



HAL
open science

Validation d'un protocole de vieillissement accéléré de membranes fibres creuses à l'échelle semi-industrielle

Capucine Blin, Marcos Oliveira, Christel Causserand, Yannick Fayolle,
Vincent Rocher

► To cite this version:

Capucine Blin, Marcos Oliveira, Christel Causserand, Yannick Fayolle, Vincent Rocher. Validation d'un protocole de vieillissement accéléré de membranes fibres creuses à l'échelle semi-industrielle. TSM. Techniques Sciences Méthodes – Génie urbain, génie rural, 2023, 12 2023, pp.179-198. hal-04495839

HAL Id: hal-04495839

<https://hal.science/hal-04495839>

Submitted on 8 Mar 2024

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.

1 **VALIDATION D'UN PROTOCOLE DE VIEILLISSEMENT ACCELERE DE MEMBRANES FIBRES**
2 **CREUSES A L'ECHELLE SEMI-INDUSTRIELLE**
3 **VALIDATION OF AN ACCELERATED AGEING PROTOCOL OF HOLLOW FIBER MEMBRANES AT A**
4 **SEMI-INDUSTRIAL SCALE**

5 **Blin Capucine^{1*}, Oliveira Marcos², Causserand Christel¹, Fayolle Yannick³, Rocher Vincent²**

6 ¹Laboratoire de Génie Chimique, Université de Toulouse, CNRS, INPT, UPS, Toulouse, France –
7 capucine.blin@univ-tlse3.fr ; christel.causserand-alexandrovitch@univ-tlse3.fr

8 ²SIAAP, 82 avenue Kleber 92700 Colombes – marcos.oliveira@siaap.fr ; vincent.rocher@siaap.fr

9 ³INRAE, 1 Rue Pierre Gilles de Gennes, 92160 Antony – yannick.fayolle@inrae.fr

10 *capucine.blin@univ-tlse3.fr ; 0620214701

11

12 **CATEGORIE DE L'ARTICLE** : *Recherche appliquée*

13 **FORMAT DE L'ARTICLE** : *Article scientifique/technique*

14

15 **TABLE DES MATIERES :**

16	Résumé / Abstract.....	p. 3
17	Introduction.....	p. 4
18	1. Matériels et méthodes.....	p. 5
19	1.1. Fonctionnement de la cuve de filtration de Seine Aval	p. 5
20	1.2. Pilote de filtration membranaire.....	p. 6
21	1.3. Caractérisations des propriétés des membranes au laboratoire	p.6
22	1.3.1. Caractérisation de la physicochimie de surface.....	p.7
23	1.3.2. Mesures de perméabilité à l'eau pure.....	p.7
24	1.3.3. Mesures des propriétés mécaniques.....	p.8
25	1.3.4. Caractérisations spécifiques.....	p.8
26	2. Résultats et discussion.....	p.8
27	2.1. Suivi des paramètres globaux.....	p.8
28	2.1.1. Des bioréacteurs à membranes de Seine Aval.....	p.8
29	2.1.2. Du pilote de filtration membranaire.....	p.9
30	2.1.3. La perméabilité en boue après nettoyage intensif.....	p.10
31	2.2. Caractérisations en laboratoire.....	p.11
32	2.2.1 Contrainte à la rupture.....	p.11
33	2.2.2. Perméabilité à l'eau pure.....	p.12
34	2.2.3. Observations au MEB.....	p.13
35	2.2.4. Teneur en agent hydrophile.....	p.14
36	2.2.5. Produits de dégradation de la PVP.....	p.15

37	2.2.6. Impact de l'aération et évolution des propriétés selon la hauteur de la fibre.....	p.16
38	Conclusion.....	p. 18
39	Remerciements.....	p. 18
40	Bibliographie.....	p. 18
41		
42		
43		

44 **Résumé**

45 Les membranes d'ultrafiltration se dégradent au cours de leurs années de fonctionnement notamment à
46 cause du colmatage et des nettoyages qu'elles subissent. Ce vieillissement provoque sur le long-terme des
47 problèmes d'exploitation sur les sites de traitement des eaux usées utilisant des bioréacteurs à membranes
48 qui peuvent se traduire par des arrêts fréquents pour nettoyage et une diminution de la capacité filtrante
49 pouvant aboutir à un remplacement des membranes. A ce jour, les mécanismes de vieillissement en
50 bioréacteurs à membranes et leurs impacts sur les propriétés des membranes sont partiellement identifiés.
51 L'objectif de ce travail est de proposer et valider une méthode de vieillissement accéléré de membranes
52 fibres creuses à l'échelle d'un pilote semi-industriel (volume utile de 2 m³) dans des conditions
53 représentatives de celles mises en œuvre sur les sites industriels (longueur des fibres, contraintes
54 hydrodynamiques, séquençage de l'aération).

55 Pour cela, un pilote de filtration membranaire a été exploité pendant 2 ans dans des conditions similaires
56 des cuves membranaires de la station de traitement des eaux de Seine Aval (SIAAP-Yvelines, 6,5 millions
57 d'eq-habitants). Afin d'accélérer le vieillissement, les membranes sont soumises à de plus fortes doses
58 d'exposition au chlore : des nettoyages par trempage dans une solution de javel à 1000 ppm puis d'acide
59 citrique à 2000 ppm ont été réalisés tous les 2 mois (vs un tous les 6 mois sur site). Afin de valider cette
60 méthode de vieillissement, les résultats des caractérisations des fibres prélevées sur le pilote sont comparés
61 à ceux retrouvés pour les fibres prélevées des bioréacteurs à membranes du SIAAP.

62 Les analyses des mesures de physicochimie de surface, de perméabilité, de propriétés mécaniques et
63 morphologiques ont permis de conclure à la pertinence de l'approche développée pour le suivi du
64 vieillissement accéléré en conditions d'usage à l'échelle pilote, au regard des évolutions observées à
65 l'échelle industrielle.

66

67 **Mots-clés** : vieillissement, fibre creuse, eaux usées urbaines, bioréacteur à membranes, échelle pilote

68 **Abstract**

69 During their operation, ultrafiltration membranes are progressively degraded because of clogging and
70 cleaning. The aging causes long-term operating problems on wastewater treatment sites using membrane
71 bioreactors who can induce frequent stops for cleaning and reduction of the filtering capacity which can lead
72 to membrane replacement. Nowadays, the ageing mechanisms in membranes bioreactors and their impacts
73 on membranes properties are partially identified. The objective of this work is to propose and to validate an
74 accelerated aging protocol of hollow fiber membranes at semi-industrial pilot scale (useful volume of 2 m³) in
75 operating conditions representative of the ones applied on industrial site (fiber length, hydrodynamic
76 constraint, aeration sequencing).

77 For this, a membrane filtration pilot at semi-industrial scale was operated over two years at similar conditions
78 to membrane tanks of the Seine Aval wastewater treatment plant (SIAAP-Yvelines, 6.5 million of eq-
79 inhabitants). In order to accelerate ageing, membranes were exposed to higher doses of chlorine: intensive
80 cleaning by soaking in a 1000 ppm bleach and 2000 ppm citric acid solutions were done every 2 months (vs
81 every 6 months on site). In order to validate this ageing method, results of fiber characterizations are
82 compared with those obtained for fibers sampled from the membranes bioreactors of the SIAAP.

83 Results obtained from measurements of physico-chemical surface, permeability, mechanical and
84 morphological properties allowed concluding on the relevance of the approach developed for monitoring
85 accelerated aging under operating conditions at pilot scale, with regard to the evolutions observed at
86 industrial scale.

87 **Keywords:** ageing, hollow fiber, urban wastewater, membrane bioreactor, pilot scale

88 **Introduction**

89 Le Service Public de l'Assainissement Francilien (SIAAP) est une collectivité territoriale française. Il a pour
90 but de transporter et dépolluer les eaux usées, pluviales et industrielles de la ville de Paris et de son
91 agglomération avant de les rejeter dans la Seine et la Marne. Plusieurs procédés sont utilisés au SIAAP pour
92 le traitement des eaux dont la dépollution par ultrafiltration membranaire. Si l'on prend l'exemple de l'usine
93 de Seine Aval (SIAAP-Yvelines, 6,5 millions d'eq-habitants), 20% des eaux traitées dans l'usine subissent
94 une ultrafiltration (UF) au sein du deuxième plus grand bioréacteur à membranes (BaM) d'Europe. Ce qui
95 représente près de 300 000 m³ d'eau traitée par UF par jour.

96 Le BaM est une technologie qui permet de coupler un réacteur biologique et une étape de séparation solide
97 liquide sur membrane poreuse [A. GRASMICK *et al.*, 2007]. Ainsi, après le traitement biologique, l'eau
98 traitée est séparée des boues par filtration membranaire. Par rapport aux traitements conventionnels par
99 boues activées, ce procédé est globalement plus efficace et présente une stabilité plus importante de la
100 qualité d'eau produite en sortie. L'inconvénient principal de ce procédé est le colmatage des membranes. Il
101 en existe plusieurs types : colmatage biologique, organique ou inorganique qui peuvent se traduire par de la
102 concentration de polarisation, du colmatage externe (gâteau ou gel), ou du colmatage interne (blocage des
103 pores). Ce colmatage va entraîner une augmentation de la pression transmembranaire créant une baisse de
104 productivité et une augmentation de la consommation d'énergie. Afin de contrôler ce colmatage, plusieurs
105 nettoyages des membranes sont réalisés :

106 - Des nettoyages physiques, qui permettent d'éliminer le colmatage réversible qui se traduit par la formation
107 d'un gâteau et/ou couche de gel sur la surface de la membrane [T. KAKUDA *et al.*, 2021]. Ces nettoyages se
108 font par aération (injection d'air), relaxation (arrêt momentané du flux) et rétrolavage (filtration d'une fraction
109 du perméat à contre-courant au travers des membranes).

110 - Des nettoyages chimiques, qui permettent d'éliminer le colmatage irréversible, qui se traduit par une
111 adsorption progressive des agents colmatants sur et dans les pores de la membrane [T. KAKUDA *et al.*,
112 2021]. Ce nettoyage se fait à l'aide de réactifs chimiques : l'hypochlorite de sodium qui élimine le colmatage
113 organique et l'acide citrique qui élimine le colmatage minéral.

114 Les étapes de filtration et de nettoyage peuvent fortement dégrader les propriétés mécaniques et les
115 performances de filtration des membranes. Le vieillissement des membranes peut se définir comme le
116 résultat des attaques chimiques, du colmatage irréversible et des contraintes mécaniques. S. ROBINSON *et*
117 *al.* [2016] ont montré que l'hypochlorite de sodium est un acteur majeur du vieillissement des membranes
118 puisqu'il oxyde les agents hydrophiles présents dans la composition de celles-ci, ce qui va rendre le
119 matériau plus hydrophobe, augmenter la taille des pores et la perméabilité mais aussi favoriser les
120 interactions entre les membranes et les agents colmatants présents dans les boues.

121 Ainsi, la présente étude propose une méthodologie pour accélérer le vieillissement représentatif des

122 membranes afin d'anticiper l'évolution de leurs performances et de prévoir leur durée de vie. Une
123 précédente étude réalisée par M. OLIVEIRA FILHO et *al.* [2021] a permis de comparer un vieillissement sur
124 site et un vieillissement accéléré au laboratoire. Les auteurs ont observé des différences notamment sur la
125 teneur en agent hydrophile qui diminue nettement moins en laboratoire que sur site et sur les tests de
126 résistance mécanique, qui restent stables à l'échelle laboratoire mais qui montrent une diminution de 45%
127 sur site. Le vieillissement au laboratoire a été réalisé par de simple trempage des fibres dans une solution
128 d'hypochlorite de sodium à une concentration comprise entre 950 et 1060 ppm et un pH entre 8,98 et 9,09.
129 Ces résultats illustrent le besoin d'étudier le mécanisme de vieillissement dans des conditions se
130 rapprochant du réel.

131 Pour pallier à ces différences, un pilote semi-industriel reproduisant des conditions similaires aux BaM du
132 SIAAP est développé dans la présente étude. Ce pilote permet de valider un protocole de vieillissement des
133 membranes représentatif des conditions mises en œuvre sur site mais de façon accélérée en augmentant la
134 dose d'exposition au chlore. Il permet également d'offrir la possibilité d'analyser les étapes du processus de
135 vieillissement des membranes, par des prélèvements fréquents de fibres. De plus, ce travail à l'échelle pilote
136 permet de vérifier des impacts précis tels que l'effet de l'aération (le pilote dispose de plusieurs
137 compartiments aérés avec des débits d'aération différents) et la hauteur au sein de la fibre (les
138 caractérisations des fibres sont réalisées en fonction de la hauteur, c'est-à-dire sur les positions haut, bas et
139 milieu de la fibre) sur le vieillissement.

140 **1. Matériels et méthodes**

141 **1.1. Fonctionnement des cuves de filtration de Seine Aval**

142 Les membranes utilisées au sein des cuves de filtration de Seine Aval sont des fibres creuses Zeeweed®
143 500D ayant des pores de 0,04 µm. Elles sont fixées dans des modules (84 x 4,9 x 219 cm) par le haut et le
144 bas et sont placés verticalement dans les cuves. Des analyses par Spectroscopie Infrarouge à Transformée
145 de Fourier à réflectance Totale Atténuée (ATR-FTIR) ont montré que les fibres sont composées d'une peau
146 en polyfluorure de vinylidène (PVDF), qui est un matériau hydrophobe résistant au chlore, auquel est ajouté
147 un agent hydrophile, la polyvinylpyrrolidone (PVP). La fibre est supportée par un tissage, qui, d'après des
148 analyses réalisées dans le cadre de cette étude (non montrées) est probablement, en polytéréphtalate
149 d'éthylène (PET) et permet d'assurer la résistance mécanique de la membrane.

150 La liqueur mixte, issue des bassins biologiques, alimente ces cuves de filtration membranaire. Les cuves
151 des bioréacteurs à membranes sont alimentées par la liqueur mixte des bassins biologiques à un débit de
152 2600 m³/h. Elles sont au nombre de 28, contenant chacune 10 cassettes de 48 modules, soit un total de 13
153 440 modules correspondant à une surface de filtration totale de 462 336 m².

154 Le cycle de filtration de la liqueur mixte inclut trois étapes : la filtration, la relaxation et le rétrolavage. La
155 filtration dure 11 minutes à un flux variant entre 18 et 40 L.m⁻².h⁻¹ (LMH) suivie d'une relaxation pendant 45
156 secondes. La pression transmembranaire est créée par aspiration du perméat par les pompes. Le système
157 est donc en dépression. Après 8 cycles de filtration/relaxation, le rétrolavage est déclenché pendant 35
158 secondes à un flux plus important que celui appliqué en filtration (environ 34 LMH). L'air est injecté sous
159 forme de grosses bulles en-dessous des modules membranaires par intermittence toutes les 20 secondes
160 pendant 10 secondes. Cette injection correspond à une demande d'aération spécifique (SAD) variant entre

161 0,18 et 0,30 m³.h⁻¹.m⁻², et permet d'assurer l'homogénéisation de la liqueur mixte à proximité des
162 membranes, en plus de balayer les fibres pour limiter l'accumulation de matière.

163 Afin de limiter le colmatage des membranes, des lavages chimiques sont nécessaires en plus des
164 nettoyages physiques. Ils se divisent en deux catégories. Le lavage de maintenance qui prévient et limite le
165 colmatage des membranes. Il est réalisé avec de l'hypochlorite de sodium deux fois par semaine par cuve
166 ([NaOCl] = 200 ppm) puis avec de l'acide citrique une fois par semaine par cuve ([acide citrique] = 1100
167 ppm). Ces solutions nettoyantes sont injectées en rétrolavage pendant environ 1 h. Le lavage intensif, quant
168 à lui, est réalisé deux fois par an par cuve avec des solutions d'hypochlorite de sodium et d'acide citrique
169 plus concentrées ([NaOCl]= 1000 ppm et [acide citrique] = 2000 ppm). Il s'agit de trempages des
170 membranes pendant 6h dans chaque solution successivement.

171 **1.2. Pilote de filtration membranaire**

172 Le pilote utilisé se situe à l'usine de Seine Aval. Il est composé d'une cuve contenant 3 modules de
173 membranes Zeeweed[®] 500D. Les trois modules sont placés dans différents compartiments dans lesquels
174 des conditions d'aération (SAD) différentes ont été appliquées. Les compartiments L1, L2 et L3 ont des SAD
175 respectifs de 0,16 ± 0,08, 0,23 ± 0,11 et 0,27 ± 0,13 m³ d'air.m⁻² de membrane.h⁻¹. La cuve du pilote est
176 alimentée en liqueur mixte prélevée directement dans le bassin biologique du BaM de Seine Aval à un débit
177 de 12 m³/h, soit une vitesse superficielle de 14,63 m/h (14,73 m/h en moyenne pour les cuves de filtration de
178 Seine Aval). Le perméat filtré est récupéré dans une bêche perméat et le retentât est évacué vers le bassin
179 biologique. Des capteurs de matières en suspension (MES), de pH, de température, de débit et de pression
180 sont présents sur le pilote afin de collecter les données de suivi du fonctionnement. Ces données brutes
181 sont enregistrées à une fréquence de 2 minutes et récupérées chaque semaine pour la détermination de la
182 pression transmembranaire, du flux de perméat ramené à 20°C, du volume filtré et de la perméabilité en
183 boue, définie par l'équation (1).

$$184 \text{ Perméabilité en boue} = \frac{J \text{ (LMH)}}{PTM \text{ (bar)}} \Bigg]_{\text{dans la boue}} \quad \#(1)$$

184

185 Le pilote fonctionne avec des cycles de filtration similaires à ceux des BaM de Seine Aval présentés
186 auparavant. De même pour les nettoyages chimiques de maintenance (une fois par semaine à l'acide
187 citrique et deux fois par semaine à l'hypochlorite de sodium). Cependant, les nettoyages intensifs (NEI) se
188 font de façon accéléré, c'est-à-dire réalisés tous les deux mois sur le pilote contre tous les six mois sur site.
189 Le récapitulatif des conditions opératoires du pilote et du site industriel se trouve dans le tableau 1.

190 **1.3. Caractérisations des propriétés des membranes au laboratoire**

191 Les campagnes de prélèvement des fibres du pilote ont été réalisées tous les deux mois. Avant chaque
192 nettoyage intensif, 4-5 fibres par module ont été prélevées en découpant à 10 cm des empotages du haut et
193 du bas afin de réaliser des caractérisations au laboratoire. De plus, ces membranes ont été découpées en
194 morceaux de 55 cm spécifiques du haut, milieu et bas de la fibre afin de caractériser le vieillissement de
195 celles-ci en fonction de l'aération reçue et de la position sur la hauteur.

196 De la même manière, les fibres prélevées au sein des BaM sur site nous ont été fournies afin de comparer
197 les résultats des caractérisations entre l'échelle pilote et l'échelle industrielle. Les fibres ont été prélevées

198 après chaque nettoyage intensif sur les cuves 1A, 1B, 8B et 10B entre le 30 novembre 2017 et le 16
199 novembre 2020.

200 Qu'elles aient été prélevées sur site ou sur le pilote, les fibres ont été nettoyées au laboratoire avant de
201 réaliser les analyses de la même façon qu'un nettoyage intensif : par trempage dans une solution de chlore
202 puis d'acide pendant 6 heures pour chacune des solutions.

203 1.3.1. Caractérisation de la physicochimie de surface

204 Les groupements chimiques fonctionnels présents à la surface de la membrane ont été analysés par
205 spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier à réflectance totale atténuée afin de déterminer la teneur
206 en agent hydrophile présent dans la composition des membranes.

207 Pour cela est utilisé le spectrophotomètre Nicolet iS5 avec une cellule en germanium (Thermo Fisher
208 Scientific, USA). L'échantillon placé dans la cellule est une fibre sèche de quelques centimètres. Les
209 spectres sont enregistrés de 600 cm^{-1} , à 4000 cm^{-1} sur le logiciel OMNIC.

210 La bande à 1674 cm^{-1} , correspondant aux vibrations d'étirement du carbonyle, permet de suivre l'évolution
211 de la PVP utilisée comme agent hydrophile dans la composition des membranes. Afin de normaliser les
212 variations d'échelle et de suivre le possible départ/dégradation de la PVP dans le temps, la teneur en PVP a
213 été déterminée par le rapport entre l'intensité de la bande de la PVP à 1674 cm^{-1} et celle caractéristique du
214 PVDF à 1403 cm^{-1} (pic lié aux liaisons C-F du PVDF) considérée invariante, selon l'équation (2) proposée
215 par M. OLIVEIRA FILHO et *al.* [2021].

$$\frac{(A^{1674}/A^{1403})_{memb\ vieillie}}{(A^{1674}/A^{1403})_{memb\ neuve}} \#(2)$$

216 1.3.2. Mesures de perméabilité à l'eau pure

217 La perméabilité à l'eau pure a été mesurée par filtration d'eau ultra pure avec l'appareil KrosFlo Research
218 (SpectrumLab, USA) qui permet de réaliser une filtration frontale à des débits de perméat différents. Des
219 mini modules d'environ 15 cm et contenant trois longueurs de fibre sont placés dans l'appareil. La pression
220 transmembranaire (PTM) est calculée grâce aux données fournies par les capteurs de pression présents à
221 l'entrée et la sortie du mini module. La perméabilité à l'eau pure L_p est déduite de la pente de la droite J
222 (20°C) = $f(\text{PTM})$ selon la loi de Darcy (équation (3)) puis normalisée par rapport à la membrane neuve par le
223 rapport L_p/L_{p_0} (équation (4)).

$$J = \frac{Q_p}{S} = \frac{L_p}{\mu_T} \times \text{PTM} \#(3)$$

224

$$\frac{L_p}{L_{p_0}} = \frac{\text{Perméabilité}_{memb\ vieillie}}{\text{Perméabilité}_{memb\ neuve}} \#(4)$$

225

226

227 Avec dans le système international, J le flux de perméat (m/s), Q_p le débit de perméat (m^3/s), S la surface
228 membranaire (m^2), L_p la perméabilité hydraulique (m), μ_T la viscosité dynamique (Pa.s) et PTM la pression
229 transmembranaire (Pa). Ces mesures sont réalisées en duplicata pour chaque fibre et sur des échantillons

230 avant et après nettoyage intensif. Pour des raisons de simplicité d'utilisation, nous exprimerons les résultats
231 par le rapport L_p/μ_T exprimé en LMH/bar.

232 **1.3.3. Mesures des propriétés mécaniques**

233 Les tests de résistance mécanique sont réalisés avec l'appareil INSTRON 3340. La fibre est fixée entre deux
234 mors distants de 10 cm. L'appareil INSTRON 3340 impose à l'échantillon une élongation de 110 mm/min
235 jusqu'à la rupture de la fibre. Les valeurs du module de Young, de la contrainte à la rupture et de
236 l'allongement à la rupture sont calculées par le logiciel Bluehill 3.

237 **1.3.4. Caractérisations spécifiques**

238 Les caractérisations spécifiques sont des observations morphologiques et des analyses élémentaires qui
239 sont réalisées sur les fibres prélevées avant chaque nettoyage intensif.

240 Les échantillons sont métallisés à l'or avec le métalliseur Quorum SC7620 puis placés dans la chambre du
241 microscope électronique à balayage Hitachi TM 3030 Plus.

242 Pour les observations au MEB, les grossissements utilisés sont x60 et x500 afin d'avoir une image globale
243 de la fibre et une plus locale.

244 Pour les microanalyses par énergie dispersive de rayons X (EDX), les spectres choisis sont sur des zones
245 où persiste du colmatage irréversible, et des zones propres où seul le matériau membranaire est visible
246 avec un grossissement de 300.

247 **2. Résultats et discussion**

248 L'ensemble des paramètres de fonctionnement et des grandeurs caractéristiques des membranes seront
249 présentés par la suite en fonction i) de la dose d'exposition au chlore qui se calcule comme le produit de la
250 concentration de la solution de chlore utilisée lors des nettoyages, multipliée par le temps de contact avec la
251 membrane (en ppm.h) et ii) du volume filtré cumulé par unité de surface filtrante (m^3/m^2 de membrane).

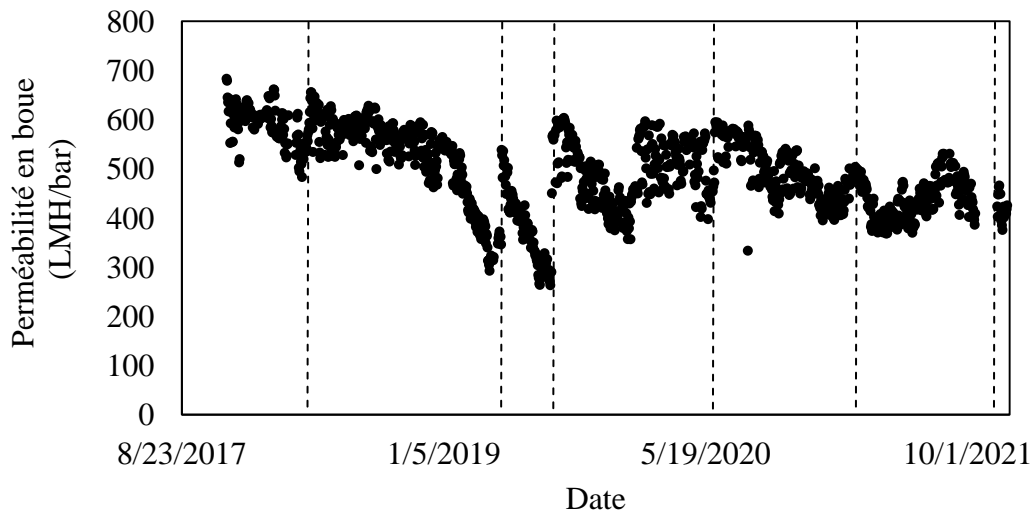
252 **2.1. Suivi des paramètres globaux**

253 **2.1.1. Des bioréacteurs à membranes de Seine Aval**

254 Les données des conditions opératoires des bioréacteurs à membranes du site Seine Aval sont générées de
255 manière journalière. Les données engendrées sont les conditions biologiques, le pH, la température de la
256 liqueur mixte, les conditions opératoires pour assurer la filtration (pression, débit, aération, nettoyage) mais
257 aussi les performances des membranes avec la perméabilité, la pression transmembranaire et le flux de
258 filtration. Les conditions biologiques ainsi que les données de pH et de température de la liqueur mixte entre
259 2017 et 2021 se retrouvent dans le tableau 2.

260 La performance des membranes sur site se suit avec la perméabilité en boue au cours du temps pour
261 chaque cuve. La figure 1 représente la perméabilité en boue au cours du temps pour la cuve 1A des
262 bioréacteurs à membranes du site Seine Aval. Les traits verticaux présents sur le graphique indiquent les
263 moments où les NEI ont été réalisés. La perméabilité en boue représente la capacité qu'a la membrane pour
264 filtrer la boue. Ainsi, il est possible de constater que cette perméabilité diminue au cours du temps. Les
265 nettoyages intensifs permettent aux membranes du site industriel de palier au colmatage et donc de
266 retrouver une perméabilité élevée assurant le bon fonctionnement du BRM. Ce graphe met donc en

267 évidence le colmatage des membranes au cours de la filtration de la boue et l'efficacité des nettoyages
268 intensifs.



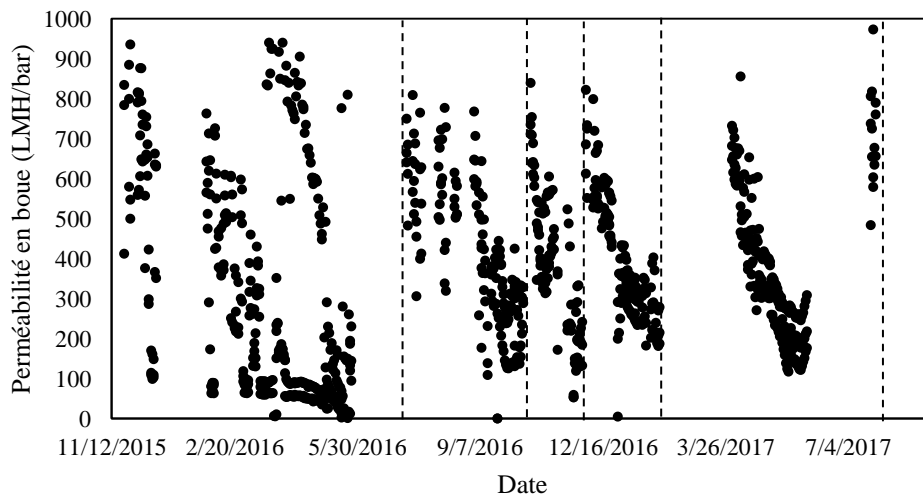
269

270 Figure 1 : Moyenne journalière des perméabilités en boue à 20°C de la cuve 1A de Seine Aval en fonction du
271 temps

272 2.1.2. Du pilote de filtration membranaire

273 Les données générées par le pilote ont permis de calculer la pression transmembranaire, le flux de perméat
274 ramené à 20°C, le volume de filtration et la perméabilité en boue. Les résultats moyens de flux de perméat,
275 de teneurs en matières en suspension, d'aération, de pH et de températures, regroupés dans le tableau 3,
276 montrent une stabilité tout au long de l'étude (2019 à 2021).

277 Les moyennes journalières des perméabilités en boue (J/PTM) des trois modules sont représentées en
278 fonction du temps sur la figure 2. Ces indices ont été calculés sur toute la période de fonctionnement du
279 pilote, c'est-à-dire depuis novembre 2019. Comme précédemment, les traits verticaux présents sur le
280 graphique indiquent les moments où les NEI ont été réalisés. Comparé au site industriel, les perméabilités
281 en boue des membranes du pilote ont tendance à avoir une pente de diminution plus importante mais les
282 NEI permettent aux membranes du pilote de retrouver une perméabilité quasiment égale à la perméabilité
283 initiale. Dans le but de comparer l'efficacité des nettoyages et de vérifier leur impact sur la perméabilité des
284 fibres du site industriel et du pilote, les perméabilités en boue après NEI sur une durée de 7 jours ont été
285 calculées.



286

287 Figure 2 : Moyenne journalière des perméabilités en boue à 20°C sur pilote en fonction du temps

288 **2.1.3. Perméabilité en boue après nettoyage intensif**

289 La figure 3 représente les perméabilités en boue corrigée à 20°C (Eq 1) récupérées après chaque NEI. La
 290 moyenne des perméabilités en boue durant les 7 jours suivant les NEI est calculée et tracée en fonction du
 291 volume filtré cumulé par unité de surface filtrante. C'est un paramètre clef pour caractériser l'accumulation
 292 du colmatage irréversible lors du vieillissement des membranes au contact du fluide réel. Il est d'autant plus
 293 important à prendre en compte que le facteur le plus récurrent pour le changement des membranes est leur
 294 diminution de capacité filtrante [FENU et al., 2012 ; COTE et al., 2011].

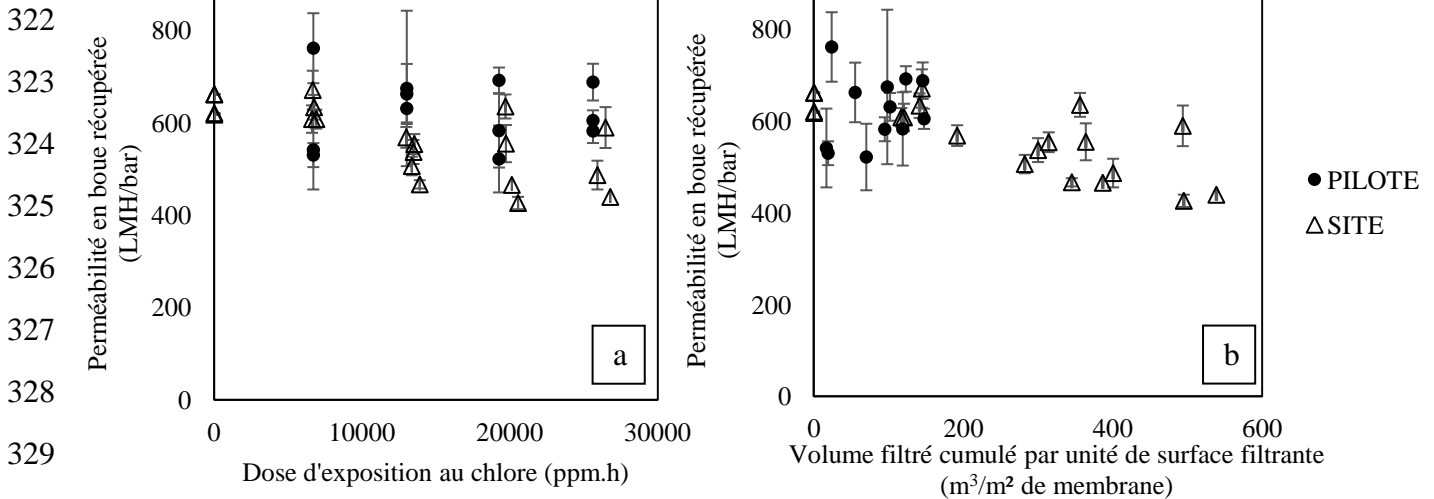
295 Les résultats de la figure 3.a représentent les perméabilités en boue récupérées après chaque NEI des
 296 fibres du pilote (point noir) et des fibres du site (triangle). Les points entre le site et le pilote sont proches
 297 pour des doses cumulées de chlore de 0 à 2000 ppm.h. Cependant, au-delà de cette dose d'exposition les
 298 perméabilités en boue des fibres du site commencent à diminuer tandis que celles des fibres du pilote
 299 restent constantes. Les résultats en fonction du volume filtré cumulé par unité de surface filtrante (figure
 300 3.b) montrent une diminution de cette perméabilité pour les membranes du site industriel. Ce qui caractérise
 301 une tendance accrue au colmatage irréversible au cours des filtrations. Ce colmatage résiduel peut être la
 302 conséquence des modifications des propriétés de la membrane et/ou des interactions entre le matériau
 303 membranaire et les agents de colmatage. Concernant les membranes du pilote, malgré l'accélération du
 304 vieillissement par l'augmentation de la dose d'exposition à l'hypochlorite de sodium à même volume filtré
 305 cumulé, elles sont toujours dans leur phase initiale de vieillissement, en terme d'accumulation du colmatage
 306 résiduel, et semblent suivre dans cette phase le même comportement que les membranes prélevées sur
 307 site. En effet, les points de la figure 3.b ne montrent pas de diminution de la perméabilité en boue dont la
 308 valeur reste autour de 650 LMH/bar.

309 Les résultats reportés sur la figure 3.a laissent donc à penser que la méthode de vieillissement accéléré du
 310 pilote ne permet pas d'avoir une accumulation de colmatage irréversible similaire à celle sur site. En effet, le
 311 colmatage irréversible est fortement impacté par l'efficacité du nettoyage qui, sur le pilote, est nettement plus
 312 maîtrisé de par la facilité de rinçage, le contrôle des concentrations et de l'homogénéisation au sein de la

313 cuve. De plus, la multiplicité des nettoyages intensifs sur le pilote ne permet possiblement pas de créer un
 314 colmatage irréversible et donc l'accumulation de ce colmatage sur le pilote est moindre. Les résultats de la
 315 figure 3.b montrent cependant que les tendances du pilote suivent celles observées sur site. Donc, il est
 316 possible de conclure que la mise en œuvre expérimentale n'a pas d'influence significative sur l'accélération
 317 du colmatage irréversible à ce stade, ce qui est logique au vu de celle-ci (filtration aux mêmes flux que le site
 318 industriel et plus de nettoyages intensifs).

319 Ces conclusions seront également étayées dans les parties suivantes par les résultats des caractérisations
 320 des fibres au laboratoire.

321



331 Figure 3 : Perméabilité en boue récupérée après NEI en fonction de (a) la dose d'exposition au chlore et (b)
 332 du volume filtré cumulé par unité de surface filtrante

333 2.2. Caractérisations en laboratoire

334 Après prélèvements sur site et sur le pilote, les fibres sont soumises en laboratoire à diverses techniques de
 335 caractérisation. Ce paragraphe porte sur la comparaison des caractéristiques obtenues afin de valider la
 336 représentativité du protocole de vieillissement des membranes à l'échelle pilote.

337 2.2.1 Contrainte à la rupture

338 La contrainte à la rupture est la force qu'il faut exercer à chaque extrémité d'une membrane pour obtenir sa
 339 rupture. Que cela soit en fonction de la dose d'exposition au chlore (figure 4.a) ou en fonction du volume
 340 filtré cumulé par unité de surface filtrante (figure 4.b), les résultats de résistance mécanique des fibres issues
 341 du pilote suivent ceux des fibres prélevées sur site. Le calcul des coefficients de variation entre des points
 342 du site et du pilote à dose d'exposition au chlore similaire permet de vérifier si la dispersion entre ces deux
 343 points est élevée. Les coefficients de variation pour les points 1, 2, 3 et 4 (indiqués sur la figure 4.a et
 344 correspondant à des doses d'exposition de 6700, 13400, 19700 et 26000 ppm.h) sont respectivement de
 345 1,68%, 0,89%, 2,98% et 0,11%. Ces résultats démontrent la similitude entre les résultats obtenus sur les
 346 deux types de fibres. La comparaison statistique des données du pilote et du site industriel nous donne une
 347 p-value bilatérale (test de Student) égale à 0,14 ce qui permet de confirmer que la différence entre les
 348 moyennes est égale à 0.

349 Par ailleurs, dans les deux cas, il est observé une légère diminution puis une stabilisation de la contrainte à
 350 la rupture en cours d'usage. La membrane devient donc plus fragile mais cette variation est très faible
 351 (maximum 10% de la contraire initiale), et n'est pas suffisante pour provoquer la casse des fibres. En effet,
 352 ces dernières sont supportées par un tissage en PET qui les rend très résistantes. Ainsi, la contrainte à la
 353 rupture ne peut pas être choisie comme paramètre de suivi du vieillissement des membranes fibres creuses
 354 supportées.

355 Ce résultat est à mettre en regard de l'étude réalisée par OLIVEIRA FILHO et al. [2021] qui a montré que
 356 lors de simples trempages des fibres dans une solution d'hypochlorite de sodium, une stabilisation de la
 357 contrainte à la rupture en fonction de la dose d'exposition au chlore des membranes est observée (figure 4a
 358 – croix). Cette différence de résultat liées aux méthodes de vieillissement (pilote vs laboratoire) montre
 359 l'intérêt d'utiliser un pilote semi-industriel pour étudier le vieillissement.

360

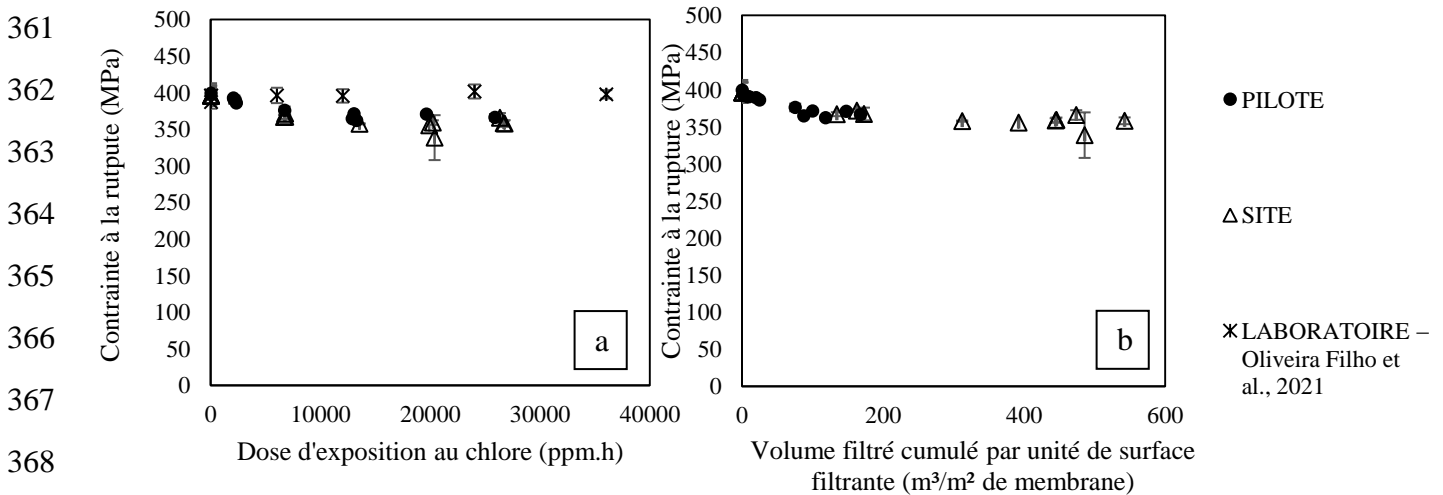


Figure 4 : Contrainte à la rupture en fonction (a) de la dose d'exposition au chlore et (b) du volume filtré cumulé par unité de surface filtrante

371

372 2.2.2. Perméabilité à l'eau pure

373 Les résultats des figures 5.a et 5.b représentent le rapport entre la perméabilité à l'eau pure des membranes
 374 prélevées au sein du pilote et sur site, et celle de la membrane neuve. Sur les échantillons issus du pilote,
 375 une augmentation de la perméabilité normalisée suivie d'une stabilisation sont observée. Ces tendances
 376 sont difficiles cependant à mettre en évidence pour le site industriel du fait d'un plus faible nombre de points.
 377 La comparaison statistique des données du pilote et du site industriel nous donne une p-value bilatérale
 378 égale à 0,037 ce qui permet de confirmer que la différence entre les moyennes est différente de 0. Il n'en
 379 reste pas moins que les résultats montrent que les deux types d'échantillons présentent des perméabilités à
 380 l'eau du même ordre de grandeur (hormis quelques points à une dose d'exposition au chlore d'environ 7000
 381 ppm.h) mais que ce paramètre est sujet à une forte variabilité. Celle-ci résulte du fait que la perméabilité à
 382 l'eau est une grandeur complexe possiblement impactée par différentes propriétés membranaires comme la
 383 porosité ou l'hydrophilie de la membrane mais aussi par le colmatage résiduel présent à la surface et/ou
 384 dans la structure membranaire malgré les étapes de nettoyage. Ces résultats démontrent qu'il est difficile

385 d'utiliser la perméabilité à l'eau comme paramètre de suivi du vieillissement sur les fibres prélevées. Les
 386 résultats obtenus lors du vieillissement à l'échelle laboratoire de M. OLIVEIRA FILHO et *al.* [2021] montrent
 387 une augmentation quasi-linéaire du rapport de perméabilité entre des doses d'exposition au chlore de 0 et
 388 48 000 ppm.h. Cependant, cette étude a montré que ce rapport diminue à partir d'une dose d'exposition au
 389 chlore de 84 000 ppm.h pour atteindre des valeurs proches de 1 et donc une perméabilité égale à la celle de
 390 la membrane neuve. Ainsi il est possible de s'attendre à voir la perméabilité à l'eau diminuer lorsque la
 391 membrane sera exposée à une telle dose d'exposition au chlore.

392

393

394

395

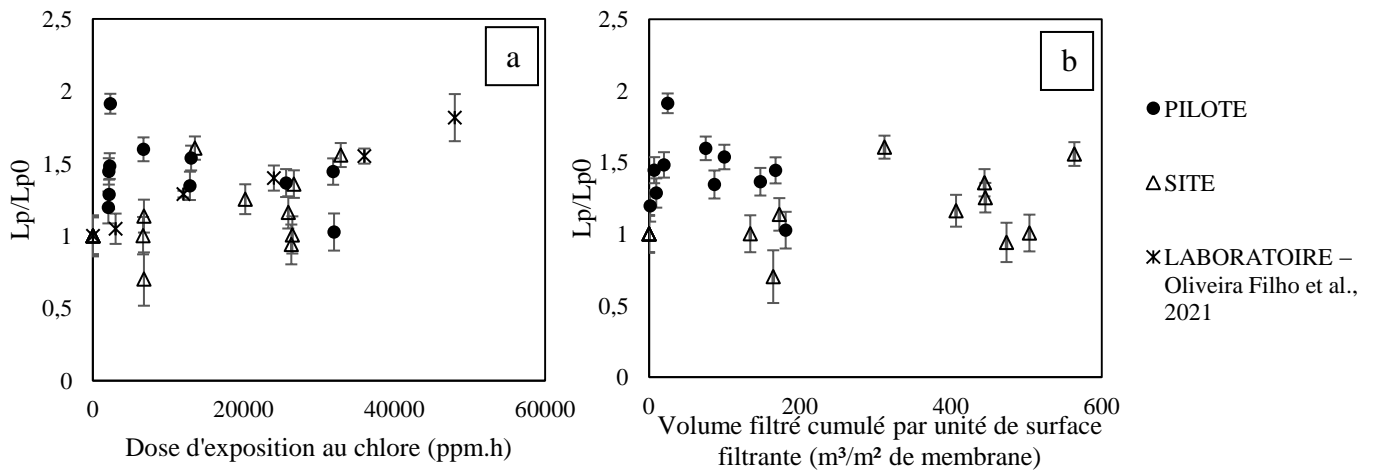
396

397

398

399

400



401

Figure 5 : Perméabilité à l'eau normalisée des fibres prélevées en fonction (a) de la dose d'exposition au chlore et (b) du volume filtré cumulé par unité de membrane filtrante

402

403

404

2.2.3. Observations au MEB

405

406

407

408

409

410

411

412

413

414

415

416

417

418

419

420

421

Les images obtenues au microscope électronique à balayage sont présentées sur la figure 6. Les trois images représentent respectivement une fibre membranaire neuve (figure 6.a), une seconde vieillie prélevée au sein du pilote (figure 6.b) et une troisième prélevée sur site (figure 6.c). Les deux fibres vieillies ont été soumises une dose d'exposition au chlore équivalente (25 620 ppm.h pour la fibre du pilote et 26 200 ppm.h pour la fibre du site). Les observations au MEB sont uniquement qualitatives et posent la question de l'échantillonnage, elles sont donc à considérer avec précaution quant à leur représentativité de l'état global du module. Malgré cela, une tendance à la formation de grands pores est visible sur les fibres vieillies, chose qui a été remarqué tout au long du processus de vieillissement. Par ailleurs, il est possible de remarquer que la fibre prélevée sur le pilote est plus rugueuse que celle du site. Cette différence de rugosité peut être dû à l'aération et au nombre de cycle de filtration/relaxation et filtration/rétrolavage qui est supérieur à celui sur le pilote, laissant potentiellement un dépôt colmatant de surface. En effet, pour une dose d'exposition au chlore équivalente, la fibre sur site a filtré un volume cumulé spécifique de 422,76 m³/m² et celle du pilote un volume de 145,46 m³/m². Ce colmatage de surface pourrait être un des facteurs responsable de la variabilité de la perméabilité à l'eau. De plus une étude réalisée par S. HAJIBABANIA et *al.* [2012] a également montré que la taille des pores des fibres PVDF a tendance à augmenter au cours du vieillissement. Le protocole réalisé par les auteurs consiste à vieillir les fibres grâce à des cycles d'encrassement et de nettoyage en utilisant un modèle organique et une solution d'hypochlorite de sodium

422 (20000 ppm). Leurs résultats ont montré une diminution significative du point de bulle, une diminution des
423 performances de rejet de carbone organique total et une diminution de l'angle de contact qu'ils expliquent
424 par l'augmentation de la taille des pores.

425

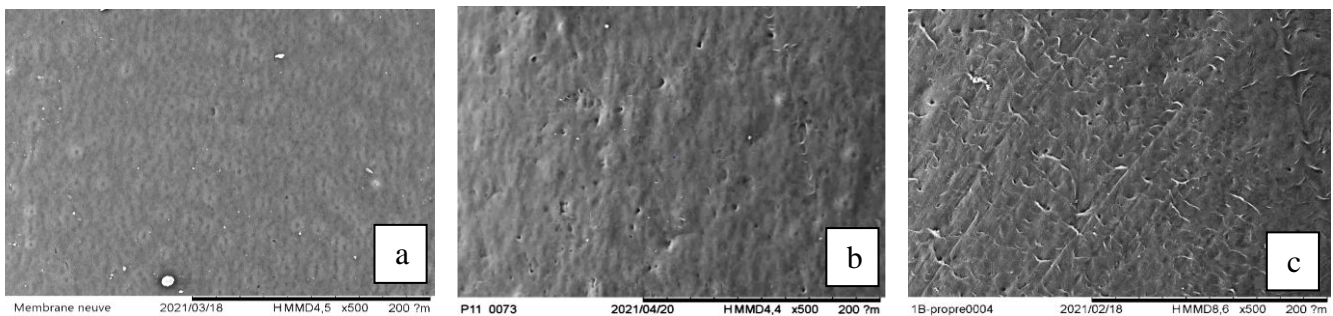
426

427

428

429

430



431 Figure 6 : Images MEB d'une fibre neuve (a), d'une fibre prélevée sur le pilote (b) et d'une fibre prélevée sur
432 site (c)

433 2.2.4. Teneur en agent hydrophile

434 La teneur en agent hydrophile (PVP) déterminée par FTIR-ATR diminue fortement avec la dose d'exposition
435 au chlore. La superposition des résultats pilote/site (figure 7.a) montre que l'action du chlore sur l'agent
436 hydrophile se traduit par la même perte et/ou dégradation aux deux échelles. La p-value retrouvée ici est
437 égale à 0,864 donc la différence entre les moyennes est égale à 0.

438 Cette diminution doit s'accompagner d'une perte d'hydrophilie du matériau favorisant l'interaction des agents
439 colmatants dans les boues avec la membrane comme montré par S. ROBINSON et P. R. BERUBE [2020].
440 Ces auteurs ont mis en relation le taux d'encrassement avec la teneur en agent hydrophile sur les
441 membranes vieilles à l'échelle industrielle en usine de potabilisation. Ceci pourrait expliquer une plus grande
442 propension au colmatage et donc le fait que la perméabilité en boue diminue au cours du temps (figure 2).

443 De plus, l'évolution de la teneur en agent hydrophile en fonction du volume filtré cumulé spécifique laisse
444 apparaître une décroissance plus importante sur le pilote que sur site. Cette décroissance associée à la
445 superposition des points en fonction de la dose d'exposition au chlore montre la réussite d'un vieillissement
446 représentatif et accéléré. Cette réussite est due au fait que le protocole employé sur le pilote associe les
447 étapes de filtration et une plus forte dose d'exposition au chlore. En comparaison, les résultats de
448 vieillissement à l'échelle laboratoire de M. OLIVEIRA FILHO et al. [2021] ont montré que la diminution de la
449 teneur en agent hydrophile est plus faible par rapport aux résultats retrouvés sur des membranes prélevées
450 sur site. Ainsi, un vieillissement par simple trempage n'est donc pas représentatif du vieillissement sur site
451 contrairement à l'intégration au sein d'un pilote qui associe les étapes de filtration et une forte exposition des
452 membranes au chlore.

453

454

455

456

457

458

459

460

461

462

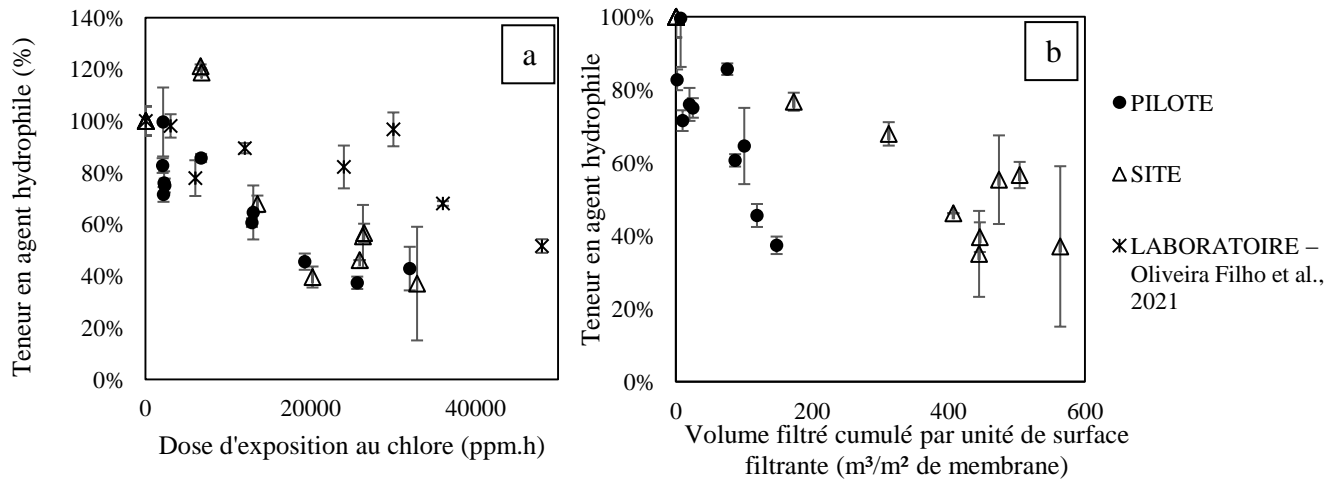
463

464

465

466

467



468 Figure 7 : Teneur en agent hydrophile dans la composition des membranes en fonction (a) de la dose
469 d'exposition au chlore et (b) du volume filtré cumulé par unité de membrane filtrante

470

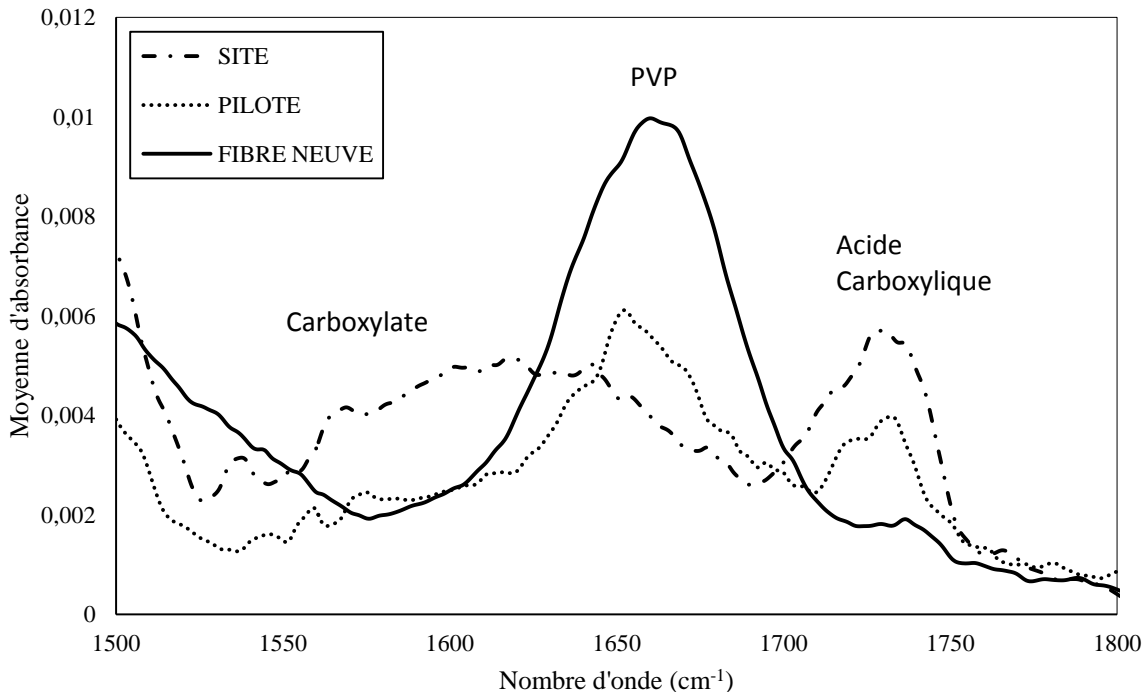
471 2.2.5. Produit de dégradation de la PVP

472 La partie précédente démontre que la PVP se dégrade et/ou disparaît. Avec les spectres d'absorbance
473 obtenus par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier à réflectance totale atténuée, il est possible
474 de déterminer les produits de dégradation de la PVP et donc de comparer les résultats entre le pilote
475 membranaire et le site industriel. La figure 8 représente les spectres de la fibre neuve et des fibres vieilles
476 sur le pilote et sur site industriel à des doses d'exposition au chlore équivalente (26 400 ppm.h pour le site et
477 25 860 ppm.h pour le pilote). Lors d'une précédente étude, R. PRULHO et al. [2013] ont identifié les produits
478 de dégradation de la PVP en contact avec la javel. Il a été démontré que la dégradation de la PVP était
479 provoquée par les radicaux hydroxyles et que son principal produit de dégradation est la succinimide (bande
480 observée à 1770 cm⁻¹). De plus, la formation de bande correspondant à l'acide carboxylique peut être
481 observée entre 1720 et 1730 cm⁻¹ à pH 8 mais à un pH de 12 ces acides carboxyliques sont sous forme de
482 carboxylate (1590 cm⁻¹). M. OLIVEIRA FILHO et al. [2021] ont identifié les produits de dégradation de la
483 PVP, et la possibilité de les identifier sur les spectres de membranes issues de site industriel ou vieilles à
484 l'échelle du laboratoire. Sur site, les auteurs ont constaté une augmentation de la teneur en succinimide
485 (bande à 1700 cm⁻¹) et une apparition d'acide carboxylique (bande à 1730 cm⁻¹). Sur les échantillons dans
486 un état avancé de vieillissement par trempage en laboratoire (500 000 ppm.h), leurs résultats confirment
487 l'apparition des bandes caractéristiques des carboxylates (1590 cm⁻¹) et de la succinimide.

488 Les résultats présentés sur la figure 8 indiquent que la bande caractéristique de la PVP n'a pas totalement
489 disparu à l'échelle pilote contrairement à l'échelle industrielle, bien que son intensité soit fortement réduite
490 en comparaison de la fibre neuve. Dans les deux cas, la bande caractéristique de l'acide carboxylique est
491 apparue. Ceci s'explique par la maîtrise du pH, que ce soit sur site ou sur le pilote. En effet, lors des
492 nettoyages à la javel des fibres du pilote et des fibres sur site, le pH est maintenu à 9. De plus, cette bande

493 caractéristique des acides carboxylique peut être attribuée à un encrassement de la membrane comme l'ont
494 rapporté I. Levitsky et al. [2011].

495 Ainsi, le vieillissement des fibres à l'échelle pilote a provoqué une dégradation de la PVP qui a produit de
496 l'acide carboxylique et ceci est un phénomène qu'il est possible de retrouver sur les fibres du site industriel
497 contrairement à l'échelle laboratoire.



498

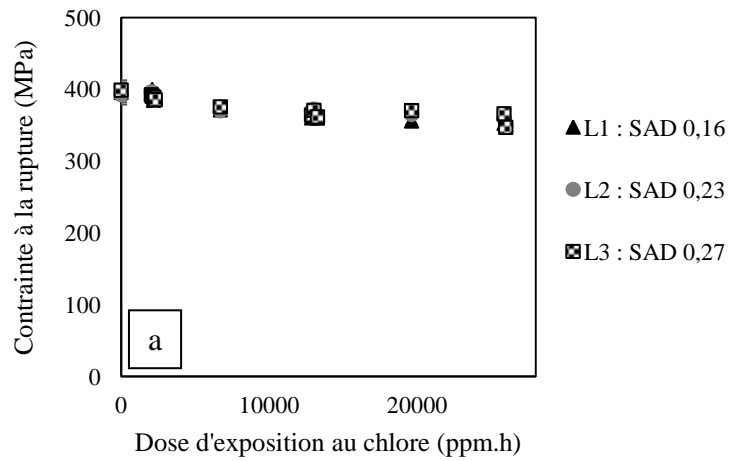
499 Figure 8 : Spectre d'absorbance de fibres neuve, vieillie sur pilote et vieillie sur site

500 2.2.6. Impact de l'aération et évolution des propriétés selon la hauteur de la fibre

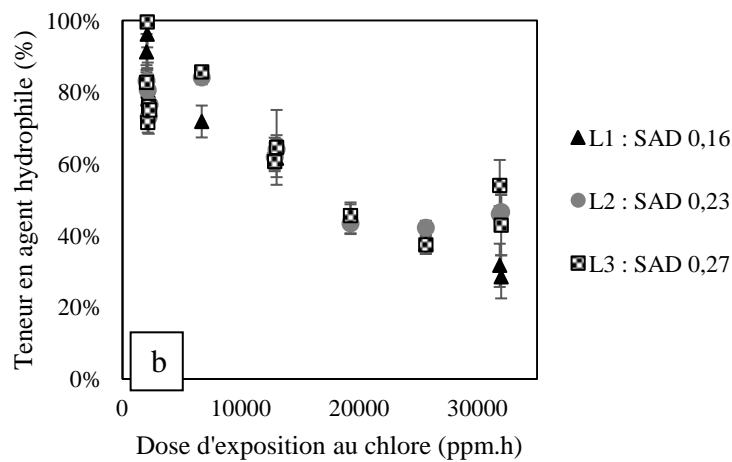
501 Les techniques de caractérisation ont également été mises en œuvre pour suivre l'évolution des propriétés
502 des membranes en fonction de l'aération et le long de la hauteur de la fibre.

503 La figure 9 représente les évolutions de la contrainte à la rupture (9.a), de la teneur en agent hydrophile (9.b)
504 et du rapport de perméabilité (9.c) pour chaque module et donc pour chaque aération différente en fonction
505 de la dose d'exposition au chlore. Ces résultats ne montrent aucun impact significatif sur les performances
506 des fibres du pilote. Ceci peut être lié au fait que les trois demandes d'aération spécifiques sélectionnées
507 étaient dans une gamme resserrée (0,16 - 0,23 - 0,27 m³.m⁻².h⁻¹).

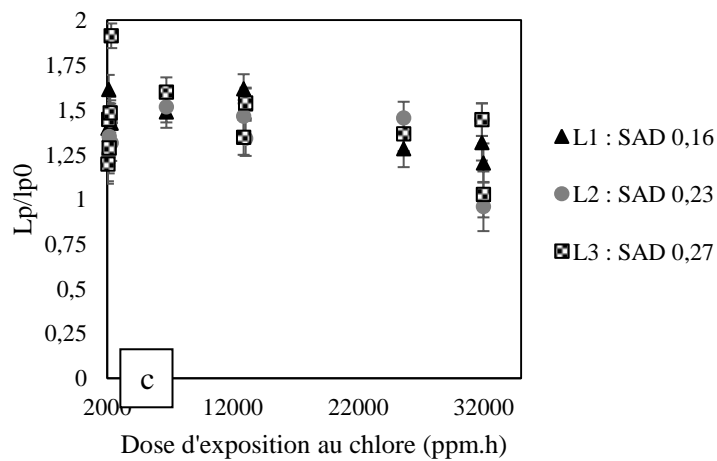
508 De la même manière, aucun impact significatif n'a été observé sur l'ensemble des paramètres caractérisés
509 sur les trois sections des fibres échantillonnées (bas, milieu et haut de fibre - résultats non présentés).



510



511



512

513 Figure 9 : Impact de l'aération (SAD exprimé en $m^3 \text{air} \cdot m^{-2} \text{membrane} \cdot h^{-1}$) sur l'évolution de (a) la contrainte à
 514 la rupture, (b) la teneur en agent hydrophile et (c) la perméabilité des membranes du pilote en fonction de la
 515 dose d'exposition au chlore

516

517

518

519 **Conclusion**

520 L'utilisation d'une cuve de filtration à l'échelle semi industrielle a permis de suivre le vieillissement des
521 membranes dans des conditions similaires à celles appliquées sur site industriel, en ayant une maîtrise des
522 paramètres de fonctionnement, notamment la fréquence des nettoyages, et des prélèvements de fibres.
523 Concernant l'évolution des propriétés des fibres, il a été conclu que l'impact le plus marqué est la diminution
524 de la teneur en agent hydrophile qui entraîne une plus grande propension au colmatage ce qui explique la
525 décroissance de la perméabilité en boue récupérée après nettoyage au cours du temps. Les études
526 réalisées pour suivre l'évolution des propriétés des fibres en fonction de l'aération et selon la hauteur de la
527 fibre ont montré l'absence de variations sur les grandeurs mesurées. Par conséquent, une forte aération de
528 la hauteur de $0,27 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ n'a pas montré d'effet négatif sur le long terme (2 ans de fonctionnement) et
529 peut être une alternative en cas d'épisode de colmatage plus marqué sur site industriel.

530 Concernant la représentativité du protocole de vieillissement sur pilote proposé, les résultats ont prouvé que
531 grâce à l'action simultanée de l'exposition au chlore, des cycles de filtration et de l'aération, le vieillissement
532 obtenu sur pilote est équivalent à celui observé sur site à dose d'exposition au chlore identique. Ce protocole
533 de vieillissement accéléré pourra être utilisé par la suite afin d'aller plus loin dans la compréhension du
534 vieillissement membranaire en conditions réelles mais aussi afin d'aider les STEU dans la sélection de
535 membranes plus performantes à long terme. C'est notamment l'objet de travaux en cours menés dans le
536 cadre du programme de recherche MOCOPEE et financé par l'Agence de l'Eau Seine Normandie. Le
537 protocole présenté dans le cadre de ces travaux sera utilisé afin de vieillir des fibres de façon accélérée et
538 d'étudier leurs évolutions.

539 **Remerciement**

540 Les auteurs tiennent à remercier les équipes techniques du SIAAP, du LGC et de l'INRAE notamment Céline
541 Briand pour son accompagnement tout au long de l'étude.

542 **Bibliographie**

543 A. GRASMICK, C. CABASSUD, M. SPERANDIO, et C. WISNIEWSKI, « Bioréacteurs à membranes et
544 traitement des eaux usées », p. 19, 2007.

545 T. KAKUDA, H. IWASAKI, X. HUANG, et K. KIMURA, « Intensive monitoring of sludge filterability of a pilot-
546 scale membrane bioreactor treating municipal wastewater for better interpretation of fouling », *Journal of*
547 *Water Process Engineering*, vol. 40, p. 101970, avr. 2021, doi: 10.1016/j.jwpe.2021.101970.

548 S. ROBINSON, S. Z. ABDULLAH, P. BÉRUBÉ, et P. LE-CLECH, « Ageing of membranes for water
549 treatment: Linking changes to performance », *Journal of Membrane Science*, vol. 503, p. 177-187, avr. 2016,
550 doi: 10.1016/j.memsci.2015.12.033.

551 M. OLIVEIRA FILHO, R. MAILLER, V. ROCHER, Y. FAYOLLE, et C. CAUSSERAND, « Comprehensive
552 study of supported PVDF membrane ageing in MBR: A direct comparison between changes at bench scale
553 and full scale », *Sep. Purif. Technol.*, vol. 279, p. 119695, déc. 2021, doi: 10.1016/j.seppur.2021.119695.

554 A., FENU, W. DE WILDE, M. GAERTNER, M. WEEMAES, G. DE GUELDRÉ, ET B. VAN DE STEENE.
555 2012. « Elaborating the membrane life concept in a full scale hollow-fibers MBR ». *Journal of Membrane*
556 *Science* 421- 422 (décembre): 349- 54. <https://doi.org/10.1016/j.memsci.2012.08.001>.

- 557 P. COTE, Z. ALAM, et J. PENNY, « Hollow fiber membrane life in membrane bioreactors (MBR) »,
558 *Desalination*, vol. 288, p. 145- 151, mars 2012, doi: 10.1016/j.desal.2011.12.026.
- 559 S. HAJIBABANIA, A. ANTONY, G. LESLIE, et P. LE-CLECH, « Relative impact of fouling and cleaning on
560 PVDF membrane hydraulic performances », *Sep. Purif. Technol.*, vol. 90, p. 204- 212, avr. 2012, doi:
561 10.1016/j.seppur.2012.03.001
- 562 S. ROBINSON et P. R. BÉRUBÉ, « Membrane ageing in full-scale water treatment plants », *Water*
563 *Research*, vol. 169, p. 115212, févr. 2020, doi: 10.1016/j.watres.2019.115212.
- 564 R. PRULHO, S. THERIAS, A. RIVATON, et J.-L. GARDETTE, « Ageing of
565 polyethersulfone/polyvinylpyrrolidone blends in contact with bleach water », *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 98,
566 no 6, p. 1164- 1172, juin 2013, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2013.03.011.
- 567 I. LEVITSKY, A. DUEK, E. ARKHANGELSKY, D. PINCHEV, T. KADOSHIAN, H. SHETRIT, R. NAIM, V.
568 GITIS, Understanding the oxidative cleaning of UF membranes, *J. Membr. Sci.* 377 (1-2) (2011) 206–213,
569 <https://doi.org/10.1016/j.memsci.2011.04.046>.
- 570

Condition opératoire	Pilote			Site
	L1	L2	L3	
Débit d'alimentation (m ³ /h)	12			2 600
Flux de filtration (LMH)	22,11 ± 2,87	20,62 ± 4,35	34,41 ± 5,09	18 à 40
Temps de filtration (min)	11			11
Flux de rétrolavage (LMH)	34			34
Temps de rétrolavage (seconde)	35			35
Débit d'aération m ³ d'air.m ⁻² de membrane.h ⁻¹	0,16 ± 0,08	0,23 ± 0,11	0,27 ± 0,13	0,18 à 0,30
Temps d'aération (seconde)	10 s ON – 10 s OFF			10 s ON – 10 s OFF
Nettoyage de maintenance	Acide : 1 fois par semaine par cuve Javel : 2 fois par semaine par cuve			Acide : 1 fois par semaine par cuve Javel : 2 fois par semaine par cuve
Nettoyage intensif	Javel et acide tous les deux mois			Javel et acide tous les 6mois – 1 an

572 Tableau 1 : Conditions opératoire du pilote et du site industriel

Paramètre	Moyenne	Médiane	Maximum	Minimum
DCO soluble en mg(O ₂)/L	31,9	27,5	96	3
MES en g/L	5,21	5,2	8,9	0,6
O ₂ dissous en mg(O ₂)/L	2,3	1,7	12,1	0,4
pH	7,83	7,9	8,2	6,7
Température en °C	19,1	19,2	24,7	11,6

573 Tableau 2 : Conditions opératoires de la biologie entre 2017 et 2021

Paramètres	Résultats moyens		
	L1	L2	L3
Module			
Aération (L/min)	186,31 ± 10,8	266,12 ± 23,8	311,05 ± 32,8
SAD (m ³ .m ⁻² .h ⁻¹)	0,16 ± 0,08	0,23 ± 0,11	0,27 ± 0,13
J (LMH)	22,11 ± 2,9	20,62 ± 4,3	24,41 ± 5,1
MES (g/L)	6,42 ± 0,6		
pH	7,06 ± 0,3		
Température (°C)	19,22 ± 3,2		

574 Tableau 3 : Moyenne des paramètres globaux du pilote au cours du suivi