in LBR L1, L2 and L4, suggests that the acetogenesis step was not rate limiting (Ali Shah et al., 2014). Otherwise, the accumulation of acetate in the leachate, particularly in LBRs L1 and L3, proves that the methanogenesis reaction from acetate consumption was the rate limiting step (Ali Shah et al., 2014; Saady & Massé, 2015).

With LBRs L3, the total VFA profile was quite different (Figure 13C). Fifteen days after the reactors started, accumulated VFA reached 3.5 g/L. Two days after the reactors were loaded, butyrate was the only VFA measured, followed by propionate (2.5 g/L), which was the main fatty acid analysed on the 3rd day. After 15 days of experimentation, acetate was the only VFA present in leachate L3 (3.5g/L). This typical profile, with successive VFA accumulation and consumption, clearly shows that acetogenesis was a rate limiting step at the beginning of the experiment, while methanogenesis was the rate limiting step until the 15th day, when methane production started. Compared to leachate 4, the lack of nutrients in leachate 3, and particularly the lack of carbonates (8.9 g CaCO₃/L in L4 and 0 in L3), reduced acetogenesis activity (Ali Shah et al., 2014) and could explain this typical VFA pattern.

Comparison of the MPR and total VFA profiles (particularly comparison of the acetate profiles) of LBRs L1, L2 and L4, revealed a strong correlation. Indeed, VFA concentrations increased then decreased while, a few days later, methanogenesis and methane gas yield increased (Figure 13A, B and D). However, VFA consumption in LBRs L2 was more efficient than VFA consumption in LBRs L1. Sunarso et al. (2010) showed that a high initial F:I ratio increased the methane production rate, which could explain the difference observed between LBRs L1 and L2 (F:I ratio of 12.9 and 18.6 respectively). Ten days after the beginning of the experiment, the MPR and VFA concentration profiles were no longer correlated: VFA production kinetics of LBRs L1 and L2 continued to decrease, showing no further VFA accumulation, while MPRs showed a second increase. This second phase suggests that a pseudo-steady state condition was reached in the LBRs, indicating that the acetogenic and methanogenic reactions proceeded fairly well. The same trends were observed in the

MPR and VFA profiles of LBRs L4 (with a slower decrease in VFA concentrations (Figure 13D)) whereas LBRs L3 differed. For this reactor in comparison to the others LBRs, the typical VFA pattern, for the 10 first days, probably reflect that VFA concentrations measured was the balance between production and consumption. In this case, production was more intense than consumption. Acetate was the only VFA present on the 15th day in this LBR, and the decrease in its concentration matched the appearance of the second MPR peak (Figure 13C).

The average pH values were 7.8 ± 0.3 , 7.5 ± 0.1 , 7.2 ± 0.2 and 8.3 ± 0.8 in LBRs L1, L2, L3 and L4 respectively. Initially, the pH values of the leachates were neutral to alkaline (from 7.2 to 9.9) and decreased slightly during the batch process. After eight days of methane production, pH values ranged from 7.0 to 7.7 attesting to accumulation of the VFA in the leachate. After 28 days, the average pH of all leachates was 7.6 ± 0.2 . The decrease of the pH until its stabilisation could be linked to recirculation (once an hour), which flushed out the organic acids present in the manure and efficiently buffered the system, as reported by Xu et al. (2014b).

These results underline the fact that methanogenesis is a limiting step when cow manure is used with a sterile leachate because of the low growth rate of methanogens compared to acidogenic and acetogenic bacteria (Shimizu et al., 1993). The use of inoculated leachate can significantly increase methanogenic activity and methane yield even if the cattle manure is also biologically active. Anaerobic wastewater sludge appears to be the best source of inoculum for the treatment of cow manure as it contains highly active anaerobic microorganisms, which can reduce the length of the experiment in dry conditions (Forster-Carneiro et al., 2007). These results also revealed that acetogenesis was only rate limiting when the leachate lacked essential nutrients.

This first experiment points to roles for both biotic and abiotic leachates effects. Leachate recirculation is essential to provide (i) additional methanogenic activity to manure, (ii) an ideal pH and a buffered environment for the biological reactions of anaerobic digestion and (iii) nutrients for efficient acetogenesis and methanogenesis. It also showed that a leachate formulated with WWTP anaerobic sludge was as efficient as a leachate sampled from a dedicated SSAD manure plant, suggesting that specific leachate sourcing does not affect the process since the microbial community is suitable for solid manure conversion into biogas.

In the second part of this paper, the biotic role of leachate is investigated in more detail to identify a possible transfer of biomass between solid and liquid media.

3.2. Structure of the microbial communities in the liquid and solid fractions

The cumulative methane and methane production rates suggest that the microbial community originally present in the leachate plays an important role in the SSAD of cattle manure. To confirm this hypothesis, microbial evolution and distribution were periodically measured in both the liquid (L1) and solid fractions during the process.

3.2.1. Microbial growth

In experimental run 2, MPRs and SMYs were similar to those obtained with LBRs L1 in the first run (data not shown).

Total bacteria and *Archaea* growth during SSAD of cattle manure with the recirculation of L1 are shown in Figure 14. Three manure layers and leachate were monitored for 28 days. A real time PCR based assay for bacteria and *Archaea* quantification of 16S r-DNA was conducted to determine abundance in DNA samples derived from LBRs. The q-PCR assays revealed almost the same amount of 16S r-DNA sequences from bacteria and *Archaea* in all the layers monitored. Quantifications showed initially 1.3×10^{10} copies of bacteria 16S r-DNA per gram of fresh manure and, at the end of experiment, 2.3×10^{10} , 2.65×10^{10} and 1.6×10^{10} for the top, middle and bottom layers of manure respectively. For *Archaea*, 1.6×10^8 copies of 16S r-DNA per gram of initial fresh manure were measured and 2.8×10^8 , 4.1×10^8 and 4.5×10^8 for the highest, the middle and the deepest layer respectively at the end of the experiment. Nonetheless, a 10-fold increase in *Archaea* was also observed at day 15 in layers M_D and M_M , which correspond to the second methane production peak (Figure 13A).

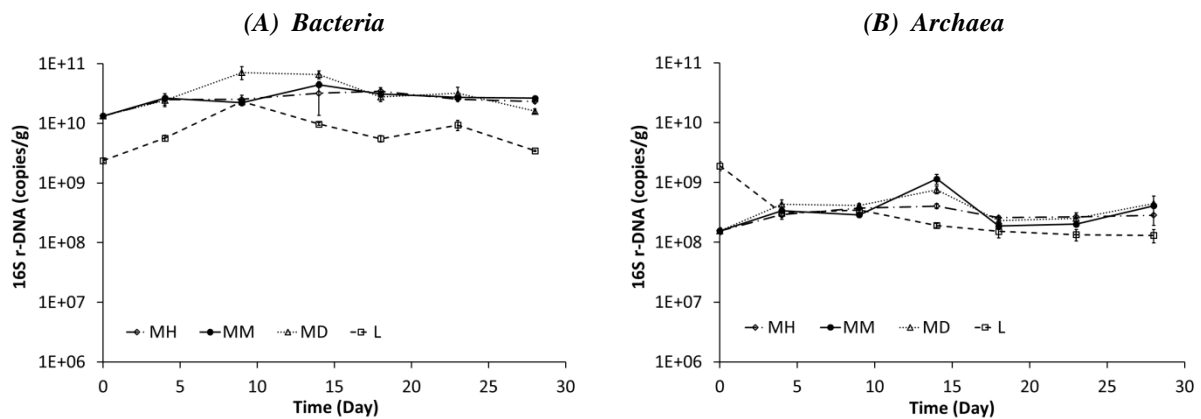


Figure 14 : Quantification by quantitative real-time PCR of the 16 S rDNA copy number for (A) bacterial and (B) archaeal communities during SSAD of manure with leachate L1 (L: leachate; MH: highest layer of manure; MM: middle layer of manure; MD: deepest layer of manure)

A slight decrease ($p < 0.05$) in archaeal abundance was also observed in the leachate (1.9×10^9 copies of 16S gene/ g_{fresh} initially versus 1.3×10^8 copies of 16S r-DNA per gram after 28 days). This variation in the concentration of *Archaea* in the liquid phase may reflect the decay of some *Archaea* originally present in the leachate. However, the high concentration of microorganisms originally present in the solid-liquid system may mask microbial growth in both phases. As a result, further analyses of microbial community structure are needed to conclude whether or not microorganisms are transferred from one fraction to the other.

3.2.2. Relationship between microbial communities

In this work, CE-SSCP profiles of the V3 region of 16S r-DNA genes were used to study the spatial change, dynamics and inter-layer variation in the bacterial and archaeal communities of the leachates and the manure. The diversity index (Tableau 7) of the bacterial communities in the manure and leachate ranged between 2.0 and 2.5. The diversity indexes of the archaeal community were reduced to 1.0 and 1.8 respectively. The diversity indexes of the microbial communities in the manure tended to significantly decrease over time ($p < 0.05$) suggesting that the range of microorganisms became more stable. The high concentration of bacteria in the leachate-manure and the high diversity index highlight the important role of bacteria in the process and their involvement in the crucial steps

of anaerobic digestion (Ali Shah et al., 2014). The reduced diversity and concentration of *Archaea* are evidence for a limited group of *Archaea* present in the leachate-manure, particularly methanogens involved in the conversion of manure into methane (Peu et al., 2006). Analysis of the microbial structure showed that bacterial and archaeal communities differed between sampling sites (manures vs. leachate) with an ANOSIM $R = 0.80$ ($p < 0.001$) and 0.88 ($p < 0.001$) respectively (Tableau 8). The microbial structure of the two ecosystems was fairly separated and the difference between the communities occurred over time. Cho et al. (2006) published similar results concerning the microbial structure of bovine rumen ecosystems. Based on fingerprint methods, these authors demonstrated that the solid particles and the ruminal juice harbour two very different bacterial communities. Solid particles contained mainly fibrolytic bacteria attached to particles. These findings suggest that rumen fluids and solid media support different microbial populations and that these may play specific roles in the ruminal system. Community dynamics in anaerobic LBR were also studied by Wang et al. (2010) using T-RFLP techniques. Their results showed that the bacterial community tended to remain stable during the process, and that the leachate community was distinct from the community attached to the solid biomass. Similarly to these published results, in our study, leachate and manure harboured separate microbial ecosystems which played different roles in LBRs. Comparison of SSCP profiles revealed no shift during the course of the experiment, nor any overlapping leachate and manure peaks from the beginning until the end of the batch (data not shown). However, analysis of the microbial structure of the manure over time revealed significant differences between the bacterial community (ANOSIM $R = 0.66$, $p < 0.001$) and the archaeal community (ANOSIM $R = 0.33$, $p < 0.001$). In contrast, in the leachate, no temporal changes in structure were observed. These results were confirmed with a hierarchical comparison, which showed that bacterial and archaeal CE-SSCP profiles were distributed in different clusters depending on the sampling time (Annexe 2, page 255). Analysis of the spatial microbial structure between the three layers of manure revealed no significant differences, indicating no effect of depth on changes in the microbial community.

Tableau 7 : Diversity indexes of bacterial and archaeal communities in the manure and leachate fractions calculated with StatFingerprints

SSCP profile groups	Bacteria	Archaea
Manure	2.0 (± 0.1)	1.0 (± 0.4)
Leachate	2.5 (± 0.1)	1.8 (± 0.2)

Specific bacterial and archaeal fingerprint communities for manure and leachate were characterised in LBRs. These separate communities changed over time, with no remarkable transfer of microorganisms between the solid and the liquid fractions. Indeed, the microbial communities present in the original manure moved towards a final state which was very different from the final distribution of the microbial community in the leachate. Therefore, even if leachate helps manure degradation, it does not appear to play a significant role in the inoculation of the solid phase.

Tableau 8 : Microbial structure of leachate and manure communities using ANOSIM. (MH: highest layer of manure; MM: middle layer of manure; MD: deepest layer manure)

SSCP profile groups	Bacteria		Archaea	
	Degree of proximity: <i>R</i>	<i>p</i> -value	Degree of proximity: <i>R</i>	<i>p</i> -value
Sampling site				
Manure vs. leachate	0.80	<0.001	0.88	<0.001
Layers ^a	-0.03	NS ^b	0.09	NS
Effect of sampling time				
Manure	0.66	<0.001	0.33	<0.001
Leachate	0.01	NS	0.01	NS

^a Layers : M_H, M_M and M_D

^b Non-significant

4. Conclusion

Abiotic and biotic impacts of leachates were studied. Results suggest that the biotic impact of leachates on the microbial community involved in the process is limited, since distinct communities were observed in the solid and liquid phases, with no transfer between these two environments.

Dedicated communities were in progress in the two ecosystems with nested relationships. The abiotic impact of leachates appears to be of great importance and revealed that the successful operation of LBRs treating solid manure depends on essential leachate physical parameters for a rapid start-up, and the presence of the right microbes for a high methane yield.

References

- Ali Shah, F., Mahmood, Q., Maroof Shah, M., Pervez, A., Ahmad Asad, S. 2014. Microbial ecology of anaerobic digesters: The key players of anaerobiosis. *The Scientific World Journal*, **2014**.
- APHA. 2012. Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, 22nd Edition, American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation.
- Benbelkacem, H., Bayard, R., Abdelhay, A., Zhang, Y., Gourdon, R. 2010. Effect of leachate injection modes on municipal solid waste degradation in anaerobic bioreactor. *Bioresource Technology*, **101**(14), 5206-5212.
- Charles, W., Walker, L., Cord-Ruwisch, R. 2009. Effect of pre-aeration and inoculum on the start-up of batch thermophilic anaerobic digestion of municipal solid waste. *Bioresource Technology*, **100**(8), 2329-2335.
- Chen, Y., Cheng, J.J., Creamer, K.S. 2008. Inhibition of anaerobic digestion process: A review. *Bioresource Technology*, **99**(10), 4044-4064.
- Cho, S.J., Cho, K.M., Shin, E.C., Lim, W.J., Hong, S.Y., Choi, B.R., Kang, J.M., Lee, S.M., Kim, Y.H., Kim, H., Yun, H.D. 2006. 16S rDNA analysis of bacterial diversity in three fractions of cow rumen. *Journal of Microbiology and Biotechnology*, **16**(1), 92-101.
- Delbès, C., Moletta, R., Godon, J.J. 2000. Monitoring of activity dynamics of an anaerobic digester bacterial community using 16S rRNA polymerase chain reaction - Single-strand conformation polymorphism analysis. *Environmental Microbiology*, **2**(5), 506-515.
- El-Mashad, H.M., van Loon, W.K.P., Zeeman, G., Bot, G.P.A., Lettinga, G. 2006. Effect of Inoculum Addition Modes and Leachate Recirculation on Anaerobic Digestion of Solid Cattle Manure in an Accumulation System. *Biosystems Engineering*, **95**(2), 245-254.
- Forster-Carneiro, T., Pérez, M., Romero, L.I., Sales, D. 2007. Dry-thermophilic anaerobic digestion of organic fraction of the municipal solid waste: Focusing on the inoculum sources. *Bioresource Technology*, **98**(17), 3195-3203.
- Girault, R., Bridoux, G., Nauleau, F., Poullain, C., Buffet, J., Peu, P., Sadowski, A.G., Béline, F. 2012a. Anaerobic co-digestion of waste activated sludge and greasy sludge from flotation process: Batch versus CSTR experiments to investigate optimal design. *Bioresource Technology*, **105**, 1-8.
- Girault, R., Bridoux, G., Nauleau, F., Poullain, C., Buffet, J., Steyer, J.P., Sadowski, A.G., Béline, F. 2012b. A waste characterisation procedure for ADM1 implementation based on degradation kinetics. *Water Research*, **46**(13), 4099-4110.
- Iglesias Jiménez, E., Pérez García, V. 1992. Relationships between organic carbon and total organic matter in municipal solid wastes and city refuse composts. *Bioresource Technology*, **41**(3), 265-272.
- Ledakowicz, S., Kaczorek, K. 2004. Laboratory Simulation of Anaerobic Digestion of Municipal Solid Waste. *Journal of Environmental Science and Health - Part A Toxic/Hazardous Substances and Environmental Engineering*, **39**(4), 859-871.
- Lucas, T., Le Ray, D., Peu, P., Wagner, M., Picard, S. 2007. A new method for continuous assessment of CO₂ released from dough baked in ventilated ovens. *Journal of Food Engineering*, **81**(1), 1-11.

- Mata-Alvarez, J., Macé, S., Llabrés, P. 2000. Anaerobic digestion of organic solid wastes. An overview of research achievements and perspectives. *Bioresource Technology*, **74**(1), 3-16.
- Michele, P., Giuliana, D., Carlo, M., Sergio, S., Fabrizio, A. 2015. Optimization of solid state anaerobic digestion of the OFMSW by digestate recirculation: A new approach. *Waste Management*, **35**, 111-118.
- Michelland, R.J., Combes, S., Monteils, V., Cauquil, L., Gidenne, T., Fortun-Lamothe, L. 2010. Molecular analysis of the bacterial community in digestive tract of rabbit. *Anaerobe*, **16**(2), 61-65.
- Michelland, R.J., Dejean, S., Combes, S., Fortun-Lamothe, L., Cauquil, L. 2009. StatFingerprints: A friendly graphical interface program for processing and analysis of microbial fingerprint profiles. *Molecular Ecology Resources*, **9**(5), 1359-1363.
- Motte, J.C., Escudié, R., Bernet, N., Delgenes, J.P., Steyer, J.P., Dumas, C. 2013. Dynamic effect of total solid content, low substrate/inoculum ratio and particle size on solid-state anaerobic digestion. *Bioresource Technology*, **144**, 141-148.
- Myint, M.T., Nirmalakhandan, N. 2009. Enhancing anaerobic hydrolysis of cattle manure in leachbed reactors. *Bioresource Technology*, **100**(4), 1695-1699.
- Peu, P., Béline, F., Martinez, J. 2004. Volatile fatty acids analysis from pig slurry using high-performance liquid chromatography. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, **84**(13), 1017-1022.
- Peu, P., Brugère, H., Pourcher, A.M., Kérourédan, M., Godon, J.J., Delgenès, J.P., Dabert, P. 2006. Dynamics of a pig slurry microbial community during anaerobic storage and management. *Applied and Environmental Microbiology*, **72**(5), 3578-3585.
- Pohland, F.G., Kang, S.J. 1975. Sanitary landfill stabilization with leachate recycle and residual treatment. *AICHE Symposium Series*(145).
- Saady, N.M.C., Massé, D.I. 2015. Impact of organic loading rate on psychrophilic anaerobic digestion of solid dairy manure. *Energies*, **8**(3), 1990-2007.
- Shewani, A., Horgue, P., Pommier, S., Debenest, G., Lefebvre, X., Gandon, E., Paul, E. 2015. Assessment of percolation through a solid leach bed in dry batch anaerobic digestion processes. *Bioresource Technology*, **178**, 209-216.
- Shi, J., Xu, F., Wang, Z., Stiverson, J.A., Yu, Z., Li, Y. 2014. Effects of microbial and non-microbial factors of liquid anaerobic digestion effluent as inoculum on solid-state anaerobic digestion of corn stover. *Bioresource Technology*, **157**, 188-196.
- Shimizu, T., Kudo, K., Nasu, Y. 1993. Anaerobic waste-activated sludge digestion - A bioconversion mechanism and kinetic model. *Biotechnology and Bioengineering*, **41**(11), 1082-1091.
- Sunarso, Seno, J., Nyoman, I. 2010. The effect of feed to inoculums ratio on biogas production rate from cattle manure using rumen fluid as inoculums. *International Journal of Science and Engineering*, **1**(2), 41-45.
- Vandevivere, P., de Baere, L., Varstraete, W. 2002. Types of anaerobic digester for solid wastes. in: *Biomethanization of the Organic Fraction of Municipal Solid Waste*, (Ed.) Mata-Alvarez, IWA Publishing Company, pp. 111-140.
- Wang, H., Vuorela, M., Keränen, A.L., Lehtinen, T.M., Lensu, A., Lehtomäki, A., Rintala, J. 2010. Development of microbial populations in the anaerobic hydrolysis of grass silage for methane production. *FEMS Microbiology Ecology*, **72**(3), 496-506.

- Ward, A.J., Hobbs, P.J., Holliman, P.J., Jones, D.L. 2008. Optimisation of the anaerobic digestion of agricultural resources. *Bioresource Technology*, **99**(17), 7928-7940.
- Xu, F., Shi, J., Lv, W., Yu, Z., Li, Y. 2013. Comparison of different liquid anaerobic digestion effluents as inocula and nitrogen sources for solid-state batch anaerobic digestion of corn stover. *Waste Management*, **33**(1), 26-32.
- Xu, S., Selvam, A., Karthikeyan, O.P., Wong, J.W.C. 2014a. Responses of microbial community and acidogenic intermediates to different water regimes in a hybrid solid anaerobic digestion system treating food waste. *Bioresource Technology*, **168**(49-58).
- Xu, S.Y., Karthikeyan, O.P., Selvam, A., Wong, J.W.C. 2014b. Microbial community distribution and extracellular enzyme activities in leach bed reactor treating food waste: Effect of different leachate recirculation practices. *Bioresource Technology*, **168**, 41-48.
- Zeng, Y., De Guardia, A., Ziebal, C., De Macedo, F.J., Dabert, P. 2012. Nitrification and microbiological evolution during aerobic treatment of municipal solid wastes. *Bioresource Technology*, **110**, 144-152.

Chapitre 3 : Optimisation de la recirculation du lixiviat dans un réacteur de digestion anaérobie par voie sèche

Avant-propos

Les travaux réalisés dans le chapitre 2 ont montré que le lixiviat avait à la fois un rôle biotique et abiotique lors de la digestion anaérobie par voie sèche de fumiers de bovins. La présence initiale dans le lixiviat de microorganismes adaptés permet d'augmenter les rendements en méthane alors que les paramètres abiotiques, tels que la présence de carbonates, d'un pH initial neutre et d'un fort pouvoir tampon, permettent le démarrage rapide de la dégradation de la matière organique. Actuellement, aucune stratégie claire concernant les modalités de recirculation du lixiviat ne ressort de la littérature scientifique. Pourtant, une gestion optimale de celle-ci permettrait d'améliorer les rendements du procédé.

L'objectif de ce chapitre est donc d'identifier les paramètres en lien avec la recirculation du lixiviat, tels que le volume recirculé, le ratio lixiviat/substrat, le temps entre les recirculations, etc., qui influencent les cinétiques de dégradation de la matière organique pour pouvoir in fine optimiser ces derniers et mieux contrôler la production de méthane.

Compte tenu de la multitude de paramètres pouvant être envisagés et le large domaine expérimental disponible, la méthodologie des plans d'expériences a été appliquée. Dans un premier temps, un pilote a été construit et plusieurs substrats agricoles ont été méthanisés dans le but d'éprouver le système et de déterminer des profils cinétiques typiques pour ces substrats. Une fois cette étape réalisée, un premier plan d'expérience dit de « screening » a été mis en place afin (i) d'éliminer les facteurs peu influents sur les cinétiques et (ii) de délimiter le domaine expérimental d'intérêt. A la suite de cela, un deuxième plan d'expérience dit de « surface de réponse » a permis de discuter en détail les effets de plusieurs paramètres de recirculation sur les productions de méthane.

*Ce chapitre s'articule en trois parties distinctes dont la première présente un matériel et méthodes. Ce paragraphe a pour objectif de décrire les substrats utilisés, de détailler la mise en place du pilote de méthanisation construit spécifiquement pour répondre à la problématique d'optimisation de la recirculation du lixiviat, et de présenter brièvement les plans d'expériences utilisés lors de ces travaux. La deuxième partie comporte l'ensemble des résultats expérimentaux. Elle comprend (i) la description et la comparaison des premières données cinétiques acquises sur différents substrats agricoles, (ii) la mise en place d'un pilote dédié avec huit cellules expérimentales, (iii) la réalisation d'un plan de screening permettant d'identifier les paramètres clé de la recirculation, et (iv) la réalisation d'un plan de surface de réponse, permettant d'optimiser les cinétiques en fonction des paramètres de recirculation les plus influents. Ces derniers résultats sont présentés sous forme d'un article soumis à la revue *Bioresource Technology*. Enfin, la troisième partie conclut ce troisième chapitre.*

1. Matériel et méthodes

1.1. Présentation des substrats, du lixiviat et de l'inoculum

Dans le cadre du dispositif de la collaboration avec l'industriel S²-watt, dont était initialement issu ce travail de thèse (Cifre), l'unité de méthanisation pilote de l'industriel a servi de modèle pour le choix des substrats. Les effluents produits par cette ferme, localisée à Troyes (Aube), étaient principalement composés de fumiers de vaches laitières, de fumiers de vaches à viande, de résidus de culture (paille de blé) et de déchets verts (fourrage ou tontes de pelouse selon les disponibilités). Selon les saisons, les quantités de substrats disponibles pour la méthanisation pouvaient varier, nous conduisant à définir deux mélanges types appelés mélange « hiver » et mélange « été ». Le mélange « hiver » était composé de 52%⁸ de fumiers de vaches à viande et de 48% de fumier de vaches laitières. Le mélange « été » était quant à lui composé de 32% de vache laitière, 30% de fumier de

⁸ Sauf indications contraires, ces valeurs sont exprimées en kg/kg

vache à viande, de 19% de paille de blé et de 19% de déchets verts. Après échantillonnage à Troyes, le fumier a été stocké par lots de 20 kg à -20°C tandis que la paille a été stocké dans un environnement sec à température ambiante.

Le lixiviat a été échantillonné de l'unité de méthanisation par voie sèche du GAEC du Bois-Joly (cf. chapitre 2) qui valorise principalement des fumiers de bovin. Le lixiviat a été prélevé frais quelques jours avant chaque lancement d'expérimentation, et gardé dans un local à 27°C environ.

Les modalités expérimentales (décongélation, substrats et lixiviats utilisés, ajout d'inoculum) ont évolué au cours des travaux et seront donc explicitées indépendamment pour chaque série de tests. De la même façon, les caractéristiques physico-chimiques de chaque substrat et lixiviat ont été mesurées avant chaque campagne expérimentale. Les résultats seront donc présentés à chaque nouveau paragraphe.

1.2. Le pilote de méthanisation par voie sèche

Le pilote utilisé dans ce chapitre se compose de huit cellules cylindriques indépendantes, fabriquées en acier inoxydable. Chacune d'elles dispose de son propre circuit de recirculation de lixiviat et d'un compteur à biogaz (Figure 15). La recirculation du lixiviat se fait par l'intermédiaire d'une pompe péristaltique contrôlable et à débit variable.



Figure 15 : Photo d'une partie du pilote de méthanisation par voie sèche

Le volume total d'une cellule est de 14L. Elles se divisent en deux compartiments distincts séparés d'une grille perforée (Figure 16A). Le compartiment inférieur sert à stocker le lixiviat et le compartiment supérieur permet le chargement du substrat solide, directement posé sur la grille perforée. A quelques centimètres au-dessus du substrat, une deuxième grille perforée permet la répartition du lixiviat sur toute la surface du substrat (Figure 16B). Après chargement, la cellule est plongée dans un bain thermostaté à 35°C. A un temps donné, le lixiviat est recirculé au sommet du réacteur, percole à travers le substrat et retourne dans le compartiment inférieur en attendant la prochaine recirculation.

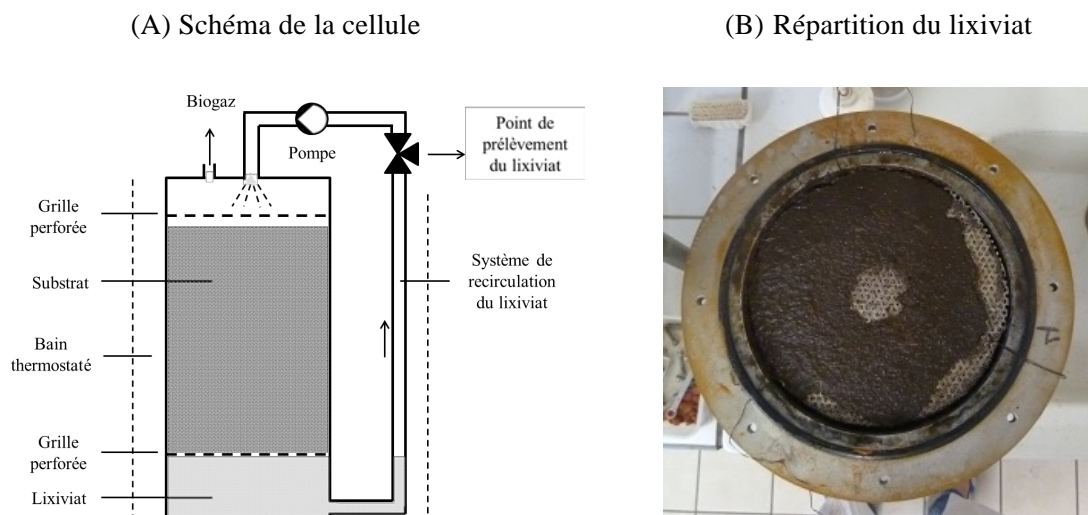


Figure 16 : (A) vue schématique d'une cellule ; (B) Vue détaillée de la répartition du lixiviat sur la grille perforée supérieure d'un réacteur

Le contrôle des pompes et les acquisitions des cinétiques de production de biogaz et des températures des bains ont été totalement automatisés par l'intermédiaire d'une centrale Agilent contrôlée grâce à un programme développé sous Labview. Les prélèvements d'AGV et de biogaz ont été réalisés manuellement et à une fréquence variable : tous les jours pendant la première semaine, puis trois fois par semaines le reste du temps. La durée d'expérimentation varie entre 28 et 56 jours selon les besoins expérimentaux. Ces durées seront précisées au début de la partie résultats concernée.

En parallèle du suivi cinétique, une station météo permet d'enregistrer, toutes les heures, les variations de températures et de pression dans le hall expérimental où se situe le pilote. Cela permet de convertir les volumes de biogaz produits en volumes normalisés à 273,15 K et 1013 mbar, pour obtenir des cinétiques les plus stables et comparables possibles.

Enfin, des bilans DCO et NTK sont calculés à la fin de chaque expérimentation afin de s'assurer qu'aucun dysfonctionnement n'a pu perturber le système et valider la fiabilité des résultats. Les bilans matières ont été calculés selon les équations suivantes :

$$\text{bilan DCO} = \frac{DCO_{sortie}^{lix} + DCO_{sortie}^{sub} + DCO^{méthane}}{DCO_{entrée}^{lix} + DCO_{entrée}^{sub}} \quad (3)$$

$$\text{bilan NTK} = \frac{NTK_{sortie}^{lix} + NTK_{sortie}^{sub}}{NTK_{entrée}^{lix} + NTK_{entrée}^{sub}} \quad (4)$$

avec $X_{entrée}^{lix}$ et $X_{entrée}^{sub}$ les DCO ou NTK du lixiviat et du substrat initialement chargés dans les réacteurs, X_{sortie}^{lix} et X_{sortie}^{sub} les DCO ou NTK du lixiviat et du substrat à la fin de l'expérimentation et $DCO^{méthane}$ la DCO dégradée et transformée en méthane pendant les expérimentations.

1.3. Les plans d'expériences

Dans ce chapitre, les plans d'expériences ont servis à identifier et optimiser les paramètres de recirculation du lixiviat influençant les cinétiques de production de méthane.

Les plans d'expériences utilisent des méthodes mathématiques et statistiques pour tirer un maximum d'informations d'un minimum d'expériences. Ils permettent donc l'étude simultanée de nombreux paramètres tout en maintenant le nombre d'essais à une hauteur raisonnable. Pour cela, on fait varier tous les paramètres à la fois pour chaque expérience, mais de manière programmée et raisonnée afin de faciliter l'étude statistique qui en découle. Les définitions apportées dans cette partie sont largement inspirées de l'ouvrage *La méthode des plans d'expériences* de Goupy (1998) où les

méthodes de calcul sont explicitées. Afin de faciliter la lecture de cette partie, quelques définitions sont rappelées puis, deux plans d'expériences particuliers (utilisés pour ces travaux) sont brièvement présentés : le plan factoriel fractionnaire à deux niveaux et le plan fractionnaire composite étoile.

1.3.1. Définitions

La méthode des plans d'expérience possédant son propre lexique, il convient d'en exposer quelques particularités :

- Les facteurs : les facteurs regroupent l'ensemble des paramètres variant lors des expérimentations. Dans notre cas, quatre facteurs seront étudiés : le volume de lixiviat recirculé, le ratio lixiviat/substrat (L/S), la périodicité entre les recirculations et la durée d'aspersion du lixiviat à chaque recirculation.
- Les niveaux : la valeur prise par un facteur lors d'une expérimentation est appelé niveau. Selon le plan utilisé, les niveaux des facteurs sont normalisés et imposés pour permettre les calculs statistiques. Pour un plan factoriel à deux niveaux, chaque facteur prendra deux valeurs : -1 et +1 (valeurs normalisées) ce qui correspond aux bornes du domaine expérimental. Pour un plan d'optimisation, chaque facteur devra être étudié sur trois niveaux au minimum.
- Le domaine expérimental : il correspond à l'amplitude de variation des différents facteurs. Pour le facteur « volume recirculé », le domaine expérimental est par exemple compris entre 200 mL et 1000 mL (ou -1 et 1).
- Les réponses : les réponses sont définies comme les éléments d'intérêt sur lesquels les facteurs peuvent avoir une influence. Ici, les réponses étudiées peuvent être le volume de méthane produit, le temps de démarrage de la digestion anaérobie,...

- Les interactions : l'effet des interactions entre deux facteurs sur une réponse sont également évaluées par la méthode des plans d'expérience. Les interactions représentent la faculté d'un facteur à exacerber ou contre balancer l'effet d'un ou plusieurs autres facteurs sur une réponse donnée. Par exemple, pour un plan complet avec 3 facteurs, A, B et C, les interactions calculées pourront donc être AB, AC, BC (interactions de niveau 2) mais aussi l'interaction ABC (interaction de niveau 3).

Selon le plan d'expériences choisis, les facteurs, le domaine expérimental et surtout la combinaison des niveaux de chaque facteur (chaque combinaison correspond à un essai) peuvent être différents.

1.3.2. Plan factoriel à fraction irrégulière à deux niveaux

Les plans factoriels fractionnaires à deux niveaux font partie des plans permettant de rechercher les facteurs influents. Ceux-ci ne nécessitent que peu d'essais. Ces plans sont des plans dits de screening qui ont la particularité d'être des plans linéaires. Cela signifie qu'à la question « le facteur A a-t-il un effet sur la réponse X ? » ce type de plan permettra simplement de répondre « oui » ou « non », sans permettre une optimisation de la réponse X.

Contrairement à un plan complet, le plan fractionnaire permet de diminuer le nombre des essais en faisant l'hypothèse que les interactions de niveau 3 et plus n'ont pas d'influence sur les réponses étudiées⁹. C'est ce type de plan qui a été utilisé pour définir les facteurs influençant les cinétiques et la production cumulée de méthane. Plusieurs modifications ont cependant été apportées afin de répondre au mieux aux spécificités de cette étude.

Tout d'abord, comme précisé précédemment, un plan factoriel est un plan qui calcule des effets linéaires sur une réponse or, rien ne permet de savoir si les effets sont bien linéaires sur le

⁹ NB : pour évaluer l'effet de N facteurs et interactions, il est nécessaire d'effectuer au minimum N essais afin d'obtenir N équations à N inconnues. Diminuer le nombre d'interactions à étudier revient donc à diminuer le nombre d'expériences à réaliser.

domaine expérimental choisi. Pour s'en assurer, deux points supplémentaires ont été ajoutés au centre du domaine expérimental. Ces points correspondent au niveau 0 (niveau normalisé).

Par ailleurs, un plan fractionnaire classique permet d'étudier le système en 12 essais. Les deux points supplémentaires portent le nombre d'essais à réaliser à 14 expériences. Mais le pilote qui a été construit ne permet de réaliser que 8 essais en parallèle. Cela signifie que deux séries ont été nécessaires pour étudier tous ces facteurs. Comme le lixiviat utilisé pour chaque série était frais, réaliser 2 séries différentes implique d'utiliser 2 lixiviats différents. Afin de s'assurer que la différence de lixiviat n'avait pas ou peu d'effet sur les réponses étudiées, des répétitions devaient être faites entre les deux séries. Les points centraux ont donc été répétés (niveau 0), ce qui rajoute deux nouveaux points à l'étude.

Finalement le plan proposé comprend 16 essais, soit deux séries de 8 essais. Les détails du domaine expérimental choisi et des essais réalisés sont donnés dans le paragraphe 2.3.1.1 de la partie résultats (Tableau 14, page 148, et Tableau 15, page 149).

La construction du plan et l'analyse résultats ont été réalisées avec le logiciel Statgraphics. A partir des réponses mesurées, un modèle est calculé sous forme d'une équation polynomiale permettant de décrire l'influence de chaque facteur sur les variations de la réponse étudiée. Pour un plan factoriel à fraction irrégulière étudiant 4 facteurs à 2 niveaux, l'équation générale d'une réponse y s'écrit comme suit :

$$y = \beta_0 + \beta_1x_1 + \beta_2x_2 + \beta_3x_3 + \beta_4x_4 + \beta_{12}x_{12} + \beta_{13}x_{13} + \beta_{14}x_{14} + \beta_{23}x_{23} + \beta_{24}x_{24} + \beta_{34}x_{34} \quad (5)$$

avec x_i les niveaux normalisés de chaque facteur, x_{ij} les interactions entre facteurs et β_i ou β_{ij} les coefficients du modèle décrivant les effets de chaque variable x_i ou x_{ij} . Le signe et la valeur des coefficients β_{ij} donnent une indication sur l'effet du facteur correspondant.

Pour chaque coefficient, une analyse de variance (ANOVA) est effectuée afin d'évaluer la significativité de l'effet d'un facteur ou d'une interaction. Le coefficient le moins significatif est écarté

du modèle puis le calcul est de nouveau effectué. Cette opération est répétée jusqu'à n'obtenir que des coefficients significatifs, qui sont donc les facteurs influents. Dans cette étude, les coefficients ont été déterminés comme significatif pour $p < 0,2$. Ce seuil a été choisi compte tenu des résultats de répétabilité des réacteurs (Goupy, 1998). Une justification plus complète de ce choix est donnée dans le paragraphe 2.2.

Afin de s'assurer du caractère non linéaire des réponses un test de « manque d'adéquation » a été réalisé. Celui-ci est conçu pour déterminer si le modèle sélectionné est adéquat pour décrire les données observées ou si un modèle plus compliqué doit être utilisé. Ce test est effectué en comparant la variabilité des résidus du modèle actuel à la variabilité entre les observations pour des valeurs répétées des facteurs. Si la valeur de la probabilité pour le test de « manque d'adéquation » est supérieure ou égale à 0,2, le modèle est considéré comme adéquat pour les données observées au niveau de confiance de 80%.

Ce plan d'expérience a permis de déterminer les différents facteurs influents et la poursuite de l'étude a été d'optimiser les réponses grâce à un plan de surface de réponse.

1.3.3. Plan fractionnaire composite étoile

Un plan fractionnaire composite étoile est un plan de surface de réponse. Ce type de plan permet de modéliser une réponse en fonction des facteurs étudiés en prenant en compte les effets quadratiques des facteurs, c'est-à-dire pour un facteur A, les interactions AA (ou A^2). Concrètement, les termes quadratiques A^2 permettent de modéliser les maximums ou minimums de certaines réponses, contrairement aux plans linéaires. Ces termes permettent également de décrire le comportement d'une réponse aux bornes du domaine expérimental.

Pour construire un tel plan d'expérience, plusieurs niveaux sont nécessaires. Dans ce cas précis, 5 niveaux (variant entre -1,68 et +1,68) sont requis pour chaque facteur afin d'obtenir un modèle fiable. Tout comme le plan de screening précédent, les interactions de niveau 3 et plus sont négligées. Les modalités de construction de ce plan (facteurs, domaine expérimental, point au centre, nombre d'essai...) sont explicitées dans le paragraphe 2.3.2.2.4.

2. Résultats

Ce paragraphe est divisé en quatre parties. La première présente les toutes premières acquisitions de cinétiques pour différents substrats agricoles. Ce travail avait pour simple objectif de se familiariser avec le procédé de digestion anaérobie par voie sèche, en adaptant des respiromètres aérobies existants (Tremier et al., 2005), afin d'évaluer la faisabilité d'une mise en place d'un tel système et de cerner les besoins pour le suivi d'un maximum de paramètres. La structure des réacteurs (deux compartiments superposés) était semblable à ceux présentés dans le paragraphe 1.2. A la suite de cela, un pilote dédié (présenté au paragraphe 1.2) a été construit avec, comme différence principale, l'ajout d'un point de prélèvement du lixiviat. La deuxième partie de ce paragraphe présente les tests de répétabilité effectués sur ce nouveau pilote. Puis, les travaux sur l'optimisation de la recirculation ont pu commencer avec, en troisième partie, les résultats du plan de screening et en quatrième et dernière partie, les résultats du plan de surface de réponse (sous forme d'article soumis à la revue *Bioresource Technology*).

2.1. Exemple de cinétiques de production de méthane pour différents substrats agricoles

2.1.1. Présentation de l'expérience

Pour ces premiers essais, cinq substrats agricoles ont été méthanisés en parallèle : du fumier de vache à viande, du fumier de vaches laitières, du le paille de blé, un mélange « hiver » et un mélange « été » (Tableau 9). Pour le mélange « été », du foin a été utilisé comme déchet vert.

Chaque substrat a été mélangé à 5% (kg/kg) d'inoculum solide, provenant de l'unité de méthanisation du GAEC du Bois-Joly (Vendée). Après chargement du solide, 3 kg de lixiviat ont également été ajoutés à chaque cellule.

Tableau 9 : Détails des substrats solides introduits dans chaque réacteur

	Réacteur 1 (R1)	Réacteur 2 (R2)	Réacteur 3 (R3)	Réacteur 4 (R4)	Réacteur 5 (R5)
Inoculum solide (kg/kg)	5	5	5	5	5
Fumier de vache laitière (kg/kg)	0	95	0	46	31
Fumier de vache à viande (kg/kg)	95	0	0	49	29
Paille de blé (kg/kg)	0	0	95	0	17
Foin (kg/kg)	0	0	0	0	18
Masse totale de solide (kg)	2,5	2,5	0,5	2,5	1,3
Ratio L/S	1,2	1,2	6,0	1,2	2,3

Les substrats utilisés dans cette partie ont été décongelés 10 jours avant le début des expérimentations et stockés à 4°C en attendant le lancement des réacteurs. Le lixiviat a été prélevé 7 jours auparavant et stocké dans une pièce à 27°C. Les caractéristiques physico-chimiques des substrats sont présentées dans le Tableau 10.

Tableau 10 : Caractéristiques physico-chimiques des substrats

	Lixiviat	Vaches à viande	Vache laitière	Paille de blé	Foin	Mélange "hiver"	Mélange "été"
MS (%)	5.4	24.3	25.9	89.3	88.5	24.6	52.6
MV (%)	3.3	20.5	22.1	83.7	79.5	20.4	47.0
C/N	4	26	24	104	20	24	28
DCO (gO ₂ /g)	62.0	0.27	0.27	1.0	1.0	0.2	0.5
NTK (g/kg)	3.7	1.4	1.6	4.6	19.8	5.3	5.6
N-NH ₄ ⁺ (g/kg)	1.9	0.1	0.1	0.0	0.3	0.4	0.1
BMP (NL/kg _{VS})	/	265	239	235	237	317	298

Toutes les heures, 500 mL de lixiviat ont été recirculé. A chaque recirculation, ce volume a été distribué en 20 secondes. L'enregistrement des données a commencé tout de suite après la première recirculation et a duré 56 jours.

2.1.2. Les performances de la digestion anaérobie par voie sèche de différents substrats agricoles

La Figure 17 présente les cinétiques de production de méthane pour les cinq substrats agricoles testés. Toutes les cinétiques montrent des profils similaires que l'on peut diviser en deux parties. La première partie se compose d'une production de méthane intense avec deux pics de production de méthane. La deuxième partie des profils montre une longue période de faibles productions de méthane. Selon le substrat, la première partie peut durer plus ou moins longtemps et les vitesses de production peuvent être plus ou moins intenses de façon à distinguer trois profils types.

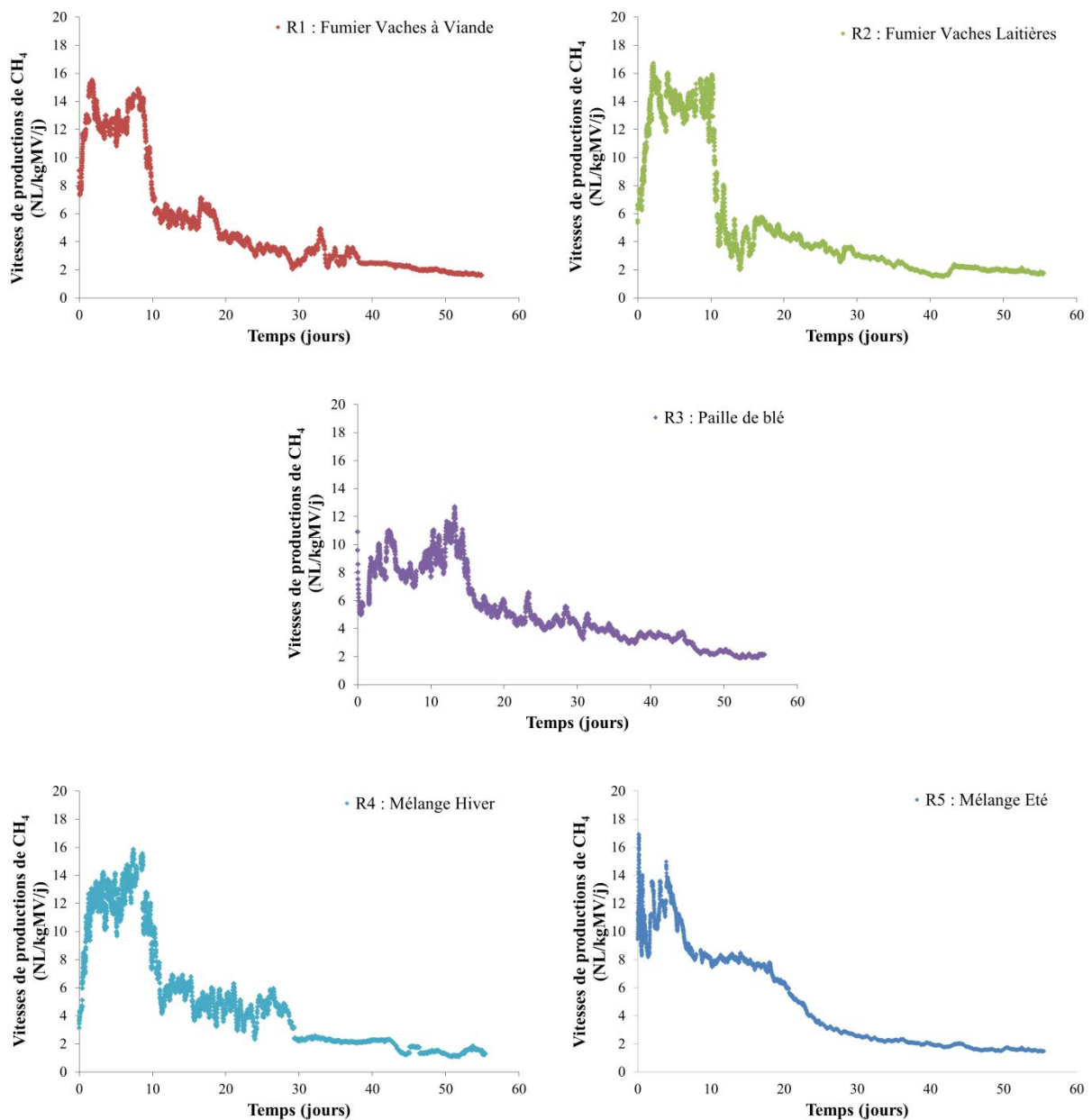


Figure 17 : Cinétiques de production de méthane de différents substrats agricoles

Les réacteurs chargés avec des fumiers de bovins montrent par exemple des profils très similaires (réacteurs R1, R2 et R6). Les vitesses de productions de méthane, mesurées pendant les premières parties des profils (phase la plus intense), varient entre 10 et 16 $\text{NL.kgMV}^{-1}.\text{j}^{-1}$ pour les réacteurs 1, 2 et 5, c'est-à-dire les réacteurs chargés avec du fumier de vache à viande, du fumier de vache laitière ou avec le mélange « hiver », mélange des deux fumiers précédemment cités. Ces vitesses de production élevées restent stables jusqu'au 8^e jour.

Le réacteur 3, chargé avec de la paille de blé, montre une production de méthane beaucoup moins intense que les fumiers de bovins. En effet, après chargement, les vitesses de production varient entre 8 et 12 $\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}.\text{j}^{-1}$ contre 10 et 16 $\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}.\text{j}^{-1}$ pour les fumiers. Par ailleurs, la chute de production débute après le 15^e jour soit 5 jours après les fumiers de bovins.

Le réacteur 4, contenant le mélange « été » montre une cinétique hybride, qui se situe entre les cinétiques des fumiers de bovin et celle de la paille. Dans ce cas, un premier pic très instable, variant entre 8 et 17 $\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}.\text{j}^{-1}$, se produit entre le lancement et le 9^e jour de suivi. S'en suit un deuxième pic peu intense ($8 \text{ NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}.\text{j}^{-1}$) qui dure jusqu'au 23^e jour environ.

Du point de vue des productions de méthane cumulées, les résultats ne permettent pas de dégager une tendance : pour les fumiers de bovin, le volume cumulé de méthane varie entre 245 et 272 $\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}$, il est de 265 $\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}$ pour la paille de blé et de 284 $\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}$ pour le mélange « été » (Tableau 11). L'absence de réplicats ne permet pas de dire si ces variations sont significatives ou non. Cependant, il est intéressant de noter que tous les substrats ont exprimés entre 86 et 113% de leur BMP, ce qui montre qu'aucun réacteur n'a souffert d'inhibition malgré des ratios C/N parfois élevés, comme c'est le cas avec la paille de blé (ratio C/N de 104). Ceci peut s'expliquer par l'apport d'azote venant du lixiviat qui abaisse le ratio C/N du système « lixiviat-paille » global à 21.

Tableau 11 : Production de méthane cumulée selon le substrat valorisé

	Substrat	Volume cumulé de méthane ($\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}$)	BMP exprimé (%)
Réacteur 1	Fumier de vache à viande	245	92
Réacteur 2	Fumier de vaches laitières	264	110
Réacteur 3	Paille de blé	265	113
Réacteur 4	Mélange « hiver »	272	86
Réacteur 5	Mélange « été »	284	95

Cette expérience préliminaire a montré (i) qu'il existe des cinétiques de dégradation typiques pour les fumiers et les substrats riche en biomasse lignocellulosique et (ii) que les réacteurs envisagés pour les expérimentations à venir étaient adaptés au suivi cinétique des productions de méthane. Par ailleurs, il apparait clairement que seuls les 20 premiers jours de production de méthane sont

primordiaux, ce qui permet de restreindre le suivi expérimental à quatre semaines. De plus, un point de prélèvement du lixiviat a été rajouté au système afin de pouvoir suivre la production d'AGV au cours du temps.

2.2. Performances du pilote de digestion anaérobie

Suite à la construction du pilote et afin d'évaluer l'incertitude de mesures, des tests de répétabilité ont été effectués sur le mélange « hiver ». Pour ces essais, les échantillons ont été décongelés 2 jours avant le début des expérimentations. Chaque digesteur a été chargé avec 2,5 kg du mélange, 3 litres de digestat liquide provenant d'un réacteur interne, digérant du lisier porcin et de l'aliment pour cheval, mais sans ajout d'inoculum solide. Pour cette expérimentation, la recirculation a été conduite suivant cette configuration : 500 mL de lixiviat recirculés en 20 secondes, un fois par heure. L'enregistrement des données a démarré avec la première recirculation, et a duré 29 jours comme précisé au paragraphe précédent.

Le Tableau 12 résume les performances globales de chaque réacteur avec la présentation des volumes cumulés de méthane, le taux de dégradation de la matière organique, le bilan DCO et le bilan NTK. Pendant les 29 jours de suivi, les réacteurs ont produit $121,3 \pm 11,3 \text{ NL.kg}_{MV}^{-1}$ de méthane, ce qui représente un coefficient de variation de 9%. En moyenne, cela représente une dégradation de la MV de 31% avec un coefficient de variation également de 9%. En ce qui concerne les bilans matière, le bilan DCO variait entre 89 et 103% et le bilan NTK entre 94 et 102% selon les réacteurs. Ces bilans ne mettaient en évidence aucun dysfonctionnement (fuite de lixiviat ou de biogaz par exemple). De façon générale, les répétabilités sont tout à fait acceptable pour ce type de pilote.

Tableau 12 : Analyse des performances des réacteurs

Réacteur	Volume de CH ₄ cumulé ($\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}$)	Dégradation de MV (%)	Bilan DCO (%)	Bilan NTK (%)
R1	120,2	28	103	102
R2	121,2	28	99	98
R3	106,9	28	103	94
R4	129,9	33	101	97
R5	123,8	31	98	100
R6	127,4	34	94	102
R7	136,9	30	100	100
R8	104,3	34	89	100

Les répétabilités, du point de vue cinétique, ont également été étudiées (Figure 18). Afin de calculer un coefficient de variation significatif, chaque courbe a été traitée séparément. Une moyenne de la vitesse de production de méthane a été calculée pour chacun des 29 jours de suivi et pour un réacteur, permettant ainsi l'obtention d'une nouvelle courbe de 29 points pour chacun des réacteurs. Le coefficient de variation a ensuite été calculé pour chaque jour de suivi et sur l'ensemble des 8 réacteurs. Une exception a été faite pour le réacteur 8 dont la production n'a pas été enregistrée pendant 3 jours à cause d'une panne de compteur survenue lors d'un week-end. Pour ces trois jours-là, le calcul du coefficient de variation a été fait sur les 7 réacteurs restants. Les résultats ont montré que les vitesses de production de méthane varient entre 7 et 16% selon le jour pris en compte. La plus forte variation a été enregistrée pour le jour 13, variation facilement détectable à l'œil à la Figure 18. Les variations les plus faibles ont quant à elles été enregistrées les jours 2 et 4.

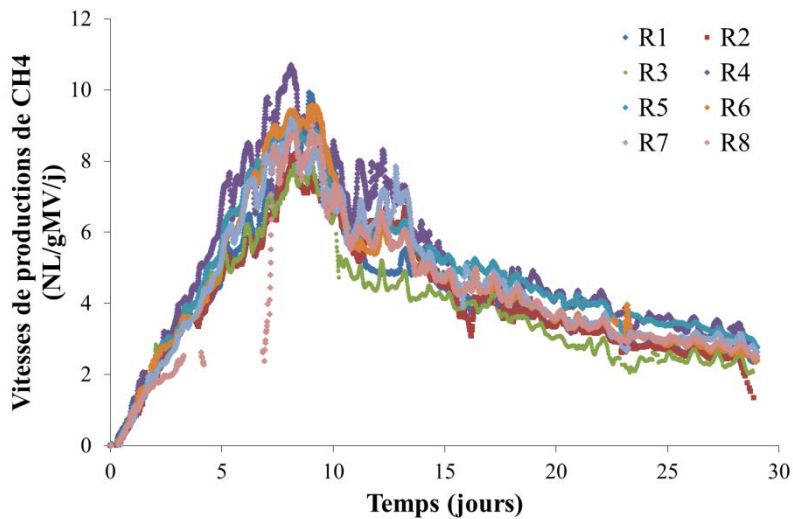


Figure 18 : Répétabilité des cinétiques de production de méthane pour le mélange « hiver »

Les tests de répétabilité ont montrés des résultats très satisfaisants qui permettront une analyse fiable des plans d'expériences pour l'optimisation de la recirculation du lixiviat.

2.3. Optimisation de la recirculation du lixiviat

L'objectif de ces travaux était d'identifier la combinaison des facteurs qui permettrait de maximiser et stabiliser la production de méthane sur une période définie. Pour cela, un plan d'optimisation a été mis en place. En considérant les quatre facteurs à étudier (temps écoulé entre les recirculations, volume recirculé, ratio L/S et temps d'aspersion) et un minimum de 3 niveaux pour chaque facteur, cela revient à effectuer $3^4 = 81$ essais. Le temps de séjour des solides retenu étant de 4 semaines, il était nécessaire d'effectuer des expérimentations préliminaires afin d'éliminer les facteurs non influents et ainsi diminuer le nombre d'essais nécessaires à cette étude.

2.3.1. Détermination des facteurs influençant la production de méthane

Ce paragraphe présente la démarche et les résultats relatifs au plan d'expérience factoriel fractionnaire (plan de screening) permettant de définir les facteurs influençant les cinétiques de production de méthane.

2.3.1.1. Démarche expérimentale

Le plan d'expérience choisit a été réalisé en 2 séries distinctes (cf. paragraphe 1.3.2). Pour chaque série, du lixiviat frais a été échantillonné au GAEC du Bois-Joly 3 à 4 jours avant le lancement de l'expérimentation et gardé dans une enceinte à 27°C. Le mélange « hiver » utilisé a été préparé le matin du lancement avec des substrats décongelés 2 jours plus tôt. Les paramètres physico-chimiques des substrats sont présentés dans le Tableau 13 pour les deux séries d'expérimentations.

Tableau 13 : Caractéristiques physico-chimiques des substrats et lixiviats utilisés pour le plan de screening

		pH	TS g/Kg	VS g/Kg	DCO gO2/Kg	NH4 gN/kg	TKN gN/Kg	BMP NL/Kg _{VS}
Série 1	Mélange « hiver »	-	264	217	316	0,16	4,04	317
	Lixiviat	8,2	32	17	43	1,52	2,49	-
Série 2	Mélange « hiver »	-	276	222	342	0,23	3,87	317
	Lixiviat	8,1	23	10	20	1,31	1,92	-

Le domaine expérimental, régissant les variations des paramètres de recirculation, est résumé dans le Tableau 14. La périodicité de recirculation (temps entre deux recirculations) varie entre 1 et 48 heures, le volume recirculé entre 200 et 1 000 millilitres, la durée d'aspersion est comprise entre 20 et 300 secondes et le ratio L/S (lixiviat/substrat) entre 0,8 et 1,2, selon les essais.

Tableau 14 : Domaine expérimental pour chaque facteur étudié avec le plan factoriel à fraction irrégulière

Niveaux normalisés		Valeurs réelles correspondantes			
		Périodicité (heures)	V recirculé (mL)	Durée d'aspersion (s)	L/S (kg/kg)
niveau bas	-1	1	200	20	0,8
centre	0	24.5	600	160	1
niveau haut	+1	48	1000	300	1,2

Les paramètres de recirculation relatifs à chaque essai sont listés dans le Tableau 15. Ils ont été déterminés avec le logiciel Statgraphics, qui impose également un ordre aléatoire des essais. Le suivi des productions de méthane a duré 29 jours et a commencé dès la première recirculation.

En parallèle, la production de méthane du lixiviat seul a été enregistrée afin de soustraire cette dernière à la production de méthane totale brute mesurée pour chaque réacteur, qui correspond au système « lixiviat/substrat », comme indiqué au chapitre 2.

Les réponses suivies étaient au nombre de quatre et sont explicitées au paragraphe 2.3.2.2.5. Elles comprennent : le volume cumulé de méthane dû aux fumiers, le nombre de jours écoulés avant le début du plateau, la durée du plateau et la vitesse de production moyenne du plateau. L'analyse statistique des résultats a été effectuée avec le logiciel Statgraphics.

Tableau 15 : Liste des essais pour le plan factoriel fractionnaire (plan de screening)

Essai	Niveaux normalisés				Valeurs réelles				
	Périodicité	Volume recirculé	Durée d'aspersion	L/S	Périodicité (heures)	Volume recirculé (mL)	Durée d'aspersion (s)	L/S (kg/kg)	
Série 1	1	-1	-1	1	-1	1	200	300	0,8
	2	1	-1	-1	1	48	200	20	1,2
	3	-1	-1	1	1	1	200	300	1,2
	4	0	0	0	0	24,5	600	160	1
	5	0	0	0	0	24,5	600	160	1
	6	-1	1	1	1	1	1000	300	1,2
	7	1	-1	1	-1	48	200	300	0,8
	8	-1	-1	-1	-1	1	200	20	0,8
Série 2	9	-1	1	-1	1	1	1000	20	1,2
	10	1	1	1	1	48	1000	300	1,2
	11	-1	1	-1	-1	1	1000	20	0,8
	12	0	0	0	0	24,5	600	160	1
	13	1	1	-1	-1	48	1000	20	0,8
	14	-1	1	1	-1	1	1000	300	0,8
	15	0	0	0	0	24,5	600	160	1
	16	-1	-1	-1	1	1	200	20	1,2

2.3.1.2. Analyse des résultats

La Figure 19 donne un exemple de cinétiques de production de méthane pour deux combinaisons de niveaux des facteurs (essais 4 et 6). Selon l'essai, on remarque clairement que les réponses (début du plateau, durée du plateau et vitesse moyenne de production du plateau) varient d'un essai à l'autre. Mais sans analyse statistique, il n'est pas possible de déterminer quel(s) paramètre(s) influent le plus.

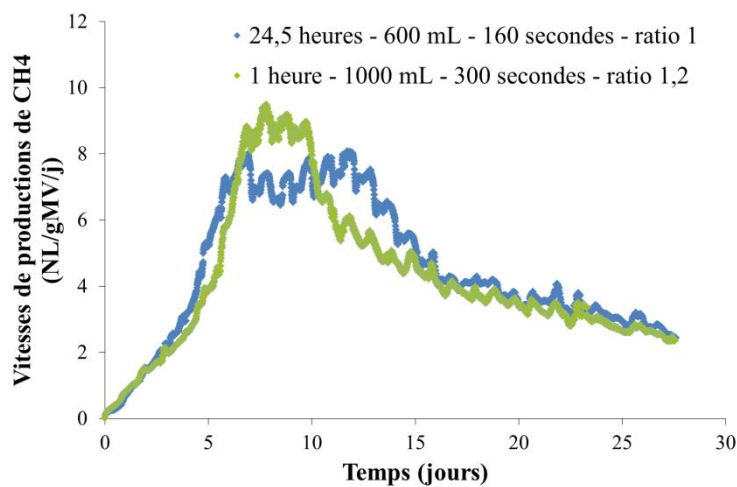


Figure 19 : Exemple de cinétiques de production de méthane pour les essais 4 (bleu) et 6 (vert)

Par souci de clarté, le reste des résultats est présenté sous forme de tableau (Tableau 16). Avant de commencer l'analyse du plan avec Statgraphics, il est nécessaire de s'assurer que la différence de lixiviat entre les séries 1 et 2 n'a pas influencé les cinétiques de production de méthane. Compte tenu des tests de répétabilité le coefficient de variation entre les 8 réacteurs pour le volume de méthane cumulé est de 9%. Dans le cas du plan de screening, ce coefficient est de 7% pour les points centraux, c'est-à-dire les essais 4, 5, 12 et 15. Ces essais sont donc très répétables malgré la différence de lixiviat, ce qui montre que les variations mesurées ne sont pas dues au changement de lixiviat.

Le test de « manque d'adéquation » a également été réalisé sur chacune des quatre réponses étudiées (Tableau 17) afin de valider l'utilisation du plan factoriel fractionnaire. Les résultats montrent

que le plan choisi permet de restituer correctement les variations observées c'est-à-dire que sur le domaine expérimental étudié, les réponses sont bien linéaires.

Les premiers contrôles donnant des résultats satisfaisants, l'analyse statistique complète du plan de screening peut être réalisée.

Tableau 16 : Synthèse des réponses observées pour chaque essai

Essai	Méthane cumulé ($\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}$)	Début du plateau (i ^e jour)	Durée du plateau (jours)	Vitesse moyenne du plateau ($\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}.\text{j}^{-1}$)
1	110,1	6,1	5,3	6,6
2	122,1	5,6	8,0	6,3
3	101,1	6,5	3,9	6,9
4	115,4	5,6	7,4	6,9
5	121,9	6,0	6,5	7,5
6	107,9	6,5	3,3	8,1
7	109,5	5,7	8,5	6,3
8	97,6	6,0	4,9	6,7
9	127,2	6,5	5,2	9,1
10	112,2	5,4	10,4	5,7
11	105,8	5,3	7,7	6,9
12	123,2	5,2	7,0	8,2
13	136,0	5,2	8,6	7,1
14	126,1	6,2	6,1	7,4
15	105,8	5,7	7,7	6,5
16	118,0	7,1	3,9	7,3

Les coefficients du modèle calculé par Statgraphics ainsi que leurs significativités sont présentés dans le Tableau 17. Ces résultats montrent que la périodicité de recirculation du lixiviat, le volume recirculé et le ratio L/S ont une influence sur une ou plusieurs réponses étudiées. A l'inverse, le temps d'aspersion du lixiviat n'a d'influence sur aucune des réponses pour le domaine expérimental considéré. L'étroitesse de ce domaine (variations entre 20 secondes et 5 minutes) peut expliquer cette absence d'influence.

Tableau 17 : Coefficients et significativités des réponses modélisées

	Méthane cumulé ($\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}$)		Début du plateau (i ^e jour)		Durée du plateau (jours)		Vitesse moyenne du plateau ($\text{NL.kg}_{\text{MV}}^{-1}.\text{j}^{-1}$)	
	Coefficient	p-value	Coefficient	p-value	Coefficient	p-value	Coefficient	p-value
Constante	115,0		5,8	-	7,0	-	7,0	-
P	-	-	-0,4	0,0016	1,9	0,0001	-0,5	0,0467
V_{recirc}	4,7	0,0759	-	-	0,6	0,0352	0,4	0,1145
t_{recirc}	-	-	-	-	-	-	-	-
L/S	-	-	0,2	0,0780	-0,3	0,2096	-	-
$P \leftrightarrow V_{\text{recirc}}$	-	-	-	-	-	-	-	-
$P \leftrightarrow t_{\text{recirc}}$	-	-	-	-	-	-	-	-
$P \leftrightarrow L/S$	-	-	-0,2	0,1171	0,6	0,0269	-	-
$V_{\text{recirc}} \leftrightarrow t_{\text{recirc}}$	-	-	-	-	-	-	-	-
$V_{\text{recirc}} \leftrightarrow L/S$	-	-	-	-	-	-	-	-
$t_{\text{recirc}} \leftrightarrow L/S$	-	-	-	-	-	-	-	-
R ² (%)	16	-	68	-	89	-	37	-
« Manque d'adéquation »	-	0,7290	-	0,3960	-	0,2307	-	0,4257

Pour la suite des travaux, le temps d'aspersion ne sera donc plus étudié. Cependant, le domaine expérimental, pour toutes les réponses étudiées, devra être étendu. En effet, il a été montré que les réponses peuvent être modélisées sous la forme d'une équation linéaire. Cela signifie qu'aucun « puit de potentiel » (maximum ou minimum) n'a été détecté et que les optima, s'ils existent, se trouvent sur un autre domaine expérimental. Ces observations ont été prises en compte pour la construction de plan de surface de réponse.

2.3.2. Effet de la recirculation sur la forme des cinétiques

Ce paragraphe présente, sous forme d'article scientifique soumis à Bioresource Technology, la mise en place et l'analyse du plan de surface de réponse. Dans cette partie, les effets de chaque facteur sont explicités en prenant en compte les différents mécanismes biologiques, chimiques et physiques, en action dans un réacteur de méthanisation.

Un nouvel échantillonnage a été effectué à Troyes avant la mise en place de ces nouvelles expérimentations. Les caractéristiques physico-chimiques de ces fumiers sont explicitées dans l'article qui suit.

Dynamic effect of leachate recirculation on batch mode solid state anaerobic digestion: influence of recirculated volume, liquid to solid ratio and recirculation periodicity

Axelle Degueurce^{a,b}, Anne Trémier^{a,b}, Pascal Peu^{a,b,*}

^a Irstea, UR GERE, 17 av. de Cucillé, CS 64427, F-35044 Rennes, France

^b Université Bretagne Loire, F-35044 Rennes, France

* Corresponding authors: e-mail: pascal.peu@irstea.fr

Tel: +33223482121; Fax: +33223482115

ABSTRACT (100-150 mots)

Leachate recirculation practice is a key parameter to control batch mode solid state anaerobic digestion (SSAD). Three parameters were identified to particularly influence methane production rates (MPR) and methane yields: the recirculation periodicity (elapsed time between two recirculations), the leachate to substrate (L/S) ratio and the recirculated volume. A central composite factor design was set up to determine the influence of each parameter on methane production. Results showed that increasing the elapsed time between two recirculations led to decreasing methane yields. This effect can be counteracted if a high volume of leachate is recirculated at a low L/S ratio. Moreover, a steady methane production can be reached when recirculating low amounts of leachate, over a long period without recirculation, regardless to the L/S ratio. Nevertheless, several combinations of those parameters led to similar performances meaning that leachate recirculation practices can be modified considering particular constraints due to SSAD plants configurations.

Keywords: Leach-bed reactor; Methane production kinetics; Design of Experiment; Cattle manure

2.3.2.1. *Introduction*

According to Guo et al. (2015), 6% of the global primary energy demand could be covered by the anaerobic digestion (AD) of organic waste (manures, crop residues, municipal organic solid refuse, food processing waste, and sewage sludge). Depending on their total solid (TS) content, organic waste could be valorised through liquid or solid state AD processes. Solid state anaerobic digestion (SSAD) is particularly efficient to valorise substrates with a TS content over 15% (w/w) (Mata-Alvarez et al., 2000). Thus, SSAD has become an attractive way to valorise agricultural biomass and waste with high TS content (Weiland, 2006).

High TS contents in solid wastes imply high heterogeneity of these substrates and difficulties to evenly distribute microorganisms and nutrients across the solid which leads to low methane yields. Classical mixing techniques used in liquid anaerobic digestion are not suitable for mixing solid substrates. Dedicated processes as SSAD were developed to solve that problem. Among existing SSAD processes, the batch mode process with the recirculation of a liquid phase - called leachate – has the advantages of being robust, with low investment costs, low instrumentation and requires low maintenance (Vandevivere et al., 2002). These characteristics are particularly interesting for farmers who have limited financial resources and time for a side activity but have plenty of agricultural wastes.

However, the main disadvantage of this process comes from the unstable production of methane. To achieve biogas production as constant as possible, at least three fermenters must be operated in parallel with different start-up times (Weiland, 2010). Even with that configuration, methane productions are not uniform showing very high methane production rate periods when a digester is freshly reloaded, and quite lower methane production rate periods, before one digester's reloading. On the field, operators must deal with the constraints of biogas injection to combined heat and power units or directly to gas network. In the case of combined heat and power units, overproduced methane during high methane production periods should be burnt while under-production periods may cause engine shutdown. Once the unit is built up, the only parameter that could be controlled to avoid this phenomenon is the leachate recirculation mode.

Even if no information could be found directly on the influence of leachate recirculation on methane production rates (whatever the type of waste considered), it was proven that leachate recirculation could improve cumulated methane volumes during AD (Sponza & Ağdağ, 2004). This phenomenon is attributed to different mechanisms. From a physical point of view, leachate recirculation enhances moisture content of the substrate and thus, mass transfer and organic matter's accessibility (Chugh et al., 1998; Martin, 1999; Yang et al., 2015). It also prevents possible failures by diluting inhibitory compounds (Sanphoti et al., 2006). From a biological point of view, increasing moisture content, improves microorganisms growth (Pommier et al., 2007) and particularly methanogens growth (Lay et al., 1997). However, intensive recirculation can also lead to inhibition because of volatile fatty acids (VFA) or ammonia accumulation (Sponza & Ağdağ, 2004; Xu et al., 2014a) and discontinuous recirculation is preconized over continuous recirculation (Kusch et al., 2012). According to the literature, several parameters of recirculation can affect methane yields: leachate to substrate ratio, volume of leachate recirculated or periodicity between recirculations.

Many authors studied the effect of leachate to substrate ratio (L/S ratio) during SSAD over the past decade. For the digestion of corn stover, in batch digesters with introduction of leachate for inoculation but without recirculation, the best performances were obtained for L/S ratios of 0.45 and 0.50 (kg_{VS}/kg_{VS}) (Shi et al., 2013; Xu et al., 2013). Reactors with lower L/S ratios (between 0.17 and 0.25) suffered from VFA accumulation until the complete inhibition. In the case of LBRs, L/S ratios varied from one article to another, depending on the substrate digested. For municipal solid waste (MSW), Chugh et al. (1998) preconized a ratio of 0.3 (volume) while Sponza and Ağdağ (2004) observed higher methane yields for a ratio of 0.1 (volume). Xu et al. (2014b) found no significant influence of L/S ratios (tested ratios: 0.5 and 1 (kg/kg)) when digesting food waste. For ensiled maize and cattle manure, Kusch et al. (2012) and Korazbekova and Bakhov (2014) used a L/S ratio of 0.5 and 3.1 (kg/kg) respectively without further justifications.

For several of the studies cited above, the volume of leachate recirculated is the same than the volume initially added for L/S ratio, inducing confusion between the influences of each parameter. Volume recirculated is commonly assumed to help reaching a uniform moisture content and temperature in the reactor (Benbelkacem et al., 2010; Chugh et al., 1998) while transporting nutrient

from and to microorganisms (Martin, 1999). Initial volume, on the other hand, may influence concentration of inhibitory substances and quantity of microorganisms available for SSAD start-up (Chugh et al., 1998; Liew et al., 2012). Because the recirculated volume and initial L/S ratio have never been uncoupled in the previously cited studies, the assumption concerning the effect of these parameters is not clear and more investigations are needed to highlight their influence during SSAD.

Periodicity between two recirculations may also influence moisture content in the solid mass of the reactor and thus, it may modify methane production yields. Many recirculation practices are given in the literature and, most of the time, without justifications. For example, when digesting MSW, Chugh et al. (1998) recirculated leachate once a day while Benbelkacem et al. (2010) recirculated once a week. For ensiled maize and cattle manure, Kusch et al. (2012) and Korazbekova and Bakhov (2014) imposed a recirculation twice a day and once every two hours, respectively. Xu et al. (2014a) tested two different periodicities on SSAD of food waste (once or twice a day) without any significant differences on the performances of reactors. In that latter study, experimental domain is very narrow and, considering the various conditions used in other previously cited studies (a recirculation once every two hours to once a week), studying a wider range of elapsed time between two recirculation may be of valuable interest.

In conclusion, it is widely admitted that leachate recirculation influences SSAD. Nevertheless, several parameters of recirculation are not fully understood or have not been studied, and particularly their interactions. The aim of this paper was thus to further investigate the influence of L/S ratio, recirculated volume and recirculation frequency, as well as the interactions between those parameters on methane production rates of SSAD of cattle manure, using a central composite factor design.

2.3.2.2. Materials and methods

2.3.2.2.1. Characteristics of manure, leachate and digestate

Dairy cow manure and beef cow manure were sampled from a conventional farm located close to Troyes (Aube, France). Each kind of manure was divided in bags of 20 kg and stored at -20°C

before the experiment began. Fresh leachate was sampled from an agricultural SSAD biogas plant located in La Verrie (Vendée, France), operated in batch mode and fed with dairy cow manure as substrate, plus supermarket wastes (unsold fruits and vegetables) as co-substrates.

For all the experiments, the chemical oxygen demand (COD), total solids (TS) and volatile solids (VS) of the initial manure and leachate, and final digestates and leachates were analysed using standard methods (APHA, 2012). The biochemical methane potential (BMP) of the cow manure was also measured (Tableau 18).

Tableau 18 : General chemical characterization of initial leachate and manure for run 1 and run 2

		pH	TS g/Kg	VS g/Kg	COD gO ₂ /Kg	NH ₄ gN/kg	TKN gN/Kg	BMP _N L/Kg _{VS} ^a
Run 1	Initial manure	- ^b	314	279	371.9	0.38	3.10	317
	Leachate	8.2	17	8	25.4	1.73	2.12	-
Run 2	Initial manure	-	301	269	368.8	0.18	4.34	317
	Leachate	8.0	16	8	24.4	1.79	2.41	-

^a _NL is for « normo-liter » i.e. litres in standard temperature and pressure conditions

^b no data available

2.3.2.2.2. Design of reactors

For this study, eight LBRs were constructed in stainless steel with a total volume of 15 L. Reactors were divided into two parts: the upper part contained the solid phase and the bottom part held the leachate (Figure 20). The liquid and solid phases were separated by a grid. Each LBR was equipped with an automated variable speed peristaltic pump allowing different recirculation modes depending on the experiment. In this way, the leachate stored at the bottom was spread on the manure in the upper part, passed through the solid and dropped back to the bottom of reactors. The lids of reactors were directly connected to biogas meters and biogas production was recorded in real time while its composition was analysed semi-continuously (every day during the first week and then three times a week until the end of the experiment) to measure methane production rates. Liquid sampling

points were located on the leachate recirculation lines. Each time biogas was sampled, 7 mL of leachate was immediately collected (between 0.1 and 0.3% of total leachate volume) to determine pH and VFA content. The entire cell was immersed in a water bath at 35 °C to maintain mesophilic conditions. For each experiment, cells were filled with 2.5 kg of solid manure composed with 52% of beef cow manure and 48% of dairy cow manure, and variable volumes of leachate. LBRs were run for 28 days.

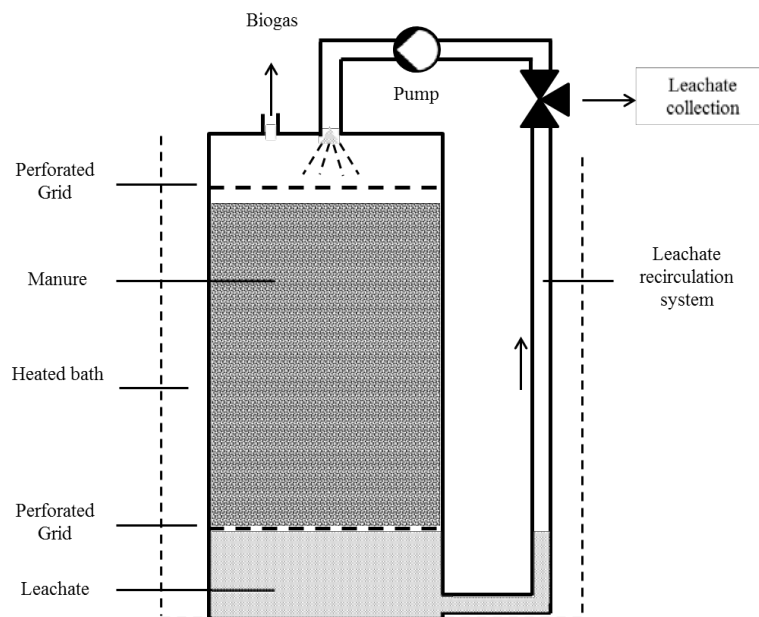


Figure 20 : Schematic diagram of lab-scale leach-bed reactors

At the beginning of the experiment, the entire volume of leachate initially loaded in LBRs was recirculated once. For all next recirculations, the volume was spread within 2.5 minutes. Methane production rates (MPRs) of all trials were recorded from the moment the first recirculation was completed. Biogas composition was analysed by a gas chromatography technique (Lucas et al., 2007). The VFA contents (acetate, propionate, butyrate, isobutyrate and isovalerate) of the leachates were analysed by high performance liquid chromatography (HPLC) (Peu et al., 2004). At the end of the experiment, COD mass balances of all the LBRs were calculated to identify possible reactor failures (Degueurce et al., 2016).

Methane production due solely to the leachate was determined by using BMP-like tests, as described by Degueurce et al. (2016). This value was removed from the total cumulated volume produced by the reactor to consider only the effect of leachate recirculation on manure degradation.

2.3.2.2.3. Anaerobic digester repeatability

Variability between reactors was assessed with a dedicated experiment prior to the experiments described in this study. All LBRs were loaded with the same mixture of manure. For this test, leachate came from a lab-scale completely stirred reactor fed with pig slurry and horse food. Digestate from this reactor was first filtered through a 0.5 mm mesh sieve and diluted with tap water (3:4). Three litres of this filtered digestate were loaded as leachate in each LBR cell ($L/S = 1.2$). The recirculation was performed every hour during which 500 mL of leachate were spread within 20 seconds. The methane production rate (MPR) recording started when the first recirculation was completed. The experiment lasted 29 days. At the end of the experiment, cumulated methane volumes were very close from one reactor to another, showing a coefficient of variation of 9% ($121 \pm 11 \text{ NL CH}_4 \cdot \text{kg}_{\text{VS}}^{-1}$). Variability of LBRs was also determined for MPRs according to the following method. First, all reactors were treated separately, calculating the average MPR for each day of the run. In this way, MPR curves were simplified to 29 points. Then, a standard deviation between all reactors was determined for each of the 29 days. Finally, coefficients of variation were found to range from 7% to 16% depending on the day in question. According to these results, the variability between all LBRs, expressed as the coefficient of variation, was estimated to be lower than 20%.

Reactor performances were also estimated considering COD mass balances. All eight reactors showed a mass balance ranging from 89 to 103% attesting to the absence of reactors failure and biogas or leachate leakage.

2.3.2.2.4. Experimental design construction

The experimental tests consisted of setting up a central composite factor design built with Statgraphic software. Experiments were performed in two different runs. Three independent factors (L/S ratio (kg/kg), recirculated volume and recirculation periodicity) were studied using five levels for each factor: L/S ratio varied from 1.0 to 2.1, recirculated volume from 600 to 2740 mL and periodicity from 24.5 to 149.9 hours (equivalent to 1 and 6 days between two recirculations). A total of 15 experiments were performed combining levels of these factors in order to cover the entire experimental domain. Tableau 19 details all 15 experiments performed and presents factors in terms of normalized levels and real units. For each factor, normalized levels varied from -1.68, for the lowest real value, and to +1.68, for the highest real value making the statistical calculations reliable.

Tableau 19 : Central composite factor design with normalized levels and correspondence with values of factors

Trial	Normalized levels			Real values		
	L/S	Recirculated volume	Periodicity	L/S (kg/kg)	Recirculated volume (mL)	Periodicity (hours)
1	0	-1.68	0	1.5	600	87,2
2	0	0	-1.68	1.5	1667	24,5
3	0	1.68	0	1.5	2737	87,2
4	-1	-1	-1	1.2	1000	48
5	-1	-1	1	1.2	1000	126,4
6	1	-1	-1	1.9	1000	48
7	-1	1	-1	1.2	2333	48
8	0	0	0	1.5	1667	87,2
9	-1	1	1	1.2	2333	126,4
10	1,68	0	0	2.1	1667	87,2
11	1	1	-1	1.9	2333	48
12	1	1	1	1.9	2333	126,4
13	1	-1	1	1.9	1000	126,4
14	0	0	1.68	1.5	1667	149,9
15	-1.68	0	0	1.0	1667	87,2

2.3.2.2.5. Determination of responses

Four responses to the experimental design were determined from MPR curves: the cumulated volume of CH₄, the time needed to reach a plateau, the duration of the plateau and the average MPR of the plateau (Figure 21).

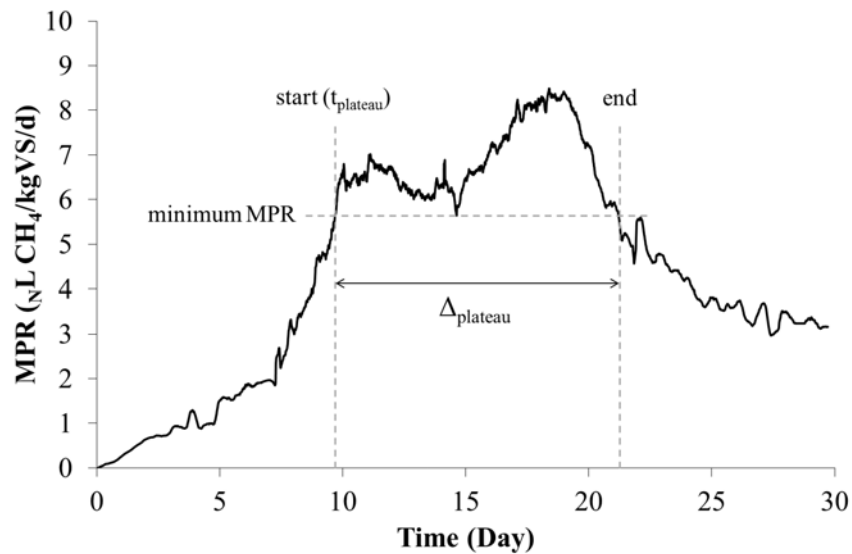


Figure 21 : Example of MPR profile and determination of the start and duration of stabilisation period

(t_{plateau} and Δ_{plateau})

The cumulated volume of methane (V_{cum}) corresponded to the total volume of methane produced during the 29 days of the experiments. The three other responses were defined as follows. After a first increase, MPR curves showed two peaks with an intermediate minimum and then, a decrease. The period including these two peaks and the intermediate minimum was named the plateau. It began when MPR reached the value of the intermediate minimum before the first peak and ended when MPR decreased at the same value after the second peak. The duration of the plateau was noted Δ_{plateau} and the start of the plateau was noted t_{plateau} . The average MPR (MPR_{av}) of the plateau is calculated between the beginning and the end of the plateau, as defined previously.

2.3.2.2.6. Statistical analysis

Based on the responses obtained from each experiment, the central composite factor design allowed the calculation of a polynomial equation that described the influence of each factor on the responses variations (Goupy, 1998). The general equation is defined as follow:

$$y = \beta_0 + \beta_1x_1 + \beta_2x_2 + \beta_3x_3 + \beta_{12}x_{12} + \beta_{13}x_{13} + \beta_{23}x_{23} + \beta_{11}x_1^2 + \beta_{22}x_2^2 + \beta_{33}x_3^2 \quad (1)$$

where y is the response studied (V_{cum} , $t_{plateau}$, $\Delta_{plateau}$, MPR_{av}), x_i are the normalized independent factors, x_i^2 are the quadratic terms of one factor, x_{ij} are the interactions between two different factors and β_i are the model coefficients describing the effect of each variable x . Both the value and the sign of β_i gave information on the influence of a factor. Each response had its own describing equation.

The regression calculation was performed with the software Statgraphics. It provided a regression coefficient R^2 that indicated the global fit of the model with experimental data. It also calculated a significance value for each regression model coefficient (β_i). After the initial analysis, the term with the lowest influence that was non-significant ($p > 0.2$) was removed from the analysis. The operation was repeated until all coefficients were significant in the model (McLeod et al., 2015). Such a low confidence level is justified by the large coefficient of variation of the repeatability experiments (20%) attributed mostly to the heterogeneity of the substrate. However, this low significant value was already experienced by Trémier et al. (2009) and conducted to reliable conclusions.

2.3.2.3. Results and discussion

2.3.2.3.1. Anaerobic digestion performances

Depending on experimental conditions and after 28 days of anaerobic digestion, VS removal ranged from 23 to 44%, attesting to the successful degradation of cattle manure (Tableau 20). COD mass balances revealed no reactor failures except for run #13. For that trial, COD mass balance was

very low (80%) compared to repeatability tests which showed more than 89% COD recovery. For this reason, trial #13 was removed from the experimental design and was not used for its analysis.

Tableau 20 : Reactors performances in terms of VS removal and COD mass balance

Trial	VS removal (%)	COD mass balance (%)
1	28	85
2	38	96
3	26	95
4	33	97
5	30	92
6	30	98
7	39	86
8	27	98
9	30	100
10	37	88
11	38	86
12	31	94
13	44	80
14	23	96
15	30	98

Overall, LBRs showed a total methane production varying from 59.5 and 147.5 NL/kg_{VS} (

Tableau 21) which correspond to 19% to 47% of the BMP for this substrate (Tableau 18). However, no accumulation of VFA was recorded at the end of experiments for any of them. These low performances are thus attributed to the low solid retention times of LBRs (Degueurce et al., 2016).

The average pH for all leachates during the entire experiments was 7.9 ± 0.2 . Initially, pH values of the leachate ranged from 8.0 to 8.2. These values dropped to 7.7 ± 0.1 at the end of experiments (after 28 days). Between days 4 and 7, pHs reached their lowest values which ranged from 7.4 to 8.0, respectively, depending on experimental recirculations conditions. According to Pohland and Al-Yousfi (1994) in the case of landfills, this typical behavior is attributed to successive VFA production and consumption during the batch. Indeed, between days 6 and 7, VFA concentrations ranged from 0.7 to 6.5 g.L^{-1} , attesting from the influence of leachate recirculation

parameters on anaerobic digestion performances. At the end of experiments, VFAs were no longer detected, indicating the establishment of a good balance between produced and consumed VFAs.

Tableau 21 : Y responses for manure digestion depending on experimental trial

Trial	Cumulated CH ₄ (NL/Kg_{VS})	t_{plateau} (day)	Δ_{plateau} (days)	MPR_{av} ($\text{NL/Kg}_{\text{VS}}/\text{d}$)
1	66,6	10,2	14,4	3,6
2	147,5	6,2	9,4	9,6
3	93,2	11,1	13,2	4,9
4	107,6	9,8	11,9	6,4
5	105,3	9,5	14,8	5,5
6	109,1	6,6	11,0	6,0
7	104,3	7,9	10,0	6,0
8	111,1	8,6	10,8	6,2
9	133,9	8,6	9,1	7,3
10	105,5	9,7	11,5	7,0
11	114,4	9,9	11,8	5,7
12	106,9	9,0	13,4	5,5
13*	125,9	10,1	11,3	7,8
14	59,5	14,9	14,7	3,8
15	119,1	7,7	9,7	7,2

* Not used for the analysis of the central composite factor design

2.3.2.3.2. Effect of operating factors on cumulative methane production

Tableau 22 gives the calculated coefficients of the final model of cumulated methane (V_{cum}). After removing all non-significant coefficients ($p\text{-value} > 0.2$), the model had a R^2 equal to 70%, attesting to the model's accuracy to describe the variations of the response observed during the experiment. This variation is mainly due to six parameters: the time between two recirculations or periodicity (P), the recirculated volume (V_{recirc}), the liquid to solid ratio (S/L), interactions between P and V_{recirc} ($P \leftrightarrow V_{\text{recirc}}$) and between P and L/S ($P \leftrightarrow L/S$) and finally, the quadratic term of V_{recirc} (V_{recirc}^2). Among them, P is particularly involved in V_{cum} variations because of its high linear coefficient (-13.9) and its strong interactions (10.7 and -12.0 for $P \leftrightarrow V_{\text{recirc}}$ and $P \leftrightarrow L/S$ respectively). The negative sign of coefficient P means that an increase of the elapsed time between two leachate recirculations leads to a decrease in V_{cum} , in the experimental domain (1 to 6 days between two

recirculations). This observation is in contradiction with Xu et al. (2014a), who found no influence of periodicity on methane production. The narrow experimental domain tested in their study may not be suitable to highlight the effect of periodicity on cumulative methane production. According to Benbelkacem et al. (2010), when low recirculated volumes are applied, optimal moisture content in LBRs is reached later, and lower methane yields are recovered. This hypothesis is consistent with the interaction coefficient between P and V_{recirc} . The positive sign of that interaction, suggests that a high recirculated volume can counteract and limit the negative effect of a longer elapsed time between two recirculations. So, for a long period without recirculation, the recirculated volume of leachate must be high to bring enough moisture in the substrate.

Tableau 22 : Modelled coefficients and significance of normalized levels for all responses studied (V_{cum} , t_{plateau} , Δ_{plateau} and MPR_{av})

Factors	Cumulated CH_4 (NL/Kg_{VS})		t_{plateau} (day)		Δ_{plateau} (days)		MPR_{av} ($\text{NL/Kg}_{\text{VS}}/\text{d}$)	
	Coefficient	p-value	Coefficient	p-value	Coefficient	p-value	Coefficient	p-value
Constant	111.0	-	9.4	-	10.6	-	6.8	-
P^a	-13.9	0.0263	1.3	0.0185	1.2	0.0035	-0.8	0.0316
V_{recirc}^b	9.8	0.0867	-	-	-0.8	0.0211	0.3	0.3773
L/S^c	-7.0	0.1989	-	-	0.6	0.0423	-	-
$P \leftrightarrow V_{\text{recirc}}^d$	10.7	0.1571	-	-	-0.8	0.1196	-	-
$P \leftrightarrow L/S$	-12.0	0.1189	-	-	0.5	0.0546	-	-
$V_{\text{recirc}} \leftrightarrow L/S$	-	-	-	-	0.8	0.1886	-	-
P^2	-	-	-	-	0.5	0.0078	-	-
V_{recirc}^2	-9.8	0.0906	-	-	1.1	0.0627	-0.9	0.0222
L/S^2	-	-	-	-	-	-	-	-
R^2 (%)	70	-	38	-	94	-	58	-

^a P = Periodicity

^b V_{recirc} = Volume of leachate recirculated

^c L/S = leachate to substrate ratio

^d "A \leftrightarrow B" = interaction between factor A and B

The linear coefficient of V_{recirc} is less influent than P (9.8 against 13.9 respectively) but, its positive sign shows that increasing the recirculated volume enhance methane production. Nevertheless, the negative sign of its quadratic term V_{recirc}^2 , indicates that recirculating overmuch leachate has the inverse effect, as well as recirculating too low volumes of leachate. These results are

consistent with the literature. As previously explained, according to Benbelkacem et al. (2010), a low recirculated volume of leachate conducts to a lack of moisture in LBRs and low performances of anaerobic digestion while increasing the recirculated volume induces higher methane yields (Chugh et al., 1998; Xu et al., 2014b). On the contrary, when very high volumes of leachate are recirculated (40% of the total volume of waste), acidic conditions appear in reactors and lower methane yields are observed (Sponza & Ađdađ, 2004). Moreover, high recirculated volumes of leachate are responsible for nutrients, organic matter and microorganisms wash out (Cysneiros et al., 2012; Jiang et al., 2007) that could also explain the low methane yields observed.

With a linear coefficient of 7.0, initial L/S ratio is the less influent factor on cumulated methane production. Its negative sign shows that higher methane yields would be observed when low initial volumes of leachate are loaded in LBRs. According to the literature, the addition of high initial volume of leachate is expected to bring additional microorganisms to reactors and thus improve methane yields. The inoculation effect of leachate, when digesting cattle manure, was proven to be limited because the original microorganisms present in manure are highly involved in methane production (Degueurce et al., 2016). The influence of L/S ratio is then linked to another mechanism. Two hypotheses may explain this result. First hypothesis involves LBRs inhibition due to the initial concentration of ammonia in reactors: adding high volumes of leachate led to a rise in the quantity of ammonia that could inhibit the process. To confirm that hypothesis, the relationship between cumulated methane and initial quantity of ammonia was analyzed by linear regression. No relationship between those parameters was pointed out ($R^2 = 0.0012$) indicating that initial ammonia had no influence on final cumulated methane. The second hypothesis is related to nutrient dilution. Browne et al. (2013) observed a decrease in methane yield because of nutrients dilution in LBRs connected to USAB. Similar phenomenon may occur in the present study. With leachate recirculation, VFAs and nutrients from the manure are washed out and stocked in the leachate tank. Depending on the initial L/S ratio, these compounds are more or less diluted. For high L/S ratios, the dilution ratio is more important, meaning that for the same recirculated volume, less nutrients and VFAs would be accessible by microorganisms than for low L/S ratios. So, the lack of accessible nutrients and VFAs conducts to lower methane yields. The negative sign of the interaction between P and L/S gives

additional evidence for that hypothesis. It suggests that a high initial volume of leachate coupled with high periodicity is unfavorable for methane production. Indeed, if the elapsed time between two recirculations is high and VFA and nutrients are diluted, the development of microorganisms would be slowed down and methane yields lowered.

Figure 22 shows the model of cumulated methane plotted as a function of periodicity and recirculated volume, for three different L/S ratios (-1.68, 0 and 1.68). From those curves, two particularly favorable conditions were identified with cumulated methane volumes higher than $165 \text{ N.L.kgVS}^{-1}$. To reach that value, 2.7L of leachate should be recirculated every 126.5 hours (~ 6 days) when a low volume of leachate is available initially. Otherwise, when a high leachate volume is available, only 1L of leachate should be recirculated every 24.5 hours. Drastically unfavorable conditions were also identified for a periodicity of 126.5 hours and a recirculated volume of 0.6L regardless to the initial L/S ratio ($V_{\text{cum}} < 55 \text{ N.L.kgVS}^{-1}$). Finally, several combinations of parameters gave high methane yields ($V_{\text{cum}} > 150 \text{ N.L.kgVS}^{-1}$) suggesting that parameters could be adjusted to match reactors design constraints such as pumping capacity or leachate tank size.

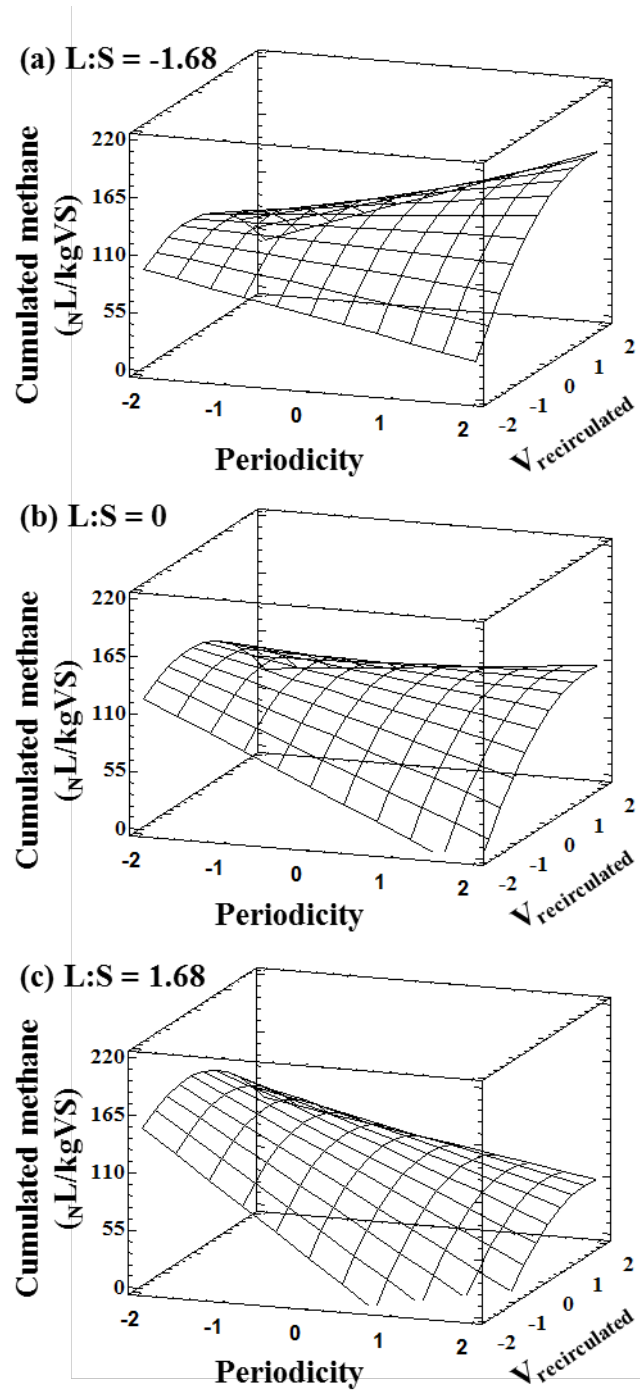


Figure 22 : Influence of recirculation periodicity and recirculated volume on the estimated cumulated methane for different normalized L/S ratios ((a) $L/S = -1.68$; (b) $L/S = 0$; (c) $L/S = 1.68$). Axis of factors

“Periodicity” and “ $V_{\text{recirculated}}$ ” are presented for normalized values

2.3.2.3.3. Effect of operating factors on anaerobic digestion kinetics

In this section, the effect of recirculation conditions on t_{plateau} , Δ_{plateau} and MPR_{av} was estimated.

(i) Start date of the plateau period

Statistical analysis and modeled coefficients of the response t_{plateau} are summarized in Tableau 22. All non-significant coefficients ($p > 0.2$) were removed from the model and only one parameter was found to influence the apparition day of the plateau. The model accuracy was very low ($R^2 = 38\%$) and it was not possible to give a precise equation which could explain the variations of t_{plateau} . However, the periodicity was found to significantly influence the starting day of the plateau. Its positive sign showed that decreasing time between two recirculations allowed a rapid stabilization of the reaction. Not much information was found in the literature about the effect of the recirculation periodicity on the beginning of the stabilization phase of MPRs. Many authors agreed on the beneficial effect of leachate recirculation to accelerate landfill stabilization as it creates favorable conditions for microbial growth and improves VFA and nutrients transportation through the media (Benbelkacem et al., 2010; Kusch et al., 2012; Šan & Onay, 2001; Sponza & Ağdağ, 2004). Those phenomena are probably occurring in the present study, explaining why a high elapsed time between two recirculations (similar to a lack of recirculation) led to a delay in methane production start. Nevertheless, periodicity does not explain fully the experimental variations observed and other parameters are probably involved such as particle size caused by the heterogeneity in cattle manure (Motte et al., 2013). Statistical analysis may also suffer from the high standard variations between LBRs which may hide variations due to recirculation practices and led to the disability to identify further influences of factors or interactions (Trémier et al., 2009).

(ii) Duration of plateau

The model describing variations of plateau's length (Δ_{plateau}) showed the best accuracy with $R^2 = 94\%$ (Tableau 22). In that model, eight calculated coefficients were significant ($p < 0.2$): all the linear coefficients (P, V_{recirc} and L/S), all interactions (P and V_{recirc} , P and L/S, V_{recirc} and L/S) and two quadratic terms (P^2 and V_{recirc}^2). Once again, periodicity is highly involved in the variations observed.

The linear coefficient P has the highest value (1.2) and the quadratic coefficient P^2 has the lowest value as well as the interaction between P and L/S ratio (0.5). The positive sign of coefficient P means that an increase of the time between two recirculations increases the plateau's duration. As shown in Figure 21, MPRs are composed of two consecutive methane production peaks attributed to the degradation of different kind of VS (Degueurce et al., 2016). Unfavorable conditions may slow down the degradation of organic matter, and peaks would become less intense and more diffused, leading to a flattened slope with a longer plateau (Benbelkacem et al., 2010; Korazbekova & Bakhov, 2014; Xu et al., 2013). From that observation, it is assumed that a long plateau indicates a slow degradation of VS. Then, in this study, high elapsed time between two recirculations would delay VS degradation because of a lack of moisture and a non-efficient nutrients distribution. The positive sign of P^2 suggests that a very small period between two recirculations can also slows down VS degradation, but the low value of the coefficient (0.5) makes this effect weaker than its linear term P. The negative sign of the interaction between P and V_{recirc} shows that recirculating a high volume of leachate could accelerate VS degradation when the elapsed time between two recirculations is too high. As shown with V_{cum} , a high recirculated volume can counteract the lack of moisture induced by a high periodicity of recirculation.

The recirculated volume of leachate is also largely involved in plateau's length variations. All linear, quadratic and interaction terms are significant ($p < 0.2$). The negative sign of V_{recirc} indicates that plateau's length is shortened when a high volume of leachate is recirculated. But, the positive sign of V_{recirc}^2 shows that plateau's length can also be lengthened if very low or very high volumes of leachate are recirculated. Still keeping in mind that a long plateau indicates a slow degradation of VS, these results are in accordance with the trend observed for the cumulated volume of methane and thus,

with literature. A low recirculated volume would not bring enough moisture in the media, bacterial activity would decrease as well as VS degradation (Benbelkacem et al., 2010) leading to a long plateau. Higher recirculated volumes would improve AD performances and VS degradation (Chugh et al., 1998; Kusch et al., 2012). And finally, very high recirculated volumes induce acidic conditions that slower VS removal and gives also gives a longer plateau (Sponza & Ağdağ, 2004).

Liquid to solid ratio is less influent than periodicity and recirculated volume according to its coefficient value (0.6 against 1.2 and 0.8 respectively). However, its interaction terms are also significantly involved in the observed variations of the plateau's length. The linear coefficient of L/S is positive. This indicates that loading a high initial volume of leachate in LBRs lengthens the duration of the plateau. This result is even more relevant when high volumes of leachate are recirculated (positive sign of the interaction between V_{recirc} and L/S) and high periodicities are applied (positive sign of the interaction between P and L/S). As observed with V_{cum} , high initial volumes of leachate loaded in LBRs are responsible for VFA and nutrient dilution in the leachate tank (Browne et al., 2013) which can slow down VS degradation. Moreover, if leachate is not recirculated often enough (interaction $P \leftrightarrow L/S$), very low amounts of nutrients would be transported to microorganisms and VS removal would be even more slowed. When recirculating high volumes of leachate at once (interaction $V_{\text{recirc}} \leftrightarrow L/S$), nutrients and microorganisms could be washed out (Cysneiros et al., 2012; Jiang et al., 2007) which could also lengthen plateau's duration.

A graphical representation of the modeled variation of plateau's length is given Figure 23. Curves are plotted as a function of normalized levels of periodicity and recirculated volume for three different values of L/S ratio: a) $L/S = -1.68$, b) $L/S = 0$ and c) $L/S = 1.68$. According to those curves, when a low initial volume of leachate is available, short plateaus ($\Delta_{\text{plateau}} < 9$ days) can be reached by recirculating high volumes of leachate (around 2.7L) every 6 days. When a high volume of leachate is available, 1.7L of leachate should be recirculated daily. With those settings, VS degradation would be accelerated and high methane yields would be reached, which is in accordance with results found for V_{cum} (Figure 22). To minimize the under-production phases due to batch mode SSAD configuration, a long plateau can be the wanted criterion ($\Delta_{\text{plateau}} > 20$ days). In this case, around 1.7L of leachate should be recirculated every 6 days, regardless to the initial volume available. Finally, several settings

lead to the same results meaning that recirculation parameters could be adapted to fit different SSAD plant constraints.

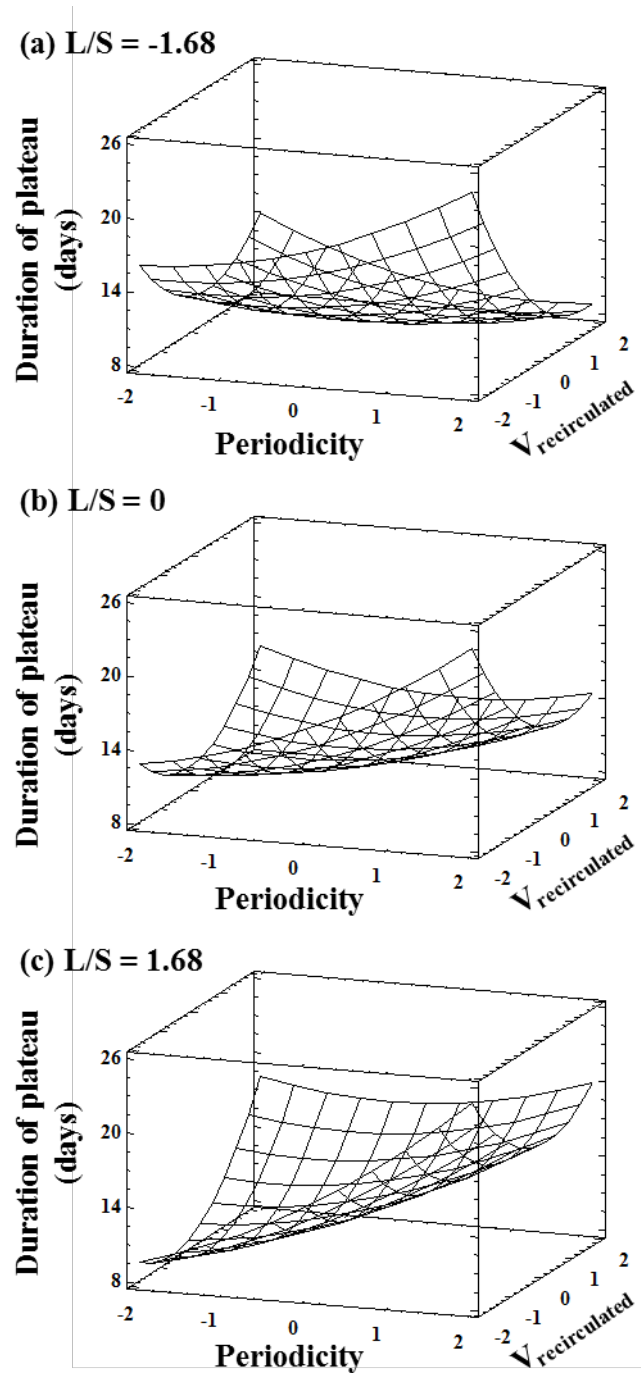


Figure 23 : Influence of recirculation periodicity and recirculated volume on the estimated duration of plateau for different normalized L/S ratios ((a) $L/S = -1.68$; (b) $L/S = 0$; (c) $L/S = 1.68$). Axis of factors

“Periodicity” and “ $V_{\text{recirculated}}$ ” are presented for normalized values

(iii) Methane production rate during plateau

The modeled methane production rate average (MPR_{av}) does not perfectly describe the experimental variation observed ($R^2 = 58\%$). However, two coefficients significantly influenced MPR_{av} response ($p < 0.2$): the linear term of P and the quadratic terms of V_{recirc} . Because of the strong influence of V_{recirc}^2 (highest coefficient value), the linear term of V_{recirc} was not removed from the model even though it was not significant. In design of experiments application, when a nonlinear term is highly involved in a response variation, its linear term should remain in the model (Baêta et al., 2016; Molinuevo-Salces et al., 2010). This practice is accepted for a purpose of comprehension of physical-chemical phenomenon that may occur within reactors, but the model should never be used to predict MPR_{av} or for designing SSAD plant. Only trends can be deduced from that analysis and no response surface curves were calculated.

The first trend obtained from the statistical analysis of the response MPR_{av} was the strong influence of the recirculated volume because of the high value of its quadratic term ($V_{recirc}^2 = 0.9$). Its negative sign indicates that recirculating overmuch leachate slows methane production rate as well as recirculating low volumes of leachate. Same phenomena were observed for V_{cum} and $\Delta_{plateau}$ responses: recirculation of both high and low volumes of leachate slowed organic matter degradation. As already exposed, those low performances were attributed to nutrients and microorganisms wash out for the first case (Cysneiros et al., 2012; Jiang et al., 2007), and to the lack of moisture for the second case (Benbelkacem et al., 2010). As the linear term V_{recirc} is not significant, its influence is no further discussed.

The second trend was observed for P . With a calculated coefficient of 0.8, periodicity is also highly involved in the variation of MPR_{av} . Its negative sign shows that MPR_{av} increases when the elapsed time between two recirculations decreases. When leachate is often recirculated, moisture content increases faster bringing favorable conditions for microbial growth. This result was already observed when analyzing all three other responses.

2.3.2.3.4. Discussion about the optimal recirculation strategy

The first part of this paper allowed a better understanding of the relationship between leachate recirculation strategies and performances of the bioconversion of organic matter into methane. In this paragraph, the modeled responses calculated with the design of experiment will be used to discuss the optimal recirculation strategy.

Considering the specific shape of MPR curves, the term “optimization” must be defined. In the case of a full scale SSAD plants with 4 digesters running in parallel, a solid retention time of 8 weeks and equipped with a combined heat and power units, the objective is to produce a maximum volume of methane, steadily, in order to avoid overproduction and underproduction periods that may cause engine shutdown and loss of methane. So, in terms of responses determined for this study, the length of the plateau should be higher than 14 days to produce stable volumes of methane during the period between two reloading of digesters. Meanwhile, cumulated volume of methane V_{cum} should be higher than $150 \text{ N.L.kgVS}^{-1}$ in order to approach the BMP value of the substrate ($317 \text{ N.L.kgVS}^{-1}$ – Tableau 18). Indeed, the experiments lasted 4 weeks while, at full scale, a batch lasts 8 weeks, so it is assumed that V_{cum} would reach half the value of the BMP within half time of the digestion process.

Those two conditions can only simultaneously happen in a small area of the experimental domain, that is to say for an elapsed time between two recirculations higher than 48 hours (equivalent to a normalized level of -1), a recirculated volume of 2.3 L (equivalent to a normalized level of 1) and a L/S ratio higher than 1.5 (equivalent to a normalized level of 0) (Figures 3 and 4). Depending on the specific constraints of SSAD plants, such as lower values of L/S available, the power of one pump, etc., the recirculation regime could be modified to match these characteristics and optimize methane production rates and volumes.

2.3.2.4. Conclusion

Central composite design was performed to study the influence of three leachate recirculation's parameters. Periodicity was found to be of major importance as it influenced cumulated

methane, plateau's start and length, and the mean plateau's MPR. The recirculated volume of leachate and its initial loaded volume must be chosen in accordance with periodicity to create favorable conditions for microbial growth and nutrients transportation. Several combinations of those parameters led to equivalent performances. Thus leachate recirculation could be modified to control methane production rates and meet optimal biogas injection requirements of combined heat and power units in real conditions.

3. Conclusions et perspectives

Ce deuxième chapitre avait pour but d'étudier les effets du mode de recirculation du lixiviat sur les vitesses et les productions globales de méthane d'un mélange de fumier de bovin, pour permettre l'optimisation du procédé de méthanisation par voie sèche.

Pour parvenir à cet objectif, plusieurs étapes ont été nécessaires. La première étape, que l'on peut qualifier d'étape de prospection, a permis d'évaluer la faisabilité d'enregistrer et d'exploiter les cinétiques de production de méthane pour différents substrats agricoles. Ces premiers résultats ont permis de mettre en évidence l'existence de profils caractéristiques de production de méthane selon le type de substrat dégradé. Les mélanges de substrats ont quant à eux montré des profils hybrides reprenant les caractéristiques cinétiques des substrats qui les composaient. Suite à ces tests préliminaires, un pilote de méthanisation par voie sèche, composé de 8 cellules indépendantes, a été construit afin de commencer la phase d'optimisation de la recirculation du lixiviat sur un mélange de fumier de bovins.

Avant de commencer cette étape d'optimisation, les performances du pilote ont été testées avec la mise en place d'un test de répétabilité, pour un mode de recirculation précis et un type de substrat : le mélange « hiver » (mélange de fumier de vache à viande et de vaches laitières). La répétabilité mesurée entre les réacteurs est très satisfaisante avec un coefficient de variation de 9% pour la mesure des volumes cumulés de méthane et variant entre 7 et 16% pour les mesures cinétiques selon le jour pris en compte. Les bilans de matière effectués sur la DCO ont également démontré la fiabilité du pilote avec un recouvrement minimal de 89% de la DCO entrante. Ce pilote peut donc être utilisé pour l'étude des effets de la recirculation du lixiviat sur les cinétiques de production de méthane.

Compte tenu de la littérature disponible sur ce sujet, quatre paramètres ont été identifiés comme pouvant, à priori, influencer la digestion anaérobie : le temps écoulé entre deux recirculations (encore appelée la périodicité de recirculation), le volume recirculé, le ratio lixiviat/substrat (L/S) appliqué et le temps d'aspersion du volume recirculé. L'optimisation simultanée de ces quatre facteurs

n'a pas été effectuée en une seule fois étant donné le nombre d'expériences que cela aurait nécessité. La troisième étape de ce chapitre a donc consisté à mettre en place un plan d'expérience de « screening » afin d'identifier, parmi ces quatre facteurs, ceux qui influencent l'une de ces quatre réponses : le volume total de méthane produit pendant un batch, le démarrage du plateau mesuré avec les cinétiques de production de méthane, le durée de ce plateau et la vitesse moyenne de production de méthane au plateau. Les résultats ont montré que seule la durée d'aspersion du lixiviat n'avait aucun effet sur ces réponses.

Suite à cela, lors de la quatrième et dernière étape, un deuxième plan d'expérience (plan d'optimisation) a été utilisé afin d'étudier en détail l'effet de la périodicité, du volume recirculé et du ratio L/S sur chaque réponse. Il a été montré que la périodicité de recirculation est un paramètre clé de la recirculation du lixiviat puisqu'il est le facteur le plus influent sur chaque réponse étudiée. Vient ensuite le volume recirculé et le ratio L/S. De façon générale, plusieurs combinaisons de ces facteurs ont montré des performances similaires. Ainsi pour maximiser le volume de méthane produit ($V_{cum} > 150 \text{ N.L.kg}_{MV}^{-1}$), lorsque que le volume de lixiviat initialement disponible est faible, la meilleure stratégie consiste à recirculer de gros volumes de lixiviat peu souvent et, lorsque le volume de lixiviat initialement disponible est élevé, il vaut mieux recirculer un petit volume mais plus souvent. Le même type de résultat est disponible pour la durée du plateau. La sensibilité du pilote n'a cependant pas permis de modéliser les réponses « début de plateau » et « vitesse moyenne du plateau ».

Cette dernière étape a également permis de montrer que les cinétiques de production de méthane peuvent être contrôlées grâce au régime de recirculation du lixiviat appliqué. La stratégie de recirculation peut également être adaptée à la configuration de chaque unité de méthanisation selon la taille de la cuve du lixiviat disponible, de la puissance de la cogénératrice et des pompes installées.

Finalement, ce type de travaux pourrait être reproduit sur d'autres substrats ou mélanges de substrats agricoles afin de déterminer une stratégie de recirculation propre à chaque intrant ou, plus largement, à chaque saison. D'autre part, la caractérisation cinétique de plusieurs types de substrats, ou de mélanges de substrats, pourrait permettre la création d'une base de données pouvant servir d'aide au dimensionnement de futures unités de méthanisation par voie sèche. Les cinétiques ainsi mesurées sont plus représentatives de la dégradation de la matière organique que les BMP actuellement utilisés

pour le dimensionnement et le choix des cogénéatrices installées. La création d'une telle base de données pourrait aider au développement de la filière en France.

References

- APHA. 2012. Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, 22nd Edition, American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation.
- Baêta, B.E.L., Lima, D.R.S., Adarme, O.F.H., Gurgel, L.V.A., Aquino, S.F.d. 2016. Optimization of sugarcane bagasse autohydrolysis for methane production from hemicellulose hydrolyzates in a biorefinery concept. *Bioresource Technology*, **200**, 137-146.
- Benbelkacem, H., Bayard, R., Abdelhay, A., Zhang, Y., Gourdon, R. 2010. Effect of leachate injection modes on municipal solid waste degradation in anaerobic bioreactor. *Bioresource Technology*, **101**(14), 5206-5212.
- Browne, J.D., Allen, E., Murphy, J.D. 2013. Improving hydrolysis of food waste in a leach bed reactor. *Waste Management*, **33**(11), 2470-2477.
- Chugh, S., Clarke, W., Pullammanappallil, P., Rudolph, V. 1998. Effect of recirculated leachate volume on MSW degradation. *Waste Management and Research*, **16**(6), 564-573.
- Cysneiros, D., Banks, C.J., Heaven, S., Karatzas, K.-A.G. 2012. The effect of pH control and 'hydraulic flush' on hydrolysis and Volatile Fatty Acids (VFA) production and profile in anaerobic leach bed reactors digesting a high solids content substrate. *Bioresource Technology*, **123**, 263-271.
- Degueurce, A., Tomas, N., Le Roux, S., Martinez, J., Peu, P. 2016. Biotic and abiotic roles of leachate recirculation in batch mode solid-state anaerobic digestion of cattle manure. *Bioresource Technology*, **200**, 388-395.
- Goupy, J. 1998. *La méthode des plans d'expériences*. Dunod.
- Guo, M., Song, W., Buhain, J. 2015. Bioenergy and biofuels: History, status, and perspective. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, **42**, 712-725.
- Jiang, J., Yang, G., Deng, Z., Huang, Y., Huang, Z., Feng, X., Zhou, S., Zhang, C. 2007. Pilot-scale experiment on anaerobic bioreactor landfills in China. *Waste Management*, **27**(7), 893-901.
- Korazbekova, K.U., Bakhov, Z.K. 2014. Performance of leach-bed reactor with immobilization of microorganisms in terms of methane production kinetics. *Journal of Biological Sciences*, **14**(4), 258-266.
- Kusch, S., Oechsner, H., Jungbluth, T. 2012. Effect of various leachate recirculation strategies on batch anaerobic digestion of solid substrates. *International Journal of Environment and Waste Management*, **9**(1-2), 69-88.
- Lay, J.J., Li, Y.Y., Noike, T., Endo, J., Ishimoto, S. 1997. Analysis of environmental factors affecting methane production from high-solids organic waste. *Water Science and Technology*, **36**(6-7), 493-500.
- Liew, L.N., Shi, J., Li, Y. 2012. Methane production from solid-state anaerobic digestion of lignocellulosic biomass. *Biomass and Bioenergy*, **46**, 125-132.
- Lucas, T., Le Ray, D., Peu, P., Wagner, M., Picard, S. 2007. A new method for continuous assessment of CO₂ released from dough baked in ventilated ovens. *Journal of Food Engineering*, **81**(1), 1-11.
- Martin, D.J. 1999. Mass transfer limitations in solid-state digestion. *Biotechnology Letters*, **21**(9), 809-814.

- Mata-Alvarez, J., Macé, S., Llabrés, P. 2000. Anaerobic digestion of organic solid wastes. An overview of research achievements and perspectives. *Bioresource Technology*, **74**(1), 3-16.
- McLeod, J.D., Othman, M.Z., Beale, D.J., Joshi, D. 2015. The use of laboratory scale reactors to predict sensitivity to changes in operating conditions for full-scale anaerobic digestion treating municipal sewage sludge. *Bioresource Technology*, **189**, 384-390.
- Molinuevo-Salces, B., García-González, M.C., González-Fernández, C., Cuetos, M.J., Morán, A., Gómez, X. 2010. Anaerobic co-digestion of livestock wastes with vegetable processing wastes: A statistical analysis. *Bioresource Technology*, **101**(24), 9479-9485.
- Motte, J.C., Escudié, R., Bernet, N., Delgenes, J.P., Steyer, J.P., Dumas, C. 2013. Dynamic effect of total solid content, low substrate/inoculum ratio and particle size on solid-state anaerobic digestion. *Bioresource Technology*, **144**, 141-148.
- Peu, P., Béline, F., Martinez, J. 2004. Volatile fatty acids analysis from pig slurry using high-performance liquid chromatography. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, **84**(13), 1017-1022.
- Pohland, F.G., Al-Yousfi, B. 1994. Design and operation of landfills for optimum stabilization and biogas production. *Water Science and Technology*, **30**(12), 117-124.
- Pommier, S., Chenu, D., Quintard, M., Lefebvre, X. 2007. A logistic model for the prediction of the influence of water on the solid waste methanization in landfills. *Biotechnology and Bioengineering*, **97**(3), 473-482.
- Šan, I., Onay, T.T. 2001. Impact of various leachate recirculation regimes on municipal solid waste degradation. *Journal of Hazardous Materials*, **87**(1-3), 259-271.
- Sanphoti, N., Towprayoon, S., Chaiprasert, P., Nopharatana, A. 2006. The effects of leachate recirculation with supplemental water addition on methane production and waste decomposition in a simulated tropical landfill. *Journal of Environmental Management*, **81**(1), 27-35.
- Shi, J., Wang, Z., Stiverson, J.A., Yu, Z., Li, Y. 2013. Reactor performance and microbial community dynamics during solid-state anaerobic digestion of corn stover at mesophilic and thermophilic conditions. *Bioresource Technology*, **136**(0), 574-581.
- Sponza, D.T., Ağdağ, O.N. 2004. Impact of leachate recirculation and recirculation volume on stabilization of municipal solid wastes in simulated anaerobic bioreactors. *Process Biochemistry*, **39**(12), 2157-2165.
- Tremier, A., de Guardia, A., Massiani, C., Paul, E., Martel, J.L. 2005. A respirometric method for characterising the organic composition and biodegradation kinetics and the temperature influence on the biodegradation kinetics, for a mixture of sludge and bulking agent to be co-composted. *Bioresource Technology*, **96**(2), 169-180.
- Trémier, A., Teglia, C., Barrington, S. 2009. Effect of initial physical characteristics on sludge compost performance. *Bioresource Technology*, **100**(15), 3751-3758.
- Vandevivere, P., de Baere, L., Varstraete, W. 2002. Types of anaerobic digester for solid wastes. in: *Biomethanization of the Organic Fraction of Municipal Solid Waste*, (Ed.) Mata-Alvarez, IWA Publishing Company, pp. 111-140.
- Weiland, P. 2010. Biogas production: Current state and perspectives. *Applied Microbiology and Biotechnology*, **85**(4), 849-860.
- Weiland, P. 2006. Biomass digestion in agriculture: A successful pathway for the energy production and waste treatment in Germany. *Engineering in Life Sciences*, **6**(3), 302-309.

- Xu, F., Shi, J., Lv, W., Yu, Z., Li, Y. 2013. Comparison of different liquid anaerobic digestion effluents as inocula and nitrogen sources for solid-state batch anaerobic digestion of corn stover. *Waste Management*, **33**(1), 26-32.
- Xu, S., Selvam, A., Karthikeyan, O.P., Wong, J.W.C. 2014a. Responses of microbial community and acidogenic intermediates to different water regimes in a hybrid solid anaerobic digestion system treating food waste. *Bioresource Technology*, **168**(49-58).
- Xu, S.Y., Karthikeyan, O.P., Selvam, A., Wong, J.W.C. 2014b. Microbial community distribution and extracellular enzyme activities in leach bed reactor treating food waste: Effect of different leachate recirculation practices. *Bioresource Technology*, **168**, 41-48.
- Yang, L., Xu, F., Ge, X., Li, Y. 2015. Challenges and strategies for solid-state anaerobic digestion of lignocellulosic biomass. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, **44**, 824-834.

Chapitre 4 : Caractérisation des transferts hydrodynamiques dans un réacteur de digestion anaérobie par voie sèche

Avant-propos

Les performances de la digestion anaérobie par voie sèche dépendent de la qualité de distribution du lixiviat à travers le solide à valoriser. Une distribution homogène permet de solliciter plus facilement la totalité du substrat pour optimiser la production de méthane. Au contraire, des zones non humidifiées ne seront pas dégradées ce qui induit un manque à gagner pour les exploitants de ces unités de méthanisation. L'objectif principal de ce travail a donc été d'évaluer l'efficacité d'un système d'injection à humidifier uniformément un substrat agricole.

La mesure de la teneur en eau d'un massif hétérogène, comme les déchets agricoles n'est pas simple. En effet très rapidement les outils Classique comme les tensiomètres ou TDR sont remis en cause dans de nombreuses études de par leur coté ponctuel et non représentatif à l'échelle du casier. C'est pour cette raison que de nombreux auteurs ont cherché, à utiliser des méthodes spatialisées, plus intégratrice et moins destructives. Ils se sont tournés vers les méthodes géophysiques et notamment la tomographie de résistivité électrique. Cette méthode non-intrusive permet d'étudier les variations de la résistivité électrique spatialisée en lien avec une variation de teneur en lixiviat dans les déchets. L'ERT présente aussi l'avantage d'être une méthode qui permet de spatialiser la distribution des résistivités électriques en 2D et 3D. Cependant, la résistivité électrique mesurée étant dépendante des caractéristiques physiques du substrat étudié, l'utilisation de cette méthode pour caractériser l'écoulement du lixiviat dans les conditions d'un LBR, avec des substrats agricoles, n'était pas garantie.

Notre approche expérimentale a donc consisté à (i) effectuer des essais préliminaires au laboratoire afin de s'assurer de la faisabilité d'utiliser l'ERT dans les conditions d'un digesteur à grande échelle puis, (ii) à suivre l'infiltration du lixiviat dans un substrat agricole sur une unité de méthanisation réelle.

Au laboratoire, plusieurs étapes ont été nécessaires avant de valider l'utilisation de la méthode de l'ERT. Dans un premier temps, les gradients de densité auxquels sont soumis différents mélanges d'effluents agricoles ont été déterminés. Puis, les conductivités hydrauliques associées à chaque

densité ont été mesurées afin de s'assurer qu'aucun colmatage ne perturberait les mesures de résistivité électriques. Enfin, pour les différentes densités et pour différentes teneur en eaux, représentatives des changements subis dans un digesteur au moment de la recirculation, les résistivités électriques ont été déterminées. Suite à cela, des mesures de résistivité électrique ont été réalisées à grande échelle et des profils de distribution de la résistivité électrique en lien avec la variation de la teneur en eau ont pu être déduits en 2D et en 3D. L'analyse de ses profils a permis de discuter l'efficacité du système d'injection actuellement en place et de proposer quelques améliorations.

La première partie de ce chapitre a pour objectif d'établir des profils d'évolution de la masse volumique, de la conductivité hydraulique et de la résistivité électrique de différents effluents agricoles, en fonction de la profondeur des massifs à grande échelle et à l'état initial (i.e. juste après chargement d'un digesteur et avant le début de la digestion anaérobie). Ces résultats permettront de valider l'utilisation de l'ERT à grande échelle. Ces premiers essais ont été réalisés au laboratoire sur les mélanges « été » et « hiver » définis au chapitre 2. Le deuxième objectif est de suivre l'infiltration du lixiviat, sur le terrain, dans un digesteur à grande échelle, pour évaluer l'efficacité du système d'injection actuellement en place, à humidifier la totalité du solide. Le troisième objectif est de proposer différentes géométries du système d'injection afin d'optimiser la distribution du lixiviat dans le solide.

Ce chapitre s'articule en quatre parties. La première partie sera consacrée aux matériels et méthodes qui présenteront les substrats et les dispositifs utilisés pour établir les différents profils de densité, conductivité hydraulique et électrique. Dans la deuxième partie, les différents résultats seront restitués et discutés selon deux formes : les densités et conductivités hydrauliques seront présentés en français et de façon classique, alors que les résultats de résistivité électriques (effectués au laboratoire et sur le terrain) seront présentés sous forme d'article. La troisième partie discutera un redimensionnement simple du système d'injection et proposera des perspectives de redimensionnement plus abouties. La quatrième et dernière partie conclura ce chapitre.

1. Matériel et méthodes

1.1. Rappel sur la composition des substrats

Le mélange « hiver » contient 42%¹⁰ de fumier de vache laitière et de 58% (kg/kg) de fumier de vache à viande pour un taux de matière sèche de 26%. Le mélange « été » est composé de 32% de

¹⁰ Sauf indication contraire, les pourcentages sont exprimés en masse

vache laitière, 30% de fumier de vache à viande, de 19% de paille de blé et de 19% de tontes de pelouses pour un taux de matière sèche de 36%.

1.2. Détermination des masses volumiques

Le dispositif expérimental de simulation de la compaction par charges fixées, utilisé pour mesurer les densités en fonction de la profondeur du massif, est le même que celui utilisé par Huet et al. (2012). Ce dispositif sera par la suite identifié sous le nom de dispositif « Schaub-Szabo », nom de l'auteur dont est inspiré cet instrument. Il est constitué d'un tube en plexiglas, de diamètre connu, reposant sur un châssis en acier inoxydable (Figure 24), et de plusieurs poids cylindriques, également en acier, de masse d'environ 8,5 kg chacun, dont la fonction est détaillée dans le paragraphe qui suit.



Figure 24 : Photographie du dispositif "Schaub-Szabo"

L'objectif de ce dispositif est de simuler un massif d'effluents agricoles d'une hauteur de 2,4 m via six couches de 40 cm. En pratique, la masse volumique de chaque couche sera mesurée l'une après l'autre, en partant de la couche extérieure jusqu'à la couche la plus profonde. La mesure de la masse volumique de la couche extérieure débute par le remplissage, délicat et le plus homogène possible, du tube de plexiglas par le matériau étudié, jusqu'à atteindre 40 cm de hauteur. La masse introduite (M_1 en kg) est déterminée par pesée différentielle du récipient contenant l'échantillon. La masse volumique de la couche extérieure (0 à -40 cm), notée ρ_{c1} , est calculée selon l'équation :

$$\rho_{c1} = M_1/V_0 \quad (6)$$

avec V_0 , le volume de déchet correspondant à la hauteur initiale de 40 cm, soit $0,04729 \text{ m}^3$.

La couche suivante, entre -40 et -80 cm, est simulée par addition des poids cylindriques au-dessus de l'échantillon, jusqu'à atteindre la masse M_1 . En cas de besoin, l'appoint se fait avec un récipient rempli d'eau. Sous l'effet des poids, le matériau se compacte et le volume de solide initial se réduit jusqu'à une valeur d'équilibre atteinte environ 24 heures plus tard (Figure 25). La nouvelle hauteur de matériau (h_2) est alors relevée et la masse volumique de la deuxième couche (ρ_{c2}) est calculée.

Les poids sont ensuite retirés et le niveau de substrat est réajusté avec du matériau frais pour atteindre les 40 cm de référence. La masse de matière rajoutée est calculée afin d'atteindre la masse volumique ρ_{c2} de la couche entre -40 et -80 cm dans toute la cellule (masse totale après réajustement : M_2). Puis, on applique, à l'aide des poids, la masse M_1+M_2 correspondant respectivement aux masses des couches entre 0 et -40 cm, et entre -40 cm et -80 cm. Après 24 heures on relève la hauteur h_3 , et ainsi de suite jusqu'à obtenir six masses volumiques correspondant aux six couches d'effluent, pour une profondeur finale simulées de 2,4 m.

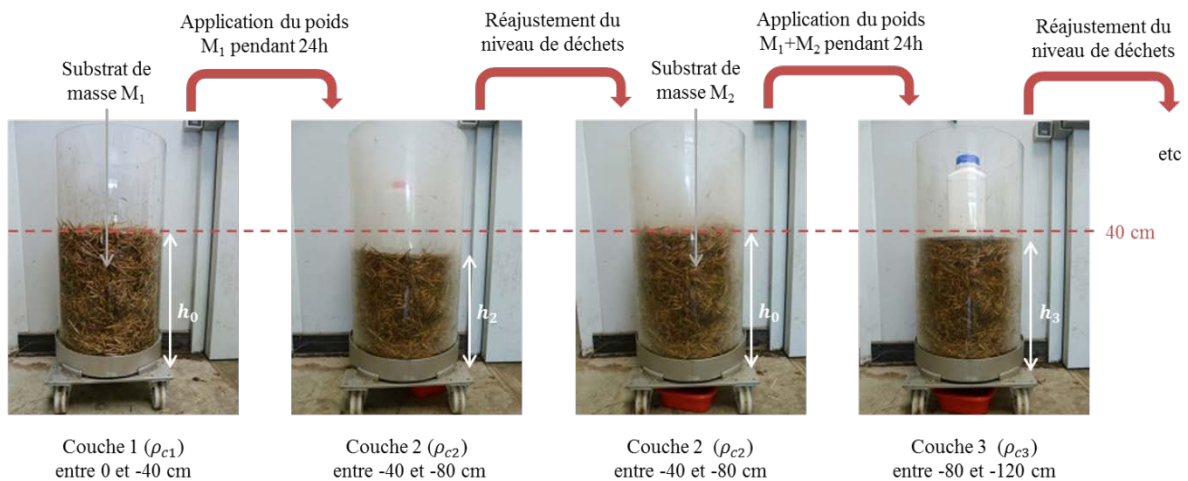


Figure 25 : Résumé de la procédure de détermination des masses volumiques

Ces mesures ont été effectuées sur les mélanges « hiver » et « été ».

1.3. Le perméamètre à charge constante

La détermination du coefficient de perméabilité à saturation en laboratoire est une application directe de la loi de Darcy exposée dans le Chapitre 1. Pour rappel, en conditions saturées en 1D, elle s'écrit comme suit :

$$q = Ks.A.\frac{\Delta H}{L} \quad (7)$$

avec q le débit volumique du liquide ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$), A la section de l'échantillon (m^2), L la longueur de l'échantillon (m), ΔH la perte de charge hydraulique (m) et K la conductivité hydraulique ($\text{m}.\text{s}^{-1}$).

Pour ces travaux, la détermination du coefficient Ks a été effectuée à l'aide d'un perméamètre à charge constante (Musy & Soutter, 1991), schématisé par la Figure 26. Dans ce cas, une charge hydraulique constante et connue, ΔH , est appliquée à un échantillon de longueur L . La quantité de liquide traversant l'échantillon est recueillie pendant un temps défini, puis pesée afin de calculer le débit volumique du liquide. En appliquant l'équation (2), on retrouve le coefficient de perméabilité Ks .

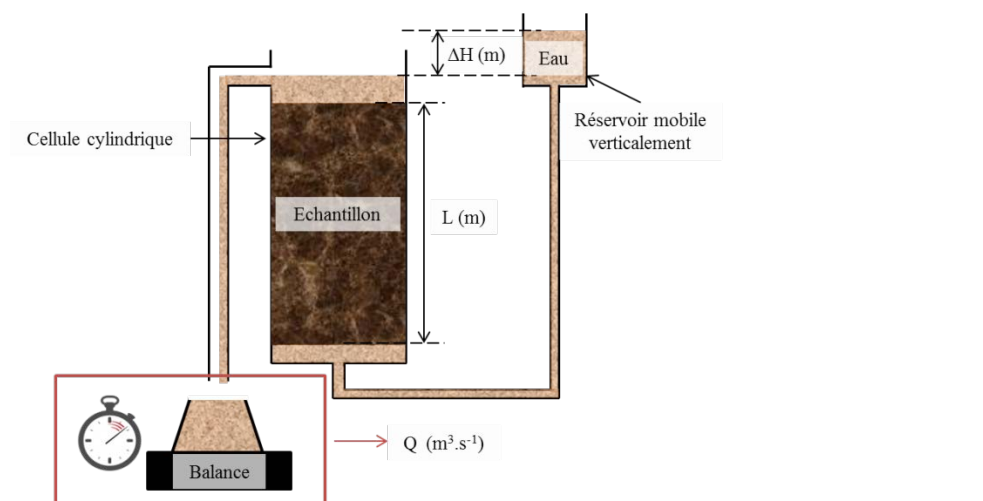


Figure 26 : Schémas d'un perméamètre à charge constante

En pratique, les essais se sont déroulés dans deux cellules identiques (Figure 27). Pour chaque essai, les cellules ont été remplies en trois couches de même hauteur. Pour chaque couche, une masse

M d'échantillon a été introduite dans la cellule de façon la plus homogène possible, puis tassée en surface pour obtenir une couche uniforme. Le remplissage de la cellule continue de la même façon avec la deuxième couche et enfin la troisième, pour atteindre une longueur d'échantillon de 41 cm. Au sommet du substrat, une grille perforée permet de maintenir la longueur de l'échantillon constante. Les mêmes précautions sont appliquées lors de chaque remplissage. Une fois le réacteur rempli d'échantillon, un lixiviat, composé de fumier infusé dans de l'eau, est injecté progressivement par le bas de la cellule via un réservoir mobile verticalement. De cette façon, l'échantillon est complètement saturé en liquide et l'air est chassé de tous les pores. Pour chaque échantillon, quatre charges hydrauliques différentes sont appliquées et la mesure de débit volumique dure une minute. On trace ensuite la charge hydraulique q en fonction du terme $(A \cdot \frac{\Delta H}{L})$ pour déterminer le coefficient de perméabilité.

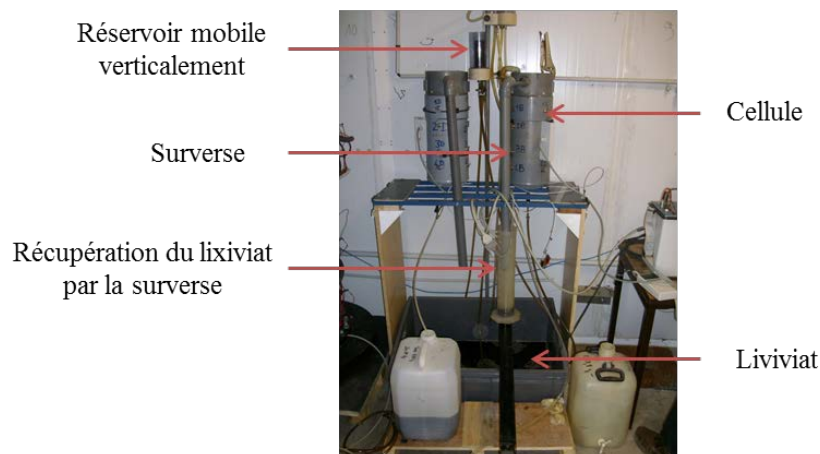


Figure 27 : Photo du perméamètre à charge constante

Le coefficient de perméabilité a été déterminé pour les mélanges « été » et « hiver » aux six densités mesurées dans le paragraphe précédent afin d'évaluer l'effet de la compaction des effluents agricoles sur ce paramètre.

1.4. La tomographie de résistivité électrique (ERT)

1.4.1. Principe général de la mesure de résistivité électrique

La résistivité ρ (ou son inverse la conductivité électrique $\sigma=1/\rho$) d'un milieu est par définition le paramètre physique qui détermine l'aptitude de ce milieu à s'opposer au passage du courant électrique. Sa connaissance permet d'appréhender la structure et la lithologie du sous-sol.

La mesure de la résistivité en un point est réalisée à la surface du sol. A partir de deux électrodes d'injection, A et B, on applique un courant électrique d'intensité I dans le sol et on mesure la différence de potentiel entre deux autres électrodes, dites électrodes de potentiel, M et N (Figure 27). En écartant les électrodes d'injection A et B, il est possible de créer des circulations de courant de plus en plus profondes.

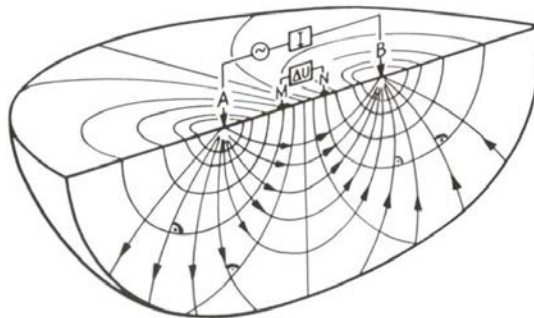


Figure 28 : Principe de la mesure de la résistivité avec quatre électrodes (Knödel et al., 2007)

Les résistivités mesurées sont appelées résistivités apparentes. Dans le cas d'un milieu homogène et isotrope, la résistivité apparente correspond à la résistivité vraie du sol, ce qui n'est pas valable pour les milieux hétérogènes. La résistivité apparente ρ_a ($\Omega.m$) est calculée en faisant le rapport entre la différence de potentiel entre les électrodes M et N, ΔV_{MN} (V) et le courant électrique I (A), multiplié par un coefficient géométrique K (m), propre à chaque dispositif.

$$\rho_a = K \cdot \frac{\Delta V_{MN}}{I} \quad (8)$$

Le coefficient géométrique K dépend uniquement de la configuration du quadripôle, c'est-à-dire de la position des électrodes. Il peut être déterminé, dans un demi-espace de résistivité homogène (Figure 28), par l'équation suivante :

$$K = 2\pi \left(\frac{1}{AM} - \frac{1}{BM} - \frac{1}{AN} - \frac{1}{BN} \right)^{-1} \quad (9)$$

Il est à noter que cette équation généralisée n'est valable que pour une surface plane. Avec une topographie donnée, K peut seulement être obtenu numériquement.

1.4.2. Les différents paramètres influençant la résistivité

Plusieurs paramètres physiques peuvent influencer la valeur de la résistivité électrique: la porosité totale et la teneur en eau du substrat, la température et la conductivité électrique du lixiviat. Ces paramètres et leurs effets sont brièvement présentés ci-après.

1.4.2.1. La porosité totale

Le degré de compaction du massif de déchets et par conséquent sa porosité ϕ (cf. paragraphe 4.1.1 de la synthèse bibliographique, page 74) influent sur la valeur de la résistivité. Deux milieux complètement saturés en eau, avec des valeurs de porosité différentes, n'auront pas la même résistivité. Besson et al. (2004) ont montré que lorsque la densité d'un matériau augmente, la résistivité décroît de façon non linéaire.

1.4.2.2. La teneur en eau

Une augmentation de la teneur en eau induit généralement une diminution de la résistivité. Par conséquent, un épisode de réinjection de lixiviat sur site implique une augmentation de la teneur en eau et donc une diminution de la résistivité (Grellier et al., 2005; Moreau et al., 2011).

1.4.2.3. La température

Une augmentation de la température induit une diminution de la résistivité (Keller & Frischknecht, 1966). Pour les casiers de centre de stockage de déchets ménagers, gérés en mode bioréacteur, la recirculation d'un lixiviat plus froid (entre 10 et 30°C pour le lixiviat stocké dans les bassins de collecte) que le déchet peut entraîner une diminution de la température de ce dernier. Cette diminution de la température du déchet engendre une augmentation de la résistivité qui est contraire à l'effet de l'augmentation de la teneur en eau impliquant une baisse de la résistivité. Les baisses de résistivité que l'on s'attend à observer pendant le processus de réinjection sont donc minimisées. Cependant, la différence de volume entre le lixiviat injecté et l'intégralité du casier de déchets induit une faible diminution de la température. D'autre part, dans le cas d'une unité de méthanisation, le lixiviat est également chauffé afin de maximiser les performances de la digestion anaérobie.

1.4.2.4. La conductivité électrique du lixiviat

La conductivité d'un sol saturé est proportionnelle à la conductivité de l'eau contenue dans les pores (Archie, 2003). Elle dépend de la concentration en ions et de la mobilité des ions en solution. Plusieurs études ont montré que la résistivité est directement proportionnelle à la conductivité de la solution. Lorsque la teneur en sel de la solution d'imbibition diminue, la résistivité de l'échantillon augmente (Gupta & Hans, 1972). Ainsi, dans le cas de l'étude des massifs de déchets, plus la conductivité électrique du lixiviat recirculé sera élevée et plus la résistivité du substrat sera faible.

1.4.3. Mesures de tomographie de résistivité électrique 2D/3D

La tomographie (ou imagerie) de résistivité électrique est une technique géophysique apparue à la fin des années 1980, dérivant des méthodes classiques du sondage électrique et du traîné électrique¹¹. L'ERT permet une imagerie 2D ou 3D des variations de résistivité électrique du sous-sol.

Cette méthode repose sur l'utilisation de flûtes (fils conducteurs) connectées à des électrodes et reliées à un appareil de mesure, appelé résistivimètre. L'acquisition des mesures est réalisée à partir de séquences programmables dans lesquelles l'ensemble des quadripôles, à utiliser pour la prospection, est répertorié. L'information collectée dépend de l'agencement des électrodes. Les mesures de résistivité sont habituellement représentées sous la forme de profils 2D, appelés pseudo-section ou panneaux de résistivité électrique. La mesure d'un quadripôle est reportée, par convention, à l'aplomb du centre du dispositif et à une ordonnée proportionnelle à la distance séparant les électrodes ($AM/2$ ou $AB/2$), définissant ainsi des niveaux d'acquisition. Le niveau $n=1$ est acquis à partir de quadripôles d'espacement inter électrodes n fois a , soit $1a$. Une fois que tous les quadripôles d'espacement $1a$ sont acquis, le niveau d'acquisition $n=2$ est obtenu à partir des quadripôles d'espacement $2a$, et ainsi de suite (Figure 29).

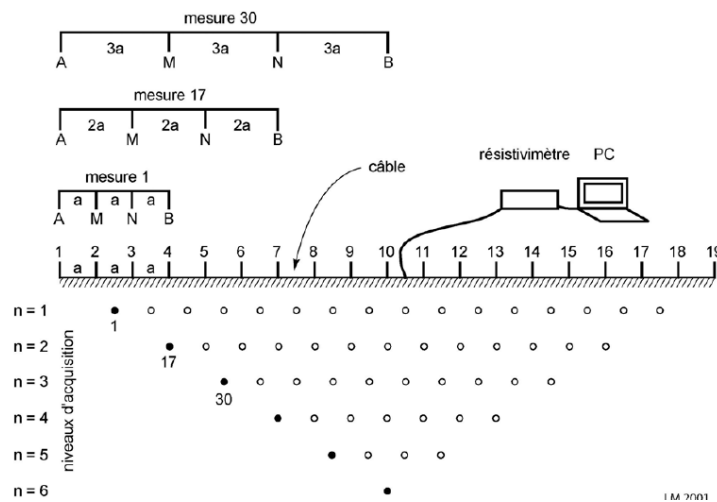


Figure 29: Schéma explicatif de l'acquisition d'un panneau électrique 2D (Loke & Barker, 1996)

Le panneau 2D des résistivités apparentes est une représentation conventionnelle de la mesure. Cette image est distordue et dépend de la répartition des résistivités du sous-sol étudié, mais également du dispositif de mesure utilisé. La résistivité apparente ne traduit pas directement les résistivités réelles

¹¹ Méthode consistant à déplacer l'appareil et les électrodes selon une maille de points régulière, qui permet de caractériser une zone à une profondeur constante

ni les profondeurs des objets du sous-sol. Pour cette raison, les données mesurées doivent être inversées de manière à reconstituer la distribution des résistivités électriques.

Le processus d'inversion est une démarche qui a fait l'objet de plusieurs travaux de thèse qui ne seront pas explicités ici (Fargier, 2012; Günther, 2004). Le principe général repose sur une méthode qui consiste à représenter la zone étudiée par un modèle de résistivités apparentes simulées. Par comparaisons itératives de ce modèle avec le profil de résistivités apparentes mesurées, le logiciel d'inversion tente de minimiser une fonction basée sur l'écart entre données de résistivités simulées et mesurées. Dans ces travaux de thèses, l'inversion a été réalisée par l'équipe MP2 de l'unité HBAN au centre Irstea d'Antony.

2. Résultats

Ce paragraphe s'articule en trois parties. Dans la première partie, les profils de densités, simulées avec le dispositif Schaub-Szabo, seront présentés en fonction de la profondeur d'un massif de 2,40 m. Puis, dans la deuxième partie, ces densités seront utilisées pour étudier les variations de conductivités hydrauliques de deux mélanges d'effluents agricoles, toujours en fonction de la profondeur. Enfin la troisième partie, présentée sous forme d'article, discute la pertinence d'utilisation de l'ERT pour suivre l'infiltration du lixiviat dans un digesteur de méthanisation à la ferme.

2.1. Effet de la profondeur du massif sur les masses volumiques

Ces essais ont été réalisés en considérant un massif d'effluents agricoles d'une hauteur de 2,40 m. Pour chaque mélange « été » et « hiver », les effets de la compaction subie dans un tel massif, sur les masses volumiques, ont été testés. Pour ce faire, le massif a été divisé artificiellement en 6 couches de 0,4 m. Les contraintes subies par chacune de ces couches ont été reproduites au laboratoire avec le dispositif Schaub-Szabo (cf. paragraphe 1.2) et les résultats sont décrits dans le Tableau 23.

Tableau 23 : Masses volumiques des mélanges « été » et « hiver » en fonction de la profondeur

Couche simulée (m)	Profondeur moyenne (m)	Masse volumique (kg/m ³)	
		Hiver	Eté
0 à -0,4	-0,2	311	135
-0,4 à -0,8	-0,6	389	159
-0,8 à -1,2	-1	442	182
-1,2 à -1,6	-1,4	492	209
-1,6 à -2,0	-1,8	545	242
-2,0 à -2,4	-2,2	578	269

Afin de faciliter la lecture de ces résultats, la Figure 30 donne une représentation graphique de l'effet de la profondeur sur la masse volumique. Quel que soit le mélange étudié, il apparaît qu'entre la couche au sommet du massif (0 à -0,4 m) et la couche la plus profonde (-2,0 à -2,4 m), la masse volumique de l'effluent a doublé. Ainsi, pour le mélange « hiver », elle passe de 311 à 578 kg.m⁻³ et, pour le mélange « été », de 135 à 269 kg.m⁻³. Compte tenu de ces variations, on peut supposer que le lixiviat ne s'écoulera pas de la même façon en tous points du massif d'effluents.

D'autre part, il est intéressant de noter que le mélange « été », comportant plus de déchets verts que le mélange « hiver », est en moyenne deux fois moins dense que ce dernier. Les mélanges utilisés à grande échelle seront très probablement plus hétérogènes que ceux définis dans ces travaux. Cela implique que dans un digesteur en conditions réelles, en plus du gradient de masses volumiques induit par le poids des déchets, une hétérogénéité de densité supplémentaire peut apparaître de façon aléatoire dans le digesteur, et ce à cause de la phase de chargement. Par conséquent, la distribution du lixiviat pourrait être influencée par ces hétérogénéités structurelles.

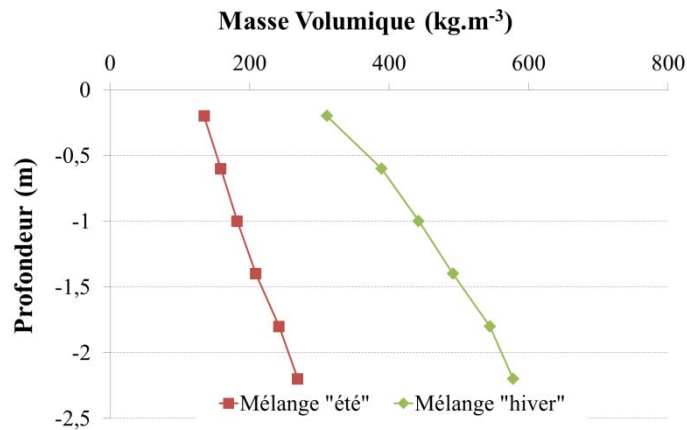


Figure 30 : Evolution de la masse volumique des mélanges « été » et « hiver » en fonction de la profondeur du massif

Afin de s'assurer que les différences de densités observées dans ces tests préliminaires n'induisent pas de problèmes de colmatage ou des difficultés de percolation, le coefficient hydraulique de chacune des six couches et pour chaque mélange, a été mesuré.

2.2. Evolution de la perméabilité hydraulique selon la compaction

Les coefficients de conductivité hydraulique à saturation ont été déterminés avec un perméamètre à charge constante (cf. paragraphe 1.3). Les résultats bruts sont présentés dans le Tableau 24.

Tableau 24 : Coefficients de perméabilité des mélanges « été » et « hiver » en fonction de la masse volumique

Couche simulée (m)	Profondeur moyenne (m)	Eté		Hiver	
		μ^a (kg/m ³)	K_s (m.s ⁻¹)	μ (kg/m ³)	K_s (m.s ⁻¹)
0 à -0,4	-0,2	135	$7,3 \cdot 10^{-4}$	311	$5,6 \cdot 10^{-4}$
-0,4 à -0,8	-0,6	159	$7,8 \cdot 10^{-4}$	389	$6,7 \cdot 10^{-4}$
-0,8 à -1,2	-1	182	$6,7 \cdot 10^{-4}$	442	$7,0 \cdot 10^{-4}$
-1,2 à -1,6	-1,4	209	$5,5 \cdot 10^{-4}$	492	$7,7 \cdot 10^{-4}$
-1,6 à -2,0	-1,8	242	$6,3 \cdot 10^{-4}$	545	$5,3 \cdot 10^{-4}$
-2,0 à -2,4	-2,2	269	$5,7 \cdot 10^{-4}$	578	$6,2 \cdot 10^{-4}$

^a masse volumique

La représentation graphique de ces données (Figure 31) permet de faciliter leur analyse. Dans un premier temps, les résultats montrent que les coefficients de perméabilités n'évoluent pas de façon significative en fonction de la profondeur. Pour la couche la plus haute du mélange « hiver » (couche externe entre 0 et -40 cm), le coefficient de perméabilité mesuré était de $5,6 \cdot 10^{-4}$ m.s⁻¹ et, pour la couche la plus profonde, de $6,2 \cdot 10^{-4}$ m.s⁻¹. Ces valeurs sont proches de celles mesurées par André et al. (2015) avec des valeurs de perméabilité variant entre $2,7 \cdot 10^{-4}$ et $1,7 \cdot 10^{-3}$ m.s⁻¹. Le mélange « été » montre la même tendance que le mélange « hiver » avec un coefficient de perméabilité passant de $7,3 \cdot 10^{-4}$ à $5,7 \cdot 10^{-4}$ m.s⁻¹, lorsque la profondeur du massif augmente. Entre ces deux couches, et quel que soit le mélange considéré, la variation de K_s ne dépasse pas $3,0 \cdot 10^{-4}$ m.s⁻¹. Or, dans le Figure 7 du paragraphe 4.1.2 de la synthèse bibliographique (page 76), il apparaît que pour voir une différence d'écoulement entre deux milieux, K_s doit varier d'au moins un facteur 10, ce qui n'est pas le cas ici.

Dans un deuxième temps, les résultats montrent que les deux mélanges ont des coefficients de perméabilité très proches, avec une moyenne de $6,5 \cdot 10^{-4}$ m.s⁻¹ pour le mélange « été » contre $6,3 \cdot 10^{-4}$ m.s⁻¹ pour le mélange « hiver ». Cela signifie que, en conditions saturée, le lixiviat s'écoulera à des vitesses très proches dans les deux milieux.

Enfin pour ces valeurs de K_s , on peut considérer que les mélanges étudiés pour ces travaux ont un comportement drainant équivalent à celui d'un petit gravier ou d'un sable à gros grains (cf. Figure

7 du paragraphe 4.1.2 de la synthèse bibliographique (page 76)). A priori, à l'état initial, soit juste après chargement d'un digesteur, le lixiviat s'écoulera facilement à travers ces mélanges, sans problèmes de colmatage.

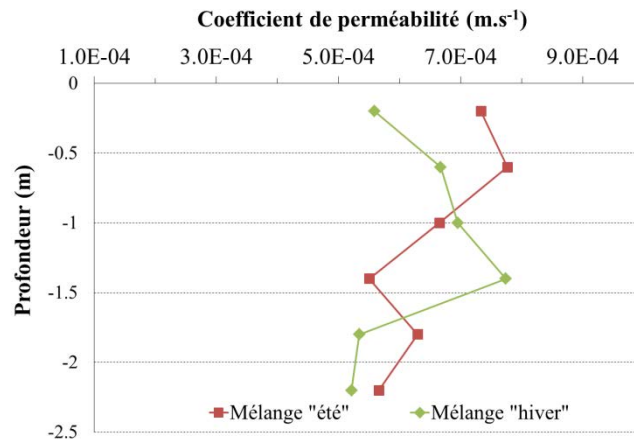


Figure 31 : Effet de la profondeur sur le coefficient perméabilité des mélanges "été" et "hiver"

Ces résultats préliminaires montrent que dans un massif de 2,40 m, la structure physique du substrat varie en fonction de la profondeur sans toutefois altérer l'écoulement d'un liquide. Compte tenu de la valeur des coefficients de perméabilité à saturation, l'écoulement du lixiviat dans le massif solide sera rapide, mais pas assez pour distordre les mesures ERT, permettant donc de suivre l'infiltration du lixiviat à travers des effluents agricoles.

2.3. Utilisation de l'ERT pour décrire l'infiltration du lixiviat à travers un substrat agricole

Au commencement de ce travail de thèse, aucun résultat publié ne permettait de discuter l'utilisation de la méthode ERT sur des substrats agricoles. Depuis, l'ERT a été appliquée à des fumiers de bovin avec succès (André et al., 2016), sans que l'objectif principal soit de suivre l'infiltration du lixiviat du point de vue cinétique. Cette partie a donc pour objectif de rendre compte de la faisabilité de suivre un écoulement hydrique à travers des effluents agricoles au cours du temps.

Ces résultats sont présentés sous forme d'un article scientifique soumis au journal « Waste Management ».

On the value of electrical resistivity tomography for monitoring leachate injection in solid state anaerobic digestion plants at farm scale

Axelle Degueurce^{a,c}, Rémi Clément^{a,b,*}, Sylvain Moreau^{a,b}, Pascal Peu^{a,c}

^a Irstea, UR GERE, 17 av. de Cucillé, CS 64427, F-35044 Rennes, France

^b Irstea, 1 rue Pierre-Gilles de Gennes, CS 10030, F-92761 Antony cedex, France

^c Université Européenne de Bretagne, F-35044 Rennes, France

* Corresponding authors: e-mail: remi.clement@irstea.fr

ABSTRACT

Agricultural waste is a valuable resource for solid state anaerobic digestion (SSAD) thanks to its high solid content (> 15%). Batch mode SSAD with leachate recirculation is particularly appropriate for such substrates. However, for successful degradation, the leachate must be evenly distributed throughout the substrate to improve its moisture content. To study the distribution of leachate in agricultural waste, electrical resistivity tomography (ERT) was performed. First, laboratory-scale experiments were conducted to check the reliability of this method to monitor infiltration of the leachate throughout the solid. Two representative mixtures of agricultural wastes were prepared: a “winter” mixture, with cattle manure, and a “summer” mixture, with cattle manure, wheat straw and hay. The influence of density and water content on electrical resistivity variations was assessed in the two mixtures. An increase in density was found to lead to a decrease in electrical resistivity: at the initial water content, resistivity decreased from 109.7 to 19.5 ohm.m in the summer mixture and from 9.8 to 2.7 ohm.m in the “winter” mixture with a respective increase in density of 0.134 to 0.269, and 0.311 to 0.577. In contrast, resistivity decreased with an increase in water content: for low densities, resistivity dropped from 109.7 to 7.1ohm.m and 9.8 to 4.0 ohm.m with an increase in water content

from 64 to 90w% and 74 to 93w% for “summer” and “winter” mixtures respectively. Second, a time-lapse ERT was performed in a farm-scale SSAD plant to monitor leachate infiltration. Results revealed very heterogeneous distribution of the leachate in the waste, with two particularly moist areas around the leachate injection holes. However, ERT was successfully applied in the SSAD plant, and produced a reliable 3D map of leachate infiltration.

Keywords: leachate injection, agricultural waste, cattle manure, moisture content, electrical resistivity tomography

2.3.1. Introduction

The potential of anaerobic digestion (AD) is increasing worldwide (Guo et al., 2015) due to its combined environmental benefits i.e., reducing greenhouse gas emissions, producing renewable energy, organic amendment and fertilizer. Germany had 6800 biogas plants in 2012, accounting for 76% of all such installations in Europe (Guo et al., 2015). In France, only 400 plants were recorded in 2015 and mainly handle agricultural residues using both liquid and solid state processes (ADEME, 2015).

The total solid (TS) contents of the agricultural feedstock used to produce biogas determines the choice of the most appropriate technology. A solid state anaerobic digestion (SSAD) plant is more likely to handle substrates with TS content over 15% (kg/kg) (Mata-Alvarez et al., 2000). Several SSAD technologies, continuous one stage or two stage systems and sequenced batch systems, are available (Vandevivere et al., 2002). Batch mode SSAD is particularly useful for treating the effluents resulting from agricultural activity like livestock manure and crop residues and has the advantages of being simple to run, robust and cheap.

The successful efficient degradation of organic matter in AD requires balanced physical-chemical conditions to enable the development of the necessary microbial activity (Yang et al., 2015). Moisture content in the media was found to be the most important determining factor (Chugh et al., 1998). In batch solid-state digesters, sprinklers or perforated pipes are usually used to spread the liquid phase, the leachate, over the top surface of the substrate to reach the required moisture content in the solid medium. However, to date, no information is been available on the hydrodynamics of recirculation of the leachate through the cattle manure or other agricultural residues. Moreover, agricultural residues and mixtures are particularly porous and heterogeneous and no data is available on the ability of the systems to homogeneously moisten such substrates.

Knowing the flow characteristics and transfer time of the leachate is a precondition to designing an optimal liquid injection system, i.e. the number of perforated pipes, the size and number of perforations, etc. to achieve uniform moisture content, and current knowledge of water content distribution in AD is limited. Several techniques and sensors are used to measure water content in

landfills, including neutron probes, electrical resistance (impedance) sensors, time domain reflectometry (TDR) sensors, electrical resistivity tomography (ERT), the partitioning gas tracer technique, and fiber optic sensors (Imhoff et al., 2007; Kumar et al., 2009). Neutron probes, electrical resistance sensors or TDR sensors are not really convenient because the measurements are made locally areas and are not representative of the heterogeneous porous media concerned here (Gawande et al., 2003; Imhoff et al., 2007; Yuen et al., 2000).

Among all geophysical methods, ERT may be the most suitable method to study the distribution of electrical resistivity (2D or 3D) (Audebert et al., 2014b; Bernstone et al., 2000; Binley et al., 1996; Buselli & Lu, 2001; Clément et al., 2010; Clement et al., 2009; Lillo et al., 2009). This non-destructive method is becoming a widely-used tool to study infiltration in several porous media (Brunet et al., 2010; Clément et al., 2011; Depountis et al., 2005; Massuel et al., 2006). During the injection of water into porous media, ERT can be used with a time-lapse approach. Time-lapse monitoring repeats the same ERT measurement several times at the same location (Loke, 1999), namely, before, during and after injection of the leachate. ERT time-lapse monitoring is useful because variations in water content can be considered as the parameter with the most influence on electrical resistivity, if the temperature and the porosity are constant during leachate injection. In most cases, according to the previous hypotheses, an increase in electrical resistivity indicates a decrease in water content and a decrease in electrical resistivity indicates infiltration of a liquid.

Already applied in landfills for in-situ characterization of the flow of leachates through municipal solid waste (MSW), the results of ERT led to the enhancement of the design of the leachate injection systems and enriched knowledge of MSW behavior (Audebert et al., 2014b; Clément et al., 2011; Lillo et al., 2009; Ogilvy et al., 2002). The non-intrusive, non-destructive and 3-dimensional response of the ERT method thus appears to be suitable for the study of the propagation of a leachate through agricultural effluents in a SSAD plant.

The purpose of the present study was thus to assess the relevance of using the electrical resistivity tomography method to monitor the leachate infiltration through agricultural wastes and residues. The efficiency of the existing injection system of the leachate is analyzed and discussed with respect to the ERT data recorded.

2.3.2. *Materials and methods*

2.3.2.1. General methodology

According to the literature, electrical resistivity tomography has never been applied to agricultural waste. The relevance of using the ERT method in SSAD plants has been studied using standard geophysics approaches based on the combination of laboratory and full scale experimentations. Electrical resistivity was found to be mostly influenced by three parameters: the type of medium, its density, and its water content (Clement et al., 2011; Grellier et al., 2007; Yoon et al., 2002). For this reason, only these three parameters were studied, considering no variation of temperature during experiments.

Many agricultural substrates can be used for farm scale SSAD plants (manure, straw, chaff, lawn cuttings, cover crops, etc.) offering a large choice of the type of medium to study. This range of biodegradable compounds can differ considerably depending on the location of the plant and the season. However, in most cases, animal manure (recovered in stalls) is the main substrate used in winter. In summer, less manure is available because farm animals are outside grazing pastures. To balance the lack of manure, digesters are loaded with co-substrates (lawn cuttings, straw, etc.). Based on this observation, two typical combinations of substrates and co-substrates with different physical-chemical characteristics were selected: a “winter” mixture and a “summer” mixture (cf. 2.2.1.1).

The variation in the density of agricultural waste, caused by compression, has not been documented either for SSAD plants or at lab-scale. However, because of the high porosity of these media (Richard et al., 2004), it was assumed that density varies from the bottom to the top of anaerobic digesters, which may alter the hydraulic properties of the whole substrate. The compression that takes place in a full scale digester was reproduced at laboratory scale using both “summer” and “winter” mixtures. This made it possible to measure variations in the density of the mixtures as a function of the depth of the solid wastes and the associated compression phenomena (cf. 2.2.1.2).

Using a digester 2.4 m in height, six 40-cm thick layers were reproduced at lab scale, giving six densities for both mixtures (Huet et al., 2012).

Different moisture contents were also tested at laboratory scale to observe the measurement contrast of ERT in the media when the leachate is recirculated. Moisture was measured in the initial state (just after loading), field capacity, and the saturated state. Electrical resistivity tomography was then measured for all moisture contents, at all densities, and for each mixture, representing 36 test conditions in all. All laboratory tests were performed at constant temperature (28 °C). The results obtained in this first part were then used to better understand the range of and variations in the electrical resistivity that can be observed at field scale.

Next, the ERT method was applied in a farm scale anaerobic digester. The objective was to monitor the infiltration and drainage of the leachate, and to determine whether or not infiltration could be detected and located. Additional sensors (punctual resistivity, piezometers and thermometers) were added to check physical parameters and to confirm interpretation of the recorded resistivity measurements.

2.3.2.2. Laboratory tests

To study variations in and the sensitivity of electrical resistivity in agricultural waste, laboratory scale experiments were conducted under controlled conditions. Two mixtures of waste with different moisture content and densities were used.

2.3.2.2.1. Characteristics of the substrates

(iv) Preparation of mixtures

“Winter” and “summer” mixtures were defined according to the standard inputs used at a dairy farm located in Troyes (Aube, France) over a whole year. The “winter” mixture was composed of 48 w% of dairy cow manure and 52 w% of beef cattle manure. The “summer” mixture was composed of

30 w% of dairy cow manure, 32 w% of beef cattle manure, 19w% of wheat straw and 19w% of hay. Dairy manure, beef cattle manure and hay were collected from the same farm. Wheat straw came from a farm located in Rennes (Brittany, France). All these fractions are representative of the agricultural waste used in solid state anaerobic digestion in France. Fifty kilograms of each mixture were available for the experiments. No further pretreatment was performed: mixtures were not ground and therefore had the same physical properties as substrates used in the field.

Figure 32 shows the physical appearance of the “winter” and “summer” mixtures. Both mixtures were very heterogeneous, with more aggregated feces in the “winter” mixture. The “summer” mixture looked more like wheat straw, and had a lower density and a higher porosity than the “winter” mixture.



Figure 32 : Photos of (a) the summer mixture and (b) the winter mixture

(v) Measurements of density

The density of each mixture was determined using a “Schaub-Szabo” device as described in Huet et al. (2012). A cylindrical Plexiglas cell of known diameter know was evenly filled with one of the two mixtures to a height of 40 cm. The sample was weighed (m_1) and the first density calculated (d_1). The first density is that of the uppermost layer of the solid mass loaded in a full scale digester. To determine the density of the second layer (i.e. below the top layer), loads were added above the mixture already present in the cell, until their total weight reached m_1 . After 24 h of stabilization, the

total height was lower due to compression. The final height was measured and d_2 was calculated. These steps were repeated until six densities had been measured, corresponding to six 40-cm layers of substrate, for a total height of 2.40 m of the substrate stacked in a full scale digester.

(vi) Measurement of moisture content

The massic water content w_M (kg/kg) of the “summer” and “winter” mixtures was estimated using the gravimetric method (EN-14346, 2006) and approximately 2 kg of waste. The drying temperature was lower than the required 105 °C. It was set to 60 °C to avoid possible burning of wheat straw. Drying continued until mass loss became stable. The massic water content was calculated according to the following equation:

$$(1) w_M = \frac{m_{wet} - m_{dry}}{m_{dry}} \text{ (kg/kg)}$$

where m_{wet} is the wet mass of the sample (kg), m_{dry} is the dry mass of sample measured by oven drying (kg).

To the initial value of water content when the test cell was filled with the waste sample, water was added from the bottom at atmospheric pressure to reach saturation and then drained off to obtain field capacity. Weighing the test cell makes it possible to calculate gravimetric water contents at different states.

2.3.2.2.2. Laboratory measurement of the electrical resistivity tomography measurement

(i) Description of the laboratory test cell

The test cell was made from a section of circular PVC pipe closed at each side and electrically insulated. The volume of the cell was 12.3 dm^3 , height 430 mm, external diameter 200 mm, and wall thickness 3.9 mm. Sixteen electrodes represented by the heads of stainless steel screws were used to measure resistivity. The heads of screws (19 mm in diameter) were in contact with the substrate inside the test cell and threads were used to connect them to the resistivity-meter. Four electrodes were placed in each of four vertical lines spaced at quarter points around the circumference. Measured from the bottom of the test cell, the first electrodes were located at a height of 75 mm, the second at 155 mm, the third at 275 mm and the highest at 355 mm (Figure 33). At the bottom of the cylinder, hydraulic outlets allowed the leachate to drain away and electric sockets were available for the temperature sensor and electrical resistivity measurements. The temperature was recorded during the test with a Pt100 sensor placed inside the substrate.

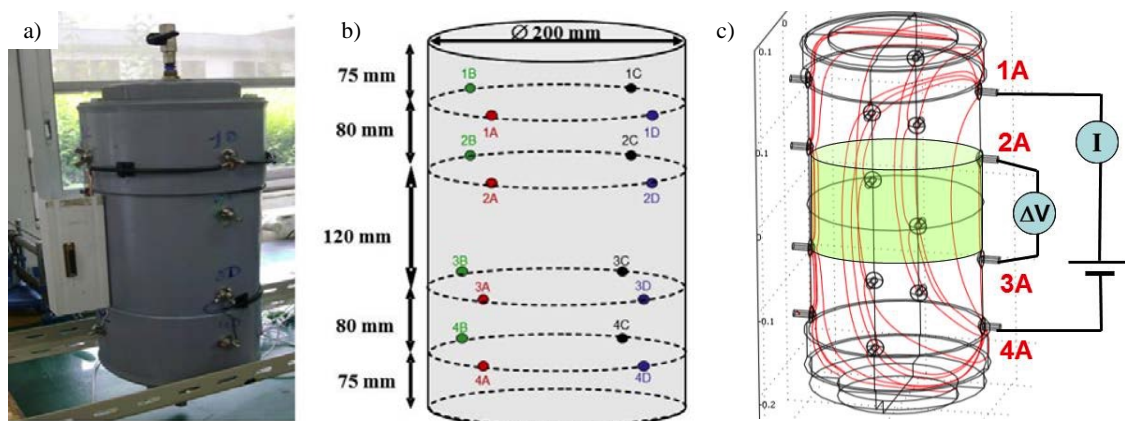


Figure 33 : a) picture of the laboratory cell; b) electrodes geometry, c) example of a vertical quadripole array

All previously determined densities were reproduced in the laboratory test cells, which were filled in three layers to reach a homogeneous density as a function of depth. For a given density, all three layers were filled progressively, with particular attention paid to covering the sides of the cell evenly. Before the second layer was added, the first layer was packed down with a cylinder. The same operation was repeated until the cell was full of substrate. Tableau 25 gives a summary of the 36 experiments that were performed.

Tableau 25 : Experimental parameters and characteristics of the substrates

Season	Mass of the substrate (kg)	Density	Equivalent depth ^a (m)	Massic water content (w%)	Experiment
Summer	1.565	0.134	-0.2	85	1
				95	2
				64	3
	1.844	0.158	-0.6	86	4
				94	5
				64	6
	2.130	0.182	-1.0	86	7
				93	8
				64	9
	2.435	0.208	-1.4	86	10
				92	11
				64	12
	2.811	0.242	-1.8	84	13
				92	14
				64	15
	3.125	0.269	-2.2	85	16
				90	17
				64	18
Winter	3.632	0.311	-0.2	88	19
				93	20
				74	21
	4.527	0.389	-0.6	88	22
				92	23
				74	24
	5.148	0.442	-1.0	87	25
				91	26
				74	27
	5.704	0.491	-1.4	86	28
				91	29
				74	30
	6.321	0.544	-1.8	87	31
				90	32
				74	33
	6.710	0.577	-2.2	86	34
				89	35
				74	36

^a The origin of the scale (0 meters) is defined as the top of the solid mass

(ii) Measurement of electrical resistivity

Based on the 16 available electrodes, 124 quadrupoles were imagined to measure apparent electrical resistivity. The classical quadrupole array used two electrodes to inject current I into the substrate, and two others to measure the electrical potential difference ΔV in the substrate. Apparent resistivity ρ_a (Equation 2) was calculated taking into account the geometric factor k , which depended on the positions of the four electrodes.

$$(2) \rho_a = k.(\Delta V / I) (\Omega m)$$

where ΔV is the measured electrical potential difference: voltage (V), I is the intensity of the injected current (A), k is the geometric factor (m) evaluated by simulation software and confirmed by a calibration test on water of known electrical resistivity.

The different quadrupoles were computed to create horizontal, vertical and diagonal fields of current in the substrate to account for the possible heterogeneity of the medium. Figure 33 shows a vertical quadrupole using electrodes located along the same vertical line. All the others are listed in Tableau 26.

A Syscal junior (Iris Instrument, Orleans, France) resistivity meter was used for the measurements, which were made using the following parameters:

- a current injection time of 500 ms
- the measurement was repeated six times to record an average resistivity value
- the voltage requested V_p was “Save energy”

Tableau 26 : Experimental electrode arrays

Array type	Dipole orientation	Quadripole example				Number of quadripole
		A	B	M	N	
<i>Wenner</i>	Vertical	1	13	5	9	4
<i>Dipole-dipole</i>	Horizontal	1	2	3	4	18
<i>Dipole-dipole</i>	Diagonal	1	2	7	8	88
<i>Dipole-dipole</i>	Vertical	1	3	5	7	14

(iii) Electrical resistivity tomography inversion

Using the data sets of recorded apparent resistivity, inversion was necessary to calculate the distribution of electrical resistivity in the model concerned. Inversion of the apparent resistivity data sets was performed using BERT software (Günther et al., 2006; Rucker & Gunther, 2011; Rücker et al., 2006). A finite element method using tetrahedral for 3D models was used to solve the forward problem in the routine inversion software package (Rucker & Gunther, 2011). To consider the insulating boundary condition of the laboratory test cell (Neumann condition), the geometry of the column was specifically drawn for this experiment and the cell was considered as a closed geometry. Smoothness-constrained regularization and the quasi-Gauss Newton optimization method with fixed parameters (i.e. the model norm, wz and λ) were selected. The regularization parameter λ (i.e. the damping factor) can lead to very rough-textured models with good data misfit for small λ values or can smooth models with weak data misfit for large λ (LaBrecque et al., 1996; Tikhonov & Arsenin, 1977). In the present model, λ was set to 45, which is a low regularization parameter. The anisotropy factor was chosen to correspond to an environment whose electrical resistivity distribution is isotropic ($Zweight = 1.0$). An option to recalculate the Jacobian matrix for all iterations was also activated.

The electrical resistivity distribution calculated using BERT Software inversion was represented with Paraview software. As the mixture, the density, the volumetric water content and the temperature were considered to be homogeneous, average resistivity was calculated. From the data available for the different laboratory test conditions, the calculation was made with the data located in the volume between the second and the third ring of electrodes and for all the internal diameter of the

test cell. This configuration was chosen to avoid possible side effects on the measurements caused by the top and the bottom of the test cell.

2.3.2.3. Field experiment

2.3.2.3.1. Description of the experimental site

The field experiment was conducted at a farm located in La Verrie (Vendée, France) (for location, see Figure 26a). The SSAD plant was composed of four digesters, a leachate tank and a combined heat and power unit. All four digesters measured 25 m in length, 4.8 m in width and 2.4 m in height plus a 13-m long loading ramp with a 7.6-degree slope. The reactor was filled to a height of 1.6 m with a backhoe loader. After loading, a geotextile was placed on the surface of the waste and the leachate injection system was set up above the geotextile (Figure 34). Periodically, leachate was spread over the top of the substrate through the injection pipe. The purpose of the geotextile is to distribute the leachate across its surface to moisten the biggest possible area.

The mixture used for the experimentation was composed of cow manure, rabbit manure, lawn cuttings and solid rumen, with a gravimetric water content of 74 kg/kg and a volatile solid content of 0.16 kg per kg of wet solids. The water content of this substrate was the same as that of the “winter” mixture used in laboratory-scale analysis, before moistening.

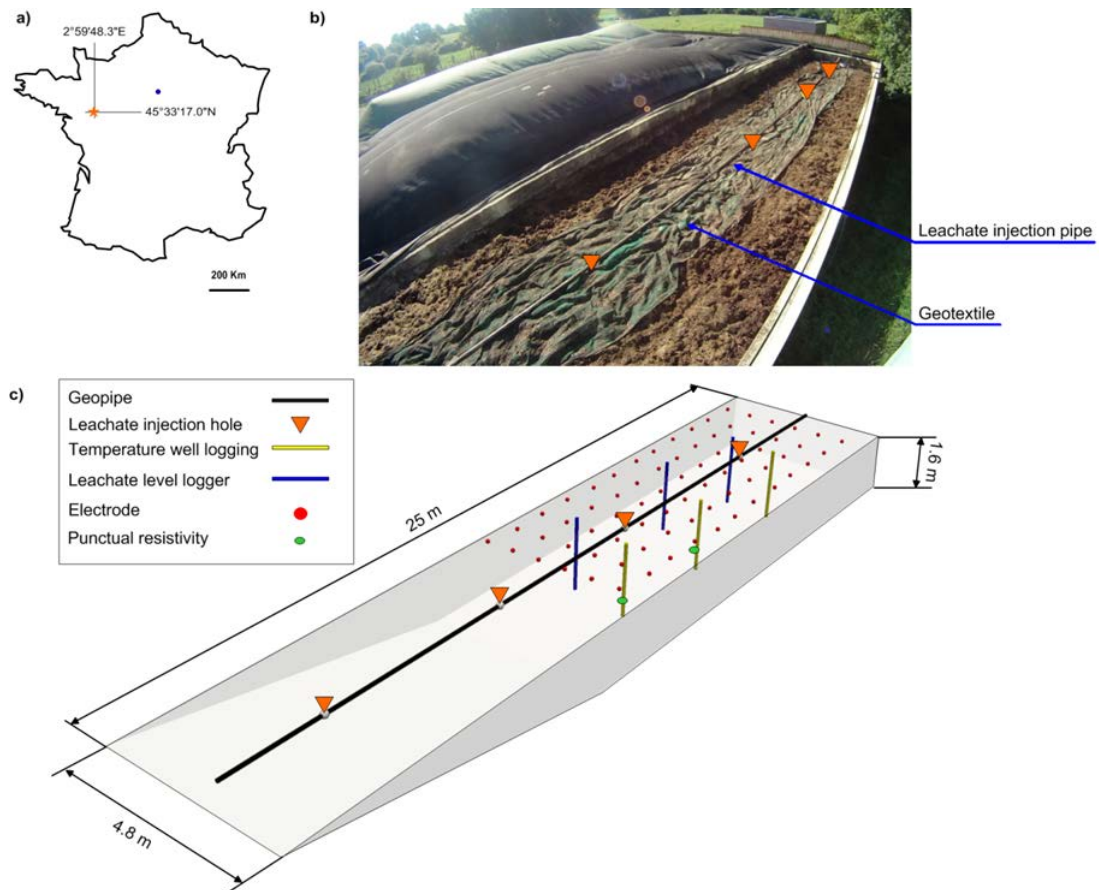


Figure 34 : a) Location of the study site; b) photo of full anaerobic digester; c) 3D schematic diagram of the digester showing the distribution of measurement points

2.3.2.3.2. Leachate injection and hydrodynamic monitoring

The leachate injection pipe was 22.5 m long with an internal diameter of 0.15 m. Four rectangular holes (18 cm long x 1cm wide) delivered the leachate onto the surface of the solid substrate at 3.90, 9.45, 14.25 and 19.15 m respectively (black stick and orange triangles, Figure 34). Piezometers (represented by the blue rods in Figure 34) were added to record the level of leachate over the course of the experiment and to confirm ERT observations. Punctual ERT measurements were also performed inside the mass of the substrate, using a small punctual quadripole with 10 cm spacing between electrodes. Two punctual ERT sensors were buried in the substrate as shown in Figure 34 (small green circles).

The experiment lasted three days. The first day was spent loading the digester, setting up the instruments and measuring initial resistivity at initial moisture content. On the second day, leachate was injected at a flow rate ranging between 8 and 9 m³/h for five hours. ERT measurements were made at 10-minute intervals. When injection ended, the system was left to stabilize for 50 minutes during which measurements of resistivity continued. The digester was then drained for three hours. Punctual resistivity was recorded at 20 minute intervals, and global resistivity at 10 minute intervals throughout the drainage stage.

2.3.2.3.3. Time-lapse electrical resistivity measurement

Electrical resistivity was measured using a multi-channel resistivity-meter Syscal pro (Iris Instrument, Orleans, France) equipped with 72 stainless steel electrodes (type 316L). Given the small unit space between electrodes (less than 1 m), specific electrodes with a diameter of 8 mm were used, inserted to a depth of 10 cm in the substrate. The electrode geometry used on the experimental site comprised 12 measurement lines spaced 1.2 m apart and included 6 electrodes with 0.75 m unit of electrode spacing (Figure 34). In order to compare all resistivity measurements, the electrode was installed and then left in the same position throughout the measurement period. All electrical resistivity was measured using a dipole-dipole array with 534 quadripoles and a gradient array with 372 quadripoles. A total of 72 ERT profiles were acquired for each array over the course of the experiment. The measurements were made in high speed mode with the following parameters:

- A current injection time of 250 ms (for an 8-minute acquisition)
- A 10-minute delay sequence
- A single measurement was made; no repetition of the measurement to average the resistivity value measured or to compute the deviation.
- A fixed 75V injection potential (VAB)

Before leachate injection began, low values of contact resistance between each consecutive electrode were measured (often less than 1.1 kohm). To ensure a correct error estimation, full direct

and reciprocal quadrupoles were acquired (Binley et al., 1995). Three reference profiles (30-minute intervals) were also carried out before injection, showing a repeatability with a variation of apparent resistivity of less than 4.5% and a very strong correlation (Figure 35a). As proposed by Robert et al. (2012), the data inversion used the same parameter, and the variation in interpreted resistivity was less than 4.8%. The correlation between direct and reciprocal quadrupoles was also very good (Figure 35a). Taken together, these data allowed us to assume that all the 97 profiles recorded during injection were consistent and could be used to evaluate the volume of substrate humidified during recirculation of the leachate.

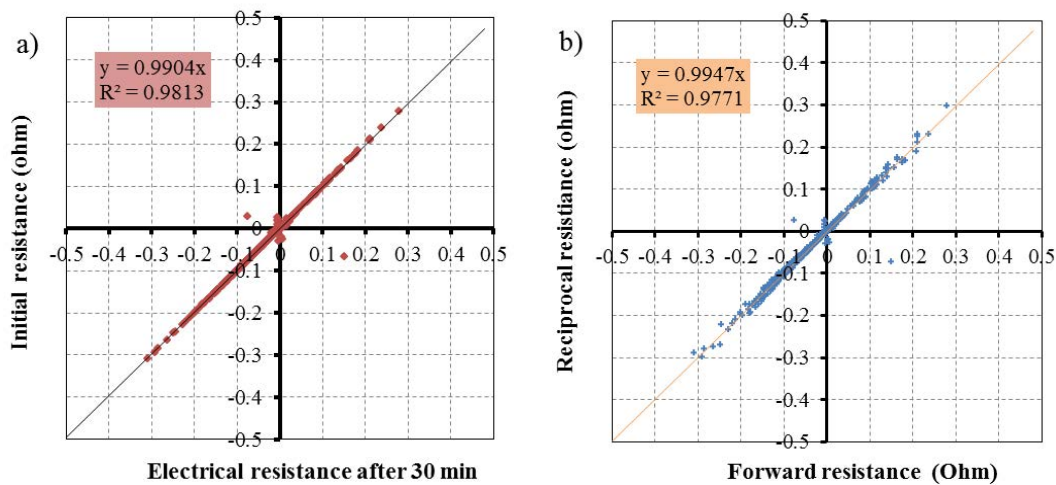


Figure 35 : Error estimation with full direct and reciprocal quadrupole

2.3.2.3.4. Time-lapse electrical resistivity inversion

The inversion process was the same as that described in the laboratory test. Only the low regularization parameter was selected equal to $\lambda=30$ to avoid smoothing the contours of infiltration.

For time-lapse inversion, the reference model time-lapse approach was used. This consists in inverting the initial apparent resistivity data set recorded at time t_0 (i.e. before the beginning of leachate injection) with the previously mentioned parameters and using this result as the reference model for the inversion of the following apparent resistivity data sets recorded at time t (corresponding to another time step of the infiltration). This procedure was used for most of the time-lapse surveys proposed by (Loke, 1999). The same constraint regularization and inversion parameters as the initial

inversion were used at time t . To determine the misfit of the data inversion, standard inversion tools use the root mean square (RMS) (Loke & Barker, 1996) and the χ^2 mathematical criteria (Günther et al., 2006).

In several papers (Audebert et al., 2014a; Clément et al., 2010; Guérin et al., 2004; Moreau, 2003), the variation of resistivity is expressed as a percentage of the resistivity variation $\Delta\rho$. If the resistivity decreases or increases, the percentage is, respectively, negative or positive according to Equation (3):

$$(3) \Delta\rho = \frac{\rho(t)}{\rho_0 - 1} \cdot 100\%$$

where ρ_0 (Ω m) is the resistivity value of the initial resistivity model, and $\rho(t)$ is the resistivity value of the resistivity model at time t .

2.3.2.3.5. Leachate injection delineation

Several authors demonstrated the difficulty of delineating the infiltration zone due to two main assumptions related to the inversion process (Audebert et al., 2014b; Clément et al., 2010). First the inversion process is based on the choice of inversion parameters which greatly influences the infiltration shape. Second the inversion methods are based on a smoothness-constrained method which tends to smooth the resistivity variation in the inversion model. For this reason Audebert et al. (2014b) developed an inversion strategy named MICS for Multiple Inversion Clustering Strategy. This strategy improves the hydrodynamic interpretation of the resistivity by extracting razor-shape delineation of the infiltration. The MICS methodology is based on two steps: i) the first step is a multiple inversion step which consists in performing a large set of inversion of apparent resistivity by varying the inversion parameters, as proposed by Audebert et al. (2014b), the inversion parameter chosen corresponds to the inversion norm L1, anisotropic factor Wz of 1 and a logarithmic distribution of 32 values of the regularization parameter λ . ii) the second step is a clustering strategy which

consists in two successive operations: (a) the k-means algorithm applied on each inversion result of the multiple inversion step in order to divide it into two zones: an area where resistivity decreases significantly (similarly to the leachate infiltration area) and an area where resistivity remains constant (the remaining substrate) and (b) a grouping approach assembling all the clustering results into one final cross section.

2.3.3. Results and discussion

2.3.3.1. Laboratory results

Measurements of resistivity of the “summer” and “winter” mixtures performed in the laboratory are presented in Figure 36. For both mixtures, depending on the density applied and the water content, resistivity was found to vary to a certain extent. Due to its low initial water content (64w%), variations in the resistivity of the “summer” mixture were generally greater than those in the “winter” mixture (initial water content of 74w%), regardless of the experimental conditions. Indeed, the electrical resistivity of the “summer” mixture ranged from 3.1 to 109.6 ohm.m while that of the “winter” mixture ranged from 2.2 to 12.0 ohm.m. Standard deviations for the “summer” mixture were also higher, particularly for low densities and low water contents: 126.2 and 15.4 ohm.m for 64 and 85w% of water content respectively at a density of 0.134. These high standard deviations were attributed to the high porosity and heterogeneity of the “summer” mixture.

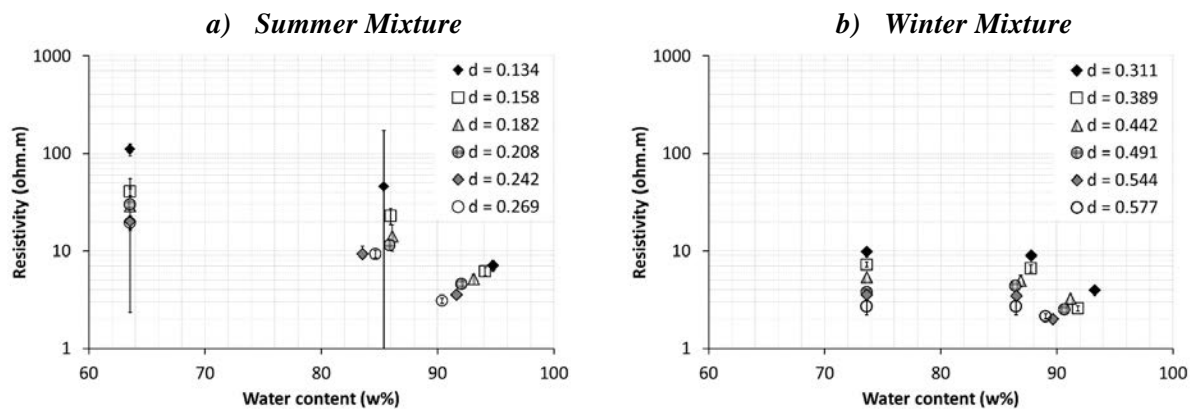


Figure 36 : Experimental values of electrical resistivity as a function of densities and water contents for (a) the summer mixture and (b) the winter mixture at laboratory scale

Density also influenced variations in electrical resistivity. When the density varied from 0.134 to 0.269, resistivity of the “summer” mixture decreased from 109.7 to 19.5, 45.7 to 9.3 and 7.1 to 2.7 ohm.m at the initial state, at field capacity and at water saturation, respectively. In the “winter” mixture, resistivity decreased from 9.8 to 2.7, 9.0 to 2.7 and 4.0 to 2.1 ohm.m when density increased from 0.311 to 0.577 and for the lowest to the highest water content, respectively. For the three conditions tested (initial state, at field capacity and at water saturation) and at all densities, the same trend was observed: an increase in density led to a decrease in electrical resistivity.

At low density (0.134, which represents the top layer of the bioreactor in the field) with a water content of 64w% (initial state), resistivity of the “summer” mixture was 109.7 ohm.m. This value dropped to 7.1 ohm.m when the substrate was completely saturated with water (water content of 95w%). At high density (0.269 –the bottom layer of the bioreactor), when water content increased from 64 to 90w% (initial to saturated state), resistivity decreased from 19.5 to 3.1 ohm.m. The intermediate densities followed the same trend, as did the “winter” mixture, which showed a decrease in resistivity from 9.8 to 4.0 ohm.m (density of 0.311 in the top layer in the bioreactor) and 2.7 to 2.1 ohm.m (0.577 – bottom layer) when the water content increased from the initial state (74 w%) to the saturated state (93w% for low density and 89 w% for high density) respectively.

When the bioreactor was loaded with the “winter” mixture, the variation in resistivity in the bottom layer (density 0.577) was limited (2.7 to 2.1 ohm.m). The high water content in the original

manure combined with the high density of the deepest layer led to a state very similar to the field capacity and close to water saturation, thereby limiting variations in resistivity. However, resistivity values of the saturated state in the top layer varied by 50% compared with the initial state, as frequently reported in the literature (Audebert et al., 2014a; Clément et al., 2010; Guérin et al., 2004; Moreau, 2003).

Overall, regardless of the mixture used, electrical resistivity decreased with an increase in the massic water content and with an increase in density, and inversely. Moreover, in this section, electrical resistivity was found to give reliable results to study leachate infiltration in agricultural waste substrates. The “winter” mixture gave less contrasted results but, as the composition of the winter mixture is less likely to differ from one region to another than the “summer” mixture, field experiments were performed using the “winter” mixture.

2.3.3.2. Results of field experiments

2.3.3.2.1. Monitoring electrical resistivity during leachate injection

Figure 37 shows variations in electrical resistivity during injection of the leachate. For the sake of simplicity, only the results of sections AA' and BB' are shown (at the top of Figure 37). Section AA' follows the leachate injection line, along the length of the digester, and section BB' follows the width of the digester, at one leachate injection hole. In both sections, the first profile (0 min) represents the initial resistivity in the agricultural substrate. The following profiles show variations in resistivity at several injection times: 10, 60, 120, 240 and 300 min after the beginning of the leachate injection. The “480 min” profiles show variations in resistivity two hours after drainage ended.

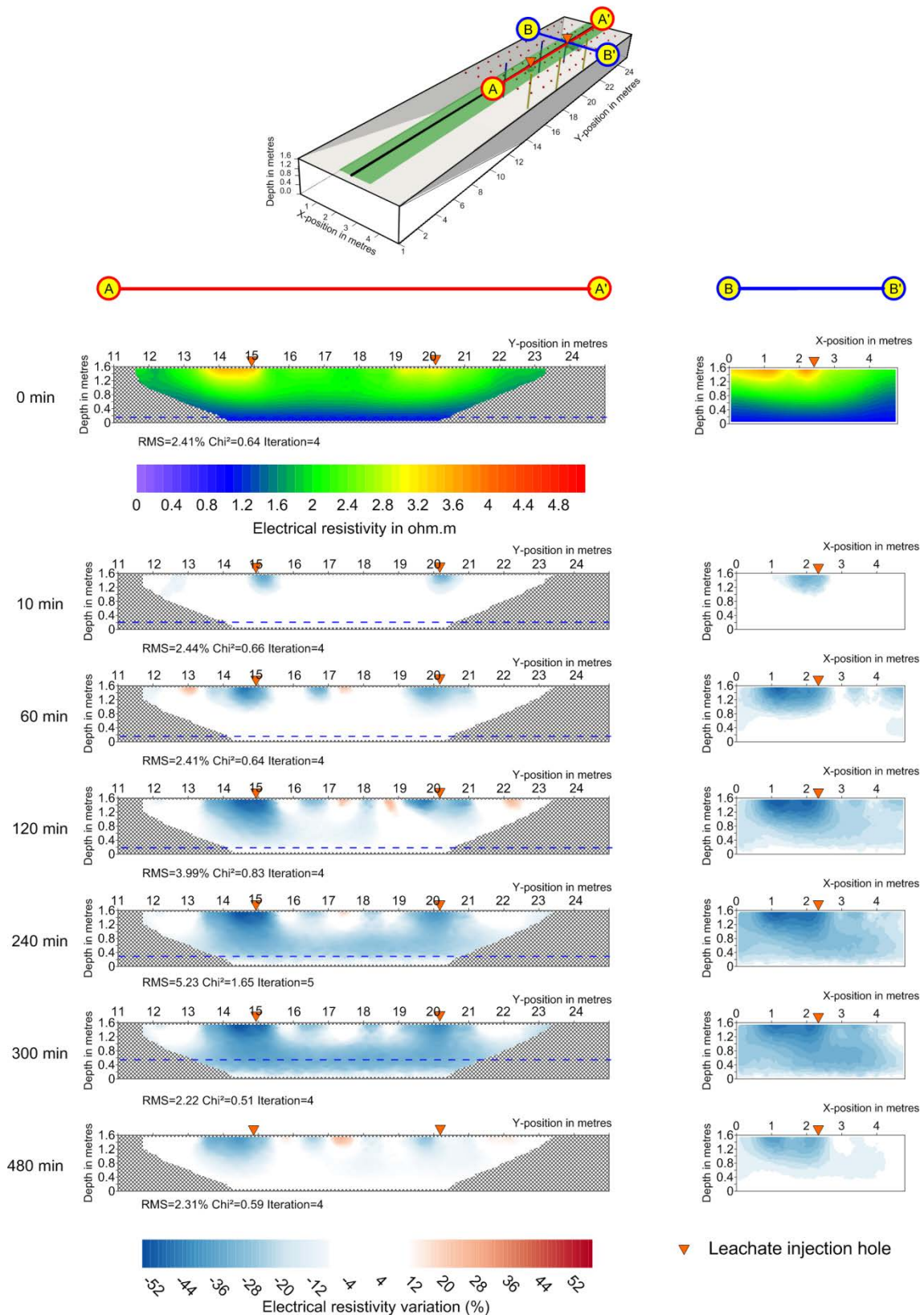


Figure 37 : Time lapse of electrical resistivity variation during leachate injection focusing on section (AA') and section (BB') extracted from the 3D inversion. Blue dashed lines represent the piezometric level recorded during the experiment

The AA profiles (left part of Figure 37) are limited to the ERT sensitivity zone. Grey zones are not in this sensitivity zone and data are not available. In the BB' profiles (right part of Figure 37) the sensitivity zone covers the entire width of the digester. Regarding the length of the digester, data are not available beyond the zone located below the electrodes. For the overall inversions, RMS and Chi^2 values ranged from 2.22 to 5.23% and 0.51 and 1.65 respectively, confirming that the profiles were reliable.

The initial resistivity of the manure substrate (0 min) varied from 1.0 ohm.m at the bottom of the digester to 4.0 ohm.m at the top of the digester for each section. These results are close to the laboratory scale measurements which showed a variation of resistivity values from 2.7 to 9.8 ohm.m for the same water content. The highest resistivity values were recorded at the top of the reactor while the lowest values corresponded to the bottom of the reactor. This gradient of resistivity is probably linked to density, as it was also observed in laboratory scale experiments. However, the 38 first centimeters of manure were completely immersed in leachate according to piezometric level (blue dashed line) giving very low resistivity values (around 1 ohm.m). Overall, there was no heterogeneity in the resistivity values except those due to densities or water contents, which do not match the very heterogeneous structure of the manure. This is probably due to the low resistivity of the media which had a smoothing effect on the final results.

Ten minutes after the beginning of leachate injection, two distinct bulbs appeared below the leachate injection points with a variation of about -25% in resistivity. These bulbs kept growing after 60 and 120 min of injection with a higher variation (-50%) in resistivity indicating higher water content in these zones. Their shape was not perfectly spherical but rather flattened probably due to the difficulty the leachate met attempting to percolate through higher densities. The rest of manure body showed little variation and the leachate level remained stable at the bottom of the digester (white zones).

After 240 and 300 min of injection (4 and 5 hours), the bulbs joined each other at the bottom of the reactor with a -20 to -35% variation in resistivity values. On these profiles, the bulbs look even more flattened with depth. This phenomenon is frequent in hydrodynamics and was attributed to an

increase in density, a decrease in hydraulic conductivity, and an increase in water level. However, small zones at the top of the digester did not vary at all. This suggests that the distribution of leachate at the surface of manure body was not balanced. The piezometric level (blue dashed line) started to increase slightly after 25 min of injection and reached 0.53 ± 0.02 m high 300 min after the beginning of the experiment. Below this level, variation in resistivity was homogeneous and close to 35%, indicating a uniform leachate distribution in the deepest layers.

Two hours after the digester had been drained (“480 min” profile), -30% variation in resistivity was measured close to the leachate injection points. This difference could be due to a change in the manure structure during injection or to higher water content in these areas. The resistivity values of the main part of the manure substrate were close to those measured at the initial state.

The reliability of these results was tested by measuring local resistivity with two small independent quadripoles buried in the manure substrate (Figure 34c). The first quadripole was located at $X = 3.75$ m, $Y = 17.40$ m and $Z = 0.70$ m (in the middle of the manure), and the second quadripole at $X = 3.65$ m, $Y = 21.20$ m and $Z = 0.60$ m (close to point B’). These resistivity measurements are plotted in Figure 38 and compared to resistivities extracted from the 3D-ERT data in the same positions. Patterns showed the same tendency and values for both global and local measurements were close, with a decrease in resistivity during the entire injection phase and an increase during the drainage phase. This confirmed that the 3D measurements were reliable.

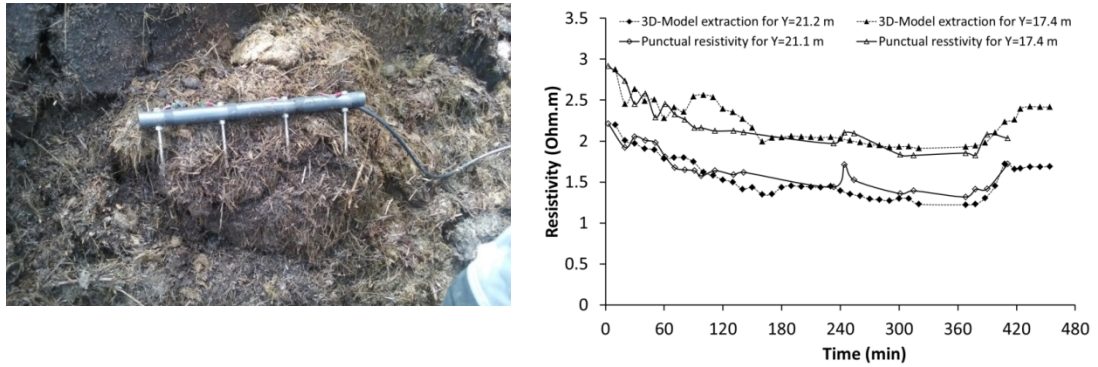


Figure 38 : (a) photo of local independent quadripole; (b) comparison of resistivity measurements between ERT method and local method for two different manure areas

Figure 39 shows variations in the leachate level in the digester calculated with piezometers. Before injection, the level of leachate at the bottom of the digester was 0.38 ± 0.00 m. During the first 25 minutes, the level of leachate remained stable and then started to increase. Depending on the position of the piezometer, the rise in the level of the leachate was not uniform throughout the digester. After 120 min and 240 min, the level of leachate was 0.46 ± 0.04 m and 0.47 ± 0.04 m. These differences between piezometers are probably due to the heterogeneous structure of the manure which slowed down the stabilization of the level of the leachate. However, 350 min after injection of the leachate began, i.e. 50 minutes after stabilization of the system, the piezometric level was uniform at 0.51 ± 0.02 m. Two hours after gravimetric drainage (480 min), the piezometric level had not recovered its initial height, with a recorded value of 0.46 ± 0.01 m at the bottom of the digester.

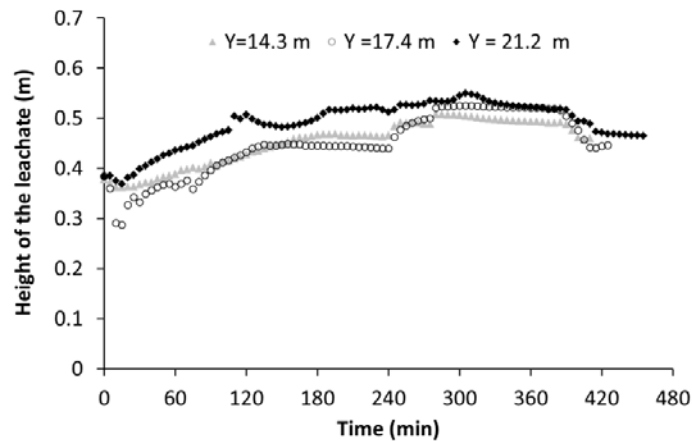


Figure 39 : Height of the leachate measured with piezometers at different Y positions during injection

A three dimensional localization of leachate infiltration was built using the MICS methodology (Figure 40). Nine phases of the experiment are presented: the seven first diagrams (a) to (g) are a time-lapse of leachate infiltration, from 10 to 300 minutes after the beginning of injection; diagram (h) shows infiltration immediately after the beginning of drainage; and diagram (i) represents the leachate distribution one hour after drainage ended. This figure gives a clear representation of size, distribution and localization of infiltration. As already shown in Figure 37, two distorted bulbs appeared, which is typical behavior for media with heterogeneous hydrodynamic properties. Moreover, regardless of time, the bulb closer to the leachate input ($Y = 20.2$ m) grew faster and was bigger than the other one. That phenomenon is a consequence of the sizes of the perforations in the leachate injection line. As each hole was the same size, pressure dropped along the line. Thus, the farthest perforations distributed less leachate than the one located close to the leachate input, resulting in areas that were not moistened.

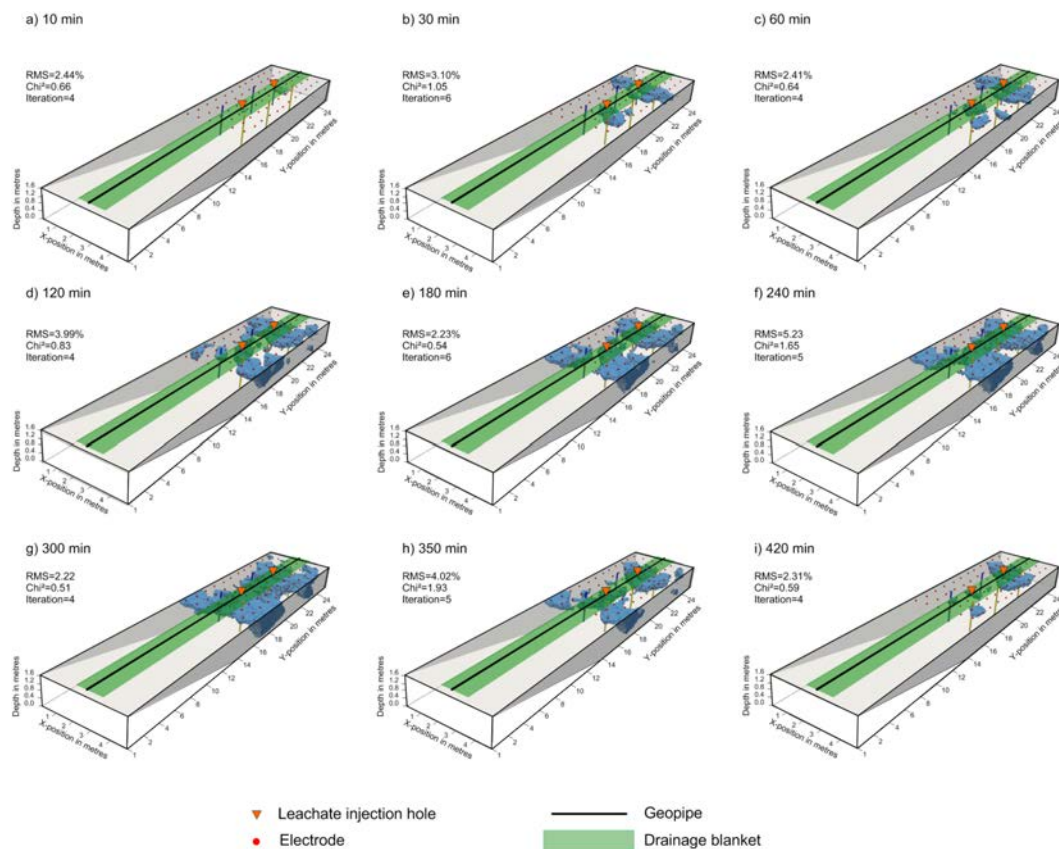


Figure 40 : Time lapse of the leachate infiltration through the manure substrate obtained with MICS

In addition, the considerable surface roughness of the substrate may have caused preferential paths at the surface which could explain the formation of small bulbs around the main infiltration points. Those results clearly revealed that the injection system is unable to distribute the leachate evenly throughout the substrate. As moisture content directly influences microbial growth and activity (Lay et al., 1997), it is worth considering that in dry areas, organic matter will not be consumed by microorganisms and methane production will not occur. Better leachate distribution could therefore increase methane output and thus lead to a higher yield of renewable energy.

2.3.3.2.2. Comparaison between the injected volume and the wet manure generated

The MICS methodology was also used to calculate the volume of manure impacted by leachate injection, as shown in Figure 41. During the experiment, 21 m³ of leachate were injected generating 53 m³ of wet manure. The final apparent porosity, defined as the ratio of injected volume to wet manure generated, was 0.4. Apparent porosity increased over time and ranged from 0.2 to 0.6, and finally stabilized at 0.4. High porosity values observed at some points of the experiment could be related to the appearance of pools of water or to limited settlement at the surface of the manure substrate. These phenomena are linked to the density and high water content of the manure. These results also indicate that cattle manure is similar to a simple continuum porous media (Audebert, 2015). From a biological point of view, pools are not good for optimal methane production. According to Klink and Ham (1982), the movement of moisture is as important as moisture content because it facilitates the transport of nutrients and inhibitory substances to and from microorganisms. Pools slow down the distribution of nutrients and favor the accumulation of inhibitory components, leading to lower methane yields.

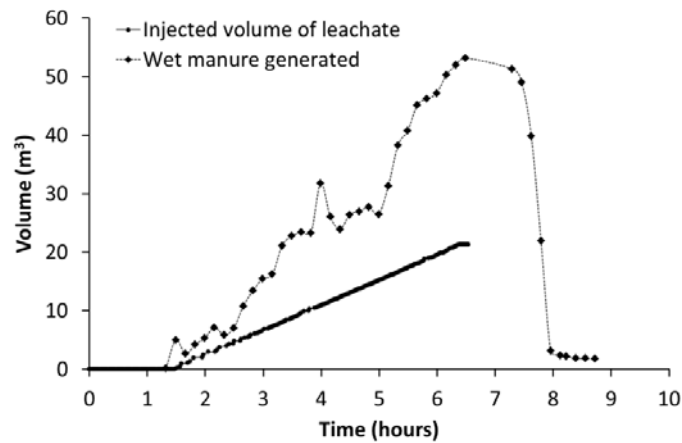


Figure 41 : Response of the wet manure volume generated from the injected leachate quantity

2.3.4. Conclusion

Electrical resistivity tomography method was applied to SSAD of agricultural waste in order to evaluate its efficiency in monitoring leachate percolation through that kind of substrate. ERT was first measured in lab scale cells, with media of different density and water content, to evaluate any differences in variations in resistivity. The “summer” mixture showed a better contrast in resistivity variations than the “winter mixture”. However, the same trend was observed in the two mixtures: the resistivity of agricultural waste increased with both an decrease in density and a decrease in water content, making it transposable to full-scale SSAD plant.

At full scale, initial ERT measurement on cattle manure showed different resistivity values at the bottom and at the top of digester. These differences were attributed to density and water content gradients. During the injection of the leachate, the method was also able to identify the infiltration and provided the first reliable results on leachate percolation through manure at full scale. The distorted shape of the bulbs observed over time is a consequence of the heterogeneous hydraulic properties of cattle manure, which are particularly marked in the vertical direction. The body of manure behaved like a simple permeability medium whose apparent porosity ranged from 0.2 to 0.6 and stabilized at 0.4.

The ERT methodology was successfully applied to SSAD of cattle manure. It highlighted the inability of the injection system to evenly moisten the whole manure body. In this case, microorganisms present in not moistened areas will suffer from the lack of water and will not become active. As a result, methane will not be produced and the maximum yield will not be reached. Moreover, the heterogeneous distribution of leachate may lead to non-renewed areas in the solid, which may favor the accumulation of inhibitory substances (like ammonia and volatile fatty acids) reducing methane yields still more. Thus, further investigations of different geometries of the recirculation system are needed, for example, with more perforations and smaller holes.

This work could also be completed with laboratory permeametry tests which could provide additional data on hydraulic conductivity. Use of combined hydrodynamic conductivity and ERT model could help understand the leachate percolation phenomenon. These experiments should be replicated using other digesters to collect more data on agricultural wastes. Monitoring electrical resistivity and variations in polarization over the course of a complete anaerobic digestion cycle would provide further information on manure degradation by identifying areas where degradation did not occur.

Acknowledgements

We gratefully acknowledge Denis Brosset for allowing us access to the SSAD plant and to convenient facilities for leachate injection. We are also grateful to the “MP2” HBAN team for all laboratory and field instrumentation, and our special thanks go to Bernard Loiseau and Georges Guyot.

3. Perspectives de dimensionnement

Compte tenu de la distribution hétérogène du lixiviat dans le massif d'effluents, un nouveau dimensionnement du brin d'injection est nécessaire. Initialement, cette partie avait pour objectif de proposer, à partir des résultats de l'ERT, un modèle d'écoulement du lixiviat à travers des effluents agricoles. A partir de ce modèle, plusieurs types de systèmes d'injection auraient pu être testés numériquement afin de déterminer celui qui aurait permis de distribuer le lixiviat de façon la plus homogène possible. Cependant, la liquidation judiciaire de l'entreprise qui finançait ce travail de thèse a retardé de plusieurs mois la mise en place des expérimentations à grande échelle, nous contraignant donc à revoir les objectifs initiaux.

Un nouveau dimensionnement du brin d'injection en place est tout de même proposé dans cette partie. A partir des résultats de l'ERT, le défaut principal du système d'injection utilisé sur le terrain (1 brin avec 4 perforations) a été identifié. Il repose sur la taille et l'agencement des perforations. Bien souvent des perforations de trop grande dimension, ou de même taille, entraînent une perte de charge rapide dans la canalisation, ne permettant pas une alimentation homogène des perforations le long du brin. L'objectif de ce paragraphe sera donc de recalculer la taille des orifices en tenant compte des contraintes géométriques du digesteur et en utilisant la loi de Torricelli (ou loi des orifices) afin d'obtenir une distribution homogène du lixiviat.

3.1. Loi de Torricelli ou loi des orifices

La loi de Torricelli décrit la vitesse d'écoulement d'un liquide, contenu dans un cylindre et soumis à une charge hydraulique h , à travers un orifice de section S situé sur ce cylindre. Elle s'écrit comme suit :

$$q = C.S.\sqrt{2.g.h} \quad (10)$$

avec q le débit volumique ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), C le coefficient de décharge de la perforation (sans unités), S la section de l'orifice (m^2), g l'accélération de la pesanteur ($9,806 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$) et h la charge hydraulique appliquée au liquide (m).

Le coefficient de décharge est un terme correctif correspondant au ratio entre le débit réel mesuré et le débit théorique (fluide parfait, écoulement isentropique et monodimensionnel). Dans le cas d'un brin horizontal cylindrique (cas de cette étude), ce coefficient vaut 0,61 (Regard, 1996; Swamee & Swamee, 2010). Pour ce même type de brin, à charge constante et avec N orifices (Figure 42), la loi de conservation de la masse permet d'écrire, l'équation (11) :

$$Q_{tot} = \sum_{i=1}^N q_i = 0,61 \cdot \sqrt{2 \cdot g \cdot h} \cdot \sum_{i=1}^N S_i \quad (11)$$

avec Q_{tot} le débit massique appliqué initialement dans le brin d'injection du lixiviat ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$).

Différentes formes de cette équation seront utilisées pour calculer la taille des différents orifices le long de la ligne de d'injection.

3.2. Amélioration du système d'injection

La proposition de modifications du système d'injection repose sur trois observations tirées des résultats de l'ERT (Figure 37 et Figure 40) :

1. des zones non humidifiées apparaissent entre deux points d'injection consécutifs
2. le bulbe liquide formé au niveau de l'orifice le plus proche de la section d'injection est plus important que le suivant.
3. en largeur, un seul brin central suffit à répartir le lixiviat jusqu'au parois du digesteur

Afin de résoudre ces problème et d'obtenir une distribution plus homogène du lixiviat, les améliorations suivantes ont été proposées, en ne gardant donc qu'un brin central :

1. entre chaque orifice déjà présent, un nouvel orifice doit être rajouté,
2. la taille des orifices doit être adaptée à la position de ce dernier sur la ligne d'injection.

La Figure 42 donne un aperçu de ce que pourrait être ce nouveau brin d'injection. Les marques jaunes représentent les orifices existants et les marques oranges représentent les orifices ajoutés suite à l'observation n°1. Aucun orifice n'a été ajouté en amont de la première marque jaune (q_1) car, sur le terrain, cette partie était composée d'un tuyau souple et d'un système de branchement du brin PVC, ne permettant pas l'ajout d'un orifice supplémentaire. D'autre part, compte tenu de la géométrie du digesteur, les débits partiels q_i ont été estimés en prenant en compte les volumes potentiellement impactés par l'orifice, symbolisés par les sections délimitées en vert. Ainsi le débit du premier orifice (q_1) sera proportionnel au volume V_1 , q_2 sera proportionnel à au volume V_2 , et ainsi de suite. Finalement, un brin avec sept orifices, impactant sept sections de substrat, a été considéré pour les applications numériques. Les détails de position des orifices et des volumes V_i associés sont disponibles dans le Tableau 27.

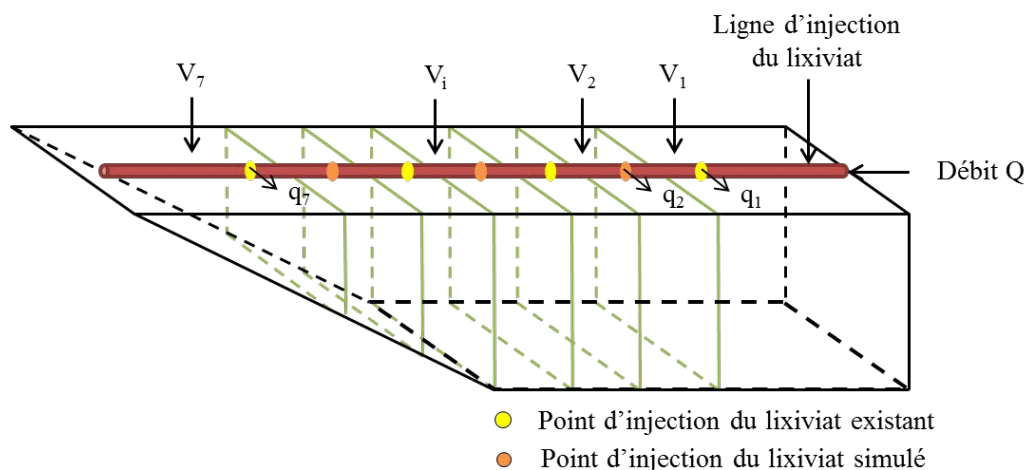


Figure 42 : Schématisation de la répartition des orifices et des volumes mouillés correspondants pour application de la loi des orifices

La première étape de l'application numérique consiste à déterminer la charge hydraulique appliquée au brin d'injection. Pour cela, on applique l'équation (11), en utilisant les paramètres du brin initial, c'est-à-dire 4 orifices rectangulaires de sections identiques ($0,0018 \text{ m}^2$), au débit utilisé sur le terrain, soit $9,2 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. L'application numérique donne alors la valeur suivante :

$$h = 0,018 \text{ m}$$

Cette valeur sera donc utilisée pour la suite des calculs.

La deuxième étape a pour but de déterminer les débits q_i nécessaires permettant de distribuer équitablement le lixiviat en fonction du volume V_i correspondant. Ce calcul se fait par simple application d'un coefficient de proportionnalité tel que :

$$q_i = \frac{V_i}{V_{tot}} \times Q_{tot} \quad (12)$$

avec V_{tot} , le volume total d'un digesteur, soit 140 m^3 et Q_{tot} le débit volumique appliqué, soit $9 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

Les débits ainsi calculés sont répertoriés dans le Tableau 27.

La troisième et dernière étape consiste à appliquer l'équation (10) pour chaque débit q_i afin de calculer la section S_i permettant d'atteindre ce débit, et par suite les dimensions de l'orifice (largeur constante égale à 1 cm).

Tableau 27 : Récapitulatif des caractéristiques d'un nouveau brin d'injection du lixiviat

Portion	V₁	V₂	V₃	V₄	V₅	V₆	V₇
Position de l'orifice (m)	3,9	6,7	9,5	11,9	14,3	16,7	19,2
Volumes impacté V _i (m ³)	40,7	21,5	20	18,5	17	12,3	9,8
Débit q _i (m ³ .h ⁻¹)	2,7	1,4	1,3	1,2	1,1	0,8	0,7
Débit cumulé (m ³ .h ⁻¹)	2,7	4,1	5,4	6,6	7,7	8,5	9,2
Section S _i (m ²)	0,00157	0,00083	0,00075	0,00071	0,00066	0,00047	0,00037
Longueur de l'orifice (cm)	15,7	8,3	7,5	7,1	6,6	4,7	3,7

Le nouveau brin d'injection du lixiviat aurait donc des longueurs d'orifices comprises entre 3,7 et 15,7 cm. La petite taille de ces perforations pourrait s'avérer problématique lors du pompage du lixiviat. En effet, sans système de filtration (comme c'est le cas actuellement) il est possible que de la

paille (ou tout autre solide présent dans le substrat) colmate totalement ou partiellement les orifices. Afin d'éviter ce phénomène, un système de filtres pourrait être ajouté au système d'injection.

4. Conclusions et perspectives

L'objectif principal de ce chapitre était d'évaluer l'efficacité d'un système d'injection de type brin/tranchée horizontal(e), équipé sur un digesteur de type « bateau », à distribuer le lixiviat de façon homogène à travers un substrat agricole solide.

Pour cela il était nécessaire de pouvoir suivre l'infiltration du lixiviat à travers ces substrats. La pertinence de l'utilisation de la méthode ERT sur ce type de solide a donc été évaluée. Dans un premier temps, l'impact de la profondeur du massif sur la variation de la conductivité hydraulique et de la résistivité électrique a été étudié au laboratoire, sur deux substrats appelés mélange « hiver » et mélange « été ». Puis, toujours en laboratoire, les variations de résistivité électrique ont été mesurées en fonction du taux d'humidité appliqués à ces mêmes mélanges. Au regard de ces résultats, une expérimentation à grande échelle a été menée afin de localiser l'infiltration du lixiviat dans un substrat agricole. Enfin l'efficacité du système d'injection a pu être discutée. Quatre éléments principaux ressortent de ce chapitre.

Premièrement, la résistivité électrique des substrats agricoles varie avec la profondeur du massif et le taux d'humidité de ces derniers. L'effet de la profondeur se traduit par la compaction des solides et par l'augmentation de leurs masses volumiques : plus le massif d'effluent est haut, plus les couches profondes subiront cette compaction et plus la masse volumique est élevée. La résistivité électrique est également influencée par ce changement physique de la matière et est d'autant plus faible que la masse volumique est élevée, et ce pour les deux mélanges étudiés. En parallèle, une augmentation du taux d'humidité des substrats se traduit également par une diminution de la résistivité électrique. En revanche, la profondeur du massif n'a pas d'influence majeure sur la conductivité hydraulique des substrats agricoles qui est en moyenne de $3.10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ à l'état initial après chargement

du digesteur. Cette conductivité est semblable à celle d'un mélange de gravier et de sable à gros grains laissant facilement percoler les liquides.

Deuxièmement, la méthode de l'ERT fonctionne sur le terrain sous réserve de prendre en compte les bonnes conditions aux limites et la géométrie complète du digesteur. Cela a permis de mettre en évidence que le système d'injection du lixiviat utilisé au GAEC du Bois-Joly ne permet pas une distribution homogène du lixiviat dans les digesteurs. Cette conclusion découle de l'application de l'ERT à grande échelle. Cette méthode a permis de suivre et de localiser l'écoulement du lixiviat à travers un mélange d'effluents agricoles. Les profils de résistivité électrique ont montré deux bulbes de liquide, localisés sous les orifices du brin d'injection. Au cours du temps, le volume de ces bulbes a augmenté, montrant une bonne propagation du lixiviat dans le sens de la profondeur et de la largeur d'un digesteur. La taille des bulbes n'était pourtant pas identique à cause d'une perte de charge le long du brin d'injection : la taille des orifices étant identique, plus de lixiviat était distribué en début de brin qu'à la fin. Cependant, entre deux orifices, en surface du solide, la résistivité n'a pas varié, ce qui prouve que le solide n'a pas été humidifié. Le système d'injection méritait donc d'être amélioré.

Troisièmement, l'application de la loi de Torricelli (loi des orifices) au système d'injection du lixiviat a conduit à la proposition d'une nouvelle géométrie du brin d'injection simple. Trois nouveaux orifices, chacun positionné entre deux orifices existants, ont été intégrés afin de pallier le manque d'humidité détecté dans le solide, portant le nombre d'orifices à sept sur un même brin. D'autre part, la taille de chaque brin a été recalculée afin de permettre une distribution homogène du lixiviat en tenant compte de la géométrie d'un digesteur et de la perte de charge. Malheureusement, l'efficacité de ce système amélioré n'a pas pu être testé, ni expérimentalement, ni numériquement, via une modélisation des écoulements qui serait aujourd'hui la suite logique aux travaux entamés.

Il est cependant intéressant de noter que les résultats de ce chapitre ont permis d'acquérir une base de donnée suffisamment fournie pour la réalisation d'un modèle d'écoulement hydriques appliqué à ce type de digesteur et à des effluents agricoles. Les profils de propagation du lixiviat sous forme de bulbes permettraient de définir, par modélisation, les paramètres hydrodynamiques du système étudié. De nouvelles géométries pourraient ensuite être testées, numériquement, afin choisir le système d'injection de lixiviat le plus adapté aux digesteurs de type « bateau ».

Références

- ADEME. 2015. Compteur mensuel des projets biogaz identifiés auprès de l'ADEME. French Environment and Energy Management Agency.
- André, L., Durante, M., Pauss, A., Lespinaud, O., Ribeiro, T., Lamy, E. 2015. Quantifying physical structure changes and non-uniform water flow in cattle manure during dry anaerobic digestion process at lab scale: Implication for biogas production. *Bioresource Technology*, **192**, 660-669.
- André, L., Lamy, E., Lutz, P., Pernier, M., Lespinaud, O., Pauss, A., Ribeiro, T. 2016. Electrical resistivity tomography to quantify in situ liquid content in a full-scale dry anaerobic digestion reactor. *Bioresource Technology*, **201**, 89-96.
- Archie, G.E. 2003. The Electrical Resistivity Log as an Aid in Determining Some Reservoir Characteristics. in: *SPE Reprint Series*, pp. 9-16.
- Audebert, M. 2015. Development of a constraint methodology of hydrodynamic models by an analysis of ERT geophysical data : Application to leachate flow in municipal waste landfills, Vol. PhD.
- Audebert, M., Clément, R., Grossin-Debattista, J., Günther, T., Touze-Foltz, N., Moreau, S. 2014a. Influence of the geomembrane on time-lapse ERT measurements for leachate injection monitoring. *Waste Management*, **34**(4), 780-790.
- Audebert, M., Clément, R., Touze-Foltz, N., Günther, T., Moreau, S., Duquennoi, C. 2014b. Time-lapse ERT interpretation methodology for leachate injection monitoring based on multiple inversions and a clustering strategy (MICS). *Journal of Applied Geophysics*, **111**, 320-333.
- Bernstone, C., Dahlin, T., Ohlsson, T., Hogland, W. 2000. DC-resistivity mapping of internal landfill structures: Two pre-excavation surveys. *Environmental Geology*, **39**(3-4), 360-371.
- Besson, A., Cousin, I., Samouëlian, A., Boizard, H., Richard, G. 2004. Structural heterogeneity of the soil tilled layer as characterized by 2D electrical resistivity surveying. *Soil and Tillage Research*, **79**(2 SPEC.ISS.), 239-249.
- Binley, A., Ramirez, A., Daily, W. 1995. Regularised image reconstruction of noisy electrical resistance tomography data. *Beck, M.S., et als (Eds.), Proceedings of the 4th Workshop of the European Concerted Action on Process Tomography*, 6–8 April 1995, Bergen, 6–8 April 1995. pp. 401-410. pp. 401–410.
- Binley, A., Shaw, B., Henry-Poulter, S. 1996. Flow pathways in porous media: Electrical resistance tomography and dye staining image verification. *Measurement Science and Technology*, **7**(3), 384-390.
- Brunet, P., Clément, R., Bouvier, C. 2010. Monitoring soil water content and deficit using Electrical Resistivity Tomography (ERT) - A case study in the Cevennes area, France. *Journal of Hydrology*, **380**(1-2), 146-153.
- Buselli, G., Lu, K. 2001. Groundwater contamination monitoring with multichannel electrical and electromagnetic methods. *Journal of Applied Geophysics*, **48**(1), 11-23.
- Chugh, S., Clarke, W., Pullammanappallil, P., Rudolph, V. 1998. Effect of recirculated leachate volume on MSW degradation. *Waste Management and Research*, **16**(6), 564-573.

- Clément, R., Descloitres, M., Günther, T., Oxarango, L., Morra, C., Laurent, J.P., Gourc, J.P. 2010. Improvement of electrical resistivity tomography for leachate injection monitoring. *Waste Management*, **30**(3), 452-464.
- Clement, R., Moreaux, S., Günther, T. 2011. Estimating the effect of temperature, density and water content on waste electrical resistivity. *Near Surface 2011 - 17th European Meeting of Environmental and Engineering Geophysics*.
- Clement, R., Oxarango, L., Descloitres, M. 2009. Hydrodynamic of leachate plume in bioreactor landfill - Contribution of 3D time-lapse ERT. *Near Surface 2009 - 15th European Meeting of Environmental and Engineering Geophysics*.
- Clément, R., Oxarango, L., Descloitres, M. 2011. Contribution of 3-D time-lapse ERT to the study of leachate recirculation in a landfill. *Waste Management*, **31**(3), 457-467.
- Depountis, N., Harris, C., Davies, M.C.R., Koukis, G., Sabatakakis, N. 2005. Application of electrical imaging to leachate plume evolution studies under in-situ and model conditions. *Environmental Geology*, **47**(7), 907-914.
- EN-14346. 2006. Characterization of waste - Calculation of dry matter by determination of dry residue or water content.
- Fargier, Y. 2012. Développement de l'Imagerie de Résistivité Electrique pour la reconnaissance et la surveillance des Ouvrages Hydrauliques en Terre, Ecole Centrale de Nantes.
- Gawande, N.A., Reinhart, D.R., Thomas, P.A., McCreanor, P.T., Townsend, T.G. 2003. Municipal solid waste in situ moisture content measurement using an electrical resistance sensor. *Waste Management*, **23**(7), 667-674.
- Grellier, S., Bouyé, J.M., Guérin, R., Moreau, S., Robain, H., Skhiri, N. 2005. Influence of temperature and volumetric water content on electrical resistivity of leachate and waste samples. in: *10th International Waste Management and Landfill Symposium*. Sardinia (Italy).
- Grellier, S., Reddy, K.R., Gangathulasi, J., Adib, R., Peters, C.C. 2007. Correlation between electrical resistivity and moisture content of municipal solid waste in Bioreactor landfill. *Geotechnical Special Publication*(163).
- Guérin, R., Munoz, M.L., Aran, C., Laperrelle, C., Hidra, M., Drouart, E., Grellier, S. 2004. Leachate recirculation: moisture content assessment by means of a geophysical technique. *Waste Management*, **24**(8), 785-794.
- Günther, T. 2004. Inversion Methods and Resolution Analysis for the 2D/3D Reconstruction of Resistivity Structures from DC measurements, University of Mining and Technology. Freiberg, Allemagne.
- Günther, T., Rücker, C., Spitzer, K. 2006. Three-dimensional modelling and inversion of DC resistivity data incorporating topography - II. Inversion. *Geophysical Journal International*, **166**(2), 506-517.
- Guo, M., Song, W., Buhain, J. 2015. Bioenergy and biofuels: History, status, and perspective. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, **42**, 712-725.
- Gupta, S.C., Hans, R.J. 1972. Influence of water content on electrical conductivity of the soil. *Soil Sci Soc Am Proc*, **36**(6), 855-857.

- Huet, J., Druilhe, C., Trémier, A., Benoist, J.C., Debenest, G. 2012. The impact of compaction, moisture content, particle size and type of bulking agent on initial physical properties of sludge-bulking agent mixtures before composting. *Bioresource Technology*, **114**, 428-436.
- Imhoff, P.T., Reinhart, D.R., Englund, M., Guérin, R., Gawande, N., Han, B., Jonnalagadda, S., Townsend, T.G., Yazdani, R. 2007. Review of state of the art methods for measuring water in landfills. *Waste Management*, **27**(6), 729-745.
- Keller, G.V., Frischknecht, F.C. 1966. *Electrical methods in geophysical prospecting*. Pergamon.
- Klink, R.E., Ham, R.K. 1982. Effects of moisture movement on methane production in solid waste landfill samples. *Resources and Conservation*, **8**(1), 29-41.
- Knödel, K., Lange, G., Voigt, H.-J. 2007. *Environmental Geology : Handbook of Field Methods and Case Studies*. Springer.
- Kumar, D., Jonnalagadda, S., Jain, P., Gawande, N.A., Townsend, T.G., Reinhart, D.R. 2009. Field evaluation of resistivity sensors for in situ moisture measurement in a bioreactor landfill. *Waste Management*, **29**(5), 1547-1557.
- LaBrecque, D.J., Miletto, M., Daily, W., Ramirez, A., Owen, E. 1996. The effects of noise on Occam's inversion of resistivity tomography data. *GEOPHYSICS*, **61**(2), 538-548.
- Lay, J.J., Li, Y.Y., Noike, T., Endo, J., Ishimoto, S. 1997. Analysis of environmental factors affecting methane production from high-solids organic waste. *Water Science and Technology*, **36**(6-7), 493-500.
- Lillo, F.J., Gómez-Ortiz, D., Martín-Crespo, T., Carreño, F., de Bustamante, I., López, P.L. 2009. Using electrical resistivity tomography (ERT) to evaluate the infiltration in land application systems. A case study in the Carrión de los Céspedes wastewater treatment plant (Seville, Spain). *Desalination and Water Treatment*, **4**(1-3), 111-115.
- Loke, M.H. 1999. Time-lapse resistivity imaging inversion. In: *5th meeting of the Environmental and Engineering Society, European Section*, Budapest, Hungary.
- Loke, M.H., Barker, R.D. 1996. Rapid least-squares inversion of apparent resistivity pseudosections by a quasi-Newton method. *Geophysical Prospecting*, **44**(1), 131-152.
- Massuel, S., Favreau, G., Descloitres, M., Le Troquer, Y., Albouy, Y., Cappelaere, B. 2006. Deep infiltration through a sandy alluvial fan in semiarid Niger inferred from electrical conductivity survey, vadose zone chemistry and hydrological modelling. *CATENA*, **67**(2), 105-118.
- Mata-Alvarez, J., Macé, S., Llabrés, P. 2000. Anaerobic digestion of organic solid wastes. An overview of research achievements and perspectives. *Bioresource Technology*, **74**(1), 3-16.
- Moreau, S., Ripaud, F., Saidi, F., Bouyé, J.M. 2011. Laboratory test to study waste moisture from resistivity. *Proceedings of Institution of Civil Engineers: Waste and Resource Management*, **164**(1), 17-30.
- Moreau, S.B., J.M.; Barina, G., Oberty, O. 2003. Electrical resistivity survey to investigate the influence of leachate recirculation in a MSW landfill. in: *Ninth International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari*. Sardinia.
- Musy, A., Soutter, M. 1991. *Physique du sol*. Presses Polytechniques et Universitaires Romandes (PPUR).
- Ogilvy, R., Meldrum, P., Chambers, J., Williams, G. 2002. The Use of 3D Electrical Resistivity Tomography to Characterise Waste and Leachate Distribution within a Closed Landfill, Thriplow, UK. *Journal of Environmental and Engineering Geophysics*, **7**(1), 11-18.

- Regard, M. 1996. Contribution à l'étude des mouvements d'air dans le bâtiment à l'aide d'un code champ: application à la ventilation naturelle d'un local par une ou deux grandes ouvertures. in: *INSA*. Lyon.
- Richard, T.L., Veeken, A.H.M., De Wilde, V., Hamelers, H.V.M. 2004. Air-filled porosity and permeability relationships during solid-state fermentation. *Biotechnology Process*, **20**(5), 1372-1381.
- Robert, T., Caterina, D., Deceuster, J., Kaufmann, O., Nguyen, F. 2012. A salt tracer test monitored with surface ERT to detect preferential flow and transport paths in fractured/karstified limestones. *Geophysics*, **77**(2), B55-B67.
- Rucker, C., Gunther, T. 2011. The simulation of finite ERT electrodes using the complete electrode model. *Geophysics*, **76**(4), F227-F238.
- Rücker, C., Günther, T., Spitzer, K. 2006. Three-dimensional modelling and inversion of dc resistivity data incorporating topography - I. Modelling. *Geophysical Journal International*, **166**(2), 495-505.
- Swamee, P.K., Swamee, N. 2010. Discharge equation of a circular sharp-crested orifice. *Journal of Hydraulic Research*, **48**(1), 106-107.
- Tikhonov, A.N., Arsenin, V.Y. 1977. *Solutions of Ill-posed Problems*. Winston and Sons, Washington, DC.
- Vandevivere, P., de Baere, L., Varstraete, W. 2002. Types of anaerobic digester for solid wastes. in: *Biomethanization of the Organic Fraction of Municipal Solid Waste*, (Ed.) Mata-Alvarez, IWA Publishing Company, pp. 111-140.
- Yang, L., Xu, F., Ge, X., Li, Y. 2015. Challenges and strategies for solid-state anaerobic digestion of lignocellulosic biomass. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, **44**, 824-834.
- Yoon, G., Oh, M., Park, J. 2002. Laboratory study of landfill leachate effect on resistivity in unsaturated soil using cone penetrometer. *Environmental Geology*, **43**(1-2), 18-28.
- Yuen, S.T.S., McMahon, T.A., Styles, J.R. 2000. Monitoring in situ moisture content of municipal solid waste landfills. *Journal of Environmental Engineering*, **126**(12), 1088-1095.

Conclusions et perspectives

Encouragée par les pouvoirs politiques comme voie de valorisation de déchets et de production de biogaz durable, la méthanisation connaît un essor croissant surtout dans le secteur agricole (11 installations en 2008 et 250 installations en fonctionnement en 2015). En produisant près de 92% des déchets valorisables par méthanisation, le secteur agricole est particulièrement concerné par le développement de cette filière. La grande majorité des déchets ainsi produits possède un taux de matière sèche élevé, supérieur à 20% (kg/kg), laissant supposer un développement rapide des procédés de méthanisation par voie sèche/solide au cours des prochaines années. Parmi les technologies existantes, le procédé discontinu avec recirculation des lixiviats semble être le mieux adapté à la méthanisation agricole de par son faible coût d'investissement, sa robustesse et son peu d'entretien quotidien, compatible avec une activité à plein temps. Cependant, le caractère discontinu du procédé induit une production de méthane instable malgré l'utilisation en parallèle de plusieurs digesteurs asynchrone.

L'objectif de ce travail était donc d'optimiser la production de méthane, c'est-à-dire de produire un maximum de méthane de façon constante, en contrôlant la recirculation du lixiviat, seul paramètre facilement accessible et modifiable dans le cas d'unités de méthanisation par voie sèche discontinues. Pour cela trois étapes ont été nécessaires : (i) comprendre le rôle du lixiviat dans les unités de méthanisation utilisant des substrats agricoles comme les fumiers de bovins, (ii) identifier les paramètres influençant les cinétiques de production de méthane afin de proposer une stratégie de recirculation optimale, et (iii) proposer un système d'injection du lixiviat permettant d'humidifier de façon la plus homogène l'ensemble du substrat afin d'optimiser les rendements de conversion en méthane de ce substrat à l'échelle d'une unité en fonctionnement.

La première étape de compréhension du rôle du lixiviat s'est déroulée au laboratoire, sur un pilote comportant six cellules indépendantes, où quatre lixiviats ont été utilisés pour la digestion d'un même fumier de bovin. Les lixiviats choisis présentaient des différences physico-chimiques (pH, nutriments, pouvoir tampon) et biologiques (stérile, inoculé).

Les résultats ont tout d'abord montré que le volume total de méthane produit dépendait principalement de la présence ou de l'absence de microorganismes dans le lixiviat. Ainsi, les réacteurs chargés avec les lixiviats stériles (tampon phosphate ou lixiviat du GAEC du Bois-Joly stérilisé) produisaient deux fois moins de méthane que les réacteurs chargés avec les lixiviats inoculés (digestat de boues de STEP ou lixiviat du GAEC du Bois-Joly), montrant l'importance de l'utilisation d'un lixiviat « actif » dans le cas d'un procédé discontinu. Cependant, même avec des lixiviat stériles, la digestion a pu avoir lieu, ce qui prouve que les microorganismes du fumier sont très impliqués dans la production de méthane.

Du point de vue des cinétiques de production de méthane, quel que soit le lixiviat utilisé, deux pics de production de méthane ont été mesurés. Mais, selon les caractéristiques physico-chimiques du lixiviat, l'apparition des pics pouvait être retardée. Les réacteurs fonctionnant avec des lixiviats de pH initialement supérieur à 8 ont vu leur production de méthane retardée par rapport aux autres. Dans le cas des réacteurs contenant un lixiviat déficitaire en carbonates, l'acétogénèse a été ralentie, retardant également la dégradation de la matière organique.

Pour aller plus loin dans la compréhension du rôle biotique du lixiviat et identifier une potentielle colonisation du fumier par les microorganismes du lixiviat, une analyse de la croissance et de la répartition des communautés microbiennes au cours du temps a été réalisée, pour chaque environnement, solide et liquide. Le suivi de la croissance microbienne a montré que seules les *Archaea* du lixiviat ont subi un déclin significatif de leur population. La population *Archaea* provenant du fumier, ainsi que les populations bactériennes du lixiviat et du fumier sont restées stables pendant toute la durée de l'expérimentation (28 jours). Une analyse statistique de la composition des populations de Bactéries et d'*Archaea* a révélé que les populations présentes dans le lixiviat et dans le fumier étaient très différentes du début à la fin des expérimentations. D'autre part, aucun transfert entre les deux phases n'a été statistiquement mis en évidence.

Finalement, pour obtenir une production optimale de méthane, le lixiviat doit réunir différentes caractéristiques biotiques et abiotiques dont : un pH neutre, une présence suffisante de nutriments, un bon pouvoir tampon et une communauté de microorganismes adaptée au substrat à valoriser.

Le choix du lixiviat pour une production de méthane optimale étant mieux défini, la deuxième étape de ce travail de thèse a été de déterminer les paramètres de recirculation pouvant modifier les cinétiques de production de méthane. Quatre paramètres ont été identifiés comme pouvant, à priori, influencer les cinétiques de production de méthane : le temps écoulé entre deux recirculations de lixiviat (périodicité de recirculation), le volume de lixiviat recirculé, le temps d'aspersion et le ratio lixiviat/substrat (ratio L/S) appliqué initialement. Pour cette étude, un pilote a été spécialement construit après une étape de prospection ayant servi à définir les caractéristiques nécessaires à ce pilote. Le pilote a été construit avec huit cellules indépendantes afin de maximiser le nombre d'observations possibles en une seule série. Des tests de répétabilité effectués sur ces cellules ont montré un coefficient de variation compris entre 7 et 16% en comparant les cinétiques de production de méthane avec un même substrat. Les bilans matière réalisés entre le début et la fin de cette expérimentation préliminaire présentaient des taux de recouvrement supérieurs à 89% pour la DCO ainsi que pour les NTK. L'ensemble de ces résultats ont permis de valider l'utilisation du pilote pour la suite des travaux et notamment l'optimisation de la recirculation du lixiviat.

Celle-ci a été réalisée en utilisant la méthode des plans d'expérience. Deux plans successifs de « screening » et de « surface de réponse » (ou optimisation) ont été mis en place. Le plan de « screening » avait pour objectif principal d'identifier les paramètres de recirculation, parmi les quatre cités en amont, ayant une influence sur les productions de méthane. Le terme « production de méthane » étant vaste, quatre réponses ont été définies pour caractériser cette production. La première a été le volume de méthane cumulé au cours de l'expérimentation. Les trois autres étaient liées à la forme des cinétiques de production de méthane au cours du temps: le démarrage du plateau, la durée du plateau et la vitesse de production de méthane moyenne pendant la phase de plateau. Les résultats ont montré que seul le temps d'aspersion n'avait aucun effet sur les réponses décrites, pour un intervalle de confiance de 80%.

Suite à ces résultats, le plan de « surface de réponse » a été appliqué avec les trois paramètres (ou facteurs) restant, c'est-à-dire le temps écoulé entre deux recirculations, le volume recirculé à chaque recirculation et le ratio lixiviat / substrat initialement appliqué au réacteur. Les mêmes

réponses que pour le plan de « screening » ont été étudiées. Plusieurs liens de cause à effets ont été mis en évidence. Le premier résultat notable est la forte influence de la périodicité entre les recirculations qui touche chacune des quatre réponses. De façon générale, augmenter le temps entre les recirculations de lixiviat conduit à de plus faibles performances des réacteurs : faibles volumes cumulés de méthane, retards de production, allongement du temps de plateau et faibles vitesses de production de méthane pendant la durée du plateau. Ces résultats sont principalement dus à un manque d'humidité apporté aux substrats solides lorsque que le lixiviat n'est pas recirculé assez souvent. Cependant, les volumes de lixiviat recirculés, tout comme le ratio L/S appliqué, peuvent contrebalancer cette tendance. Ainsi recirculer un volume élevé de lixiviat lorsque les recirculations ont lieu peu souvent permet d'augmenter le volume cumulé de méthane produit et de diminuer la durée du plateau, mais seulement pour des ratios L/S faibles. Le volume de lixiviat recirculé permet d'apporter l'humidité nécessaire au développement des micro-organismes lorsqu'elle n'est pas apportée par la fréquence de recirculation. Pour des ratios L/S élevés, ces résultats ne sont plus valables. En effet, lors des recirculations successives de lixiviat, les nutriments et métabolites sont lessivés et stockés dans la cuve de lixiviat. De ce fait, plus le volume de lixiviat initialement introduit dans le réacteur est élevé, plus les nutriments et métabolites sont dilués. Lors des recirculations suivantes, ces composés seront donc moins disponibles pour le développement des microorganismes. Ceci peut toutefois être avantageux lorsque la recirculation du lixiviat est fréquente. Dans ce cas, l'acidogénèse est favorisée et, pour éviter l'inhibition de la réaction, la dilution des AGV peut être bénéfique.

En résumé, plusieurs combinaisons des paramètres de recirculations peuvent conduire à des performances de production de méthane équivalentes. Cela implique que, pour une production optimale de méthane, la recirculation du lixiviat peut être adaptée à différentes configurations d'unités de méthanisation, comme par exemple la capacité de la cuve de stockage du lixiviat ou la puissance de la cogénératrice installée. Dans le cas d'une valorisation du biogaz par cogénération, ralentir la cadence de recirculation, par exemple, permettrait d'allonger la durée du plateau et donc de produire du méthane de façon plus stable, à condition que le volume de lixiviat recirculé et que le ratio L/S soient adaptés.

Pour bénéficier des avantages de la recirculation, le substrat à valoriser doit pouvoir être mis en contact de façon homogène avec le lixiviat recirculé, quelle que soit la stratégie de recirculation adoptée. Ainsi, la troisième et dernière étape de ce travail de thèse a donc consisté à étudier différents paramètres (physiques ou de dimensionnement) pouvant influencer la distribution du lixiviat à travers le massif solide, à l'échelle d'une unité de méthanisation en fonctionnement (GAEC du Bois-Joly, Cholet, Vendée). Cette étape a été décomposée en trois parties complémentaires. La première avait pour objectif de s'assurer, par des tests en laboratoire, de la faisabilité d'utiliser la méthode ERT sur des substrats agricoles pour localiser l'infiltration du lixiviat compte tenu des particularités physiques de ces substrats (masse volumique, conductivité hydraulique, porosité). Dans la deuxième partie, une expérimentation sur le terrain a été effectuée afin de confirmer les résultats de la première partie et d'évaluer l'efficacité du système d'injection du lixiviat en place à humidifier de façon homogène le substrat. Enfin dans la dernière partie, une proposition d'amélioration du système d'injection a été présentée. Les différents résultats de ces parties sont redéveloppés dans les paragraphes suivants.

Tout d'abord, l'influence de la hauteur du massif sur la masse volumique du solide a été étudiée au laboratoire pour deux substrats agricoles : le mélange « hiver » (mélange de fumiers de bovins) et le mélange « été » (mélange de fumiers de bovins, de paille et de tontes de pelouse). Les résultats ont montré que la masse volumique du substrat dépendait de sa position dans le massif : plus le substrat est situé dans les couches profondes du massif, plus sa masse volumique est élevée. A partir de ce constat, les conductivités hydrauliques des mélanges « hiver » et « été » ont été mesurées pour six densités correspondant à différentes profondeurs d'un massif de 2,4 m de haut. La conductivité hydraulique mesurée est équivalente à celle d'un mélange de petit gravier et de sable à gros grains quel que soit le mélange ou la profondeur considéré. A priori le lixiviat s'écoule donc suffisamment lentement pour pouvoir observer l'infiltration du lixiviat à travers ces substrats agricoles.

Les variations de résistivités électriques de chaque mélange ont ensuite été mesurées au laboratoire, toujours selon six densités, et pour trois teneur en eau différentes : à l'état brut (au moment du chargement), à la capacité au champ et à saturation. Les résultats ont montré qu'indépendamment du mélange considéré, la résistivité électrique diminuait lorsque la masse

volumique des substrats augmentait. En d'autres termes, les couches profondes d'un massif de déchets agricoles montrent une résistivité électrique faible. En parallèle, plus la teneur en eau du substrat est élevée, plus la résistivité électrique est faible. Les différentes variations de résistivité électrique observées ont permis de conclure que la méthode ERT pouvait potentiellement permettre de localiser l'infiltration du lixiviat à travers les substrats agricoles testés.

Les mesures terrain ont été réalisées sur le site du GAEC du Bois-Joly dont le système d'injection est proche d'une tranchée horizontale, avec un brin perforé placé à la surface du substrat dans le sens de la longueur du digesteur. L'analyse du suivi temporel des mesures ERT a mis en évidence un manque d'homogénéité de la distribution du lixiviat, pouvant induire une baisse des rendements de méthane. Plusieurs infiltrations de lixiviat, sous formes de bulbes, ont été localisées au niveau des perforations du brin. Cependant, entre les perforations, un manque d'humidité a été observé. D'autre part, il a été montré que la proportion de substrat humidifié est plus importante au niveau de la première perforation du brin. Cela s'explique par des pertes de charge dans le brin d'injection induites par les multiples perforations qui n'ont pas été prises en compte lors du dimensionnement du brin d'injection.

Compte tenu de ces observations, des améliorations de dimensionnement du brin d'injection ont été proposées. La première a consisté à ajouter une perforation entre celles déjà existantes afin de permettre une humidification de toutes les zones du substrat. La deuxième amélioration a été d'adapter la taille des perforations afin de distribuer un volume de lixiviat proportionnel au volume de substrat à humidifier, selon la zone du digesteur considérée, en prenant en compte les particularités géométriques du digesteur.

L'optimisation du procédé de digestion anaérobie par voie sèche discontinu avec recirculation du lixiviat est donc fonction de plusieurs paramètres complémentaires. Le choix du lixiviat à recirculer, la stratégie de recirculation du lixiviat et le dimensionnement du système d'injection du lixiviat sont autant de paramètres clés nécessaires à une bioconversion efficace de la matière organique en méthane. Ces éléments nouveaux permettent une meilleure compréhension des mécanismes

impliqués pendant le processus de digestion anaérobie par voie sèche avec recirculation du lixiviat.

Plusieurs pistes peuvent cependant permettre d'aller plus loin :

1. Du point de vue microbiologique, il a été montré que l'utilisation d'un lixiviat stérile diminuait de moitié les rendements de méthane. Pourtant, il a également été montré que les microorganismes du lixiviat ne colonisaient pas le substrat solide et que leur participation à la dégradation de la matière organique solide était limitée. Afin de lever cette ambiguïté, un fractionnement physico-chimique du substrat et du lixiviat au cours du temps pourrait être envisagé afin d'identifier les flux de matière organique, et mieux appréhender l'action des microorganismes du lixiviat.
2. Les effets de différents paramètres de la recirculation du lixiviat ont été étudiés avec succès dans le cas des fumiers de bovins. Cependant, ces travaux ont également montré que les profils cinétiques différaient selon le substrat étudié. Par conséquent, la stratégie de recirculation peut dépendre du substrat valorisé. Il serait donc intéressant de renouveler l'opération sur d'autres substrats agricoles afin de déterminer une stratégie de recirculation globale ou au contraire, adaptée au substrat à valoriser.
3. Par ailleurs, les résultats de l'effet de la recirculation du lixiviat sur les cinétiques de productions, obtenus sur des petits pilotes instrumentés, mériteraient également d'être validés à grande échelle.
4. Enfin, une modélisation des écoulements hydriques permettrait d'évaluer numériquement l'efficacité de différents systèmes d'injection de lixiviat à humidifier, de façon homogène, le substrat solide pour augmenter les rendements de méthane.

Annexe 1

Sciences Eaux & Territoires

La revue d'Irstea

Article hors-série numéro 24

Fumiers de bovins, une ressource à fort potentiel pour la filière de méthanisation en France ?

Axelle DEGUEURCE, Jacques CAPDEVILLE, Christophe PERROT,
Thierry BIOTEAU, José MARTINEZ et Pascal PEU

www.set-revue.fr



Sciences Eaux & Territoires, la revue d'Irstea

Article hors-série numéro 24 – 2016

Directeur de la publication : Jean-Marc Bournigal

Directeur éditorial : Nicolas de Menthière

Comité éditorial : Daniel Arnault, Louis-Joseph Brossollet, Denis Cassard, Camille Cédra, Thomas Curt, Alain Dutartre, André Évette, Véronique Gouy, Alain Hénaut, Bruno Héroult, Ghislain Huyghe, Emmanuelle Jannès-Ober, Cédric Laize, Jean-Michel Laya, André Le Bozec, Alette Maillard, Thierry Mougey, Christel Prudhomme, Christian Romaneix pour le CINOVTEN et Michel Vallance.

Rédactrice en chef : Caroline Martin

Secrétariat de rédaction et mise en page : Valérie Pagneux

Infographie : Françoise Peyriguer

Conception de la maquette : CBat

Contact édition et administration : Irstea-DP2VIST

1 rue Pierre-Gilles de Gennes – CS 10030

92761 Antony Cedex

Tél. : 01 40 96 61 21 – Fax : 01 40 96 61 64

E-mail : set-revue@irstea.fr

Numéro paritaire : 0511 B 07860 – Dépôt légal : à parution – N°ISSN : 2109-3016

Photo de couverture : AILE



Fumiers de bovins, une ressource à fort potentiel pour la filière de méthanisation en France ?

En France, la méthanisation agricole représente l'un des principaux leviers d'action pour atteindre les objectifs « biogaz » dans la production d'énergies renouvelables. L'agriculture génère en effet d'abondantes ressources exploitables pour la production de biogaz par méthanisation.

En croisant différentes bases de données de la statistique agricole et les pratiques d'élevage recensées sur le territoire français, les auteurs nous proposent ici d'évaluer le potentiel du gisement énergétique des effluents de bovins, et d'analyser les conditions pour mieux mobiliser cette ressource sur le territoire.



objectif de la France est de porter à 23 % la consommation d'énergie produite à partir d'énergies renouvelables d'ici 2020. Parmi le panel des énergies renouvelables à fort potentiel de développement, le méthane renouvelable constitue un des éléments clés

de la transition énergétique.

Le biogaz (mélange gazeux composé principalement de méthane) est produit par la dégradation anaérobie des matières organiques. Ainsi, les déchets des collectivités, de l'industrie et de l'agriculture peuvent trouver un débouché à travers la valorisation en biogaz, encouragée par une législation à la fois contraignante par des obligations de traitement de certains déchets, mais aussi incitative sous forme de subventions d'investissement et de tarifs d'achat d'énergie attractifs. En France, en 2014, l'Ademe (Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie) recensait trois cent soixante installations productrices de biogaz tous secteurs confondus (agricole, industriel et collectivités). Le biogaz agricole y est en forte progression : celui-ci était négligeable avant l'an 2000, alors qu'en 2014, plus de deux cent dix méthaniseurs agricoles sont en fonctionnement. L'ambition française, dernièrement renouvelée par le plan EMAA (Énergie, méthanisation, autonomie, azote) est de développer de façon très accrue le biogaz agricole et

d'atteindre, à l'horizon 2020, le nombre de mille installations en fonctionnement. Pour atteindre cet objectif, différents défis doivent être relevés, notamment celui de l'approvisionnement en matières premières. Actuellement, les méthaniseurs agricoles fonctionnent principalement avec des substrats agricoles liquides tels que les lisiers de porcs ou de bovins auxquels sont adjoints des co-substrats à forts potentiels méthanogènes tels que des déchets agro-alimentaires (graisses, huiles, issues de céréales, etc.). Ce modèle de développement, quoique non épuisé, paraît insuffisant pour répondre aux objectifs fixés. Afin d'assurer le développement des unités de méthanisation agricoles, d'autres substrats doivent être mobilisés tels que les résidus de culture et les fumiers. Or, ces ressources ont la particularité de posséder de fortes teneurs en matières sèches. Les enjeux induits par la mobilisation de ces matières organiques se situent au niveau de l'évaluation fine des gisements sur le territoire national du fait des questions logistiques, du procédé et des analyses technico-économiques et environnementales. En premier lieu, il s'avère donc incontournable d'évaluer le potentiel des effluents bovins. Les données individuelles et exhaustives des enquêtes nationales agricoles, quoique difficilement accessibles, représentent l'information la plus pertinente pour mener à bien cet inventaire.

L'objet de cet article rend compte d'une quantification rigoureuse des effluents bovins produits à l'échelle de l'exploitation agricole puis agrégée à l'échelle locale (petite région agricole) ou nationale.

Une mise en perspective par rapport à des études antérieures a ensuite été réalisée.

Enfin, une projection du gisement énergétique des effluents bovins a été menée afin d'envisager des voies de développement de la filière de méthanisation agricole.

Méthodologie (figure 1)

Le calcul de la production nationale d'effluents bovins a été réalisé en croisant plusieurs bases de données publiques, notamment le recensement agricole 2010 (Agriste, RA 2010) enrichi par un extrait de la base de données nationale de l'identification pour l'année 2010 (BDNI, 2010) des bovins et des données déjà publiées telle que la circulaire Ci 2011 DEPSE/SDEA/C2001-7047 sur les capacités de stockage des effluents d'élevage.

Le recensement agricole enrichi par la BDNI a été traité au niveau individuel (exploitation par exploitation) dans le cadre du centre d'accès sécurisé aux données (CASD). L'enrichissement du recensement agricole par la BDNI avec des données de flux d'animaux (animaux vendus) permet de dresser une typologie très précise des systèmes d'élevage bovin (Institut de l'élevage, 2013) et d'associer aux bovins présents sur chaque exploitation des conduites types (durée de présence sur l'exploitation dont en bâtiment) avec un minimum d'erreurs.

La catégorisation des bovins utilisée permet de dresser la représentation suivante du cheptel total (tableau 1).

Le RA 2010 et la BDNI 2010 permettent de recenser le cheptel bovin dans son ensemble et de le ventiler pour chaque exploitation agricole en fonction des différentes productions animales. Ensuite, dans un deuxième temps, chaque catégorie d'animaux a été réaffectée aux capacités de l'élevage et notamment leur mode de logement (stabulation entravée, logettes fumier, etc.).

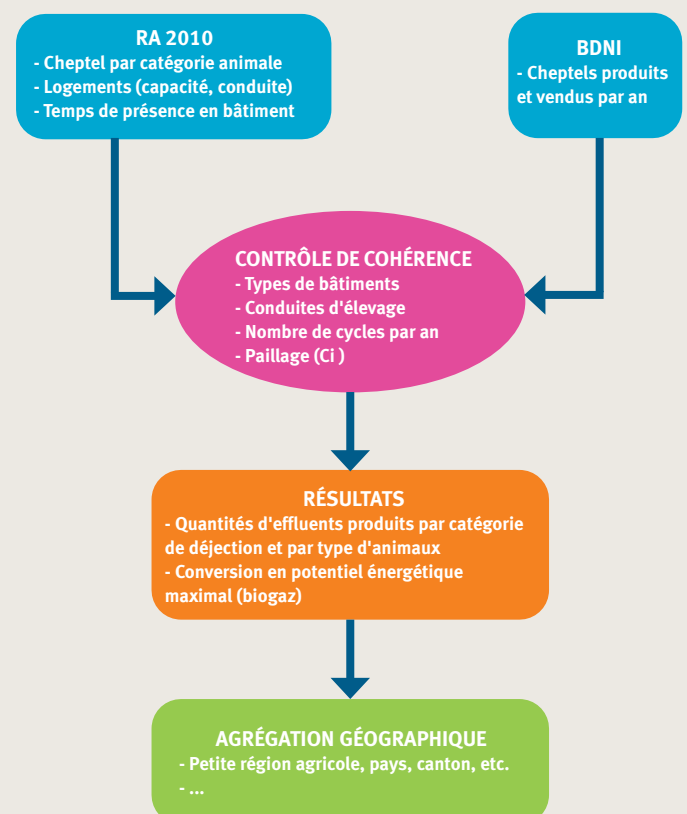
Ce travail a été réalisé sur l'ensemble des exploitations recensées dans le RA 2010 en accordant un degré de liberté entre le nombre de place mentionnée par chaque agriculteur et le nombre d'animaux effectivement présent en 2010, ce degré de liberté permettant de placer l'ensemble du cheptel dans des modes de logement. Chaque animal (femelles reproductrices présentes ou animaux vendus) générateur de déjection animale est ensuite affecté à son logement le plus probable, en exploitant au mieux les déclarations des éleveurs en termes de capacités de logement par grande catégorie animale et type de logement.

Ce travail de rapprochement entre le cheptel et les capacités de logement, réalisé ferme par ferme, permet d'être beaucoup plus précis qu'en travaillant sur des données agrégées. Car il existe des élevages avec plus de places que d'animaux et des élevages pour lesquels c'est l'inverse. De plus, les places vides, souvent obsolètes, ne sont pas du même type que dans les bâtiments saturés. C'est particulièrement net pour les exploitations ayant des vaches (laitières ou allaitantes). Cinquante-quatre mille exploitations ont plus de vaches que de places (il manque 750 000 places). Parmi lesquelles, on trouve

19 000 exploitations laitières (une sur quatre) dans lesquelles il manque 8 places de vaches laitières sur 58 présentes (150 000 places). Les vaches allaitantes peuvent ne pas avoir de bâtiments. A contrario, 118 000 exploitations ont plus de places que de vaches (excèdent 1 600 000 places, dont 900 000 en étable entravée fumier).

L'objectif de ce rapprochement a été de trouver le type de logement le plus plausible à chaque animal dans une exploitation considérée, en particulier pour les types d'animaux qui passent presque obligatoirement une partie de leur vie en bâtiment (vaches laitières, veaux de boucherie, jeunes bovins à l'engrais). Les bâtiments disponibles ne permettent pas de loger tous les animaux dans tous les élevages (certains sont d'ailleurs conduits en plein air). Les places déclarées et mobilisables ont donc été utilisées à l'aide d'un programme itératif qui a appliqué une hiérarchisation des catégories animales conformes aux pratiques d'élevage (priorité aux vaches laitières sur les vaches allaitantes, aux veaux de boucherie sur les animaux à l'engrais, et enfin mobilisation du solde pour les animaux d'élevage). Les frontières entre les capacités pour « l'engraissement », « l'élevage » et même les veaux de boucherie ont été rendues perméables car ces distinctions semblent avoir posé problème dans certains élevages (les frontières sont effectivement parfois floues).

1 Description générale de la méthodologie.



► Enfin, compte tenu de pratiques admises pour les vaches, et de cycles de production (ou phases de cycle) inférieurs à un an, des coefficients maximum ont été établis afin d'affecter plusieurs animaux présents ou vendus à une place. Une fois chaque animal affecté à une place de bâtiment, sa production de déjections est calculée par jour de présence à l'aide d'une conversion en UGB (unité gros bovins), puis de l'application de coefficients de production de quatre types d'effluents en kg/j par UGB et type de bâtiment sur la base des références officielles contenues dans la circulaire « Installations classées DEPSE/SDEA/C2001-7047 » du 20 décembre 2001.

Le nombre de jours de présence est déduit des déclarations sur les périodes de pâturage pour les femelles et normé pour les animaux vendus. Ce calcul permet donc de calculer la production d'effluents (sous quatre formes) pour chaque bovin présent ou vendu. Les agrégations sont ensuite réalisées par exploitation ou par zone, par type d'effluent et/ou par type d'animal.

Enfin, le croisement de ces données a permis d'établir une production nationale de différents types de déjections bovines qui ont été ventilées en quatre catégories par rapport à leurs caractéristiques physiques (teneur en matière sèche – MS, et teneur en matière organique – MO). De plus, en s'appuyant sur la caractérisation du potentiel biométhanogène moyen de chaque type d'effluent, cette production nationale d'effluents bovins a pu être convertie en un gisement maximal de production de biogaz, de biométhane sous forme d'énergie primaire ($1 \text{ Nm}^3 \text{ CH}_4 = 9,7 \text{ kWh}$).

Production totale d'effluents bovins

Le cheptel bovin en France

La première étape pour calculer la production totale d'effluents de bovins à l'échelle du territoire national doit se faire en catégorisant les cheptels pour chaque typologie d'élevage. Pour cela, l'utilisation des données collectées lors du dernier recensement agricole de 2010 (RA2010) a été nécessaire. Les effectifs de bovins ont été ventilés en se basant sur les neuf catégories (génisses, mâles vendus maigres, jeunes bovins cycle court, jeunes bovins classiques, bœufs, vaches allaitantes, veaux de boucherie, veaux lourds, vaches laitières) identifiées dans le RA2010. Les données individuelles du RA2010 ont été complétées par les données obtenues à partir de la base de données nationale d'identification des animaux d'élevage (BDNI), notamment pour les animaux vendus dans l'année. L'agrégation des résultats à l'échelle nationale (tableau 1) montre que le cheptel bovin s'élevait en 2010 à 7,8 millions (M) de vaches (4,1 M de vaches allaitantes et 3,7 M de vaches laitières), 7,4 M de génisses de différentes classes d'âge élevées essentiellement pour le renouvellement et de 4,1 M de bovins vendus par an par les exploitations à l'issue de cycles de production de durées très variables (de moins de six mois révolus pour les veaux de boucherie à trois ans environ pour les bœufs). L'essentiel du cheptel bovin (80 % en UGB) est donc constitué par le cheptel de souche (vaches et génisses de renouvellement).

Des animaux aux déjections

Au-delà du dénombrement des effectifs, le recensement agricole permet d'accéder aux modalités de logement

1 Production totale d'effluents récupérés pour chacune des catégories d'animaux et potentiel de production d'énergie primaire pour chaque type de déjections bovine par catégorie d'animaux.

	Détenueurs	Effectifs (M têtes)	Production d'effluents récupérés (Mt/an)					Énergie primaire		
			Lisier	Fumier mou	Fumier compact	Fumier très compact	Total général	Fumier ($\text{M Nm}^3 \text{ CH}_4$) *	Fumiers *** (TWh)	Total déjections (TWh)
Génisses **	182 227	7,4	2,1	1,8	2,3	13,1	19,2	780,4	7,6	7,9
Mâles vendus maigres ***	94 275	1,4	0,1	0,0	0,1	0,7	1,0	41,1	0,4	0,4
Jeunes bovins cycle court ***	14 330	0,1	0,0	0,0	0,0	0,3	0,4	18,7	0,2	0,2
Jeunes bovins classiques ***	43 082	0,9	0,5	1,4	0,4	5,4	7,7	320,0	3,1	3,2
Bœufs/taureaux ***	60 337	0,3	0,2	0,2	0,1	1,5	2,0	85,4	0,8	0,9
Vaches allaitantes **	121 200	4,1	1,2	1,1	3,2	10,6	16,1	677,2	6,6	6,7
Veaux de boucherie ***	32 590	1,1	1,1	0,0	0,0	0,1	1,3	7,2	0,1	0,2
Veaux lourds ***	23 643	0,3	1,2	0,0	0,1	0,5	1,9	29,7	0,3	0,5
Vaches laitières **	82 427	3,7	11,9	17,3	2,0	6,1	37,3	952,9	9,2	10,9
Tous bovins	192 716		18,2	21,9	8,3	38,5	86,9	2 912,6	28,3	30,8

* $\text{M Nm}^3 \text{ CH}_4$: millions de normaux mètre cube de méthane mesurés dans les conditions normales de température et de pression ($\text{Nm}^3 \text{ CH}_4 = 9,7 \text{ kWh}$).

** Données issues du RA 2010 pour le calcul de la composition du cheptel.

*** Données issues de la BDNI pour le calcul de la composition du cheptel.

Source : Agreste – Recensement agricole 2010 – Traitement : Institut de l'élevage, Irstea.

des animaux. Pour chaque exploitation recensée, les capacités de l'élevage et le nombre de places y sont renseignés. Suivant les modes de conduite et de logement, huit modalités de systèmes d'élevage se distinguent : stabulation entravée sur fumier, stabulation entravée sur lisier, stabulation libre sur litière accumulée, avec une aire de couchage paillée ou non et raclée, stabulation libre avec des logettes en fumier ou lisier et des baby box. Ces différents modes de conduite d'élevage et de logements conduisent en effet à la production de déjections aux caractéristiques différentes. Les références de la circulaire 2001 (Ci 2001) ont été utilisées pour appliquer des taux de paillage à chaque mode de logement. Par exemple, pour une unité de production de vaches laitières, en stabulation libre avec aire de couchage paillée et aire d'exercice bétonnée produisant du fumier ou du lisier selon la disposition technique et le paillage éventuel de l'aire d'exercice, il est possible en fonction du mode de paillage (5 kg/animal/jour) de prévoir le type d'effluent produit, ici dans ce cas, des fumiers compacts à très compacts et/ou du lisier. La circulaire de 2001 distingue un grand nombre de cas, qui reflètent la diversité des élevages français, par combinaison de facteurs (animaux, logement et alimentation), et permet ainsi de prédire les types de déjections générées. Ces combinaisons conduisent, dans la circulaire, à une catégorisation en neuf types de déjections bovines : lisier, lisier dilué, lisier dilué paillé, lisier paillé, fumier très mou, fumier mou, fumier mou à compact, fumier compact, fumier très compact. Cette catégorisation proposée par la circulaire a pour objectif de proposer des ouvrages de stockage de déjections adaptés en fonctions des types de déjections produites. Néanmoins, cette catégorisation ne semble pas adaptée pour notre étude. Une discrétisation basée sur la matière sèche des déjections bovines produites semble plus pertinente avec les seuils respectifs :

- lisier ($MS < 6,5\%$) ;
- fumier mou ($6,5\% \leq MS < 18\%$) ;
- fumier compact ($18\% \leq MS < 25\%$) ;
- fumier très compact ($MS \geq 25\%$).

Après analyse de l'ensemble des données, les résultats ont été agrégés à l'échelle nationale et sont présentés dans le tableau 1. Ainsi, la production totale d'effluents bovins récupérée par les exploitations agricoles s'élèverait à 87 millions de tonnes par an (Mt/an) tous types confondus et à 68,7 Mt/an pour les fumiers. Le lisier de bovin produit chaque année représente 21 % du total et est essentiellement produit principalement par trois catégories d'animaux : les vaches laitières, les veaux de boucherie et les veaux lourds. Le fumier mou est généré principalement par les vaches laitières (80 %) et représente 25 % de la production nationale annuelle. L'ensemble des déjections à teneur en matières sèches élevées ($MS > 18\%$) constituent 53 % de la totalité des déjections. Les vaches laitières représentent une part importante de cette production avec près de 43 % de la production totale (37 Mt/an). Les génisses et les vaches allaitantes représentent 21 et 18 % du total respectivement. L'ensemble de ces trois catégories d'animaux regroupant près de 80 % des déjections produites au niveau national. Il est à noter que le cheptel de vaches allaitantes est proche de celui des vaches laitières (respectivement 4,1 et 3,7 millions

de têtes en 2010), la différence des quantités d'effluents produites s'expliquant par le temps de présence en bâtiment, information extraite de la rubrique concernant les périodes de pâturage déclarées par les éleveurs lors du RA2010.

Travaux antérieurs

D'autres études ont été menées par le passé et aboutissent à des différences marquées. L'étude réalisée par Biomasse Normandie en 2002 estimait la production nationale d'effluents de bovins à 243 Mt de matières brutes par an avec 135 Mt/an émises directement au champ et 108 Mt/an récupérées, dont 89 Mt/an sous forme de fumier et 19 Mt/an sous forme de lisier. Si l'évaluation est proche pour les lisiers, la différence observée avec notre étude sur les fumiers (68,7 Mt) peut en partie être expliquée par la méthodologie appliquée. Pour l'étude réalisée par Biomasse Normandie, l'évaluation des quantités produites a été menée en prenant en compte les effectifs totaux pour chaque catégorie de bovins convertis en équivalent vache laitière à partir des données publiques et agrégées du RA2000. Les temps de présence des animaux dans les bâtiments ont été estimés régionalement en appliquant les pratiques moyennes retrouvées sur ces territoires. Les types de déjections produites ont été déterminés pour chaque mode de logement à partir de l'étude « Bâtiments d'élevage bovins et environnement » réalisée par le Service central des enquêtes et études statistiques (SCEES) en 1994.

Une autre évaluation a été réalisée par le Centre interprofessionnel technique d'études de la pollution atmosphérique (CITEPA), l'organisme officiel en charge de l'inventaire national des émissions gazeuses, notamment celles liées à la gestion des effluents d'élevage. Avec une méthodologie basée sur l'analyse des statistiques annuelles des effectifs des différents cheptels et l'analyse des enquêtes de bâtiments, le CITEPA calcule et publie annuellement l'inventaire national des effluents bovins. Leur résultat montre une distribution inversée des productions de déjections par rapport à celles présentées dans notre étude. En effet, selon le CITEPA, les déjections produites par les vaches laitières seraient principalement sous forme de lisier (66 %) et seulement un tiers serait sous forme de fumier. Cet écart rencontré entre les deux études est lié à la définition même des catégories d'effluents, le fumier mou étant assimilé par l'étude réalisée par le CITEPA comme du lisier. Pour les autres bovins, la répartition présentée entre lisier et fumier serait quasi équivalente.

Au regard des résultats de ces études et de celle présentée dans cet article, il convient donc de réactualiser les données déjà publiées qui sont le plus souvent basées sur des données asynchrones, et pour certaines, approximatives du fait de l'utilisation de données agrégées faute d'accès aux bases de données individuelles.

Répartition des déjections sur le territoire national

La répartition des données quantitatives de déjections récupérées en fonction de leur type et agrégées par petite région agricole est présentée sur la carte de la figure 2. Cette visualisation met en évidence le zonage caractéristique des productions bovines françaises. Plusieurs grandes régions telles que la région Centre, la zone

► centrale du Bassin parisien (greniers à blé de la Beauce et de la Brie notamment), les zones forestières ou viticoles du Bassin aquitain, le pourtour méditerranéen, ne présentent que très peu d'élevage bovin donc peu de ressources disponibles sur ces territoires. Les régions du Grand Ouest disposent d'une production d'effluents bovins conséquente avec une représentation plus marquée des lisiers dans les zones où la disponibilité en paille est plus faible (en Bretagne, Mayenne, Manche) ou des fumiers très compacts dans les zones où les types de bâtiments nécessitent davantage de paille (reste des Pays de la Loire). Ces fumiers très compacts sont encore plus présents dans les zones de polyculture-élevage caractéristiques au nord, à l'est et au sud du Bassin parisien. Ils sont également bien représentés dans des zones plus herbagères orientées vers la production de viande au nord, à l'est (Limousin) et au sud-ouest du Massif central, où les logements construits récemment pour les vaches allaitantes ont fortement privilégié le type « stabulation libre aire paillée ». Les zones de montagne, principalement le Jura et le cœur du Massif central, montrent une production importante d'effluents sous forme de fumier compact plus marquée que dans les autres régions en raison de la présence persistante d'étables entravées dans ces zones où les petits troupeaux ont plus d'importance. Ces constats révèlent les spécificités des grandes régions agricoles, déjà bien connues des professionnels. Le déploiement de la méthode à l'échelle de territoires opé-

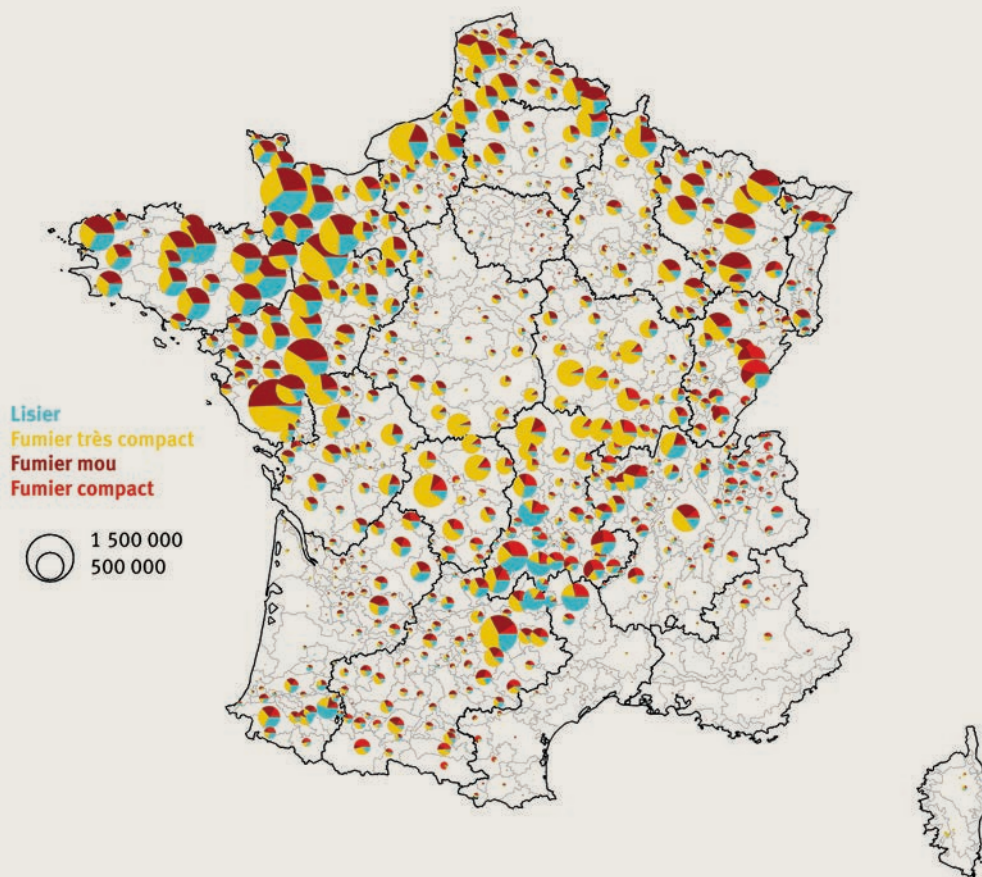
rationnels (communautés de communes) a d'autant plus d'intérêts à des fins d'aide à la décision pour identifier des procédés de valorisation adaptés aux caractéristiques des ressources présentes. Ainsi, dans certaines zones du territoire, l'analyse du gisement des déjections bovines et des autres produits organiques disponibles pourrait conduire à privilégier des procédés moins usuels tels que la méthanisation par voie sèche.

Les déjections bovines, une ressource pour la filière de méthanisation agricole

Calcul du potentiel maximal de production énergétique

La quasi-totalité de ces effluents agricoles est aujourd'hui épandue sur les terres agricoles. L'utilisation des lisiers et des fumiers de bovins dans la filière de méthanisation agricole est très marginale, ne mobilisant qu'une part très infime du gisement. Actuellement, dans la filière agricole, les lisiers sont rarement utilisés seuls, car ces derniers sont essentiellement constitués d'eau (tableau 2) et la matière organique (MO) les constituant est peu méthanogène puisque le rendement de bioconversion espéré d'une tonne de cette matière organique est compris entre 200 et 300 Nm³CH₄/t MO (tableau 2), soit entre 14,7 et 47,7 Nm³CH₄/t de matière brute. En effet, dans la plupart des installations agricoles en fonctionnement en 2014, des co-substrats sont souvent ajoutés aux recettes

2 Production d'effluents d'élevage bovin (tonnes/an) par type d'effluent et par petite région agricole.



Source : Agreste – Recensement agricole 2010 – Traitement : Institut de l'élevage.

② **Caractéristiques moyennes des types de déjections (données internes Irstea).**

	Matière sèche	Matière organique	Potentiel biométhanogène	Potentiel biométhanogène
	kg matière sèche/tonne de matière brute	kg matière organique/tonne de matière brute	Nm ³ CH ₄ */tonne de matière organique	Nm ³ CH ₄ /tonne de matière brute
Lisier	65	50	293	14,7
Fumier mou (MS ≤ 18 %)	168	144	232	33,3
Fumier compact (18 % < MS < 25 %)	222	173	240	41,6
Fumier très compact (MS ≥ 25 %)	293	236	203	47,7

* Nm³CH₄ : normaux mètre cube de méthane mesurés dans les conditions normales de température et de pression (Nm³CH₄ = 9,7 kWh).
Source : données internes Irstea.

d'alimentation des bioréacteurs tels que les déchets de l'industrie agro-alimentaire, par exemple les graisses d'abattoir qui ont un potentiel biométhanogène élevé de l'ordre de 800 Nm³CH₄/tMO. Par ailleurs, les technologies disponibles sur le marché pour valoriser les effluents liquides de bovins sont aujourd'hui bien maîtrisées et disponibles sur le marché. Pour les fumiers, la problématique est un peu différente. Bien que les potentiels biométhanogènes de la matière organique constituant ces fumiers soient du même ordre de grandeur que celle contenue dans les lisiers, leur teneur en matière sèche et en matière organique est plus élevée, les rendant plus intéressants pour la filière en tant que substrat unique (potentiel biométhanogène de la matière brute trois fois supérieur à celle des lisiers, tableau ②).

Par contre, la technologie agricole permettant de les valoriser (méthanisation par voie sèche par bâchées discontinues, le plus souvent) est encore au balbutiement de son déploiement. Des freins s'ajoutent à cette filière en démarrage, tels que la rentabilité financière et le temps nécessaire aux montages des projets. Malgré ces contraintes, l'utilisation pour la méthanisation de ces déjections animales à haute teneur en matière sèche est parfaitement envisageable. Seule la nécessité d'avoir les quantités nécessaires pour alimenter une unité de méthanisation rentable dans les conditions technico-économiques actuelles peut constituer le facteur limitant pour certaines exploitations agricoles.

Sur ces bases, en croisant les données obtenues par l'évaluation des gisements de déjections bovines et leurs potentiels méthanogènes respectifs, un calcul du potentiel maximal de production de bio-méthane peut être réalisé. En considérant l'ensemble « lisier et fumiers », l'estimation de la production de bio-méthane serait de 3,3 milliards Nm³ de méthane, soit 31 TéraWatt-Heure (TWh) d'énergie primaire (avec comme facteur de conversion 1 Nm³CH₄ = 9,7 kWh) soit approximativement 11 TWh d'énergie électrique si la cogénération électrique est utilisée (avec un rendement de conversion de 35 %). Au regard de la ventilation des différents types de déjections, le fumier très compact représenterait plus de la moitié de ce gisement avec 18 TWh d'énergie primaire, suivi du fumier mou avec 7 TWh et du fumier

compact avec un potentiel de production d'énergie primaire de 6 TWh. Toutefois, avec les technologies actuellement disponibles pour valoriser ces déjections bovines, il est possible d'utiliser soit des procédés dits « infiniment mélangés » pour ces effluents liquides, soit des procédés dits par voie « sèche ou solide » pour les fumiers sur la base des teneurs en matières sèches des intrants (*i.e.* MS ≤ 15 % et MS ≥ 18 %, respectivement). Ces seuils imposés par les technologies employées excluent de fait, les fumiers mous de la filière de méthanisation car ce type de substrat brut est à mi-chemin entre le liquide et le solide (état pâteux). En se focalisant uniquement sur les fumiers et au regard des exigences techniques actuelles, plus de 77 % du potentiel de production maximal de bio-méthane issu des déjections bovines est contenu dans les fumiers compacts et très compacts et serait exploitable. Le gisement brut de fumier réellement disponible s'élèverait donc à 46,8 Mt/an.

En écartant les lisiers, peu méthanogènes, et les fumiers mous, difficilement intégrables, il est possible de dresser une cartographie du potentiel de production de bio-méthane à partir du fumier à l'échelle du territoire français. Plusieurs régions agricoles présentent un potentiel très intéressant (figure ③) telles que les Pays de la Loire, la Basse-Normandie, la Picardie, le Nord-Pas-de-Calais, la Lorraine et les contreforts nord du Massif central (Limousin, Auvergne, Bourgogne).

La mobilisation des déjections

Cette étude du gisement brut met en évidence un réel potentiel des effluents bovins pour la filière de méthanisation agricole. Cependant, il convient d'évaluer à partir de ce gisement brut, la part qui est réellement mobilisable. Pour ce faire, dans cette étude, l'exploitation agricole a été prise en compte en tant qu'unité. En effet, l'observation des installations de méthanisation agricole actuellement en fonctionnement sur le territoire français montre que la plupart d'entre elles sont des unités fonctionnant chez un agriculteur et mobilisent seulement les déjections produites par l'exploitation. Très peu d'installations agricoles collectives sont actuellement en fonctionnement. Partant de ce constat, les données individuelles du recensement agricole permettent de classer chacune des exploitations, notamment vis-à-vis de la

► quantité d'effluents produits et du type de déjections. Par ailleurs, pour évaluer la part du gisement mobilisable, plusieurs hypothèses doivent être formulées. La première est de considérer que les lisiers seuls ne présentent pas d'intérêt de par leur faible potentiel biométhanogène. La seconde hypothèse retenue est d'exclure les fumiers mous, actuellement inexploités, ni dans les digesteurs en voie liquide, ni dans ceux en voie sèche. Ensuite, la part mobilisable de ce gisement a été déterminée à l'échelle de chaque exploitation bovine en le convertissant en puissance électrique (en prenant comme hypothèse que le méthane est converti en électricité par co-génération sur la base d'un fonctionnement 8 000 h/an avec un rendement de conversion de 35 % et que 80 % du potentiel biométhanogène est recouvré).

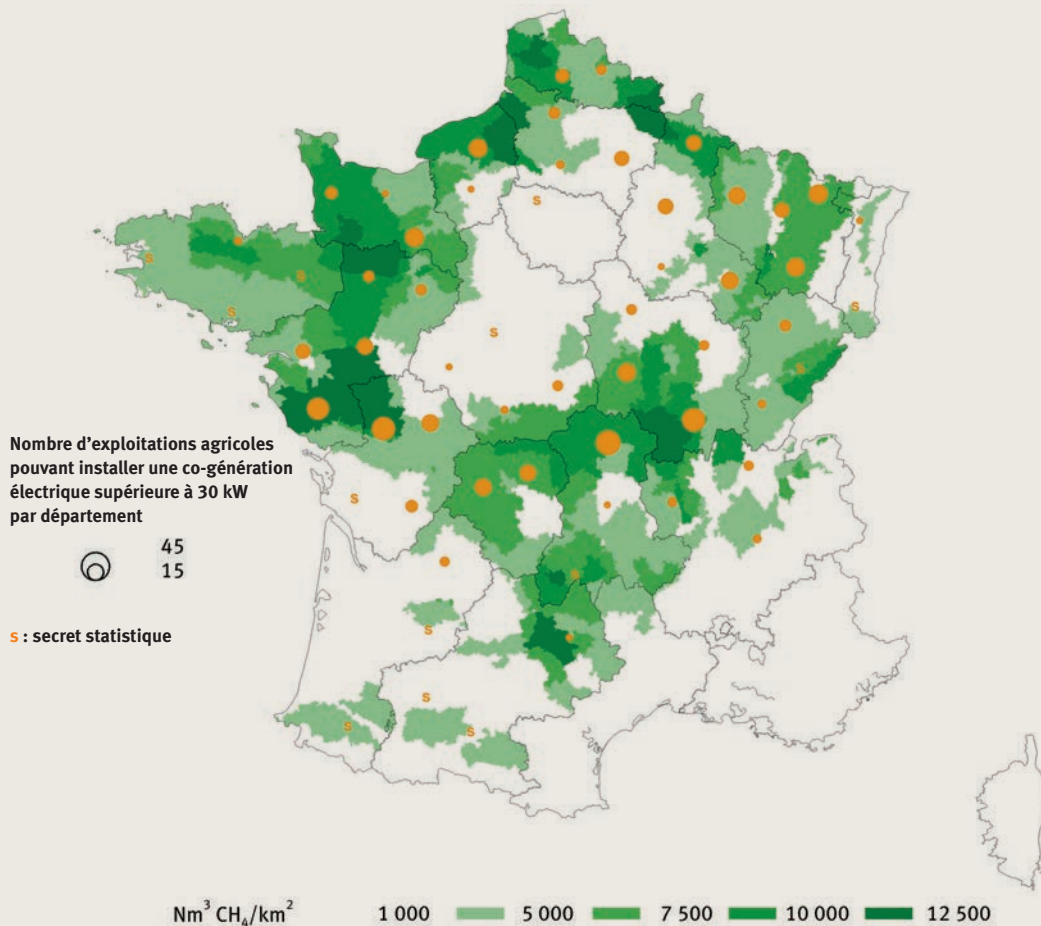
Les résultats de cette analyse sont présentés dans le tableau 3. Cette analyse met clairement en évidence que plus de 70 % des 176 000 exploitations ne peuvent prétendre qu'à une puissance électrique de co-génération ne dépassant pas les 5 kW. En effet, ces exploitations agricoles produisent en moyenne 121 tonnes de fumiers chaque année. En fixant un seuil à 20 kW, seulement

9 % du potentiel serait récupérable dans les conditions actuelles de valorisation du biogaz. Seules 551 exploitations agricoles produisent suffisamment de fumiers (> 2 000 t/an) pour envisager une installation de méthanisation avec co-génération électrique d'une puissance électrique supérieure à 30 kW (figure 3), à la limite des seuils de rentabilité technico-économiques actuels (4, 5).

Conclusion

Cette étude propose une méthode, applicable à différentes échelles, pour la réalisation d'inventaires d'effluents bovins, en utilisant les données individuelles du recensement agricole, complétées par d'autres bases de données telles que la BDNI. Il est alors possible de calculer précisément la production annuelle nationale d'effluents de bovins à partir d'un calcul réalisé exploitation par exploitation, affectant chaque animal présent (femelles reproductrices) ou produit à un type de bâtiment. La production totale d'effluents calculée s'élève, d'après cette étude à 87 Mt/an. La part des fumiers y est importante car elle représente 80 % des déjections pro-

3 Densité de fumiers compacts et très compacts en équivalents $\text{Nm}^3\text{CH}_4/\text{km}^2$ et localisation des exploitations agricoles pouvant installer une co-génération électrique supérieure à 30 kW.



Source : Agreste – Recensement agricole 2010 – Traitement : Institut de l'élevage

⑤ **Distribution des puissances électriques de co-générateurs potentiellement installables dans les exploitations bovines en ne prenant en compte que le gisement de fumier disponible sur ces exploitations individuellement (seuls les fumiers compacts et les fumiers très compacts ont été retenus).**

Puissance électrique potentielle (kW)	Nombre d'exploitations	Fumier (moyenne par classe en tonne de matière brute)	Proportion d'exploitations concernées (%)	Part de la puissance électrique potentielle (%)
< 5	123 094	121	70	32
5-10	36 499	441	21	34
10-20	13 993	829	8	25
20-30	1 859	1 471	1	6
30-50	465	2 267	0	2
50-100	77	3 822	0	1
≥ 100	9	7 689	0	0
Total	175 996	266	100	100

Source : Agreste – Recensement agricole 2010 – Traitement : Institut de l'élevage, Irstea.

duites (68,7 Mt/an), ce qui constitue une spécificité du système d'élevage bovin français par rapport à d'autres pays européens. Les fumiers de bovins pourraient être plus utilisés dans la filière de méthanisation agricole car ces derniers sont plus méthanogènes que les lisiers. Cependant, très peu d'exploitations agricoles produisent, seules, suffisamment de fumiers pour prétendre à des installations de méthanisation atteignant des puissances électriques supérieures à 30 kW. Afin d'intégrer au mieux l'ensemble des fumiers produits sur le territoire national dans la filière de méthanisation agricole, il sera donc nécessaire, soit de favoriser les petites installations de méthanisation par des tarifs de rachats de l'électricité plus incitatifs, soit de mutualiser les déjections produites par différentes exploitations, soit d'adjoindre des co-substrats aux potentiels méthanogènes plus élevés, soit de changer de paradigme et de ne plus privilégier la valorisation du biogaz en électricité (biogaz porté, par exemple), base actuelle de la rémunération. ■

Les auteurs

Axelle DEGUEURCE, Thierry BIOTEAU, José MARTINEZ et Pascal PEU

1. Irstea, UR OPAALE, centre de Rennes
17 Avenue de Cucillé – CS 64427
F-35044 Rennes – France

2. Université Bretagne Loire, France

✉ axelle.degueurce@irstea.fr

✉ thierry.bioteau@irstea.fr

✉ jose.martinez@irstea.fr

✉ pascal.peu@irstea.fr

Jacques CAPDEVILLE

IDELE, Campus INRA
Chemin de Borde Rouge – BP 42118
F-31321 Castanet Tolosan Cedex – France

✉ jacques.capdeville@idele.fr

Christophe PERROT

IDELE
149 rue de Bercy – F-75012 Paris – France

✉ christophe.perrot@idele.fr

EN SAVOIR PLUS...

▣ **ADEME**, 2013, *Estimation des gisements potentiels de substrats utilisables en méthanisation*, 117 p., disponible sur : <http://www.ademe.fr/estimation-gisements-potentiels-substrats-utilisables-methanisation> (consulté le 9/02/2016).

▣ **AGRESTE**, Données de la statistique agricole, disponible sur : <http://agreste.agriculture.gouv.fr/definitions-et-methodes/zonages/> (consulté le 9/02/2016).

▣ **FRANCE AGRIMER**, 2012, *La méthanisation état des lieux et perspectives de développement*, n° 1 « Biomasse », 12 p., disponible sur : <http://www.franceagrimer.fr/content/download/16180/122245/file/methanisation-en-france.pdf> (consulté le 9/02/2016).

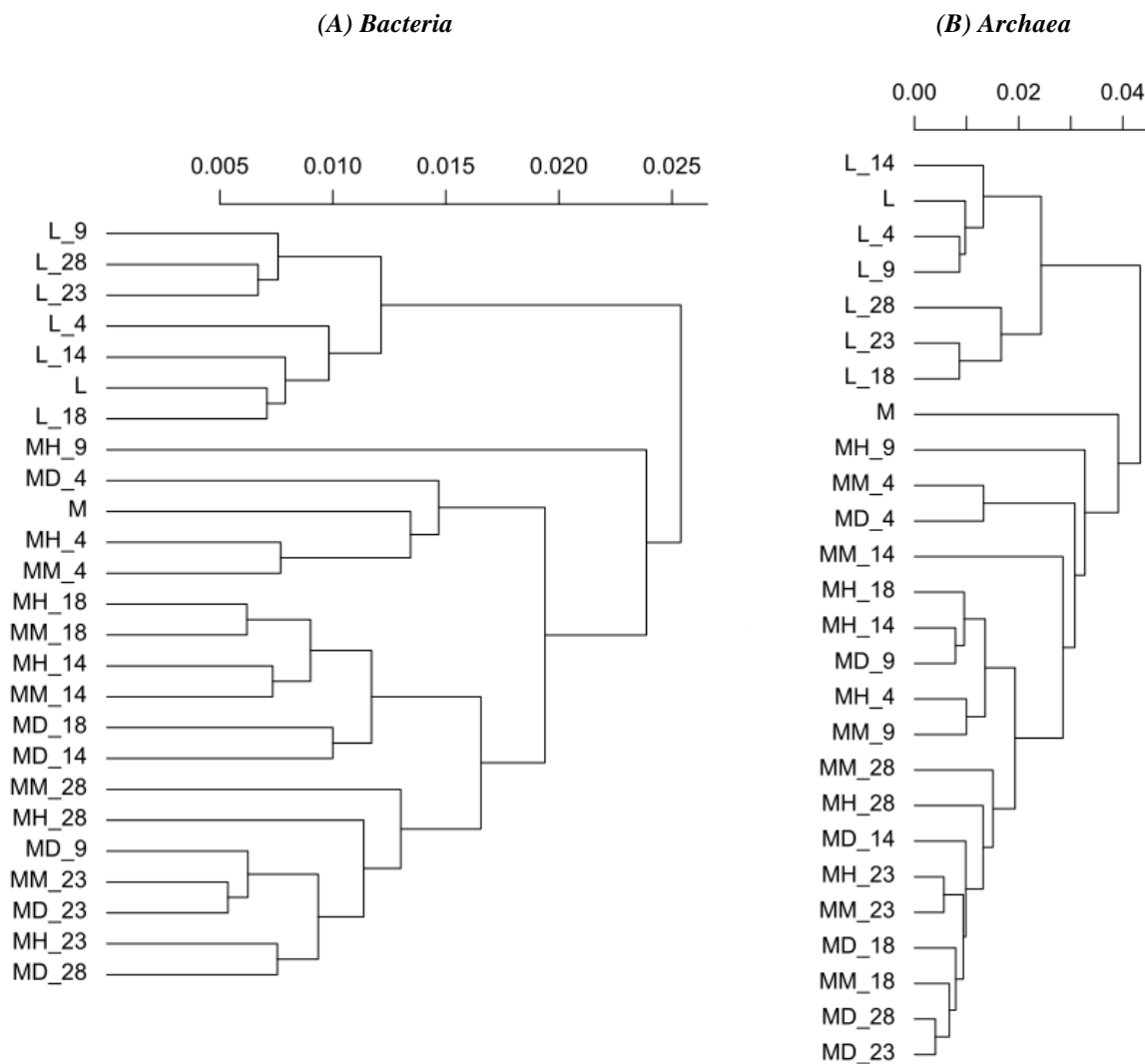
▣ **IFIP**, 2010, *Methasim® : méthanisation à la ferme. Logiciel de dimensionnement et de simulation de l'intérêt technico-économique d'un projet de méthanisation à la ferme.*

▣ **INSTITUT DE L'ÉLEVAGE**, 2013, *L'élevage d'herbivores au recensement agricole 2010*, Dossier Économie de l'élevage, 440-441, 90 p. + annexes, disponible sur : <http://idele.fr/contact/publication/idelesolr/recommends/lelevage-dherbivores-au-recensement-agricole-2010.html>

▣ **MINISTÈRE DE L'ÉCOLOGIE DU DÉVELOPPEMENT DURABLE ET DE L'ÉNERGIE, MINISTÈRE DE L'AGRICULTURE, DE L'AGROALIMENTAIRE ET DE LA FORÊT**, 2013, *Le Plan Énergie Méthanisation Autonomie Azote (EMAA)*, 12 p., disponible sur : <http://agriculture.gouv.fr/le-plan-energie-methanisation-autonomie-azote> (consulté le 9/02/2016).

Annexe 2

Comparison of CE-SSCP profile of bacterial (A) and archaeal (B) communities present in LBR over time. (L: original leachate; M: original manure; MH: highest layer of manure; MM: middle layer of manure; MD: deepest layer of manure; 0, 4, 9, 14, 18, 23 and 28: days after LBR start-up)



Résumé

Avec 67 Mt de fumiers de bovins récupérés chaque année, la France possède un gisement considérable de substrats agricoles mobilisables et valorisables par méthanisation. Le procédé de méthanisation par voie sèche, discontinu, avec recirculation de lixiviat semble être le mieux adapté à la valorisation de ce type de substrats à forte teneur en matière sèche (>20%). A l'heure actuelle, ce procédé est cependant rare sur le territoire. Afin de permettre et de pérenniser le développement de cette technologie, des verrous techniques et scientifiques doivent être levés, notamment ceux qui portent sur la recirculation des lixiviats. L'objectif de cette thèse est d'optimiser le procédé de méthanisation par voie sèche appliquée aux effluents agricoles (principalement fumiers de bovins), afin d'atteindre les conditions les plus favorables à la production d'un maximum de biogaz, de façon constante et en un minimum de temps en considérant les contraintes relatives à un tel procédé.

Dans un premier temps, l'objectif a été de comprendre le rôle du lixiviat dans ce procédé de digestion anaérobie discontinu, d'un point de vue biologique. Pour se faire quatre lixiviats ayant différentes origines ont été utilisés. Deux d'entre eux étaient biologiquement actifs (lixiviats provenant de méthaniseurs) et les deux autres stérilisés. Du point de vue abiotique, il a été montré que pour favoriser la digestion anaérobie, le lixiviat devait avoir un pH adéquat, présenter une concentration suffisante de nutriments et un fort pouvoir tampon. D'un point de vue biotique, deux communautés distinctes de microorganismes évoluent dans le lixiviat et dans le fumier, sans aucun transfert entre ces deux environnements, limitant ainsi le rôle d'inoculation souvent attribué au lixiviat.

Dans un deuxième temps, la réalisation d'un plan d'expérience a permis d'identifier, au laboratoire sur pilotes instrumentés, des paramètres de recirculation du lixiviat qui influencent les vitesses de production de méthane. Ainsi, le temps entre les recirculations, le volume recirculé et le ratio lixiviat/substrat initialement introduit jouent sur la forme des cinétiques de production. En actionnant l'un ou l'autre de ces leviers, il serait potentiellement possible d'adapter la production de méthane, en fonction des besoins des systèmes de valorisation du biogaz en place sur ces installations.

Enfin, la méthode de tomographie de résistivité électrique a été utilisée, à grande échelle, pour suivre la percolation du lixiviat à travers le massif et mettre en évidence les disparités de distribution du lixiviat dans le massif. Cette étude a montré que la géométrie du réseau de recirculation du lixiviat, consistant en un tuyau perforé parcourant la surface du massif dans le sens de la longueur, ne permettait pas un écoulement homogène du lixiviat dans les digesteurs. Certaines zones n'ayant jamais été humidifiées, la production de méthane se trouve réduite et les rendements amoindris.

Cette thèse s'articule autour de plusieurs analyses multi-échelles et complémentaires permettant de mieux comprendre le rôle du lixiviat, d'améliorer sa mise en œuvre et son utilisation pour la digestion anaérobie des fumiers de bovins.

Mots clés : *digestion anaérobie, recirculation du lixiviat, cinétiques, SSCP, plan d'expérience, ERT.*