

La valorisation des coproduits de l'huilerie par méthanisation

Laureen BADEY¹
Michel TORRIJOS²
Philippe SOUSBIE²
Philippe POUECH³
Fabrice BOSQUE¹

¹ ITERG,
11, Rue Gaspard Monge,
Parc industriel Bersol 2,
Pessac, F-33600, France
<l.badey@iterg.com>

² INRA de Narbonne,
UR0050,
Laboratoire de Biotechnologie de
l'Environnement,
Avenue des Etangs, Narbonne,
F-11100, France

³ APESA,
Technopole Hélioparc,
2, Av. du Président Pierre Angot,
64 053 Pau Cedex 09

Article reçu le 19 septembre 2012

Accepté le 28 septembre 2012

Les coproduits de l'huilerie

La production d'huiles végétales ainsi que celle d'esters méthyliques d'huile végétale (biocarburant) génèrent un nombre important de coproduits ayant des caractéristiques et des filières de valorisation différentes. La vente de certains coproduits génère un gain financier non négligeable (tourteaux, huiles acides, etc.), alors que la prise en charge d'autres coproduits peut entraîner des frais conséquents.

Les filières de valorisation de ces coproduits sont en constante évolution. Elles dépendent de l'actualité réglementaire,

Abstract: Profitable use of vegetable oil by-products by anaerobic digestion

The productions of vegetable oil and methyl esters of vegetable oil lead to the generation of a lot of by-products. The purpose of this work was to study an alternative solution for a profitable use of vegetable oil by-products: anaerobic digestion.

The potential for anaerobic digestion of 24 by-products was studied. The results show that most of oil by-products had a good capacity for anaerobic digestion. Then, the effects of the addition of oil by-products on the behavior of one reactor treating a mixture of grass, cow manure and fruit and vegetable waste and another reactor treating household waste were investigated. Most of the by-products tested improved significantly the production of methane indicating that the addition of by-products from oil production could represent a significant financial earning for the digester operators.

Discussions are in progress involving oil producers and biogas plant operators to assess the opportunity of supporting the addition of by-products from oil refining in their facilities. A first evaluation of the costs and potential benefits of by-product treatment was performed. These costs should be reviewed in line with the increased development of anaerobic digestion and the expected benefits due to the digestion of by-products.

Key words: by-products, anaerobic digestion, oil production, household waste

mais également de l'émergence de nouvelles solutions techniques. Les industriels doivent sans cesse se tenir au courant des choix qui s'offrent à eux et déterminer la meilleure solution disponible pour leurs coproduits. Une valorisation efficace des coproduits au sein des établissements peut être essentielle pour améliorer la performance économique des sites.

Disposer de voies de valorisation pérennes, économiquement viables, et satisfaisantes au niveau environnemental est donc une préoccupation des industriels. L'objectif du projet VECIR, dont les résultats seront présentés dans le présent article, est d'explorer un nouveau mode

de valorisation de ces coproduits : la méthanisation.

Les coproduits de la trituration

Le coproduit principal de la trituration est le *tourteau* (figure 1). Les quantités de tourteaux produites chaque année augmentent, notamment grâce au développement des biocarburants. Le principal débouché de ce coproduit est l'alimentation animale pour les tourteaux de colza, soja et tournesol (Boloh, 2002). Pour l'instant, la demande en alimentation animale suit la croissance de production des tourteaux. Cependant, la commercialisation des tourteaux à des fins alimentaires est soumise

Pour citer cet article : Badey L, Torrijos M, Sousbie P, Pouech P, Bosque F. La valorisation des coproduits de l'huilerie par méthanisation. *OCL* 2012 ; 19(6) : 358-369. doi : 10.1684/occl.2012.0483

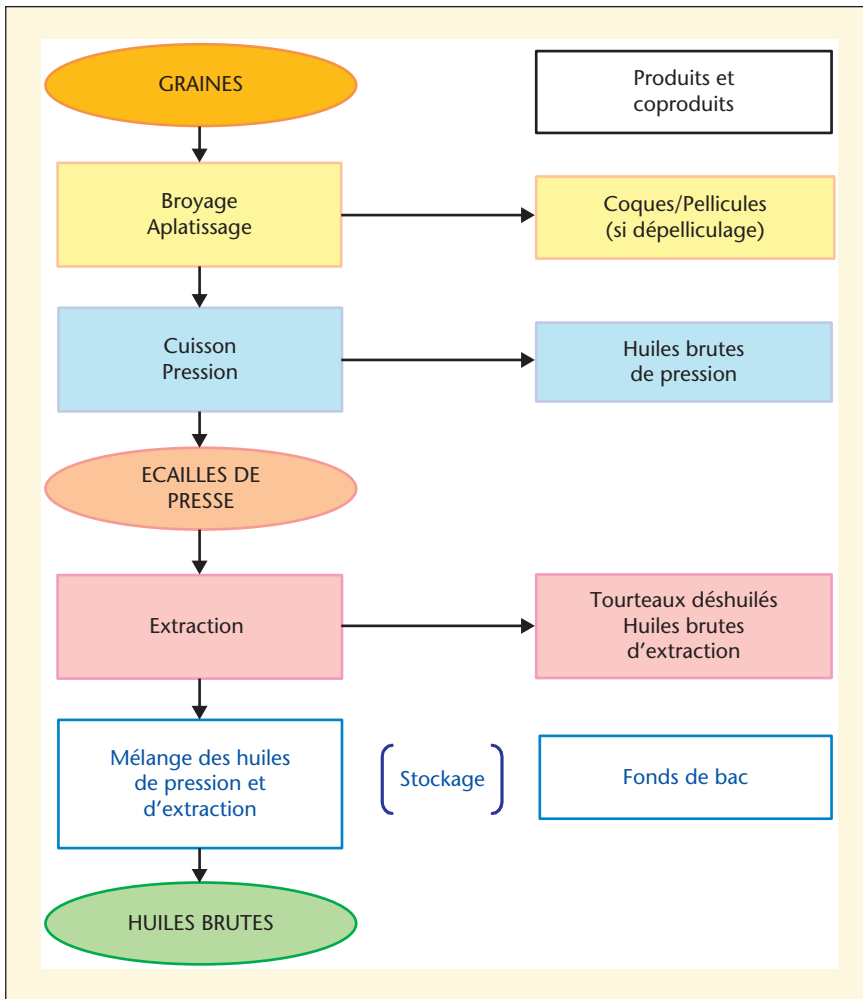


Figure 1. Coproduits de la trituration.

à de nombreuses réglementations. Certains tourteaux peuvent être utilisés pour la production d'énergie (tourteau de pépins de raisin valorisé en chaudière biomasse).

Le stockage des huiles brutes peut conduire à la sédimentation de particules solides, appelées *fonds de bac* (figure 1). Le gisement de ce coproduit n'est pas constant. Il dépend directement de la qualité de l'huile brute stockée. Les modes de valorisation de ce coproduit sont variables. Il peut être dirigé, entre autre, vers des filières de compostage ou d'incinération.

Les coproduits du raffinage chimique

De nombreux coproduits sont générés au cours du raffinage chimique des huiles brutes (figure 2).

Les *pâtes de neutralisation* sont issues de la neutralisation des huiles à la soude. Le gisement national est difficile à évaluer, étant donné que les quantités peuvent varier en fonction de la qualité des huiles brutes (acidité). Les pâtes de neutralisation sont généralement décomposées lors d'une opération dite de « cassage des pâtes ». Il s'agit d'une réaction consommatrice d'énergie, délicate à mener, et générant des vapeurs sulfuriques. Ce traitement produit des « huiles acides », valorisées en alimentation animale. Le coût du procédé de « cassage des pâtes » peut être estimé entre 80 et 100 € par tonne de pâtes de neutralisation. Cette opération peut être réalisée en interne, directement sur le site de production d'huiles végétales ou par une entreprise extérieure. Les pâtes peuvent également être expédiées, sans traitement préalable, pour être valorisées dans des entreprises extérieures

(production de savons, alimentation animale, etc.). Cependant, ce mode de valorisation reste minoritaire.

Les *eaux de lavage* sont rejetées lors du lavage des huiles après neutralisation. Elles sont riches en savons. Elles sont généralement traitées en station d'épuration, en mélange avec l'ensemble des eaux usées des sites industriels. Le gisement national est difficile à évaluer.

Les *terres de décoloration usagées* (TDU) sont des résidus de l'étape de décoloration, permettant d'éliminer les pigments contenus dans les huiles. Le gisement des TDU est stable ces dernières années (12 000 tonnes par an). Du charbon actif est utilisé occasionnellement, en mélange avec les terres de décoloration. La teneur en charbon actif est comprise entre 3,5 et 10 % de la terre usagée. Ces terres sont généralement compostées ou valorisées en méthanisation.

Pour certaines huiles contenant des cires (tournesol, maïs, etc.), un décirage est nécessaire. Cette étape génère des *terres de winterisation usagées* (TWU). Les gisements de TWU est stable ces dernières années (4 000 tonnes par an). Ces terres sont généralement mélangées avec les TDU, et envoyées vers des filières de compostage ou de méthanisation.

Les *condensats de désodorisation* sont obtenus lors du lavage des vapeurs issues de la désodorisation. Les condensats sont valorisés pour leur contenu en molécules d'intérêt (stérols, tocophérols, etc.) pour des applications alimentaires ou cosmétiques.

Les coproduits du raffinage physique

Certains coproduits du raffinage physique sont identiques à ceux du raffinage physique : TDU, TWU, eaux de lavage (figure 3).

Un résidu appelé *gommes* est récupéré à l'issue de la centrifugation des huiles lors du dégommeage acide. Ces gommes sont principalement valorisées pour leur contenu en lécithine. Les applications possibles pour la lécithine sont très nombreuses.

Des *distillats d'acides gras* sont également générés au cours de la distillation neutralisante. Ils peuvent être valorisés en alimentation animale.

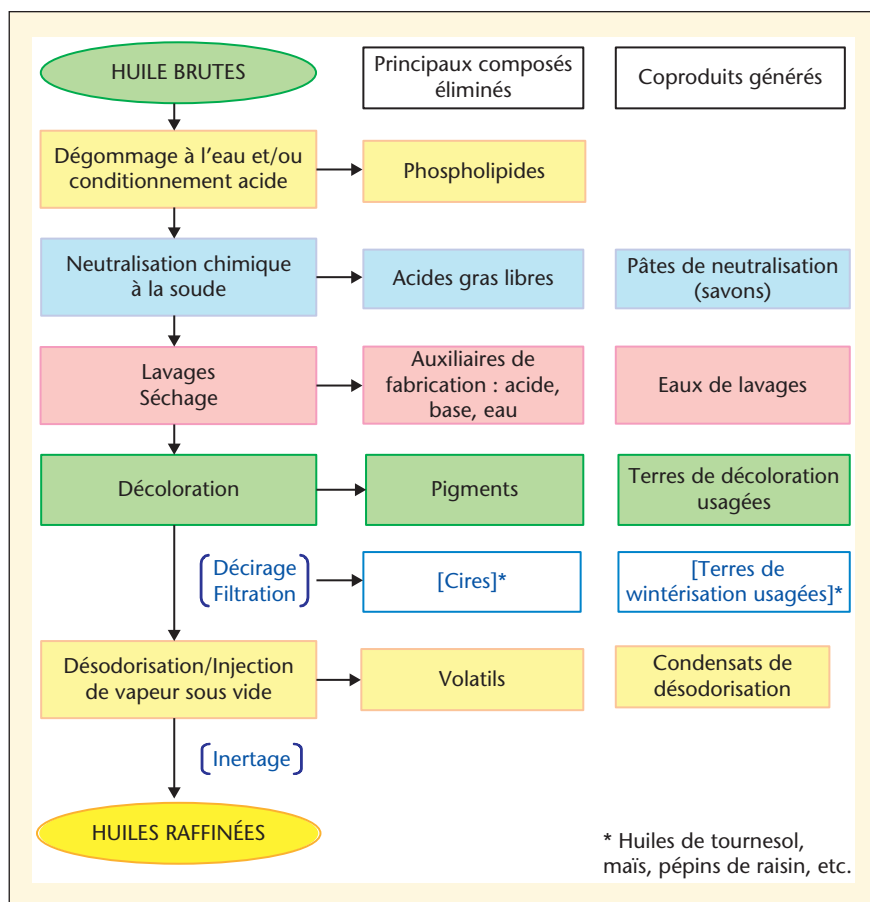


Figure 2. Coproduits du raffinage chimique.

Les coproduits de l'estérification

La transestérification des huiles en présence de méthanol pour produire du biocarburant génère de la glycérine. La glycérine a de nombreux débouchés, notamment pour des applications cosmétiques et pharmaceutiques, ainsi que la production de tensioactifs et d'émulsifiants.

Des eaux d'estérification peuvent également être rejetées (si la production de biocarburant est réalisée en catalyse hétérogène). Ces eaux sont riches en méthanol.

Les coproduits issus du traitement des effluents aqueux

Les usines de raffinage d'huile disposent généralement d'une station d'épuration pour le traitement des effluents aqueux du site. Un traitement physico-chimique, de type aéroflottateur, est généralement installé en amont de cette station.

Deux coproduits sont alors générés : les graisses d'aéroflottateurs et les boues de

station d'épuration. Les graisses d'aéroflottation sont généralement incinérées à des coûts importants. Les boues sont généralement méthanisées ou compostées avant épandage.

Le contexte de la méthanisation en France

La méthanisation (aussi appelée « digestion anaérobie ») est la transformation de la matière organique en un biogaz, composé principalement de méthane et de gaz carbonique. Cette transformation s'opère par l'action d'un consortium microbien fonctionnant en anaérobiose. La matière résiduelle non dégradée en biogaz et les micro-organismes produits constituent le « digestat » (Moletta et Verstraete, 2008).

Ce procédé permet donc d'éliminer la matière organique pour produire du biogaz valorisable, via le méthane qu'il contient. Le biogaz peut être utilisé soit sous forme thermique, soit sous forme thermique et électrique après transfor-

mation en cogénération et enfin en tant que carburant (Chatain, 2008). Le biogaz produit est principalement valorisé par cogénération. L'électricité est généralement revendue, alors que la chaleur produite peut avoir différentes débouchés (utilisation en interne pour chauffer le réacteur et sécher le digestat, injection dans un réseau de chaleur). Cependant, la principale source de revenu provient de la vente d'électricité, même si la revente de chaleur peut assurer une meilleure rentabilité de l'installation. L'injection du biogaz dans les réseaux de gaz naturel, ainsi que l'utilisation du biogaz en tant que carburant, restent encore des solutions marginales.

Le digestat, s'il est de bonne qualité, peut être utilisé en tant qu'engrais ou amendements organiques dans le cadre d'un plan d'épandage ou dans le cadre d'un produit normalisé (Servais, 2008). Une bonne valorisation du digestat permet de renforcer la rentabilité d'une unité de méthanisation.

Les installations françaises

Les installations de méthanisation présentes sur le territoire français se répartissent entre :

- des unités de traitement des boues de stations d'épuration et d'effluents industriels et agro-alimentaires (unités les plus anciennes et les plus nombreuses) ;
- des installations de méthanisation agricoles, encore appelées « à la ferme », traitant principalement des effluents agricoles (lisier, fumier, etc.), mais pouvant accueillir des déchets tiers en faible pourcentage ;
- des installations territoriales ou centralisées ayant pour objectif de mutualiser les déchets de différents acteurs (collectivités, industries, exploitations agricoles) présents sur un territoire limité (le rayon de récupération des déchets est généralement de 40 km maximum) ;
- des installations de traitement des déchets organiques des ordures ménagères (OM) ou de la fraction fermentescible d'ordure ménagère (FFOM) (Ernst et Young, 2010).

Le secteur agricole et celui des OM sont les plus dynamiques et les plus récents (la majorité de ces installations a été construite après l'an 2000), ce qui laisse présager un développement accéléré dans les prochaines années. Lors du

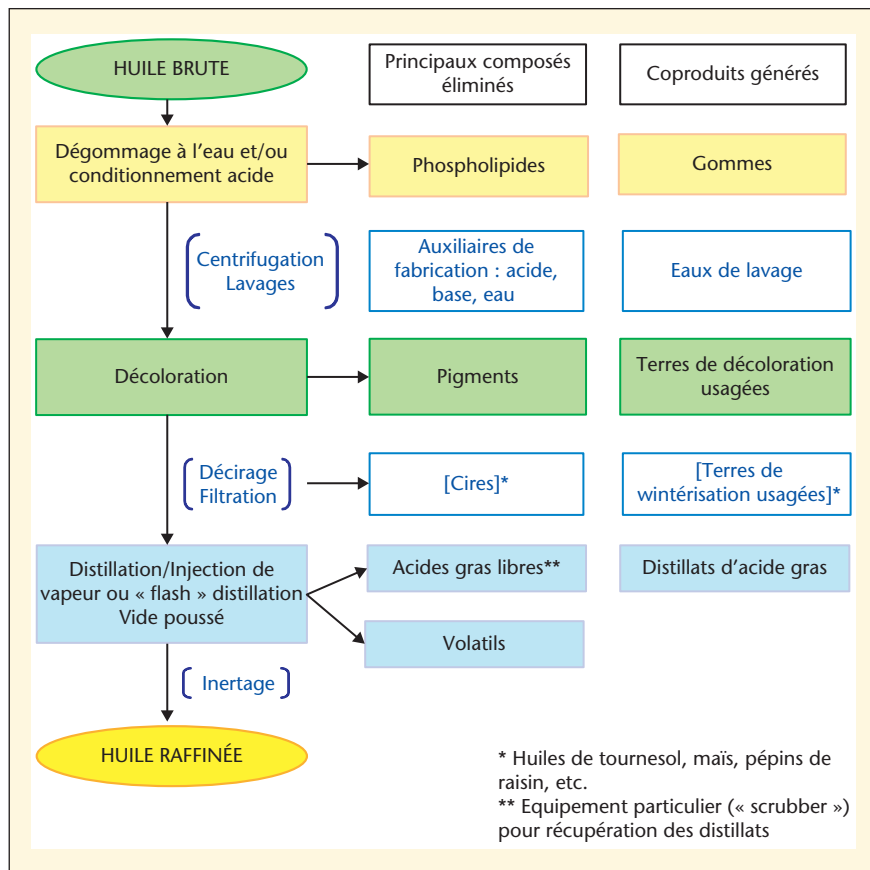


Figure 3. Coproduits du raffinage physique.

projet VECIR, nous nous sommes concentrés sur les installations susceptibles d'accueillir les coproduits des huileries, à savoir les installations agricoles, centralisées et celles traitant les ordures ménagères ou leur fraction fermentescible. En 2011, l'ITERG a recensé :

- 40 installations agricoles ou centralisées en fonctionnement ;
- 57 installations agricoles ou centralisées en projet ;
- 10 installations de méthanisation des OM ou FFOM en fonctionnement ;
- 14 installations de méthanisation des OM ou FFOM en projet.

Les installations agricoles ou centralisées, encore peu développées jusqu'à présent, sont en augmentation. Ainsi, le nombre d'installations agricoles et territoriales devrait augmenter d'environ 5 à 20 unités par an ces prochaines années. L'ITERG met à jour régulièrement une base recensant

l'ensemble des installations en fonctionnement ou en projet, en précisant leur localisation, leur capacité et les principaux substrats traités.

Le contexte réglementaire français

Le contexte réglementaire français a évolué récemment, afin de simplifier les démarches administratives lors de la conception des installations. De plus, le prix de rachat de l'électricité produite à partir de biogaz a augmenté en 2011 de plus de 20 %. Le tarif maximal de rachat du biogaz est porté à 19,97 centimes d'euros par kWh, contre 13,1 centimes d'euros par kWh précédemment. Un décret, publié en 2011, encadre également les tarifs liés à l'injection directe de biogaz dans le réseau de gaz naturel. Les tarifs oscilleront entre 4,5 centimes d'euros par kWh PCS pour les plus grandes installations et 12,5 centimes d'euros par kWh PCS pour les

petites installations. A noter que ce tarif dépend en partie de la nature des produits méthanisés. Les déchets agricoles sont avantagés par rapport aux autres résidus.

Cette évolution des tarifs devrait favoriser la filière de la méthanisation en France. Cependant, ces tarifs sont nettement inférieurs à ceux appliqués en Allemagne, où les installations de méthanisation sont florissantes.

L'augmentation du prix de rachat de l'électricité produite à partir de biogaz ainsi que l'augmentation du nombre d'installations de méthanisation entraînent une demande croissante en matière organique susceptible d'être méthanisée. Ce contexte est favorable pour envisager la méthanisation des coproduits de l'huilerie, riches en matière organique.

Le potentiel méthane intéressant des coproduits de l'huilerie

Les coproduits étudiés

L'ITERG et le LBE-INRA ont évalué l'aptitude à la méthanisation des coproduits de l'huilerie. Pour cela, les potentiels méthane de 24 résidus, appartenant aux 13 catégories de coproduits de l'huilerie préalablement identifiées (tableau 1), ont été mesurés. Les échantillons compris dans une même catégorie de coproduit se différencient par la nature de la graine triturée ou de l'huile raffinée (tournesol, colza, etc.), ou par leur provenance. Ces 24 échantillons ont été prélevés sur les principaux sites français de production d'huiles.

La majorité des résidus a une forte concentration en matière organique, avec des valeurs supérieures à 40 % de matière sèche (tableau 1).

Matériels et méthodes

Le potentiel méthane correspond à la quantité maximale de méthane que la matière organique contenue dans un déchet ou un coproduit est susceptible de produire lors de sa dégradation (Angelidaki et Sanders, 2004). Ce potentiel est calculé à partir de la mesure du volume de biogaz produit, de l'analyse de la composition du biogaz (qui permet de déterminer le pour-

Tableau 1. Caractéristiques des 24 coproduits de l'huilerie étudiés.

Coproduits étudiés	Nature	Matière sèche (%)	Matière organique (%)	DCO (g/kg ou g/L)
Tourteaux déclassés	Colza	87,9	80,4	1 033
	Tournesol	89,0	83,0	1 130
Fond de bac	Tournesol	94,0	89,0	1 650
	Colza	53,0	49,0	1 130
Pâtes de neutralisation	Colza	65,5	60,0	825
	Coprah*	-	-	309
	Tournesol	52,5	44,0	1 200
	Pépin de raisin	42,0	38,0	925
Gommes	-	38,0	35,0	777
Terres décoloration usagées	Tournesol (site 1)	84,0	40,0	1 080
	Tournesol (site 2)	95,0	44,5	1 005
	Palme	99,0	51,0	945
	Pépin de raisin	91,0	43,0	880
Terres de wintérisation usagées	Tournesol	89,0	55,0	1 350
Condensats de désodorisation	Tournesol	99,0	99,0	2 705
Distillats d'acides gras	-	7,3	7,1	-
	Palme	100,0	100,0	-
Glycérine	Site 1	92,0	87,0	1 023
	Site 2	96,5	94,0	1 120
Eau de lavage*	-	-	-	90
Eau d'estérification*	-	-	-	46
Graisse d'aéroflottation	Site 1	5,5	1,9	183
	Site 2	9,2	7,8	-
Boues de station d'épuration	-	10,7	9,1	138

* Le taux de matière sèche et de matière organique des coproduits liquides n'a pas pu être évalué. Les pâtes de neutralisation de coprah ont été diluées avec des eaux de lavage ; le pourcentage de matière sèche et de matière organique n'a pas pu être évalué.

centage de méthane contenu dans le biogaz) et de la quantité de matière organique apportée.

Les essais de mesure du potentiel méthane ont été conduits dans des réacteurs de 6 L à double parois thermostatés à 35 °C (Torrijos *et al.*, 2008). Ces réacteurs sont équipés d'un système de mesure en ligne du volume de gaz produit (débitmètre Ritter milligascounter MGC-1). Les réacteurs ont été ensemencés par des boues anaérobies issues d'une unité de méthanisation traitant les effluents d'une sucrerie. Les réacteurs ont fonctionné en mode fed-batch, c'est-à-dire avec des batchs successifs sans vidange, pour les résidus ayant une forte concentration en matière sèche ou en mode batchs successif avec une phase de décantation puis vidange à la fin de chaque batch pour les résidus dilués. Au début et à la fin de chaque essai, les

réacteurs ont été alimentés avec de l'éthanol pour vérifier l'activité des boues et mesurer la respiration endogène, c'est-à-dire l'activité des boues lorsqu'il n'y a plus de substrat à dégrader. Pour les résidus solides, 1 g de matière volatile par litre de réacteur a été ajouté manuellement au début de chaque batch. Pour les résidus liquides, dont la concentration a été mesurée en DCO, 1 à 2 g de DCO ont été ajoutés au début de chaque batch, en fonction de la vitesse de dégradation observée. L'expérimentation a duré entre 1 et 2 mois pour chaque résidu étudié. Le volume de biogaz produit a été mesuré en ligne pour chaque batch et le pourcentage de méthane contenu dans le biogaz a été mesurée pour la totalité du volume produit par batch. La biodégradabilité des résidus a été évaluée en divisant le volume de méthane produit au cours des essais réalisés par le volume de méthane

théorique maximum qui peut être produit, connaissant la DCO des résidus (il n'a pas été possible de déterminer la biodégradabilité de 3 échantillons, n'ayant pas pu déterminer leur DCO, voir *tableau 1*).

Les résultats

Les potentiels méthane ont été calculés par tonne de matière organique (*figure 4*) et par tonne de produit brut (*figure 5*). Les valeurs des potentiels méthane sont très différentes d'un résidu à l'autre, avec des valeurs comprises entre 100 et 725 m³ de CH₄ par tonne de matière organique (*figure 4*). En revanche, la cinétique de dégradation des résidus est toujours relativement lente.

Treize résidus présentent des potentiels méthane élevés (compris entre à 400 et 500 m³ de CH₄ par tonne de matière organique pour 5 coproduits, et supérieurs à 500 m³ de CH₄ par tonne de

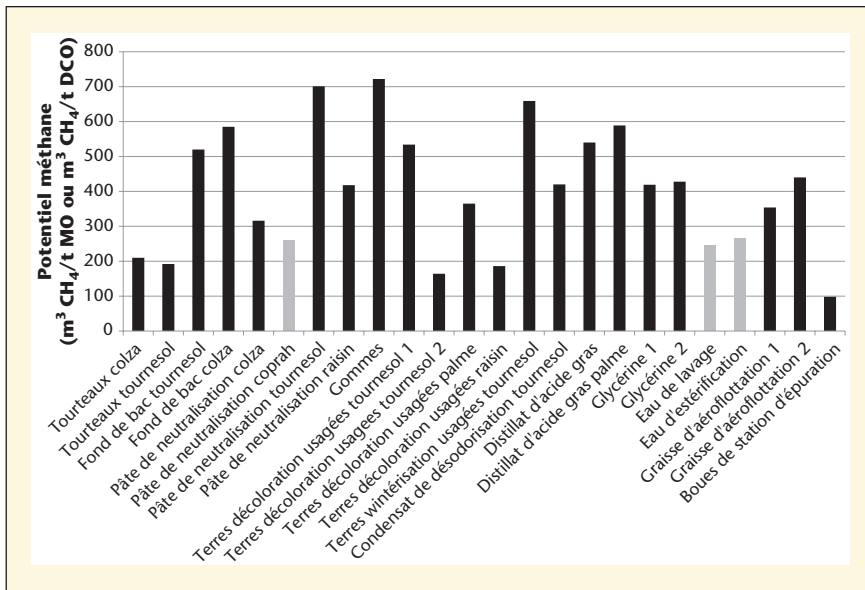


Figure 4. Potentiel méthane des coproduits de l'huilerie. Les barres noires représentent le potentiel méthane par tonne de matière organique et les barres grises représentent le potentiel méthane par tonne de DCO (résidus liquides).

matière organique pour 8 coproduits). Ces résidus ont un potentiel méthane élevé car ils contiennent une proportion importante de graisses. De plus, leur biodégradabilité est excellente.

Cinq résidus possèdent des potentiels méthane moyens, compris entre 250 et 400 m³ de CH₄ par tonne de matière organique.

Six coproduits ont un potentiel méthane faible (inférieur à 250 m³ de

CH₄ par tonne de matière organique). La biodégradabilité de ces résidus est faible.

Il n'est pas toujours possible de tirer de conclusion générale en fonction du type de résidus et/ou du type d'huile traitée. Par exemple, les potentiels méthane des TDU (4 échantillons étudiés) s'étendent entre 164 et 536 m³ de CH₄ par tonne de matière organique (tableau 2). Deux échantillons de TDU ont des potentiels méthane élevés ou moyen, alors que

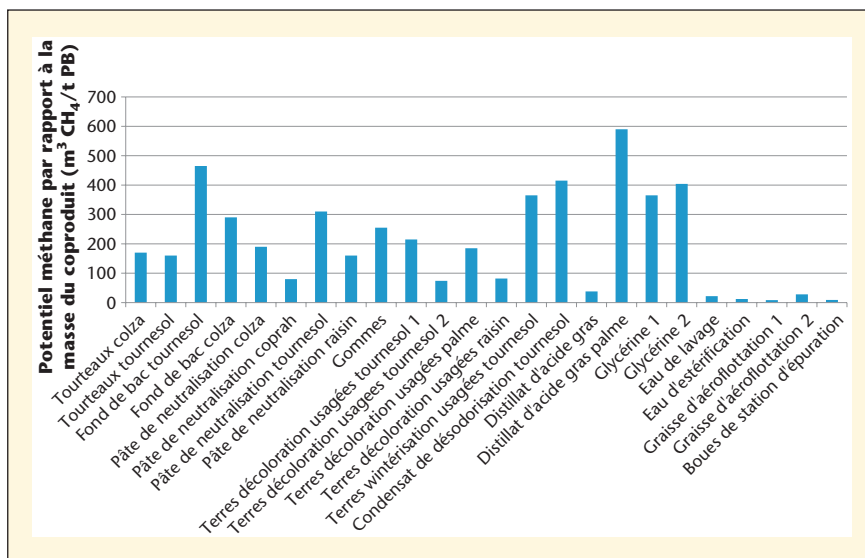


Figure 5. Potentiel méthane des coproduits de l'huilerie par rapport à la masse de coproduit brut.

deux échantillons présentent des potentiels méthane faibles. Le type de procédé utilisé semble jouer un rôle important et il a été supposé que le taux de charbon actif contenu dans les TDU influençait les résultats. Des études complémentaires ont été menées à ce sujet pour la codigestion avec la FFOM.

Les résultats de potentiel méthane dépendent alors du type de coproduit, mais également de la nature de l'huile raffinée (tournesol, colza, etc.) et des pratiques spécifiques à chaque site industriel. Une conclusion importante est que la majorité des résidus a des potentiels méthane élevés, et donc une bonne aptitude à la méthanisation.

La figure 6 présente les potentiels méthane (par rapport à la quantité de matière organique) de substrats pouvant être méthanisés dans des unités de méthanisation agricoles ou centralisées, ce qui permet de les comparer avec ceux des coproduits de l'huilerie. De par leur potentiel méthane très élevé, les résidus de l'huilerie peuvent permettre d'améliorer significativement la production de méthane d'un méthaniseur existant de type agricole ou centralisé ou traitant des ordures ménagères, même si les proportions ajoutées sont relativement faibles (10 à 20 % par exemple). Les opportunités de codigestion de ces coproduits dans des unités de méthanisation des ordures ménagères et dans des unités agricoles ou centralisées ont alors été évaluées dans la deuxième partie du projet.

Les opportunités de cométhanisation avec la FFOM

Les coproduits étudiés

Deux types d'ordures ménagères peuvent être méthanisés :

- les ordures ménagères résiduelles, qui correspondent à la part des déchets restante après les collectes sélectives ;
- la fraction fermentescible des ordures ménagères (FFOM), qui correspondent aux déchets ménagers putrescibles (déchets de cuisine, certains déchets verts, papiers-cartons et textiles sanitaires) ; cette fraction est obtenue après tri des ordures ménagères résiduelles pour ne garder que la matière organique pouvant être méthanisée.

Tableau 2. Caractéristiques et potentiels méthane des échantillons de terres de décoloration usagées (TDU) – (en m³ CH₄ par tonne de matière organique).

Nature	Potentiel méthane (m ³ CH ₄ /t MO)	Biodégradabilité (%)
Tournesol (site 1)	534	57 %
Tournesol (site 2)	164	21 %
Palme	365	56 %
Pépin de raisin	186	26 %

Les ordures ménagères résiduelles ont un faible pouvoir méthanogène (60 m³ de méthane par tonne de déchets entrants) par rapport à la FFOM, dont le potentiel est de l'ordre de 100 à 130 m³ de méthane par tonne de déchets traités (Ernst et Young, 2010).

Le projet VECIR a eu pour objectif d'évaluer la faisabilité de la cométhanisation de certains coproduits de l'huilerie avec la FFOM, et de déterminer les performances résultantes en termes de rendement de biogaz et d'éventuel impact sur la qualité du digestat.

Dans un premier temps, des essais de codigestion à l'échelle pilote ont été menés. Ils ont concerné :

- plusieurs échantillons de TDU ;
- des pâtes de neutralisation issues du raffinage chimique des huiles de pépins de raisins ;
- de la glycérine issue de l'estérification de l'huile de colza.

Ces essais avaient pour objectif de simuler le comportement d'un digesteur industriel de méthanisation d'ordures ménagères. Les essais pilote ont été réalisés par l'APESA. La qualité du digestat obtenu lors de ces essais a été évaluée.

Dans un second temps, des essais ont été menés sur une unité de méthanisation industrielle de la FFOM. Ces essais ont concerné les pâtes de neutralisation et la glycérine.

Matériels et méthodes

Les essais de codigestion ont été réalisés par l'APESA en réacteur pilote continu conçu pour le traitement de FFOM selon le procédé de la société VALORGA. Le fermenteur est composé d'une cuve cylindrique, thermostatée, de 15 litres de volume utile. La cuve du fermenteur est séparée sur les 2/3 du diamètre par une paroi verticale, d'où un fonctionnement de type piston. Le fermenteur,

grâce à son système d'agitation par injection de gaz sous pression, permet de travailler à des teneurs en matière sèche élevées. Les essais pilote se sont déroulés en milieu thermophile (55 °C) pour s'approcher au plus près des conditions de fonctionnement du site de méthanisation où se dérouleront les essais industriels. Le volume de biogaz produit a été mesuré en continu. La composition du biogaz a été analysée quotidiennement.

Le consortium bactérien anaérobie nécessaire pour transformer la matière organique en biogaz provenait d'un réacteur industriel (usine de méthanisation de la FFOM de Varennes-Jarcy). Le pilote de méthanisation a été, dans un premier temps, alimenté en FFOM seulement, afin de reproduire les conditions de fonctionnement de l'unité industrielle. La charge organique volumique appliquée en FFOM a été de 6 g de matière organique par litre et par jour, charge appliquée à l'usine de Varennes-Jarcy. Une fois que les paramètres de fonctionnement ont été stabilisés, l'essai à proprement parlé a pu démarrer.

L'APESA a également réalisé des analyses sur les digestats issus de ces essais afin d'évaluer l'impact de l'ajout de coproduits de l'huilerie. Les besoins en maturation du digestat ont été analysés au moyen d'un test de respirométrie et le compost obtenu a été caractérisé grâce à une analyse de composition agronomique, puis l'indice de stabilité biologique a été mesuré.

Les essais industriels se sont déroulés sur l'unité de méthanisation des ordures ménagères de Calais, exploitée par OCTEVA.

Les résultats avec les TDU

Les tests de potentiels méthane ont montré une grande disparité de résultats entre les différents échantillons de TDU. Il a été supposé que le taux de charbon actif contenu dans ces terres influençait le pouvoir méthanogène de celles-ci. L'APESA a alors testé la co-méthanisation de 4 échantillons de terres de décoloration usagées se différenciant notamment par leur teneur en charbon actif. Les essais préliminaires de tests potentiel méthane sur ces échantillons montrent une nouvelle fois un grand écart (figure 7). Il est difficile d'établir une corrélation entre le taux de charbon actif et le potentiel méthane cependant,

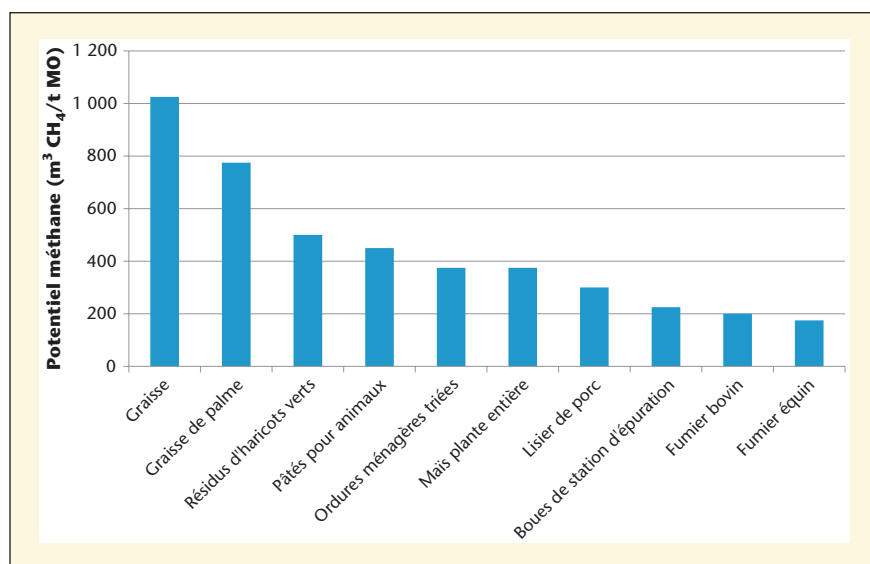


Figure 6. Comparaison des potentiels méthanogènes (en m³ de CH₄ par tonne de matière organique) de différents substrats organiques (source : APESA).

l'échantillon contenant le plus de charbon actif est l'échantillon ayant le plus faible potentiel méthane. Les trois autres échantillons de TDU ont un potentiel méthane supérieur à celui de la FFOM, et seraient donc intéressants pour envisager une co-méthanisation.

Pour les essais de codigestion, la charge volumique organique totale appliquée dans le pilote a été de 6 g de matière organique par litre et par jour, dont 5 g sont apportés par les FFOM et 1 g par les TDU. Pour chacune des 4 TDU testées en pilote continu, les paramètres de fonctionnement confirment un bon déroulement de la méthanisation. L'ajout des TDU de palme et de colza à 0 % de charbon actif a permis une augmentation significative de 24 % et de 11 % du potentiel méthane par rapport à celui des FFOM (figure 8). L'ajout des TDU de raisin à 10 % de charbon actif ne permet aucune augmentation du potentiel méthane par rapport à la phase FFOM seule ; il y a même une diminution significative du potentiel méthane (figure 8).

Les résultats des essais pilote montrent que l'ajout à hauteur de 1/6^e de la charge organique de TDU (3 sur les 4 testés) ont des effets très positifs sur les performances en méthanisation. L'ajout de ces produits dans une unité industrielle de méthanisation des FFOM permettrait donc d'améliorer la production de biogaz. Les échantillons contenant le moins de charbon actif obtiennent de meilleures performances en méthanisation. Le charbon actif, utilisé quelquefois lors de l'étape de décoloration de l'huile, semble retenir fortement la matière grasse et ainsi la rendre moins accessible pour les micro-organismes méthanogènes.

Les résultats avec les pâtes de neutralisation

Les performances de la cométhanisation du mélange pâtes de neutralisation/TDU avec la fraction fermentescible des ordures ménagères (FFOM) ont été évaluées à l'échelle pilote. Ces deux coproduits proviennent du raffinage des huiles de pépins de raisin. Lors de la première phase, 6 g de matière organique par litre et par jour sont apportés par les FFOM et 1 g par le mélange TDU/pâte. Lors de la seconde phase, 6 g de matière organique par litre et par jour sont apportés par les FFOM et 2 g par le

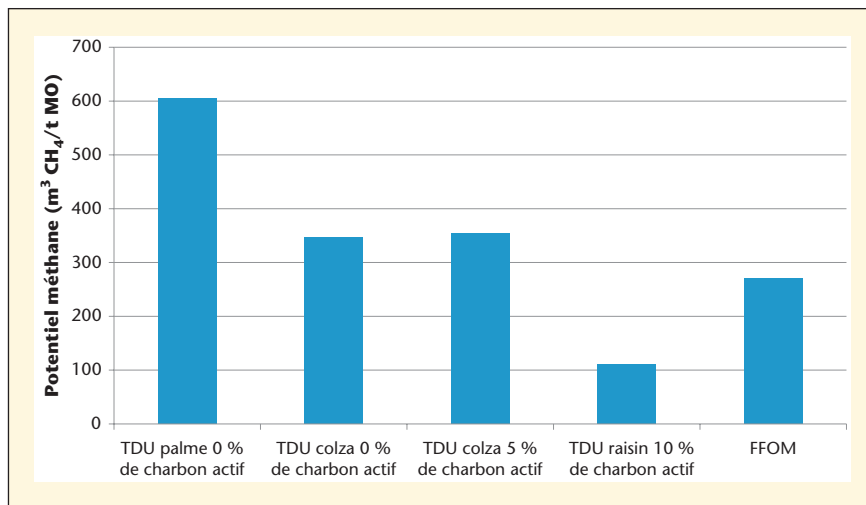


Figure 7. Comparaison des potentiels méthanogènes des différents échantillons de TDU avec celui de la fraction fermentescible des ordures ménagères (FFOM).

mélange TDU/pâte. L'ajout du mélange pâtes de neutralisation/TDU de raisins augmente les performances de 15 à 30 % respectivement pour un ajout de 1 g/L et de 2 g/L par rapport à la phase FFOM seule (figure 9). Le mélange a également permis d'améliorer la qualité du biogaz (taux de méthane contenu dans le biogaz). Les TDU de pépins de raisin contenant 10 % de charbon actif ayant peu d'impact sur le potentiel méthane du mélange, l'augmentation de la production de biogaz est à imputer aux pâtes de neutralisation qui permettent d'augmenter significa-

tivement les performances par rapport à la méthanisation des FFOM seule.

Les pâtes de neutralisation ont ensuite été testées en unité industrielle. Entre 1 et 4 tonnes de pâtes de neutralisation ont été introduites chaque jour dans le réacteur industriel traitant entre 50 à 60 tonnes de matière par jour. Deux échantillons de pâtes de neutralisation ont été testés (tournesol et colza) pendant 9 jours.

Les pâtes de neutralisation ont été stockées dans une cuve agitée et chauffée, dédiée aux graisses, qui per-

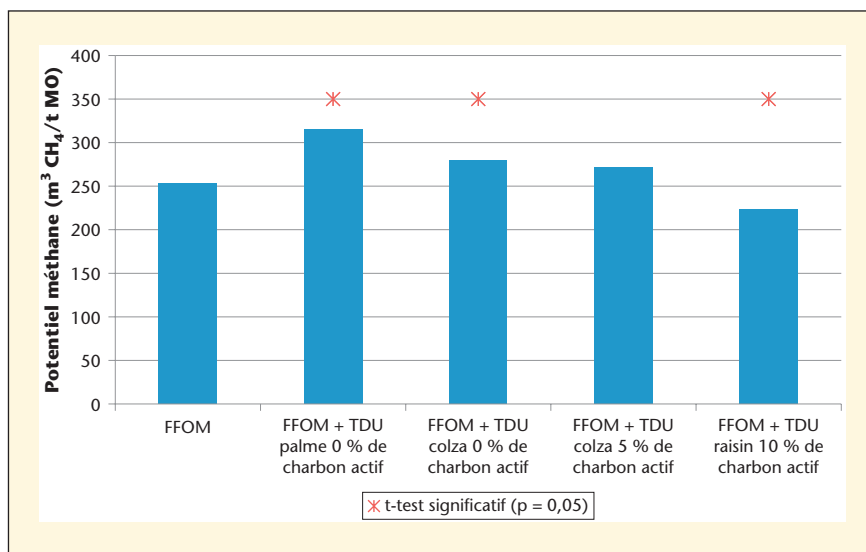


Figure 8. Potentiels méthane des différentes phases de codigestion entre la FFOM et les TDU (l'astérisque signifie que la différence de potentiel méthane entre la phase avec TDU et celle avec FFOM seule est significativement différente selon un test statistique).

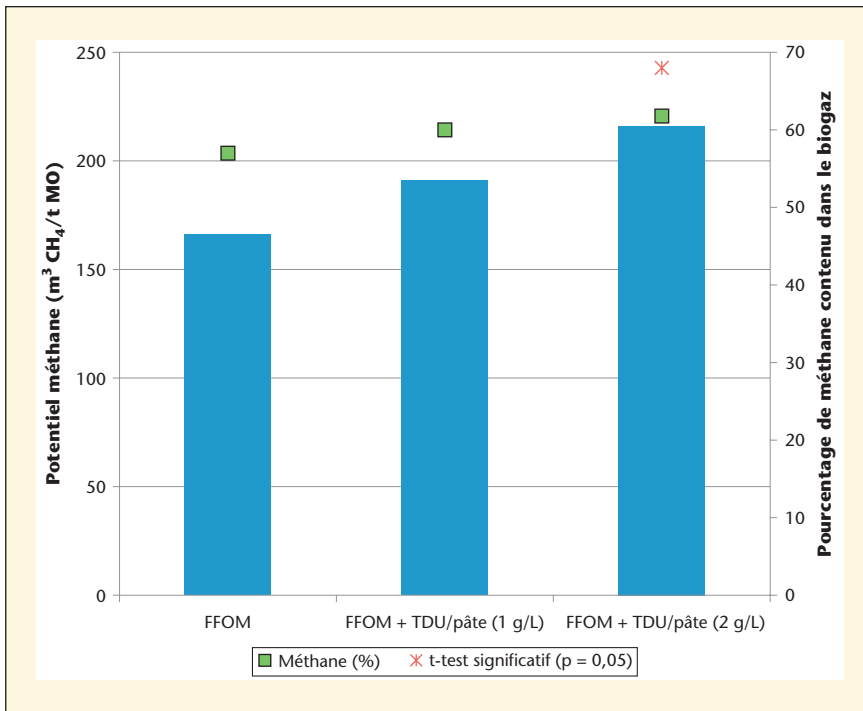


Figure 9. Potentiels méthane et pourcentage de méthane contenu dans le biogaz des différentes phases de codigestion entre la FFOM et le mélange TDU/pâte de neutralisation (l'astérisque signifie que la différence de potentiel méthane entre la phase avec le mélange pâte/TDU à 2 g/L) et celle avec FFOM seule est significativement différente selon un test statistique).

met de transférer les produits pâteux directement dans le digesteur. Cependant, le pompage du produit a rencontré quelques difficultés : un apport conséquent de chaleur a été nécessaire pour obtenir une mixture suffisamment fluide et homogène pouvant être injectée dans le réacteur.

L'ajout de pâtes de neutralisation a un impact positif sur la production de méthane, en permettant de produire entre 10 et 17 m³ de biogaz supplémentaires par tonne de déchets bruts introduits, soit une augmentation comprise entre 8 et 14 %. L'ajout de pâte de neutralisation peut avoir un impact très favorable sur la production de biogaz lors de sa codigestion avec la FFOM.

Les résultats avec la glycérine

Les essais de codigestion en réacteur pilote de la glycérine avec la FFOM ont montré que la glycérine pouvait augmenter la production de biogaz significativement. En effet, le potentiel méthane de la glycérine est de 431 m³ de méthane par tonne de matière organique alors que celui de

la FFOM est en moyenne de 300 m³ de méthane par tonne de matière organique. Cependant, la vitesse spécifique de dégradation de la glycérine est faible. Il est nécessaire de faire attention à ne pas surcharger le réacteur en lui apportant plus de matière organique qu'il n'est susceptible de pouvoir traiter. En effet, l'APESA a constaté que l'ajout de glycérine au-delà d'une charge de 2 300 kg/m³.jour en glycérine (soit 12 % en masse dans le mélange) peut entraîner une surcharge du réacteur. Ces résultats sont en accord avec ceux disponibles dans la littérature (Amon *et al.*, 2006 ; Holm Nielsen *et al.*, 2008). Les essais pilote ont permis de dimensionner les essais en réacteur industriel. Il a été décidé d'introduire 1 tonne de glycérine chaque jour en mélange avec la FFOM et 4 t le dimanche. La glycérine a été ajoutée à hauteur de 0,5 g/L dans le réacteur (pour une charge totale de 9,3 g/L). L'ajout de glycérine a un impact positif en permettant de produire entre 10 et 15 m³ de biogaz supplémentaires par tonne de déchets bruts introduits (soit 3 à 5 % d'augmentation). La glycérine a donc un

impact très favorable sur la production de biogaz lors de sa codigestion avec la FFOM.

Les résultats sur le digestat

Les mesures effectuées sur le digestat ont démontré que l'ajout de TDU, de pâtes de neutralisation et de glycérine ne modifiaient pas la composition et la qualité du digestat, aussi bien lors des essais pilote que lors des essais sur site industriel. Les composts obtenus respectent la norme NFU-44051 concernant les amendements organiques. De plus, le compost participera à l'amélioration des propriétés physiques du sol : aération, meilleure capacité de rétention d'eau... Les coproduits de l'huilerie peuvent donc être méthanisés en mélange avec la FFOM sans craindre une altération du digestat.

Conclusion

Les TDU, les pâtes de neutralisation et la glycérine permettent d'augmenter significativement la production de biogaz lorsqu'ils sont cométhanisés avec la FFOM. Le biogaz supplémentaire tiré de cette codigestion permettrait une production d'électricité supplémentaire et ainsi un gain financier non négligeable pour l'exploitant d'une unité de méthanisation. L'ITERG a contacté des exploitants d'unités de méthanisation d'OM pour définir les modalités de prise en charge des coproduits de l'huilerie sur site industriel (tableau 3). Les tarifs proposés semblent cohérents avec les coûts d'exploitation de ces usines et les gains envisagés (en termes de production de biogaz). Cependant, les prix proposés pour les coproduits de l'huilerie sont nettement inférieurs aux tarifs ou aux coûts de valorisation actuels de ces coproduits.

Les opportunités de cométhanisation avec d'autres substrats agricoles

Les coproduits étudiés

Dans les installations de méthanisation agricole, le gisement traité est pour l'essentiel composé de :

- lisiers et fumiers ;
- déchets issus des industries agroalimentaires ;

Tableau 3. Tarifs de prise en charge des coproduits de l'huilerie sur site industriel de méthanisation des OM ou FFOM (hors frais de transport à la charge du producteur d'huile).

Nature du coproduit	Tarif minimum de prise en charge (€/t)	Tarif maximum de prise en charge (€/t)
TDU	À la charge du producteur d'huile : 20 €/t	À la charge du producteur d'huile : 30 €/t
Pâte de neutralisation	Achat par l'exploitant : 10 €/t	À la charge du producteur d'huile : 10 €/t
Glycérine	Achat par l'exploitant : 30 €/t	Achat par l'exploitant : 10 €/t

– cultures intermédiaires ou dédiées (ADEME, 2011).

Le LBE-INRA a testé la cométhanisation de mélange de coproduits de l'huilerie avec des substrats représentatifs des déchets méthanisés dans les installations territoriales en fonctionnement ou en projet, qui constituent le « mélange de base » (tableau 4). Cinq résidus issus du raffinage des huiles végétales ont été étudiés :

- des pâtes de neutralisation provenant du mélange de pâte de neutralisation de colza (2/3) et de pâtes de neutralisation de tournesol (1/3) ;
- des pâtes de neutralisation de colza ;
- des terres de wintérisation usagées provenant de tournesol ;
- de la glycérine ;
- des graisses d'aéroflottation.

Matériels et méthodes

Les essais se sont déroulés dans des réacteurs de 15 L thermostatés à 35 °C (Torrijos *et al.*, 2012). L'alimentation manuelle des réacteurs a été réalisée 5 fois par semaine. Les réacteurs ont été pesés chaque semaine et la masse en excès a été prélevée afin de maintenir la masse de solides dans le réacteur à 10 kg. Les réacteurs sont équipés d'un système de mesure en ligne du volume

de gaz produit (débitmètre Ritter milligascounter MGC-1). La composition du biogaz a été mesurée une fois par semaine. Les réacteurs ont étéensemencés avec des boues anaérobies provenant d'un réacteur industriel traitant des effluents de sucrerie.

Les six résidus ont été ajoutés dans un réacteur de codigestion alimenté avec le mélange de base (tableau 4). Chaque essai a été divisé en 3 phases :

- phase 1 : alimentation avec le mélange de base pendant 4 semaines à une charge de 1,5 kg de matière organique par kilogramme de réacteur et par jour ;
- phase 2 : alimentation avec le mélange de base additionné d'un des cinq résidus pendant 8 semaines ; la charge du mélange de base a été maintenue à 1,5 kg de matière organique par kilogramme de réacteur et par jour et le résidu a été ajouté à la charge de 0,5 kg de matière organique par kilogramme de réacteur et par jour ; la charge totale appliquée était donc de 2 kg de matière organique par kilogramme de réacteur et par jour ;
- phase 3 : retour aux conditions de la phase 1 pendant 2 semaines (mélange de base seul, charge de 1,5 kg de matière organique par kilogramme de réacteur et par jour).

Le but de la phase 1 est de caractériser les performances des réacteurs avec le mélange de base seul. Celui de la phase 2 est de déterminer les effets de l'ajout d'un résidu sur le comportement des réacteurs, le mélange de base étant apporté dans les mêmes conditions qu'à la phase 1. Enfin, le but de la phase 3 est de caractériser le comportement des réacteurs lorsque le résidu n'est plus apporté pour vérifier s'il y a un effet rémanent de l'addition du résidu.

Les résultats

Quatre résidus (les 2 pâtes de neutralisation, les TWU et les graisses d'aéroflottateur) ont eu un effet important sur la production de méthane, avec une augmentation de 50 à 62 % du volume de méthane produit par rapport à la production avec le mélange de base seul (tableau 5). Cette augmentation est liée au fort potentiel méthane de ces résidus (690 à 860 m³ de CH₄ par tonne de matière organique). La glycérine a un potentiel méthane proche de celui du mélange de base et l'augmentation du volume de méthane produit a été proportionnelle à celle de la charge (tableau 5).

Conclusion

La plupart des coproduits de l'huilerie testés permet d'améliorer très significativement la production de méthane lors de la codigestion avec le mélange de base, même si les proportions ajoutées sont relativement faibles (25 % des matières organiques apportées). Aucun temps d'adaptation des boues aux coproduits gras, ni aucune accumulation de matière solide dans le réacteur n'ont été constatés. L'incorporation de ces résidus dans une installation de méthanisation centralisée est donc envisageable et serait bénéfique pour la production de biogaz.

L'ITERG a contacté des sociétés, qui développent des projets de méthanisation territoriale pour des clients variés,

Tableau 4. Composition des trois substrats constituant le mélange de base représentatif des déchets méthanisés dans les installations territoriales en fonctionnement ou en projet.

	Matière sèche (g/kg)	Matière organique (g/kg)
Tonte de gazon (45 %)	378 ± 50	306 ± 41
Fumier (30 %)	360	320
Résidus de fruits et légumes (25 %) :	128	121
Pomme	138	136
Banane	159	150
Carotte	119	112
Pommes de terre	169	162
Laitue	62	51

Tableau 5. Evolution du potentiel méthane (en m³ de CH₄ par tonne de matière organique) lors de la codigestion des coproduits de l'huilerie avec le mélange de base (mélange de substrats représentatifs des déchets méthanisés dans les installations territoriales en fonctionnement ou en projet).

	Pâte de neutralisation (mélange colza/tournesol)	Pâte de neutralisation colza	TWU de tournesol	Glycérine	Graisse d'aéroflottation
Phase 1 : Mélange de base seul					
Potentiel méthane mélange de base	430	530	410	510	420
Phase 2 : Mélange de base + coproduit de l'huilerie					
Potentiel méthane de la codigestion	490	570	470	450	480
Variation de la production de méthane (L/sem)	+ 19,0	+ 21,5	+ 16,6	+ 10,9	+ 18,1
Potentiel méthane du coproduit de l'huilerie seul	770	860	690	430	720
Phase 3 : Mélange de base seul					
Potentiel méthane mélange de base	410	470	410	460	410

afin d'évaluer les tarifs de prise en charge des coproduits de l'huilerie (tableau 6). Notons que ces tarifs avaient été proposés avant la mise en place des nouveaux tarifs de rachat de l'électricité produite à partir de biogaz. Les tarifs de prises en charge proposés sont loin des estimations de gains liés à la méthanisation des coproduits, et loin des tarifs de valorisation actuels. Il n'est donc pas envisageable pour les industriels du secteur des huiles végétales d'accepter de telles conditions d'achat ou de reprise. Notons que certaines installations de méthanisation centralisées existantes traitent déjà des sous-produits de l'huilerie.

L'étude SOLAGRO (SOLAGRO *et al.*, 2010) sur la rentabilité des installations agricoles précise qu'« il n'existe pas aujourd'hui de compétition au niveau des substrats agricoles (lisiers et fumiers). En revanche, l'utilisation de cosubstrats des industries peut avoir un coût, ceux-ci pouvant être valorisés par ailleurs. La compétition pour des cosubstrats méthanogènes pourrait donc exister si la méthanisation se développe à un rythme soutenu dans les prochaines années ». Ces propos laissent présager une prise en charge des coproduits de l'huilerie dans de meilleures conditions financières à l'avenir. L'évolution des tarifs de traitement des coproduits de l'huilerie doit donc être suivie.

Les autres opportunités de cométhanisation

L'impact de la codigestion des coproduits de l'huilerie dans les installations de méthanisation de boues de station d'épuration n'a pas été évalué au cours du programme. L'utilisation des coproduits de l'huilerie pourrait se révéler intéressante, compte tenu de leur très fort potentiel méthane et des faibles quantités de coproduits générées. Cette codigestion pourrait être envisagée dans les digesteurs de boues de station d'épuration municipale fonctionnant en sous-capacité. Elle permettrait d'améliorer la production de

méthane. Cependant, une attention particulière devra être portée aux conditions de fonctionnement de ces digesteurs pour éviter un dysfonctionnement lié à un apport trop important de matière solide.

Vers une valorisation généralisée en méthanisation ?

De manière générale, les coproduits étudiés ont des potentiels méthane élevés et permettent d'augmenter significativement la production de biogaz quand ils sont méthanisés en mélange

Tableau 6. Tarifs de prise en charge des co-produits de l'huilerie sur les sites de méthanisation centralisée (hors transport à la charge des producteurs d'huiles).

Co-produits concernés	Tarifs de prise en charge (€/t)
TDU	À la charge du producteur d'huile : 50-60 €/t
Boues de STEP Condensat de désodorisation Eaux estérification, de lavage Graisse aéroflottateur	À la charge du producteur d'huile : 30-40 €/t
Pâtes de neutralisation Fond de bac Gomme TWU	À la charge du producteur d'huile : 0-5 €/t
Distillats d'acide gras Fond de bac Glycérine	Achat par l'exploitant : tarif à négocier

avec d'autres substrats (fumier, FFOM, etc.) dans les installations agricoles, centralisées ou les installations traitant les OM. Leur fort potentiel méthanogène est un atout par rapport au faible pouvoir méthanogène des déchets habituellement traités dans ce genre d'installation. Les coproduits de l'huilerie permettraient un gain financier non négligeable pour ces installations. Des tarifs de prise en charge des coproduits de l'huilerie ont été proposés par des exploitants d'installations de méthanisation d'ordures ménagères et centralisées. Cependant, les tarifs des filières de valorisation actuels (valorisation hors méthanisation) restent plus avantageux. Avec le développement important de la méthanisation (augmentation du tarif d'achat de l'électricité provoquant une augmentation du nombre d'installations), il est possible d'imaginer qu'une compétition pour les co-substrats méthanogènes apparaisse ces prochaines années. Les tarifs pourraient donc être revus à la hausse.

Depuis la fin de l'étude VECIR, les industriels du secteur des huiles ont été fortement sollicités pour fournir des coproduits à des installations de méthanisation agricoles ou centralisées. Des essais de codigestion dans ces

installations sont actuellement en cours pour valider la prise en charge des coproduits de l'huilerie, et notamment des TDU.

Conflits d'intérêts : aucun

RÉFÉRENCES

ADEME. La méthanisation à la ferme – Guide pratique pour les installations d'une puissance électrique inférieure à 500 kWe. Rapport 2011 ; 20 pages.

Angelidaki I, Sanders W. Assessment of the anaerobic biodegradability of macropollutants. *Rev Environ Sci Biotechnol* 2004 ; 3 : 117-29.

Amon TH, Amon B, Kryvoruchko V, Bodiroza V, Pötsch E, Zollitsch W. Optimising methane yield from anaerobic digestion of manure: Effects of dairy systems and of glycerine supplementation. *International Congress Series* 2006 ; 1293 : 217-20.

Boloh Y. Valoriser les coproduits avec précaution. *Agrodistribution* 2002 ; 118 : 42-3.

Chatain V, Ohannessian A, Germain P. Valorisation du biogaz et traitements épuratoires. In : Moletta R (Ed.), *La méthanisation*. Paris : Lavoisier, 2008.

Ernst et Young. Étude du marché de la méthanisation et des valorisations du biogaz.

Synthèse et rapport final septembre 2010 ; 142 pages.

Holm Nielsen JB, Juel Lomborg C, Oleskowicz Popiel P, Esbensen KH. On line near infrared monitoring of glycerol-boosted anaerobic digestion processes: Evaluation of process analytical technologies. *Biotechnology and bioengineering* 2008 ; 99 : 302-13.

Moletta R, Verstraete W. La méthanisation dans la problématique énergétique et environnementale. In : Moletta R (Ed.), *La méthanisation*. Paris : Lavoisier, 2008.

SOLAGRO, EREP, PSPC, SOGREAH, PERI G. Expertise de la rentabilité des projets de méthanisation rurale. Rapport final 2010 ; 130 pages.

Servais C. La digestion anaérobie : aspects législatifs et économiques. In : Moletta R (Ed.), *La méthanisation*. Paris : Lavoisier, 2008.

Torrijos M, Arun Kumar Thalla, Sousbie P, Bosque F, Delgenès JP. Anaerobic digestion of residues from production and refining of vegetable oils as an alternative to conventional solutions. *Water Science & Technology* 2008 ; 58 : 1871-8.

Torrijos M, Sousbie P, Badey L, Bosque F, Steyer JP. Effect of the addition of fatty by-products from the refining of vegetable oil on methane production in codigestion. *Water Science & Technology* 2012 ; 66 : 2237-42.