



HAL
open science

Comment opérer une séparation à l'aide d'un procédé à membranes en maîtrisant le colmatage ?

Martine Meireles, Patrice Bacchin, Michael J. Clifton

► To cite this version:

Martine Meireles, Patrice Bacchin, Michael J. Clifton. Comment opérer une séparation à l'aide d'un procédé à membranes en maîtrisant le colmatage ?. BERGEL Alain, BERTRAND Joël. Méthodes de génie des procédés : étude de cas, Lavoisier, pp.1-21, 2004, Hermès. hal-00201629

HAL Id: hal-00201629

<https://hal.science/hal-00201629>

Submitted on 2 Jan 2008

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.

Chapitre 3

Comment opérer une séparation à l'aide d'un procédé à membranes en maîtrisant le colmatage ?

3.1. Introduction

Les procédés à membranes représentent un moyen commode et peu consommateur d'énergie pour réaliser des séparations. Ici nous nous intéressons à deux procédés, l'ultrafiltration et la microfiltration : des procédés dont la force motrice est la pression et qui traitent des milieux liquides, essentiellement aqueux. Dans beaucoup d'applications de ces procédés la productivité est grevée par le **colmatage** de la membrane : la formation à la surface de la membrane d'une couche de matière déposée. Cette épaisseur de matière accumulée s'ajoute à la résistance effective de la membrane et réduit la quantité de liquide traité pour une dépense énergétique donnée. Les stratégies pour faire face à ce problème varient selon le produit à traiter : les paramètres essentiels pour guider le choix d'une stratégie sont la valeur ajoutée du produit et sa concentration, alors que les paramètres importants qui définissent une stratégie sont la vitesse tangentielle et la pression imposée. On peut ralentir ou même empêcher l'accumulation d'un dépôt sur la membrane en faisant circuler le liquide à traiter dans le sens parallèle à la membrane : c'est la **filtration tangentielle**. Cette stratégie a un coût énergétique puisqu'il faut vaincre les pertes de charge dans le canal où se trouve la membrane. Le coût augmente avec la vitesse tangentielle et devient très important si l'on passe dans le régime turbulent. Une filtration sans circulation tangentielle est une **filtration frontale**. C'est la forme primitive de la filtration dans laquelle un dépôt ou 'gâteau' se forme progressivement sur la membrane et doit être éliminé périodiquement. L'autre élément de stratégie est

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

la pression imposée : si l'on augmente la pression appliquée, on peut espérer augmenter le flux de filtration. Malheureusement ce n'est pas toujours le cas et de toute façon une augmentation de la pression entraîne aussi un coût énergétique supplémentaire. En effet, si l'on néglige les pertes mécaniques, la dépense énergétique est donnée par le produit de la pression imposée et le débit de filtrat. Voyons maintenant quelques-unes des stratégies adoptées pour différentes applications.

3.1.1. Potabilisation de l'eau

Pour convertir une eau de rivière en eau potable il faut la débarrasser de sa matière en suspension et réduire fortement sa charge en virus et en bactéries. L'ultrafiltration permet d'atteindre ces deux buts dans une seule opération et produit une eau de très bonne qualité qui n'a pas besoin de traitement supplémentaire : c'est ainsi que ce procédé a tendance à remplacer le procédé traditionnel de filtration sur sable après une coagulation. Dans ce cas, le produit à traiter est très peu chargé en matière à retenir et le produit final est de faible valeur ajoutée : l'eau de réseau doit rester bon marché. Ces deux éléments ont orienté les industriels vers une opération en filtration frontale à flux imposé : le coût d'une filtration tangentielle n'est pas justifié par la valeur du produit. Dans cette configuration, la perte de charge à travers la membrane augmente progressivement au cours du le temps et lorsque une pression critique est atteinte on fait un **rétrolavage** : le dépôt est enlevé et évacué en inversant momentanément le sens de l'écoulement à travers la membrane. Puisque l'eau est peu chargée, les rétrolavages sont peu fréquents (un ou deux par heure). Le lavage fait perdre un peu de temps de production et un peu d'eau propre, mais il coûte moins cher qu'une opération en écoulement tangentiel. La pression appliquée augmente progressivement mais reste modérée ne dépassant jamais un certain seuil : ceci évite de compacter le dépôt, ce qui le rendrait plus difficile à éliminer. Pour permettre un rétrolavage, la membrane doit être auto supportée et ceci impose d'utiliser des membranes en fibres creuses.

3.1.2. Traitement des eaux usées

On distingue généralement deux types d'eaux usées : les eaux industrielles et les eaux municipales. Dans les deux cas le traitement vise à obtenir une eau assez propre pour être ou déchargée dans la nature ou recyclée en usine. Dans les deux cas la valeur du **filtrat** et du **concentrat** sont quasi-nulles : il s'agit d'une nuisance que l'on cherche à réduire. Le filtrat peut être de moins bonne qualité que de l'eau potable et le concentrat est enrichi en vue d'un autre traitement (biologique ou chimique) qui doit détruire les éléments nocifs. Ces eaux sont généralement plus chargées que de l'eau de rivière et on doit opérer un traitement qui coûte le moins

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

cher possible. Dans ce cas on s'oriente vers un opération tangentielle à faible pression imposée : celle-ci est souvent obtenu par aspiration à travers la membrane à partir d'un bac à l'air libre. De cette façon on opère en dessous d'un flux seuil (le **flux critique** défini ci-dessous § 3.2.2.3) et un faible brassage en amont de la membrane permet de limiter le colmatage. Les eaux municipales peuvent être traitées par un système appelé Bio Réacteur à Membrane (BRM) où le traitement biologique se fait dans le bac d'aspiration : le brassage et l'aération nécessaires au maintien de la flore bactérienne suffisent à empêcher le colmatage.

3.1.3. Fractionnement de produits biologiques

L'ultrafiltration est utilisée dans l'industrie biotechnologique, pharmaceutique et cosmétique pour fractionner des solutions qui contiennent un mélange de macromolécules de différentes tailles. Ici les solutés sont des produits à très forte valeur ajoutée : de cette façon le coût de l'opération importe peu mais le résultat doit être impeccable. Ces contraintes ont amené le développement d'opération de filtration (HPTFF : high performance tangential flow filtration) où la vitesse tangentielle est élevée (parfois en régime turbulent) et la pression appliquée est faible pour éviter la formation d'un dépôt qui modifierait la taille initiale des pores de la membrane. Le coût énergétique d'une telle opération est justifié par la valeur des produits. Les membranes doivent idéalement avoir des caractéristiques en terme de taille de pores et de charges de surface parfaitement déterminées ou même quelquefois être fonctionnalisées par exemple par greffage de groupe chimique présentant une certaine affinité vis-à-vis d'un soluté. Par ailleurs, puisqu'il faut éviter la contamination bactérienne de ces produits on choisit des membranes assez coûteuses (telles les membranes céramiques) qui peuvent supporter la stérilisation (souvent par la vapeur).

3.1.4. Déshydratation des boues

Les boues sont par nature des milieux très chargés en matière solide; il est inutile donc d'essayer d'empêcher la formation d'un gâteau à la surface de la membrane. Leur valeur est souvent assez faible qu'il s'agisse de matières premières ou de déchets. On cherche à les déshydrater dans le but de faciliter leur transport ou pour les préparer à un autre traitement, comme par exemple l'incinération. De cette façon, on s'oriente plutôt vers une filtration frontale pour laquelle on est contraint d'utiliser des pressions élevées. En effet, ces milieux sont souvent difficiles à filtrer soit en raison de leur extrême compressibilité. Dans certains cas on, peut avoir recours à un conditionnement chimique qui consiste en un prétraitement spécifique (coagulation-flocculation) qui donne aux boues une consistance physique plus solide.

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

Une étude réalisée en 2000 par l'ADEME (Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie) prévoit qu'en raison d'une réglementation renforcée 6700 décharges seront supprimées à la fin de l'année 2002, seules les décharges susceptibles de traiter des déchets ultimes inertés étant conservées. De fait environ la moitié du volume total des boues produites dans les procédés de traitement des eaux résiduaires et industrielles jusqu'ici directement mises en décharge devront alors être traitées par des procédés de déshydratation.

3.1.5. Recyclage des bains de peinture cataphorétiques

Dans l'industrie automobile, pour protéger les carcasses des voitures contre la corrosion une peinture est apposée par un procédé cataphorétique. La peinture est une suspension aqueuse qui contient des particules colloïdales portant des charges électriques. La carcasse est plongée dans le bain de peinture et mise sous tension électrique : elle fonctionne ainsi comme une électrode vers laquelle les particules de peinture migrent sous l'effet du champ électrique avant de s'y déposer. A la sortie du bain la carcasse est rincée avant de passer dans un four où la couche de peinture est consolidée par la chaleur. Avec le passage des carcasses, le bain aurait tendance au cours du temps à s'appauvrir en particules : voilà pourquoi, en plus de l'ajout continu de suspension fraîche, l'ultrafiltration est utilisée pour extraire de l'eau du bain. L'eau ainsi extraite est recyclée vers le rinçage et vers la préparation de suspension fraîche. L'opération d'ultrafiltration est simplifiée dans ce cas par le fait que les charges électriques sur les particules les font se repousser : elles ont ainsi peu tendance à se concentrer en dépôt sur la membrane. Par ailleurs les premières particules qui se déposent sur la membrane lui confèrent aussi leur charge et empêchent ainsi toute déposition supplémentaire. On peut ainsi utiliser un écoulement tangentiel assez faible et imposer une pression assez élevée sans que l'efficacité de la séparation soit mise en cause. Etant donné que les particules de peinture sont une matière d'assez forte valeur et que les conditions d'application sont très favorables, ce procédé est l'application la plus ancienne de l'ultrafiltration : elle fût introduite aux Etats Unis au cours des années 1960. Avec la forte demande dans l'industrie automobile, cette application est aussi celle ayant la plus grande surface de membranes installée.

3.1.6. Clarification de moûts de fermentation

Actuellement la synthèse de molécules complexes pour l'industrie pharmaceutique se fait souvent grâce à des bactéries, modifiées génétiquement pour excréter la molécule cible. Le moût de fermentation dans laquelle les bactéries ont été élevées contient ainsi en plus de la molécule cible, de petite taille, des cellules et des débris cellulaires en suspension. La microfiltration ou l'ultrafiltration permet de laisser passer une solution contenant la molécule cible tout en la débarrassant des

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

utilisé car ce procédé fonctionne le plus souvent en passes successives (recyclage du rétentat dans l'alimentation).

Paramètres	Relation	Signification
Pression Trans-membranaire	$PTM = \frac{P_A + P_R}{2} - P_p$ [3.1]	<i>Force agissante</i>
Flux de perméation	$J = \frac{Q_P}{S}$ [3.2]	<i>Productivité</i>
Taux de rejet	$R = 1 - \frac{c_P}{c_R}$ [3.3]	<i>Sélectivité</i>
Taux de conversion	$Y = \frac{Q_P}{Q_A}$ [3.4]	<i>Rendement</i>

Tableau 3.1. Paramètres de fonctionnement du procédé

D'un point de vue technologique [APT 02, MAU], il faut noter qu'il est possible de filtrer en fixant soit la pression (pompe avec vanne de contre de pression) soit le flux de perméation (pompe en aspiration sur le perméat). Le colmatage engendre alors une baisse de flux dans le cas où la pression est fixée et une augmentation de pression si le flux de perméation est fixé. D'autre part, le procédé peut fonctionner dans deux modes de filtration relativement différents (§ 3.3.1) :

- en filtration tangentielle (figure 3.2)
- en filtration frontale c'est-à-dire en l'absence de courant rétentat ($Q_R=0$ sur la figure 3.2).

3.2.2. La principale limitation : le colmatage

Le **colmatage** de la membrane est à la fois inévitable parce qu'inhérent à la séparation et complexe car basé sur des mécanismes variés mettant en œuvre des suspensions concentrés. Ce phénomène reste un verrou majeur pour le développement de la filtration sur membranes. Les paragraphes suivants détaillent les mécanismes impliqués dans le colmatage, ainsi que leurs causes et leurs conséquences sur les paramètres de fonctionnement du procédé.

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

3.2.2.1. Mécanismes de colmatage

L'**accumulation** de la matière a un caractère inévitable mais peut revêtir différentes formes avec des conséquences plus ou moins importantes pour le fonctionnement et la mise en œuvre du procédé :

- la **polarisation de concentration** est l'accumulation de la matière sous forme dispersée à la membrane. Par définition, la concentration de polarisation est réversible, une baisse de la perméation conduit à la redispersion des couches concentrées dans la solution.

- le **dépôt** ou le **gel** : la matière accumulée à la membrane peut se condenser ou s'agréger sous l'effet de la concentration et constituer un dépôt ou un gel. Cette accumulation entraîne une résistance hydraulique supplémentaire et conséquente qui ne pourra être évacuée de la surface de la membrane que par rétrolavage (application d'une contre-pression ou pression transmembranaire négative suivant [3.1]).

- l'**adsorption** résulte de la présence d'affinité entre le matériau membranaire et des composants de la suspension conduisant à l'adhésion physique ou l'adsorption chimique des composants à la surface de la membrane. Ce mécanisme rend nécessaire l'utilisation de nettoyant chimique pour l'élimination de la couche colmatante.

- le **blocage de pore** : ce mécanisme consiste en l'occlusion mécanique totale ou partielle de pores. Le blocage nécessite un rétrolavage à une pression au moins plus élevée que la pression transmembranaire utilisée pour la filtration.

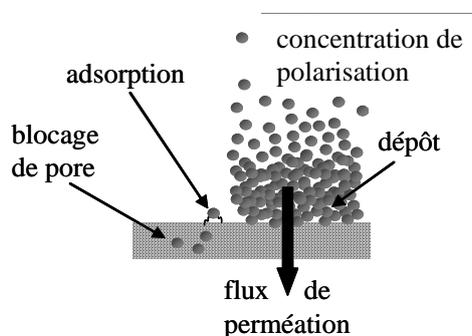


Figure 3.3. Mécanismes de colmatage

3.2.2.2. Description de l'accumulation de la matière

L'accumulation de la matière est régie par un équilibre entre mécanismes de transport de matière qui s'opposent :

- la perméation qui amène la matière vers la membrane avec une vitesse correspondant au flux de perméation, J

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

- des **phénomènes dispersifs** qui tendent à transporter la matière des zones concentrées vers des zones diluées c'est à dire de la membrane vers la solution.

- des phénomènes d'**agrégation** entre les espèces en suspension ou d'**adhésion** ou entre les espèces et la surface de la membrane qui vont conférer un degré d'irréversibilité à l'accumulation.

L'accumulation de matière est donc un phénomène complexe où se combinent à la fois des phénomènes de séparation (la perméation) et de mélange (les phénomènes dispersifs) et de phénomènes équivalents à des réactions (les phénomènes d'adhésion et d'agrégation).

Les phénomènes dispersifs regroupent la diffusion Brownienne mais aussi les phénomènes d'interactions de surface (interaction **colloïdale** de nature répulsive) et d'interactions **hydrodynamiques** (diffusion induite par la contrainte, migration latérale) dans un terme de diffusion équivalente, $D_0+O(c)$. Ce terme est la somme de la diffusion Brownienne en régime dilué, D_0 , et d'un terme dépendant de la concentration $O(c)$ représentant la non idéalité du système générée par la présence des interactions décrites ci-dessus.

En régime stationnaire, l'accumulation de matière est décrite par l'équation différentielle suivante :

$$Jc - (D_0 + O(c))\frac{dc}{dx} = 0 \quad [3.5]$$

où les phénomènes dispersifs traduisent la résistance de la suspension à la surconcentration au niveau de la membrane créée par le flux de perméation J . Dans le cas d'un coefficient de diffusion constant, $O(c) \rightarrow 0$, le profil de concentration suit une loi exponentielle croissante. De façon générale, plus la force agissante est importante, plus la concentration au voisinage de la membrane est élevée. Cependant, physiquement, au delà d'une concentration critique la matière se condense par agrégation pour former un dépôt ou un gel à la membrane provoquant ainsi la transition entre un mécanisme de polarisation de concentration et un mécanisme de dépôt. Il est important de connaître l'effet des conditions opératoires sur l'apparition de cette transition car elle a des conséquences à la fois sur le flux de perméation (les couches condensées sont très résistives au transfert de solvant) et sur les procédures à employer pour éliminer le colmatage.

3.2.2.3. Les conditions critiques de colmatage

Dans le cas de la filtration frontale, l'intégration de l'équation 3.5 conduit à déterminer cette transition en terme de masse accumulée critique suivant [BAC 02 b] :

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

$$\frac{JM_{a_{crit}}}{D_0} = (c_{crit} - c_0) + O'(c) \quad [3.6]$$

où $M_{a_{crit}}$ (en kg de matière accumulée par mètre carré de membrane) est la masse accumulée critique conduisant à une surconcentration à la membrane c_{crit} par rapport à la concentration dans la solution c_0 pour un flux de perméation J . Le terme de droite dans l'équation est essentiellement dépendant de la physico-chimie de la suspension (le terme $O(c)$ inclut l'effet des interactions) alors que le terme de gauche regroupe les paramètres opératoires sous la forme d'un nombre représentant le rapport entre la force de perméation exercée sur l'ensemble des particules accumulées et la force de diffusion. Pour une masse accumulée inférieure à la valeur critique, seule la polarisation de concentration limite le flux de perméation alors qu'au delà de cette valeur un dépôt irréversible se forme à la surface (figure 3.4 a)). Au niveau opératoire, ce terme est directement relié au temps de filtration puisque la masse accumulée est proportionnelle au produit du flux de perméation par le temps. On note que la masse accumulée critique est inversement proportionnelle au flux de perméation. Un flux de perméation important est synonyme d'une faible masse déposée critique : la condensation de la matière à la surface de membrane apparaît plus rapidement. Pour se représenter physiquement ce concept, il faut comprendre qu'une particule au voisinage de la membrane subit la somme des forces exercées par le flux de perméation sur les différentes couches de particules accumulées ; il existe donc une masse accumulée critique engendrant la condensation de la matière à la surface de la membrane.

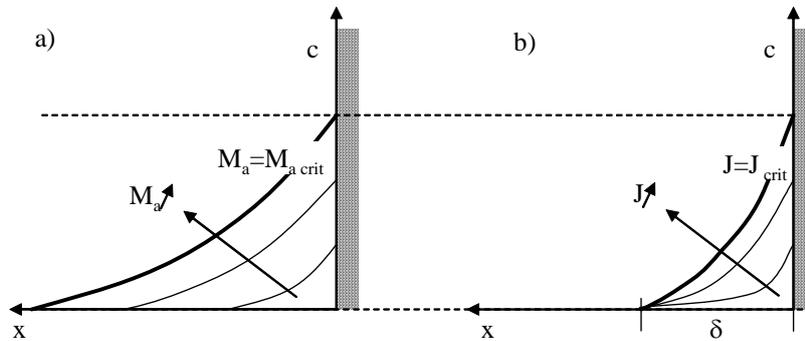


Figure 3.4. Evolution de la concentration, c en fonction de la distance à la membrane, x . Apparition de conditions critiques de colmatage conduisant à la formation d'un dépôt irréversible pour une la masse accumulée critique, $M_{a_{crit}}$ en filtration frontale a) ou pour un flux critique, J_{crit} en filtration tangentielle b).

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

Lors de la filtration tangentielle, l'écoulement à la surface de la membrane limite la croissance des couches concentrées à la surface de la membrane ; effet théoriquement décrit par l'épaisseur de la couche limite de diffusion, δ . Cette épaisseur, à la base de la description de très nombreux procédés faisant intervenir un phénomène de transfert à une interface, est d'autant plus fine que la vitesse tangentielle est importante. Durant la filtration, une épaisseur de couche limite fine est synonyme d'une accumulation moindre car le gradient de concentration est plus important favorisant alors la dispersion des zones concentrées de la membrane vers la solution. L'intégration de l'équation [3.5] dans une couche limite conduit à exprimer un nouveau rapport critique [BAC 02a] :

$$\frac{J_{crit} \delta}{D_0} = \ln\left(\frac{c_{crit}}{c_0}\right) + O''(c) \quad [3.7]$$

où le flux critique, J_{crit} , correspond au flux de perméation au-delà duquel la polarisation de concentration dans la couche d'épaisseur δ atteint au niveau de la membrane la concentration critique, c_{crit} , conduisant à la formation d'un dépôt (fig. 3.4.b). Le terme de gauche de cette équation est un nombre caractérisant l'importance des forces de perméation par rapport à la diffusion dans la couche limite. Ce nombre sans dimensions est couramment appelé nombre de Péclet.

Les conditions de colmatage critique ont pour conséquence d'ouvrir la possibilité d'opérer la filtration en évitant la formation d'un dépôt irréversible à la surface de la membrane et donc en limitant des rétrolavages fréquents (§ 3.3.3). Cette façon d'opérer « durable » avec des productivités faibles représentent une façon extensive de travailler avec le procédé et n'est donc souvent envisageable que dans le cas où les membranes ont un faible coût permettant de multiplier la surface.

3.2.2.4. Conséquences sur le flux de perméation

Les différents mécanismes de colmatage (§ 3.2.2.1) provoquent une baisse de flux de perméation suivant l'expression suivante :

$$J = \frac{\Delta P - \Delta \pi}{\mu(R_m + R_{ads} + R_{bl} + R_{dep})} \quad [3.8]$$

La polarisation de concentration induit l'apparition d'une contre pression osmotique $\Delta \pi$ qui réduit d'autant la pression trans-membranaire appliquée. Les mécanismes de blocage, adsorption et dépôt provoque la formation d'une résistance supplémentaire respectivement R_{bl} , R_{ads} et R_{dep} dans l'équation [3.8] qui s'ajoutent à la résistance à la membrane. Ces mécanismes induisent des baisses de flux de

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

perméation et donc de productivité conséquentes et rédhibitoires. D'autre part, la sélectivité d'une membrane est affectée par ces mécanismes puisque l'apparition de couches colmatantes agit sur la rétention de solutés (Partie 1 chapitre 4).

3.2.3. Simulation du procédé

De façon générale, la description du colmatage est réalisée en combinant l'équation pour le transfert du solvant [3.8] et l'équation pour le transfert de la matière [3.5] via des modèles numériques. A titre d'exemple, la simulation de l'accumulation de matière dans un procédé en filtration tangentielle est illustrée sur la figure 3.5. L'accumulation de la matière évolue de façon importante suivant la direction z (dans l'axe de la membrane) selon le développement classique d'une couche limite de diffusion mais aussi selon la direction x perpendiculaire à la surface de la membrane. Dans ce cas particulier, cette **simulation** met en évidence la création en sortie du module de filtration (z élevé) d'un dépôt irréversible : la concentration critique conduisant à l'agrégation de la matière a été dépassée. Ce type de simulation constitue donc un outil permettant de comprendre les conséquences des conditions opératoires du procédé mais aussi de la physico-chimie de la suspension filtrée qui sont des données pour cette simulation sur l'apparition du colmatage irréversible. La simulation du procédé, qui constitue donc le degré ultime de la compréhension du procédé, est donc un outil nécessaire pour anticiper l'effet des nombreux paramètres qui rendant le procédé de filtration si complexe. Cependant, à ce jour, cette complexité n'est toujours pas maîtrisée dans son intégralité et il n'existe pas de simulation totalement prédictive. La maîtrise totale du colmatage nécessite alors toujours un aller retour entre des études compréhensives du procédé (par exemple à l'aide de simulations) et l'étude expérimentale des solutions technologiques à mettre en œuvre.

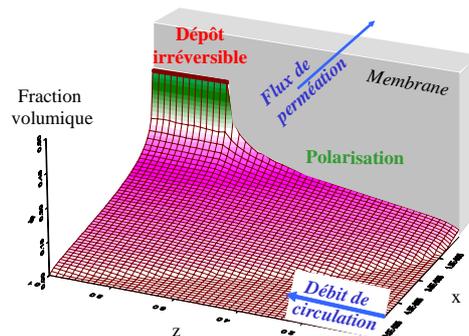


Figure 3.5. Accumulation sur une membrane en filtration tangentielle en deux dimensions suivant la distance z (parallèlement à la membrane) et la distance x (perpendiculairement à la surface de la membrane). La simulation fait apparaître la formation d'un dépôt irréversible en sortie du module de filtration [BAC 02a].

3.3. Maîtriser le colmatage

La mise en œuvre du procédé doit absolument tenir compte du colmatage. La maîtrise du colmatage passe à la fois par la mise en place de solutions technologiques pour palier la baisse de productivité liée au colmatage mais aussi par un choix judicieux de la membrane pour une filtration donnée et un choix optimal des conditions opératoires utilisées pour la filtration.

3.3.1. Les solutions technologiques au colmatage

Plusieurs procédures permettent de réduire l'impact du colmatage : un débit tangentiel à la membrane et/ou des procédures séquentielles de lavages. Deux types de configurations extrêmes s'offrent donc à l'utilisateur :

- la **filtration tangentielle** : le débit de rétentat induit un balayage tangentiel de la membrane qui permet un meilleur fonctionnement du procédé en réduisant l'accumulation de matière par la membrane. Cette configuration peut permettre de fonctionner en continu. En revanche, cette configuration nécessite pour avoir un taux de conversion correct un recyclage du rétentat dans l'alimentation et induit des coûts supplémentaires d'investissements et de fonctionnement pour assurer la circulation du fluide.

- la **filtration frontale** : le courant rétentat peut être supprimé permettant ainsi une réduction de coût significative mais l'opération nécessite alors des procédures de nettoyage séquentielles. Ces procédures sont le plus souvent basées sur l'application soit d'une purge du compartiment rétentat afin d'éliminer l'accumulation de matière soit d'une contre pression suivie d'une purge du compartiment rétentat afin de décoller puis éliminer un éventuel dépôt et de l'éliminer. Ces procédures nécessitent la réalisation d'automatismes et engendrent une consommation de perméat pour les rétrolavages mais restent moins coûteuses que la mise en œuvre d'une filtration tangentielle.

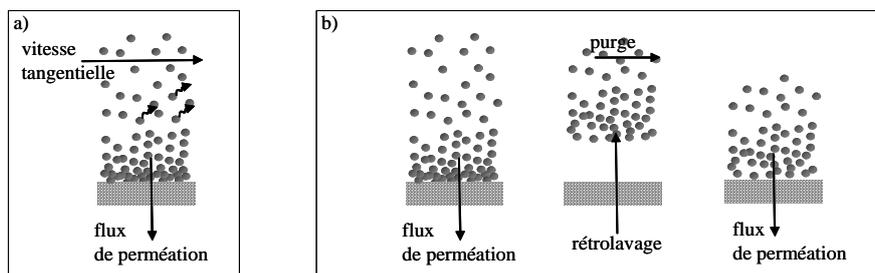


Figure 3.6. Différentes configurations pour la mise en œuvre des membranes

a) fonctionnement en régime continu avec un balayage tangentiel

b) filtration en mode frontal avec des rétrolavages séquentiels

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

Ces solutions techniques mises en œuvre avec les procédés d'ultrafiltration et microfiltration permettent de palier le problème du colmatage. En revanche, elles engendrent des coûts d'investissements et de fonctionnement souvent rédhibitoires condamnant l'application des procédés à membranes dans certains types d'application. Le dimensionnement du procédé passe donc par une phase de choix et d'optimisation de la membrane et des conditions opératoires en terme de pression transmembranaire, de vitesse tangentielle ou de temps de filtration afin de limiter au minimum les conséquences du colmatage.

3.3.2. Choix des membranes pour maîtriser le colmatage

Si les objectifs recherchés et les contraintes économiques conduisent à privilégier l'un des deux modes de fonctionnement (filtration tangentielle ou filtration frontale), le choix de la membrane (**matériau**, taille de pore ou seuil de coupure, géométrie) reste un élément important de la stratégie permettant de maîtriser le colmatage.

3.3.2.1 Matériau

Les contraintes susceptibles d'orienter le choix du matériau membranaire sont tout d'abord les interactions possibles entre certains composés du fluide et le matériau constitutif de la membrane qui peuvent donner lieu à une **adsorption** irréversible (§ 3.2.2.2.) de ces constituants à l'interface solution-membrane et dans les pores avec comme conséquence une réduction de la perméabilité. En présence d'espèces chargées (protéines par exemple), il peut être judicieux de comparer les points isoélectriques (PIE) des espèces de la solution et de la membrane afin de s'orienter vers un type de matériau et/ou de conditions physico-chimiques (pH, salinité) qui permettront de limiter les interactions donnant lieu à une adsorption. Par exemple pour une membrane dont le point isoélectrique est proche de 6 (c'est à dire chargée négativement pour un pH supérieur à 6 et positivement pour un pH inférieur à 6) on choisira de travailler à un pH inférieur à 6 si on veut retenir des solutés chargés négativement et supérieur à 6 pour des solutés chargés positivement. Un autre type de contrainte susceptible d'orienter le choix du matériau est relatif aux caractéristiques du fluide et des conditions opératoires et sanitaires requises pour l'opération : température, pH, présence de composés abrasifs ou de solvants organiques, contrainte de stérilité. Le Tableau 3.2 qui présente les compatibilités des matériaux membranaires les plus courants avec le pH, la température et les solvants et les procédés de stérilisation montre que la gamme de compatibilité avec le pH est plus réduite dans le cas de membranes organiques. Par ailleurs en terme de tenue en température et de résistance aux solvants organiques courants, les membranes minérales présentent de meilleures caractéristiques que leurs homologues organiques.

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

	Membranes céramiques			Membranes organiques			
	Alumine α	Zircone	Oxyde de Titane	Acétate	PAN	PS	PVDF
pH	0-14	0-14	0-14	3-8.5	3-9	1-13	1-12
température	Pas de limite en température pour la filtration des liquides			<35°C	<35°C	80°C stérilisables à la vapeur dans certains cas	
Solvants	Très bonne résistance aux solvants organiques courants			Faible résistance aux solvants organiques			

PAN : polyacrylonitrile PS : polysulfone PVDF : fluorure de polyvinylidène

Tableau 3.2 *Compatibilité des matériaux membranaires avec le pH, la température et les solvants*

Un autre élément de choix concerne le prix des membranes dont on peut donner à titre indicatif les ordres de grandeur suivants : pour les membranes céramiques, le prix se situe entre 2300 et 7500 €/m² et entre 300 à 750 €/m² pour les membranes organiques. Si les critères cités précédemment laissent encore plusieurs choix possibles pour le matériau le prix de la membrane peut constituer un élément déterminant.

3.3.2.2 Notion de taille de pore (ou de seuil de coupure)

Le choix d'une membrane en terme de taille de pore ou de **seuil de coupure** (voir aussi chapitre 4) se fait essentiellement en fonction de la taille ou de la masse moléculaire des espèces les plus petites à retenir. L'intérêt est de limiter l'apparition d'un mécanisme de blocage de pores qui contribue à un colmatage souvent très irréversible de la membrane (voir figure 3.3). En première approximation, on considère que le choix de la membrane doit être fait de telle sorte que le diamètre moyen des pores soit de l'ordre de la moitié du diamètre des espèces les plus petites à retenir. Dans le cas de solutés de petite taille on a plutôt recours à la notion de masse moléculaire qui traduit mieux le volume d'encombrement de l'espèce. Ainsi on choisira une membrane d'ultrafiltration de seuil de coupure 10 000 daltons pour assurer la rétention d'une protéine telle que la sérum albumine bovine dont la masse moléculaire est de 60 000 daltons. Cette règle étant fixée, tout l'enjeu est de pouvoir connaître assez précisément la taille des pores d'une membrane. Dans la réalité, la plupart des membranes ne peuvent être représentées par un rayon de pore unique mais par une distribution de taille de pores qu'il faut caractériser. Les méthodes permettant d'accéder à la taille des pores ou au seuil de coupure des membranes sont présentées dans le chapitre 4.

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

Signalons enfin que lorsque la règle énoncée ci-dessus ne peut s'appliquer en présence de solutés dissous de très faible taille ou dans le cas d'une large distribution de taille des espèces dissoutes, on peut avoir recours à un prétraitement qui consiste à utiliser un adsorbant (charbon actif, adsorbant minéraux, résines) ou une coagulation pour piéger ces espèces en amont de la filtration.

3.3.2.3 Géométrie

Le module est le motif élémentaire industriel, comportant une ou plusieurs membranes assemblées dans un élément dont la configuration définit la géométrie : plan, spirale, fibres creuses, tube.

La sélection d'une configuration doit prendre en compte différents éléments comme : la compacité recherchée, la viscosité du fluide, la présence de particules, la facilité de nettoyage et de rétrolavage, le respect de normes sanitaires. Le Tableau 3.3 rassemble les avantages et inconvénients des différentes configurations de membranes selon des critères d'exploitation tels que la rémédiation du colmatage, la possibilité de rétrolavage, l'existence de zones mortes, la taille du système assemblé.

Modules	Avantages	Inconvénients
Plans	Faible volume mort Utilisables avec des fluides visqueux Facilité de remplacement des membranes	Existence de conditions d'écoulement hétérogènes liées à la configuration Ne convient pas pour les suspensions chargées (turbidité maximale 10 NTU)
Spirales	Compacité Faible volume mort Large utilisation dans le cas de l'osmose inverse	Existence de conditions d'écoulement hétérogènes liées à la configuration Démontage membranes impossible Nettoyage par inversion du sens de filtration ne s'applique pas Ne convient pas pour les suspensions chargées (turbidité maximale 10 NTU)
Fibres creuses	Compacité importante Rétrolavage possible	Gamme de pression réduite Peut nécessiter une préfiltration pour les suspensions chargées
Tubulaires	Facilité de remplacement des Membranes Très utilisé pour le traitement de fluides chargés	Volume mort important Installation de faible compacité

Tableau 3.2 : *Avantages et inconvénients des différentes configurations de modules de filtration membranaire*

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

On peut noter que la configuration type fibres creuses pour laquelle la compacité (rapport surface de filtration sur encombrement du module) est la plus importante et qui permet un nettoyage de la matière accumulée par une inversion du sens de filtration est la configuration la plus privilégiée pour la potabilisation de l'eau. En revanche dans le cas de fluides contenant une forte concentration en particules ou dont la viscosité est élevée (moût de fermentation), on s'orientera plutôt vers des systèmes tubulaires de plus grandes dimensions ou lorsque la valeur ajoutée est plus faible (boues) vers des systèmes plans fonctionnant en mode frontal avec décolmatage séquentiel. La présence de particules dans le fluide étant un critère rédhibitoire pour l'utilisation de modules spiralés, une opération de pré-traitement s'imposera si une telle configuration doit être retenue.

3.3.3. Choix des conditions opératoires pour maîtriser le colmatage

Dans le choix des **conditions opératoires** deux façons extrêmes d'opérer s'affrontent. Il est possible de travailler soit à des pressions élevées en subissant un colmatage important soit d'opérer à des pressions faibles avec un colmatage limité mais au détriment de la productivité. Pour répondre de façon adéquate à ce choix, il est nécessaire de comprendre et d'estimer les effets des conditions opératoires sur le phénomène de colmatage. Les paragraphes suivants présentent les conséquences des phénomènes de colmatage par concentration de polarisation et dépôt. Il fait abstraction des phénomènes d'adsorption et de blocage de pores qui sont censés être limités par un choix approprié de la membrane. Nous détaillons les critères de choix de conditions opératoires dans le cas d'un procédé de filtration frontale à flux imposé (cas de la potabilisation de l'eau §3.1.1.) et dans le cas d'un procédé de filtration tangentielle à pression imposée (cas fréquent notamment rencontré dans l'ultrafiltration de moût de fermentation §3.1.6.).

3.3.3.1. Choix des conditions opératoires en filtration frontale ?

La filtration frontale peut s'opérer en fixant soit la pression soit le flux de perméation. Dans bien des cas et particulièrement pour la potabilisation de l'eau, il est préférable de travailler avec un flux de perméation fixé de façon à s'adapter aux besoins du client et éviter des stockages trop importants entre usine de production et réseau de distribution. Détaillons ici les implications du colmatage dans le choix du temps de filtration (entre les séquences de nettoyage) et du flux de perméation à imposer. En filtration frontale à flux de perméation imposé, la pression transmembranaire augmente de façon continue au cours du temps (figure 3.7). Il est donc nécessaire de réaliser séquentiellement des rétrolavages et/ou des purges de façon à évacuer les couches accumulées à la surface de la membrane.

Comme énoncé précédemment (eq. [3.6]), il existe un volume accumulé critique qui se traduit par un temps critique (le volume accumulé est proportionnel au temps de filtration) en dessous duquel seule la polarisation de concentration affecte le flux de perméation. Si le temps de filtration est inférieur à ce temps critique, l'accumulation de matière à la membrane reste alors totalement réversible et une purge du compartiment rétentat suffit à éliminer l'accumulation et permet donc de recommencer un cycle de filtration avec une perméabilité correcte. En revanche, au delà du temps de filtration critique, un dépôt se forme à la surface de la membrane par condensation des couches concentrées. Un nettoyage efficace doit alors faire intervenir un rétrolavage pour décoller les couches déposées avant une évacuation par une purge. Il faut aussi noter que l'arrêt de l'installation pendant un certain temps peut permettre à un dépôt de se relaxer et peut donc favoriser une élimination plus rapide par une purge.

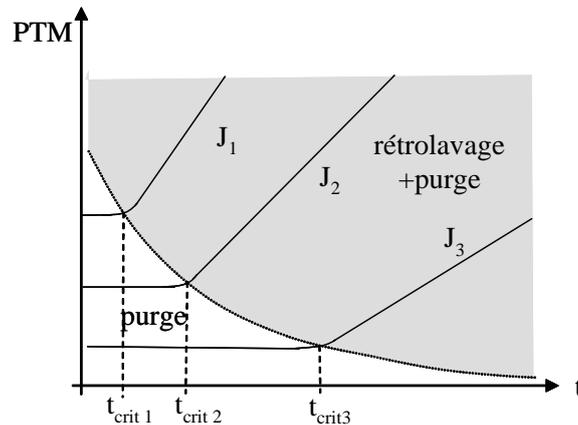


Figure 3.7 Evolution de la pression transmembranaire en fonction du volume filtré pour trois flux imposé $J_1 > J_2 > J_3$

Le flux imposé lors de la filtration joue un rôle important sur ce temps critique. En effet, le temps critique est inversement proportionnel au flux de perméation imposé tel que définit par l'équation [3.6]. Il est possible d'envisager des filtrations en réduisant énormément les séquences de nettoyage mais au détriment de la productivité. Le coût des membranes diminuant, ces conditions de fonctionnement deviennent de plus en plus viables d'un point de vue économique. Notons cependant que la variabilité de la ressource à traiter dans le cas de l'eau à potabiliser par exemple conduit à des évolutions des temps critiques qui sont dépendant des propriétés physico-chimiques de la ressource. Cette variabilité non maîtrisée peut ainsi amener à fixer une pression maximum au-delà de laquelle un rétrolavage est effectué.

3.3.3.2. Choix des conditions opératoires en filtration tangentielle ?

En filtration tangentielle, dans la majorité des applications, la filtration est réalisée en fixant la pression transmembranaire par une vanne de contre pression située en sortie de module de filtration. Les conditions opératoires à choisir pour mener une filtration sont donc : la pression transmembranaire et la vitesse tangentielle.

Lors de la filtration tangentielle à une pression fixée, le flux baisse au cours du temps jusqu'à l'obtention d'un flux stationnaire. L'évolution type du flux de perméation stationnaire en fonction de la pression trans-membranaire lors de la filtration d'une suspension est représentée sur la figure suivante.

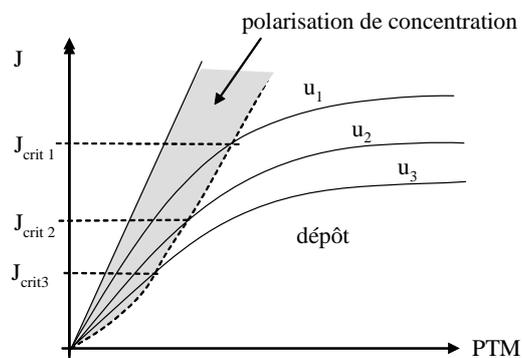


Figure 3.8. Evolution du flux stationnaire en fonction de la pression transmembranaire en filtration tangentielle pour différentes vitesses tangentielles, $u_1 > u_2 > u_3$

Le flux de filtration augmente lorsque la pression croît en suivant la droite obtenue lors de filtration d'eau pure pour des faibles pressions puis s'en écarte progressivement pour ensuite atteindre un flux limite. Sans que cela soit perceptible sur la figure, deux zones sont à distinguer suivant le type de colmatage. Dans une première partie de courbe (zone grisée sur la figure 3.8), la réduction de flux ne correspond qu'à un phénomène de polarisation de concentration. La déviation au flux pour l'eau ne résulte que d'un phénomène de limitation par la pression osmotique (eq. [3.8]). En revanche au-delà d'une certaine pression, un dépôt se forme à la surface de la membrane. Il s'avère que ce n'est pas la pression qui est intrinsèquement responsable du passage d'une polarisation de concentration à un dépôt mais le flux critique défini par l'équation [3.7]. Ce flux critique est alors un paramètre clef pour le contrôle et la maîtrise du colmatage. Opérer une opération pour une pression de filtration correspondant à un flux de perméation inférieur au flux critique permet de s'affranchir de phénomène de colmatage et donc des

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

procédures de nettoyage. En revanche, la détermination d'un flux critique n'est pas immédiate car au contraire du flux limite il n'est pas observable sur la figure 3.8. résultant de manipulations classiques. Il est nécessaire pour accéder expérimentalement au flux critique de mener des expériences de filtration mettant en œuvre des échelons de pression croissant et décroissant afin de mettre en évidence les premières irréversibilités (ou hystérésis) de flux.

On note que le flux critique augmente avec la vitesse tangentielle rendant l'opération de filtration en dessous du flux critique plus intéressante d'un point de vue de la productivité. Cependant, la vitesse tangentielle provoque une perte de charge dans le module de filtration (la pression P_A peut devenir très élevée devant la pression P_R sur la figure 3.2.) ce qui engendre une différence de flux de perméation entre entrée et sortie de module. Le flux critique peut être atteint à l'entrée du module de filtration pour de faibles pressions. La formation du dépôt est aussi affectée par la distribution de la couche limite le long de la surface filtrante : l'épaisseur de la couche limite croît le long de la membrane. La valeur maximum de la couche limite en sortie de module est alors synonyme d'un flux critique plus faible (eq.[3.7.]). De façon générale, le dépôt commence à se former en sortie de module puis se propage vers l'entrée de la membrane. Ces facteurs de complexité rendent nécessaire l'optimisation des conditions opératoires par une expertise basée sur des essais et la connaissance fine des mécanismes de colmatage et leurs simulations (§ 3.2.).

3.3. Conclusions

La maîtrise du colmatage reste très difficile. Le colmatage est en effet un phénomène particulièrement complexe qui met en exergue la non idéalité à la fois des suspensions filtrées très concentrées au voisinage de la membrane et des membranes fortement hétérogènes d'un point de vue physique (porosité, rugosité) mais aussi chimique.

Seules quelques règles générales peuvent émerger dans le choix des conditions opératoires où des modes différents peuvent être choisis. De façon simplifiée, des grandes lignes peuvent alors être énoncées pour le choix des conditions opératoires par rapport aux grandes classes de problèmes énoncées dans l'introduction. La figure 3.9. classe ces problèmes suivant les conditions opératoires de pression et de vitesse tangentielle qui correspondent à une première optimisation du procédé en tenant compte des contraintes économiques.

M.. Meireles, P. Bacchin et M. Clifton

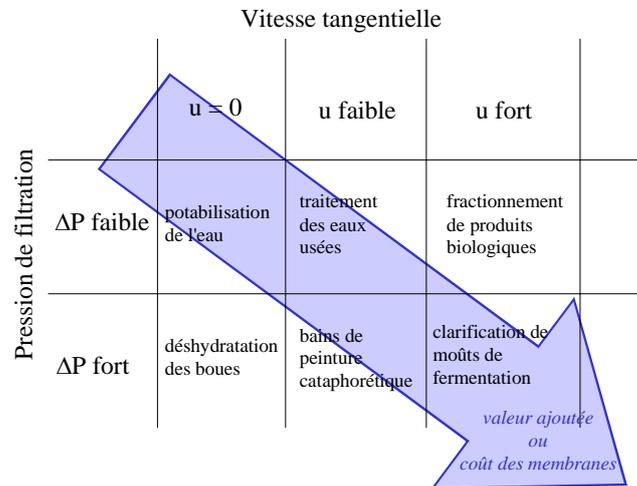


Figure 3.9. Règles générales pour le choix des conditions opératoires vis-à-vis des études de cas présentées dans l'introduction (§ 3.1.)

Cependant, la véritable stratégie pour maîtriser le colmatage repose toujours sur un aller retour entre des essais de filtration et leurs analyses par des outils et des concepts émanant de la recherche en génie des procédés membranaires. C'est cette expertise fine du problème de filtration tant d'un point de vue technologique (choix des configurations du procédé, du module de filtration et des membranes) que du choix des conditions opératoires qui peut amener des gains de productivité significatifs permettant le développement de ce procédé.

Bibliographie

[APT 02] APTEL P., MOULIN P., QUEMENEUR F., *Micro et Ultrafiltration : conduite des essais pilotes*, Ed. Club Français des Membranes, 2002.

[BAC 02a] BACCHIN P., SI-HASSEN D., STAROV V., CLIFTON M.J., AIMAR P., *A unifying model for concentration polarization gel-layer formation and particle deposition in cross-flow membrane filtration of colloidal suspensions*, Chem. Eng. Sci., 75 (1), 77-91 (2002).

[BAC 02b] BACCHIN P., MEIRELES M., AIMAR P., *Modelling of filtration : from the polarised layer to deposit formation and compaction*, Desalination, 145,139-147 (2002).

[MAU] MAUREL A., *Techniques séparatives à membranes*, Techniques de l'ingénieur, Traité de génie des procédés J2790.

[VAN 96] VAN OSS C.J., *Forces interfaciales en milieux aqueux*, Masson, 1996