

00000776



MODELISATION DE L'AZOTE
DANS L'ESTUAIRE DE LA TYNE (G.B.)

PAR
PATRICK PORTOLANO

MODELISATION DE L'AZOTE
dans l'ESTUAIRE DE LA TYNE (G.B.)

par

Patrick PORTOLANO

SOMMAIRE

INTRODUCTION

1. CYCLE DE L'AZOTE

1.1. Cycle de l'azote

1.1.1. Sources

1.1.2. Transformations

1.2. Expériences et analyses

1.2.1. Méthodes

1.2.2. Etude de l'effet de fond et analyses

2. MODELISATION

2.1. Le modèle

2.2. Les besoins en données

2.3. Caractéristiques de l'estuaire de la Tyne

2.4. Résultats.

CONCLUSION

INTRODUCTION

Ceci est le résumé d'un mémoire rédigé en anglais 31' issue de recherches menées à l'Université de Newcastle upon Tyne (G.B.) en vue d'obtenir le titre de Master of Sciences de Ressources en Eau. Quatre mois furent consacrés à ce travail. Le mémoire peut être obtenu auprès de Monsieur Michel, directeur du Centre pédagogique de l'Ecole nationale des Ponts et Chaussées à Paris.

L'objectif était d'étudier plus en détails qu'il n'avait été fait jusque là, le cycle de l'azote dans les eaux de l'estuaire de la Tyne. Ces eaux sont très polluées par les rejets industriels et domestiques d'environ 1 million de personnes, et déchargées sans aucun traitement. Toutefois, vers la fin 1981, les principaux égouts devaient être collectés sur chacune des rives de l'estuaire et envoyés vers 2 stations de traitement primaire (simple décantation). Ceci devrait permettre une diminution de moitié environ de la décharge des matières organiques dans l'estuaire et d'accroître ainsi le niveau d'oxygène dissout. Les conditions anaérobies fréquemment observées en juin et juillet dans une importante partie de l'estuaire devraient également disparaître. Des études précédentes, utilisant divers modèles, ont permis d'estimer les niveaux d'oxygène dissout correspondant à divers types de traitement en ne tenant compte que de l'oxydation de la matière organique dans l'eau et de l'aération atmosphérique. Ces travaux n'avaient pris en compte ni l'effet du fond, ni les réactions d'oxydation intervenant dans divers cycles d'éléments. Or en particulier, l'oxydation bactérienne de l'azote ammoniacal en nitrite, puis en nitrate peut utiliser d'importantes quantités d'oxygène. L'azote ammoniacal est également toxique pour de nombreux poissons, au-dessus d'une concentration de 1 mg/l. Il importait donc d'évaluer :

- les concentrations
- les sources et
- les transformations de l'ammoniaque pour faire une étude précise de l'impact des deux futures stations d'épuration et optimiser leur exploitation conjuguée.

Les moyens pour réaliser cette étude furent les suivants :

- Un ensemble de données (salinité, température, oxygène dissout, $\text{NH}_3\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$) sur 3 profondeurs en 8 stations réparties le long de l'estuaire, Ces données furent collectées mensuellement durant l'étude et les 12 mois la précédant à l'aide d'un bateau remontant la Tyne.

- Un laboratoire équipé pour l'analyse des eaux douces et des eaux usées. Une équipe de techniciens aidait à la collecte d'échantillons et lors de l'expérimentation, si nécessaire.

- Un modèle dynamique unidimensionnel de qualité des eaux ayant fait ses preuves sur l'estuaire de la Tyne quelques années auparavant. La partie dynamique fort simple, reposait sur l'équation de continuité seulement, les variations de hauteur d'eau étant supposées connues. Les concentrations des diverses substances étaient obtenues en résolvant l'équation de dispersion par une méthode de différences finies et connaissant les concentrations à tout instant aux extrémités de l'estuaire.

Ce travail devrait servir de base à toute étude du problème. Il s'agissait moins d'obtenir un ensemble de résultats précis que de mettre au point des méthodes et de cerner les problèmes qui se posent, compte tenu de ce que l'on connaissait déjà sur l'estuaire.

1. CYCLE DE L'AZOTE, ANALYSES ET EXPERIENCES

1.1. CYCLE DE L'AZOTE

1.1.1. Sources

Les 5 principales sources d'azote dans l'estuaire de la Tyne sont; les égouts domestiques, la rivière elle-même et les effluents de 2 cokeries. A cela; il faut ajouter un important rejet d'ammoniaque par le fond lorsque les conditions sont anaérobies dans une partie de l'estuaire. Si l'apport de la Tyne en composés azotés peut être facilement évalué et si il existe des données sur le contenu en ammo

que et en nitrate de diverses eaux d'égouts, leur teneur en azote organique reste cependant peu connue et elle n'a pu être estimée que par un rapport entre l'azote organique et la D.B.O. (demande biochimique en oxygène). Ce rapport varierait entre 0,037 et 0,059.

La composition des rejets des cokeries est très mal connue. Les résultats de 2 analyses antérieures espacées de quelques semaines avaient divergé d'un facteur 10 dans la teneur en ammoniac des effluents. La plus faible valeur fournie (15 g/s ou 3,3 t/jour) équivalait à plus de 33 % des rejets domestiques. Il est possible néanmoins que les décharges des cokeries soient très irrégulières et nécessitent d'être mesurées en continu.

Il existe donc dès le départ, d'importantes indéterminations en ce qui concerne les sources d'azote. Ces indéterminations ne pourraient être levées que par un projet de mesures d'envergure où un certain nombre de stations de prélèvement automatique d'échantillons seraient installées.

Malheureusement, les moyens requis pour cela dépassaient nettement le cadre de la présente étude.

1.1.2. Transformations

Les transformations de la matière azotée en estuaire sont principalement le fruit de l'activité bactérienne. On distingue notamment :

- L'ammonification qui se produit en même temps que la dégradation de la matière organique et résulte de la conversion de l'azote organique en ammoniac. Ce processus pouvant se dérouler de façon aérobie ou anaérobie comporte d'abord une étape où les grosses molécules protéiques sont brisées en polypeptides et acides aminés par certaines bactéries spécialisées et très actives sécrétant des protéases. Les produits de cette décomposition sont ensuite assimilés ou désaminés par une très grande variété de bactéries. Le taux d'ammonification présente pour ces raisons le même caractère statistique (au sens de la physique statistique) que le taux d'oxydation de la matière organique.

- La nitrification : certaines bactéries autotrophes tirent leur énergie de l'oxydation de l'ammoniac en nitrite (ex : Nitrosomas) et du nitrite en nitrate (ex : Nitrobacter). Le taux de conversion du nitrite en nitrate étant plus rapide que le taux de conversion d'ammoniac en nitrite, on observe généralement de faibles concentrations en nitrite si bien que l'on entend par nitrification l'oxydation globale d'ammoniac en nitrate. Ce processus revêt une certaine importance lorsqu'on s'intéresse aux niveaux d'oxygène dissout puisqu'une réduction de 1 mg/litre du niveau d'ammoniac par nitrification utilise 4,6 mg/l d'oxygène.

- La dénitrification : lorsque les conditions sont anaérobies, certaines bactéries peuvent utiliser les nitrates comme source d'oxygène et convertissent l'azote sous forme moléculaire. Cet azote est alors perdu pour le cycle puisque la fixation d'azote moléculaire dans les estuaires est généralement considérée comme négligeable.

- L'assimilation consiste en la conversion d'azote inorganique en azote organique ou plus généralement en la construction de molécules organiques azotées à partir de molécules azotées plus simples. Azote organique et inorganique sont assimilés par les algues et le phytoplancton dans des quantités qui sont loin d'être négligeables. Les bactéries et les protozoaires peuvent également consommer d'importantes quantités d'ammoniac.

Les taux de transformation de l'azote sont encore très peu étudiés. Le caractère statistique de la plupart d'entre eux rend l'expérimentation nécessaire pour leur détermination car il serait surprenant de trouver la même distribution d'organismes d'un estuaire à l'autre. Les taux les plus souvent cités sont des taux du 1er ordre ou obéissant à la cinétique de Michaelis-Menten.

Notons que, compte tenu des taux de dégagement atmosphérique donnés dans les ouvrages spécialisés les transferts d'ammoniac vers l'atmosphère peuvent être né-

puisque les mesures de pH faites dans la Tyne ont toujours été inférieures à 8.

1.2. EXPERIENCES ET ANALYSES

1.2.1. Méthodes

Après avoir tenté sans grand succès les méthodes prescrites par "Standard Methods for the Examination of Waters and Waste-maters" (cet insuccès étant probablement lié à ce que nous avons des eaux saumâtres ou salées et non des eaux douces) pour la détermination de l'azote organique NH_3 et NO_3 les méthodes suivantes furent utilisées :

- Détermination de l'azote organique par conversion en azote inorganique grâce à une irradiation aux ultra-violets après avoir préalablement converti l'urée en ammoniacque avec l'enzyme uréase. Cette méthode n'a pas été automatisée mais elle peut l'être. Un problème cependant : l'irradiation peut causer la formation d'une importante quantité de nitrite inhibant la détermination de la concentration par la méthode mentionnée ci-dessous.

- Analyse de l'ammoniacque par la réduction du bleu d'indophénol avec la méthode de mise au point par P.C. Head (1971). Cette méthode s'est révélée être d'une précision médiocre (erreur de 20 %) mais elle avait l'avantage d'être automatisée.

- Analyse du ni trite par diazotation et du nitrate par réduction en nitrite; cette méthode était automatisée.

Un auto-analyseur fut monté pour l'automatisation de ces deux dernières méthodes.

Leur mise en oeuvre aura montré qu'il ne semble pas actuellement exister de méthode rapide et fiable faisant l'unanimité pour la détermination de l'azote organique et de l'ammoniacque dans les eaux saumâtres polluées. Par contre les méthodes automatiques d'analyse de nitrite et de nitrate *ont* donné de bien meilleurs résultats et apparurent être largement mentionnées dans les revues spécialisées.

1.2.2. Etude de l'effet du fond et analyses

Deux expériences furent faites :

Dans la première deux échantillons du fond (où la structure verticale n'avait pu être préservée) immergés chacun dans 3 l d'eau furent prélevés au même endroit. L'un fut enterré dans un récipient aérobie, l'autre dans un récipient anaérobie. Un dégagement extrêmement important d'ammoniacque eut lieu après le 1er jour et la concentration initiale déjà élevée (10 mg/l) atteignit au bout de 3 jours 30 mg/l pour le récipient anaérobie et 21 mg/l pour le récipient aérobie. Ces concentrations ne se modifièrent guère les 4 jours suivants et leur évolution fut approchée par la loi :

$$c^*(t) = c_B - (c_B - c_0)e^{-\frac{Kt}{D}}$$

D : profondeur

c_B : concentration finale

c_0 : concentration finale

avec $c_B = 30 \text{ mg/l}$ et $K = 0,16 \text{ m/jour}$ en conditions anaérobies

$c_B = 21 \text{ mg/l}$ et $K = 0,11 \text{ m/jour}$ en conditions aérobies.

Lors de la seconde expérience un échantillon du fond dont la structure verticale put être préservée fut mis au fond d'une colonne d'eau et l'évolution de la structure verticale en ammoniacque fut observée. Un important rejet d'ammoniacque eut lieu lorsque les conditions furent anaérobies (140 mg/m²/jour) tandis qu'une ab-

sorption significative survint dès que les conditions devinrent à nouveau aérobies. Ce comportement quelque peu différent de celui de la première expérience est attribué à l'existence d'une couche superficielle contrôlant les échanges l'eau et qui n'avait pas été bien formée lors de la première expérience.

Dans ces deux expériences, aucune nitrification ne fut observée.

D'autres expériences visant à déterminer les taux d'ammonification ne furent pas concluantes et présentèrent une nitrification négligeable.

Un soin particulier fut apporté dans l'exécution et l'échantillonnage de ces expériences. Toutefois, il reste très difficile de déterminer en quoi les perturbations dues au changement d'environnement du microcosme étudié ont influencé les résultats. Un moyen de contrôle serait de procéder à des examens microbiologiques systématiques en cours d'expérience. Si ces méthodes étaient plus rapides et moins spécialisées nous aurions pu adopter une autre démarche consistant à corréler les taux de transformation de l'azote avec l'importance de certaines classes d'organismes. Ceci aurait été plus rigoureux sur le plan méthodologique.

L'analyse d'échantillons d'eau prélevés en divers points de l'estuaire révéla des concentrations d'azote organique du même ordre que celles d'azote ammoniacal ainsi qu'une activité photosynthétique négligeable. Ceci peut paraître surprenant en des eaux si riches en sels nutritifs et doit être attribué à la présence de substances toxiques (détergents, sels de cuivre répandus par les chantiers navals, ...).

2 . M O D E L I S A T I O N

2.1. LE MODELE

Le modèle utilisé avait été mis au point par Hobbs et Fawcett de Imperial Chemical Industries (ICI) il y a quelques années. Il comportait environ 1500 instructions Fortran structurées en 1 programme principal, 7 sous-programmes et 5 fonctions. Afin de faciliter l'exploitation des résultats du modèle, le programme fut quelque peu transformé pour la production de graphiques. Une fois le programme passé, on pouvait observer sur écran vidéo un ou plusieurs des graphiques suivant :

- Profil longitudinal instantané de n'importe quelle variable hydraulique ou chimique. Si une mesure avait été faite à cet instant-là un signe apparaissait à l'endroit correspondant.

- Profil observé lors d'une série de mesures faites en bateau et profil calculé (chaque point d'arrêt du bateau correspondait à un instant différent)

- Variations dans le temps de n'importe quel profil, en particulier variations au cours d'un cycle de marées.

Le programme compilé utilisait pour le calcul 60 s à 90 s de c.p.u. sur IBM 360. Sa compilation prenait 12 s de c.p.u.

2.2. LES BESOINS EN DONNEES

La résolution de l'équation de dispersion nécessite la connaissance de l'état initial de l'estuaire et des concentrations aux extrémités à tout instant. Pour un estuaire long de plus de 30 km, on suppose que plusieurs personnes puissent collecter simultanément des échantillons, en divers points de l'estuaire ou bien que l'on possède un moyen de locomotion extrêmement rapide. La vérification du modèle suppose en outre que l'on ait pris plusieurs données sur 2 cycles de marées au moins (pour tenir compte des cycles biologiques diurnes) en plusieurs points de l'estuaire afin de décrire correctement les concentrations observées.

Les données dont nous disposions étaient donc nettement insuffisantes. Afin de nous placer dans un cas neutre, nous avons supposé que l'estuaire était dans un état stationnaire (c'est-à-dire que les concentrations variaient périodiquement avec le temps) et nous avons démontré que, dans ce cas, les concentrations stationnaires ne dépendaient généralement pas des concentrations initiales.

Le coefficient de dispersion longitudinal a été très peu étudié dans l'estuaire et il fut donc nécessaire d'utiliser les données de salinité pour le déterminer. Sa calibration se fit sans tenir compte de la structure verticale des salinités, ce qui présente l'inconvénient suivant : un bief parfaitement stratifié sur le plan des salinités peut présenter une circulation très différente de celle d'un bief bien mélangé ayant même salinité moyenne, et par conséquent, les phénomènes de dispersion longitudinale peuvent différer significativement entre les deux situations. Malheureusement nous ne possédions pas suffisamment de données pour prendre cela en compte dans l'évaluation du coefficient de dispersion.

Finalement, on devrait avoir une connaissance suffisante de l'estuaire pour évaluer les divers coefficients entrant dans les équations biochimiques.

2.3. CARACTERISTIQUES DE L'ESTUAIRE DE LA TYNE

C'est un estuaire étroit où les conditions hydrauliques sont très variables. Il peut être stratifié ou bien mélangé. Les débits d'étiage sont inférieurs à $6 \text{ m}^3/\text{s}$ pour un débit moyen de $4 \cdot 10^3 \text{ m}^3/\text{s}$ et des débits maximaux supérieurs à $800 \text{ m}^3/\text{s}$. Les égouts environ se jettent dans l'estuaire ce qui correspond à un flot de $3,2 \text{ m}^3/\text{s}$. La période de la marée est 12 h 42, avec une amplitude variant de 2 m à 4 m. Ceci est considérable pour un estuaire dont la profondeur maximale avoisine 10 m. Les températures varient près de la côte entre 3°C et 12°C et en rivière entre 4°C et 22°C . Une importante stratification verticale d'oxygène s'inversant vers le milieu de l'estuaire existe toujours. De hautes concentrations en ammoniacque (3 mg/l) sont associées aux conditions anaérobies. Les concentrations maximum en ammoniacque varient entre $0,9 \text{ mg/l}$ et $3,5 \text{ mg/l}$ au cours de l'année. Les concentrations en nitrate dépassent exceptionnellement $0,5 \text{ mg/l}$, les plus hautes concentrations étant observées au début du printemps. Ceci est peut-être dû aux engrais agricoles drainés vers la Tyne. D'après les mesures faites dans l'estuaire, les processus de nitrification ne semblent pas jouer de rôle important. Ceci pourrait être attribué aux concentrations élevées du fond en fer et en zinc, substances toxiques aux bactéries nitrifiantes à partir d'un certain seuil.

2.4. RESULTATS

Il fut d'abord vérifié qu'au bout d'un certain nombre de cycle de marées (environ 30), l'état de l'estuaire ne dépend plus des conditions initiales. Il semble toutefois que, mis à part le cas de substances possédant des taux de transformation élevés, il ne soit pas possible d'observer un tel état dans la nature (cela aurait pourtant simplifié la collecte de données).

Les résultats d'une étude précédente furent utilisés pour le choix d'un coefficient de dispersion. Cependant un meilleur ajustement fut trouvé avec la coefficient:

$$\begin{aligned} \text{BISP} &= \text{KMIN} + \text{SLOUT} \cdot U & U > 0 \\ \text{DISP} &= \text{KMUN} - \text{SLINT} \cdot U & U < 0 \end{aligned}$$

KMIN, SLIN et SLOUT étant des paramètres à déterminer et U, la vitesse du courant, positive vers la mer. Avec les 2 coefficients de dispersion utilisés, le modèle ne fut plus sensible pour les substances conservatives à un accroissement

de leur valeur moyenne au dessus d'un certain seuil. Le coefficient de dispersion minimum à utiliser serait $250 \text{ m}^2/\text{s}$. Le modèle donna des résultats raisonnables jusqu'à des valeurs dépassant $500 \text{ m}^2/\text{s}$. Toutefois les substances non conservatives furent très sensibles aux variations du coefficient de dispersion entre les valeurs $250 \text{ m}^2/\text{s}$ et $500 \text{ m}^2/\text{s}$. Ceci pourrait donner quelques indications pour un meilleur choix de ce coefficient.

Les profils des températures apparurent être parfaitement déterminés par les choix des températures aux limites, le coefficient de radiation solaire et le coefficient d'échanges avec l'atmosphère.

Les profils de DBO et d'oxygène dissout montrèrent des variations importantes dans un cycle de marée et apparurent être fortement influencés par les conditions limites, les courants traversiers à l'embouchure, et le taux de désoxygénation. Le modèle fut moins sensible au taux d'aération atmosphérique.

Vu le peu de données disponibles, des réactions du 1er ordre furent choisies pour modéliser le cycle de l'azote. L'effet du fond fut décrit par un taux du 1er ordre dérivé de l'équation du paragraphe 1.2.2. La photosynthèse fut négligée. Les décharges de composés azotés furent estimées en multipliant les décharges de DBO par un coefficient et en y ajoutant les décharges des cokeries. Naturellement il ne fut guère possible de faire autre chose que des études de sensibilité, et le modèle fut sensible aux conditions aux limites, aux courants traversiers à l'embouchure, aux taux de transformation, à l'effet du fond, aux décharges des égouts et des usines de coke. Cette sensibilité, à laquelle on pouvait s'attendre, confirme que l'on doit disposer d'un ensemble de données important pour une prédiction raisonnable des conditions futures dans l'estuaire. Cet ensemble de données est d'autant plus important que le cycle de l'azote interfère avec celui de l'oxygène et les transformations de la matière organique et qu'il est contrôlé par les conditions physiques et hydrauliques de l'estuaire. L'on finit par se demander s'il existera un jour un projet tel qu'il justifie un travail si important de collection de données.

CONCLUSION

Cette étude montra que les difficultés à modéliser le cycle de l'azote en estuaire sont de plusieurs ordres. Nous avons d'abord eu des difficultés à trouver des méthodes analytiques rapides pour examiner un très grand nombre d'échantillons, puis des difficultés pour déterminer en laboratoire les taux de transformation.

L'étude des quelques données disponibles montra la grande variabilité des conditions hydrauliques et physico-chimiques dans l'estuaire.

Le modèle utilisé parut être suffisamment sensible aux divers paramètres pour pouvoir être ajusté sur les situations plus complexes. Il sembla néanmoins qu'il y ait des difficultés à obtenir des prédictions correctes dans la partie amont de l'estuaire. Nous sommes toutefois loin d'avoir un nombre suffisant de données et une connaissance telle de l'estuaire qu'il soit possible d'en infirmer les équations du modèle. Une étude approfondie du problème devrait être faite par une équipe de chercheurs et de techniciens ayant des moyens importants pour la collecte et l'analyse de données qui permettraient des comparaisons rapides avec les prédictions du modèle.

Dans l'état actuel de pollution, il semble que les faits marquants du cycle de l'azote soient ses sources, l'ammonification et peut être l'assimilation. La nitrification et la photosynthèse ne semblent jouer aucun rôle dans les conditions actuelles. Il n'y a aucune raison que cela change, une fois les usines de traitement installées, à moins que pour une raison quelconque, elles parviennent à éliminer une partie des substances toxiques au phytoplancton et aux bactéries nitrifiantes. Il est par ailleurs très difficile de prévoir l'effet du traitement sur

les quantités d'ammoniaque et d'azote organique rejetées par les égouts :
d'une part les réactions d'ammonification rencontreront des conditions plus favorables durant le traitement et la production d'ammoniaque sera plus importante;
d'autre part l'azote organique précipitable sera mis en dehors du cycle. La quantité totale d'azote déchargée par les égouts sera donc inférieure à ce qu'elle est actuellement, mais il y aura probablement plus d'ammoniaque déchargée. Il se peut que cela cause un panache toxique de cette substance près des usines de traitements.