HAL
open science

# Etude d'un procédé membranaire de traitement des eaux usées : effet des paramètres biotiques et abiotiques sur le colmatage de la membrane

Amine Charfi

## To cite this version:

Amine Charfi. Etude d'un procédé membranaire de traitement des eaux usées : effet des paramètres biotiques et abiotiques sur le colmatage de la membrane. Sciences de l'ingénieur [physics]. Université de Carthage, 2014. Français. NNT : . tel-01098726v2

**HAL Id: tel-01098726**

**https://hal.science/tel-01098726v2**

Submitted on 9 Jan 2015

**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.

Université de Carthage
***
République Tunisienne
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

# THÈSE
## Pour obtenir le grade de Docteur

**Délivré par UNIVERSITE DE CARTHAGE**

**Préparée au sein de l'école doctorale Sciences et Technologies pour l'Ingénieur (ED-STI)**
**Et du Laboratoire de Modélisation Mathématique et Numérique dans les Sciences de l'Ingénieur (ENIT-LAMSIN)**

**Spécialité : Chimie Appliquée**

**Présentée par Amine Charfi**

# Etude d'un procédé membranaire de traitement des eaux usées : effet des paramètres biotiques et abiotiques sur le colmatage de la membrane

Directeurs de thèse : en Tunisie : Nihel BEN AMAR
en France : Jérôme HARMAND

Soutenue le 19/12/2014 devant le jury composé de

| | | |
|---|---|---|
| Mme Narjes BATIS | Professeur, INSAT | Président |
| M. Sami SAYADI | Professeur, CBS | Rapporteur |
| M. Hamza EL FIL | Maître de conférences, CERTE | Rapporteur |
| M. Hatem KSIBI | Maître de conférences, IPEIS | Examinateur |
| Mme Nihel BEN AMAR | Maître de conférences, INSAT | Directrice de thèse |

Sommaire

**NOMENCLATURE** **5**

**LISTE DES FIGURES** **13**

**LISTE DES TABLEAUX** **17**

**INTRODUCTION GENERALE** **19**

**CHAPITRE I: BIBLIOGRAPHIE** **22**

**INTRODUCTION** **22**

**I.1 FILTRATION FRONTALE** **22**

**I.2 DIFFERENTS MECANISMES DE COLMATAGE** **24**

**I.3. BIOREACTEUR A MEMBRANE ANAEROBIE (BRMAN)** **26**

**I.4. EFFET DES PARAMETRES BIOTIQUES ET ABIOTIQUES SUR LE COLMATAGE DES BRMAN** **26**

I.4.1. NATURE DE LA MEMBRANE 26

I.4.1.1. Matériau de la membrane 26

I.4.1.2. Taille de pores nominale 27

I.4.2. ROLE DES CONDITIONS OPERATOIRES 29

I.4.2.1. Pression Trans-Membranaire (PTM) 29

I.4.2.2. Configuration de la membrane et effet du cisaillement 30

I.4.2.3. Régénération de la membrane 34

I.4.3. ROLE DES CONDITIONS BIOLOGIQUES 34

I.4.3.1. Temps de Séjour des Boues 34

I.4.3.2. Matière solide En Suspension (MES) 35

I.4.3.3. Solides colloïdaux 36

I.4.3.4. Produits microbiens solubles 36

I.4.3.5. Température 37

**I.5. MODELES DE FILTRATION FRONTALE** **38**
I.5.1. MODELES CLASSIQUES DE COLMATAGE 38
I.5.2. MODELES CLASSIQUES COMBINES 42
I.5.3. MODELES CLASSIQUES COUPLES 44
I.5.4. MODELES A FLUX CONSTANT INFERIEUR AU FLUX CRITIQUE 47
I.5.5. MODELES DE RESISTANCES EN SERIES - CAS DE LA FILTRATION FRONTALE 50
**I.6. MODELES DE FILTRATION TANGENTIELLE** **55**
I.6.1. ADAPTATION DES MODELES CLASSIQUES A LA FILTRATION TANGENTIELLE 55
I.6.2. MODELES DE RESISTANCE EN SERIES - CAS DE LA FILTRATION TANGENTIELLE 57
I.6.3. L'APPROCHE PAR SECTION 62
**I.7. MODELES AVEC REGENERATION DE LA MEMBRANE** **64**
**CONCLUSION** **66**

**CHAPITRE II: MODELISATION DE LA FILTRATION** **70**

**INTRODUCTION** **70**
**II.1. IDENTIFICATION DU MECANISME DE COLMATAGE DOMINANT PAR UNE APPROCHE D'OPTIMISATION** **70**
II.1.1. METHODE D'IDENTIFICATION DU MODE DE COLMATAGE 71
II.1.2. TENDANCE GENERALE DU COLMATAGE 75
**II.2. MODELE DU COLMATAGE PAR GATEAU A DEUX PARAMETRES** **87**
II.2.1. HYPOTHESES 87
II.2.2. BILAN DE MATIERE 87
II.2.3. COMPORTEMENT QUALITATIF DU MODELE 89
II.2.4. PREDICTION DES CONDITIONS DE LA PHASE STATIONNAIRE 90
II.2.5. EXTENSION A LA FILTRATION A FLUX CONSTANT 91
**II.3. MODELE DU COLMATAGE DE SURFACE A TROIS PARAMETRES** **92**
II.3.1. HYPOTHESES DU MODELE DE COLMATAGE DE SURFACE A TROIS PARAMETRES 93
II.3.2. FORMULATION MATHEMATIQUE 95
II.3.3. INTEGRATION DU LAVAGE DE LA MEMBRANE 98
II.3.4. INFLUENCE DES PARAMETRES DU MODELE SUR LE COLMATAGE 99
II.3.4.1. Influence des paramètres $k_2$ et $\sigma.S.J_p$ sur la porosité du gâteau 100

II.3.4.2. Influence des paramètres $k_1$ et (S. σ. $J_p$) sur la résistance $R_s$ 100
II.3.4.3. Effet de (S. σ.$J_p$) sur l'évolution simultanée de $R_s$ et de $R_c$ 101
II.3.5. INFLUENCE DES PARAMETRES DU MODELE SUR LA REGENERATION DE LA MEMBRANE 102
**CONCLUSION 105**

**CHAPITRE III: ANALYSE DES MODELES ET VALIDATION 107**

**INTRODUCTION 107**
**III.1. MATERIEL ET METHODES 107**
III.1.1.IDENTIFICATION DU TYPE DE COLMATAGE 107
III.1.2. DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA RESISTANCE SPECIFIQUE DU GATEAU 108
III.1.3. PILOTES ET MEMBRANES UTILISEES 108
III.1.3.1. Pilote de filtration tangentielle à membrane tubulaire (Pilote 1) 108
III.1.3.2. Pilote de filtration tangentielle à membrane plane (Pilote 2) 110
III.1.3.3. Bioréacteur à membrane immergée (Pilote 3) 110
III.1.3.4. Pilote de filtration frontale à membrane plane (Pilote 4) 112
III.1.4. SUSPENSIONS FILTREES 113
III.1.4.1. Les digestats 113
III.1.4.2. Les suspensions de polymères 114
III.1.5. METHODES D'ANALYSE 114
III.1.5.1. Analyse de la concentration de la Matière en suspension 114
III.1.5.2. Analyse de la concentration des polymères 114
III.1.5.3. Analyse de la DCO 115
**III.2. RESULTATS EXPERIMENTAUX 115**
III.2.1. FILTRATION DES DIGESTATS 115
III.2.2.FILTRATION DE SOLUTIONS DE POLYMERES 118
III.2.3. SUIVI DU COLMATAGE DANS UN BIOREACTEUR A MEMBRANE IMMERGEE 120
**III.3. VALIDATION DU MODELE DE COLMATAGE PAR GATEAU A DEUX PARAMETRES 121**
III.3.1. IDENTIFICATION DES PARAMETRES DU MODELE DE COLMATAGE PAR GATEAU A DEUX PARAMETRES 121
III.3.2. CONFRONTATION MODELES ET EXPERIENCES 122

III.3.3. VALIDATION DU MODELE DE COLMATAGE PAR GATEAU A DEUX PARAMETRES MOYENNANT LES DONNEES DE FILTRATION DU POLYMERE PVA 125

**III.4. VALIDATION DU MODELE DE COLMATAGE DE SURFACE A TROIS PARAMETRES 128**

**III.5. ETUDE DE L'EFFET DU CISAILLEMENT 135**

**CONCLUSION 136**

**CHAPITRE IV: COUPLAGE DES MODELES DE COLMATAGE ET DES MODELES BIOLOGIQUES 138**

**INTRODUCTION 138**

**IV.1. FORMULATION DU MODELE 138**

IV.1.1. HYPOTHESES 138

IV.1.2. LES EQUATIONS DU MODELE 141

IV.1.2.1. Phase de filtration 141

IV.1.2.2. Phase de relaxation 143

IV.1.2.3. Phase de retro-lavage 143

**IV.2. SIMULATIONS 144**

IV.2.1. CAS D'UNE FILTRATION EN CONTINU 144

IV.2.1. CAS D'UNE FILTRATION AVEC LAVAGE PERIODIQUE 146

**CONCLUSION 148**

**CONCLUSION GENERALE 149**

**RÉFÉRENCES 152**

**ANNEXE 160**

# Nomenclature

$A_0$ : Surface totale de la membrane (initiale) ($m^2$)

$A$ : Surface de la membrane au cours du temps ($m^2$)

$A_{p0}$ : Surface des pores libres à t=0 ($m^2$)

$A_b$ : Surface bloquée par unité de volume du permeat ($m^{-1}$)

$a_p$ : Rayon des particules

$a_s$ : Rayon des molécules de soluté

$B$ : Constante introduisant l'effet du cisaillement lors du blocage complet ($s^{-1}$)

$B'$ : Constante introduisant l'effet du cisaillement lors du blocage intermédiaire ($s^{-1}$)

$B''$ : Coefficient de transfert de masse ($m^{-2}$)

$b$ : Constante de consolidation de la résistance du gâteau ($m^3.kg^{-2}$)

$b'$ : Paramètre de constriction des pores (kg)

$b_1$ : Coefficient de dégradation des PMS par $X_1$

$b_2$ : Coefficient de production de $S_2$ à partir de PMS

$b_3$ : Coefficient de production de PMS à partir de $S_1$

$b_4$ : Coefficient de production de PMS à partir de $S_2$

$C_{in}$ : Concentration des particules à l'entrée des pores ($kg.m^{-3}$)

$C_0$ : Concentration de l'alimentation ($kg.m^{-3}$)

$C_{gv}$ : Concentration de la couche du gel

$C_s$ : Concentration des composants solubles ($kg.m^{-3}$)

$C_c$ : Concentration des composants colloïdaux ($kg.m^{-3}$)

$C$ : Concentration de la boue ($kg.m^{-3}$)

$C_d$ : Coefficient des forces de trainée et de portance

$C_f$ : Concentration des EPS libres ($kgm^{-3}$)

$C_b$ : Concentration des EPS liés ($kgm^{-3}$)

$C_{sol}$ : Concentration des solutés en solution ($kgm^{-3}$)

$D$ : Coefficient de diffusion

$D_m$ : Diamètre des pores (m)

| | |
|---|---|
| $\widehat{D}$ | : Diamètre de pore normalisé = $D_p/D_0$ |
| $D_0$ | : Diamètre des pores de la membrane propre |
| $D_p$ | : Diamètre des pores de la membrane au cours du temps |
| d | : Diamètre des particules (m) |
| $d_s$ | : Diamètre des solides (m) |
| E | : Epaisseur de la membrane (m) |
| $f_s$ | : Fraction des solides en suspension qui forment le gâteau |
| f’ | : Fraction des protéines qui contribue à la croissance du dépôt |
| $f_p$ | : Fraction des pores libres |
| $G_0$ | : Intensité de cisaillement apparente ($s^{-1}$) |
| $G_i$ | : Intensité de cisaillement au niveau de la section i de la membrane ($s^{-1}$) |
| g | : Gravité moyenne à l’équateur ($m.s^{-2}$) |
| h | : Epaisseur du gâteau (kg) |
| $J_p$ | : Flux de permeat ($L.m^{-2}.h^{-1}$) |
| $J_0$ | : Flux de permeat initial ($L.m^{-2}.h^{-1}$) |
| $J_s$ | : Flux critique pour la loi de filtration sur gâteau ($m.s^{-1}$) |
| $J_c$ | : Flux critique pour la loi du blocage complet ($m.s^{-1}$) |
| $J_{int}$ | : Flux critique pour la loi du blocage intermédiaire ($m.s^{-1}$) |
| $J_i$ | : Flux local à travers la section i de la membrane ($m^3.m^{-2}.jour^{-1}$) |
| $J_{crit}$ | : Flux critique ($L.m^{-2}.h^{-1}$) |
| $J_L$ | : Flux de permeat local ($m^3.m^{-2}.s^{-1}$) |
| $J_{p,end}$ | : Flux de permeat à l’état d’équilibre ($L.m^{-2}.h^{-1}$) |
| k | : Constante du modèle d’Hermia |
| $K_1$ | : Constante de demi-saturation associée au substrat $S_1$ |
| $K_2$ | : Constante de demi-saturation associée au substrat $S_2$ |
| $K_3$ | : Constante de demi-saturation associée au substrat S |
| $k_b$ | : Constante de Boltzman |
| k’ | : Constante ($m^2.mg^2.h^{-1}$) |
| $k_\varepsilon$ | : Constante de décroissance de la porosité du gâteau |
| $k_{sb}$ | : Constante de blocage relative au mode standard ($m^{-3}$) |
| $k_{cb}$ | : Constante de blocage relative au mode Complet ($s^{-1}$) |

$k_{ib}$ : Constante de blocage relative au mode intermédiaire ($m^{-3}$)

$k_{cf}$ : Constante de blocage relative à la filtration par le gâteau ($s.m^{-6}$)

$K_{sb}$ : Constante de blocage relative au mode standard ($m^{-1}$)

$K_{ib}$ : Constante de blocage relative au mode intermédiaire par unité de surface ($m^{-1}$)

$K_{cf}$ : Constante de blocage relative à la filtration par gâteau par unité de surface au carré ($s.m^{-2}$)

$k_a$ : Constante d'adsorption ($s^{-1}$)

$k_a$' : Constante d'adsorption ($kg.s^{-1}$)

$k_d$ : Coefficient de désorption ($s^{-1}$)

$k_b$ : Constante relative au blocage des pores ($m^{-1}$)

$k_c$ : Constante de filtration sur gâteau ($kg.m^{-3}$)

$k_t$ : Constante devrait être en relation à la taille des espèces relevantes ainsi qu'aux propriétés du gâteau

$K_{S,X_{mc}}$ : Constante de demi-saturation

$K_F$ : Paramètre représentant le taux de colmatage lorsque $J_p$ (le flux de permeat) tend vers 0 ($Pa.s^{-1}$)

$K_{ST}$ : Adhérence des particules de biomasse

$k_r$ : Paramètre intermédiaire ($s^{-1}$)

$k_s$ : Paramètre intermédiaire ($kg.m^{-2}$)

$k_s^*$ : Constante de croissance de la résistance de la couche de PMS

$k_\varepsilon$, $k_1$, $k_2$, $k_3$ : Constantes de proportionnalité

$k_1^*$ : Coefficient de dégradation de $S_1$ par $X_1$

$k_2^*$ : Coefficient de production de $S_2$ à partir de $S_1$

$k_3^*$ : Coefficient de dégradation de $S_2$ par $X_2$

$k_4^*$ : Coefficient de production de $CO_2$ à partir de $S_1$

$k_5^*$ : Coefficient de production de $CO_2$ à partir de $S_2$

$k_6^*$ : Coefficient de production de $CH_4$ à partir de $S_2$

$k_7^*$ : Coefficient de production de $CO_2$ à partir de PMS

$k_{d1}$ : Taux de décroissance des acidogènes

$k_{d2}$ : Taux de décroissance des méthanogènes

L : Longueur des pores de la membrane (m)

| | |
|---|---|
| $m'_f$ | : Masse des particules responsables du colmatage |
| $m_s$ | : Masse critique du dépôt des PMS par unité de surface ($g/m^2$) |
| $m_s'$ | : Fraction de masse de soluté retenue dans la membrane ($kg.kg^{-1}$) |
| $m_w$ | : Masse des particules attachées aux murs des pores par unité de surface ($kg.m^{-2}$) |
| $M_{sf}$ | : Masse de la biomasse attachée à la membrane ($kg.m^{-2}$) |
| $m_a$ | : Masse adsorbée dans les pores (kg) |
| m | : Masse des particules interagissant avec la membrane (kg) |
| $m_i$ | : Masse du dépôt irréversible par unité de surface ($kg.m^{-2}$) |
| $m_c$ | : Masse du gâteau accumulé par unité de surface ($g.m^{-2}$) |
| $m_{c,lim}$ | : Masse maximale du gâteau accumulé par unité de surface ($g.m^{-2}$) |
| $m_{in}$ | : Masse des particules entraînées vers la membrane par unité de surface ($g.m^{-2}$) |
| $m_{out}$ | : Masse des particules détachées de la surface de la membrane par les forces de cisaillement par unité de surface ($g.m^{-2}$) |
| $m_p$ | : Masse des particules attachées aux pores des membranes par unité de surface ($kg.m^{-2}$) |
| $m_{pp}$ | : Masse des particules attachées aux autres particules par unité de surface ($kg.m^{-2}$) |
| $m_t$ | : Masse totale des particules retenues par la membrane par unité de surface ($kg.m^{-2}$) |
| $n_p$ | : Nombre de pores ouvert à un instant t |
| $N_p$ | : Nombre de pores |
| $N_m$ | : Densité des pores |
| $N_{FC}$ | : Nombre de filtration critique qui est 11 pour les particules sphériques, uniforme, rigide |
| n, n' | : Constantes empiriques |
| PTM | : Pression transmembranaire (Pa) |
| $PTM_0$ | : Pression transmembranaire initiale (Pa) |
| P' | : Pression transmembranaire au cours du temps ramené à la PTM initiale |
| $\Delta P_c$ | : Pression critique (Pa) |
| Q | : Débit du permeat ($L.h^{-1}$) |
| $Q_0$ | : Débit initial du permeat ($L.h^{-1}$) |
| $Q_{cde}$ | : Débit de destruction du gâteau ($m^3.s^{-1}$) |
| $Q_{in}$ | : Débit d'alimentation ($L.h^{-1}$) |
| $Q_{out}$ | : Débit de permeat ($L.h^{-1}$) |

$Q_w$ : Débit de soutirage des boues ($L.h^{-1}$)

$q_a$ : Intensité d'aération ($L.m^{-2}.s^{-1}$)

$q_{d,max}$ : Vitesse maximale de décapage

$q_{CL,max}$ : Vitesse maximale de détachement par contre lavage

$q_{CI,max}$ : Vitesse de la formation du colmatage irréversible

$R_0$ : Résistance hydraulique intrinsèque de la membrane ($m^{-1}$)

$R_c$ : Résistance du gâteau ($m^{-1}$)

$R_t$ : Résistance total du colmatage ($m^{-1}$)

$R_m$ : Résistance de la membrane (incluant le colmatage interne) ($m^{-1}$)

$R'_m$ : Résistance due aux interactions soluté-membrane (résistance dû au colmatage des pores et l'adsorption)

$R_{p0}$ : Résistance initiale du dépôt (la résistance associée à un seul agrégat)

$R_p$ : Résistance du colmatage des pores ($m^{-1}$)

$R_{sc}$ : Résistance de la couche stable de gâteau ($m^{-1}$)

$R_{sf}$ : Résistance du film dynamique ($m^{-1}$)

$R_a$ : Résistance due à l'adsorption

$R_{osm}$ : Résistance de la pression osmotique

$R_{mc}$ : Résistance de la membrane due à la constriction des pores ($m^{-1}$)

$R'_c$ : Résistance spécifique du gâteau ($m^{-2}$)

$R_s$ : Résistance du dépôt des PMS ($m^{-1}$)

$R_{c,max}$ : Résistance du gâteau à l'état d'équilibre ($m^{-1}$)

$R_i$ : Résistance du colmatage interne ($m^{-1}$)

r : Constante du modèle de Saroj et al. (2008) ($mbar.m^{-2}.L^{-1}.h^{-1}$)

$r_{p0}$ : Rayon initial de pores (m)

S : Concentration des produits microbiens solubles ($g.L^{-1}$)

$S_1$ : Concentration de la matière organique ($g.L^{-1}$)

$S_2$ : Concentration des acides gras volatils ($g.L^{-1}$)

$S_{1in}$ : Alimentation en substrat $S_1$ ($g.L^{-1}$)

$S_{2in}$ : Alimentation en substrat $S_2$ ($g.L^{-1}$)

s : Fraction de masse des solides dans la suspension

$S_p$ : Section des pores ouverts ($m^2$)

| | |
|---|---|
| $T$ | : Température absolue (°k) |
| $t$ | : Temps de filtration (s) |
| $t_c$ | : Temps critique (h) |
| $u$ | : Paramètre de transfert de masse |
| $V_s$ | : Volume accumulé de permeat par unité de surface ($m^3.m^{-2}$) |
| $V$ | : Volume du permeat ($m^3$) |
| $V_f$ | : Production d'eau Durant un cycle de filtration ($m^3.m^{-2}$) |
| $V_w$ | : Production totale d'eau ($m^3.m^{-2}$) |
| $V_R$ | : Volume du réacteur ($m^3$) |
| $X$ | : Concentration des particules en suspension ($kg.m^{-3}$) |
| $X_t$ | : Concentration totale de la biomasse ($g.L^{-1}$) |
| $X_1$ | : Concentration des micro-organismes acidogènes ($g.L^{-1}$) |
| $X_2$ | : Concentration des micro-organismes méthanogènes ($g.L^{-1}$) |
| $X_{mc}$ | : Masse sèche du gâteau à la surface de la membrane (kg) |
| | |
| AGV | : Acides Gras Volatils |
| BRM | : BioRéacteur à Membrane |
| BRMAn | : BioRéacteur à Membrane Anaérobie |
| $DRB_V$ | : Débit du recyclage du biogaz par volume d'effluent d'alimentation ($m^3.h^{-1}$) |
| MES | : Matière En Suspension |
| PMS | : Produits Microbiens Solubles |
| SPE | : Substances Polymériques Extracellulaires |
| TSH | : Temps de Séjour Hydraulique |
| TSB | : Temps de Séjour des Boues |
| | |
| $\alpha$ | : Résistance spécifique du gâteau ($m.kg^{-1}$) |
| $\alpha'$ | : Surface bloquée par unité de masse de colmatants ($m^2.kg^{-1}$) |
| $\alpha_{pm}$ | : Probabilité d'attachement entre particule et membrane |
| $\alpha_{pp}$ | : Probabilité d'attachement entres particules |
| $\beta$ | : Paramètre de cisaillement ($m^2.kg^{-1}$) |
| $\beta'$ | : Coefficient d'érosion du film dynamique (sans dimension) |

| | |
|---|---|
| $\beta_1$, $\beta_2$ | : Constantes |
| $\Gamma$ | : Coefficient de compression du film dynamique de biomasse ($kg.m^{-3}.s^{-1}$) |
| $\gamma$ | : Constante |
| $\gamma_s$ | : masse volumique de la suspension ($kg.m^{-3}$) |
| $\gamma_0$ | : masse volumique des particules ($kg.m^{-3}$) |
| $\dot{\gamma}$ | : Taux de cisaillement ($s^{-1}$) |
| $\gamma_s$ | : masse volumique de la suspension ($kg.m^{-3}$) |
| $\varepsilon_0$ | : Porosité initiale de la membrane |
| $\varepsilon_i$ | : Surface de la membrane accumulée jusqu'à la section i |
| $\varepsilon_a$ | : fraction de la surface de la membrane avec une intensité de cisaillement réduite |
| $\varepsilon$ | : Porosité du gâteau |
| $\theta_f$ | : Période de filtration d'un cycle de fonctionnement (min) |
| $\mu$ | : Viscosité dynamique du permeat (Pa.s) |
| $\mu_b$ | : Viscosité de la boue (Pa.s) |
| $\mu_1$ | : Taux de croissance des bactéries acidogènes au dépond du substrat $S_1$ ($h^{-1}$) |
| $\mu_2$ | : Taux de croissance des bactéries méthanogènes ($h^{-1}$) |
| $\mu_{smp}$ | : Taux de croissance des bactéries acidogènes au dépond du substrat S ($h^{-1}$) |
| $\mu_{max1}$ | : Taux de croissance maximal des bactéries acidogènes au dépond du substrat $S_1$ ($h^{-1}$) |
| $\mu_{max2}$ | : Taux de croissance maximal des bactéries méthanogènes ($h^{-1}$) |
| $\mu_{max3}$ | : Taux de croissance maximal des bactéries acidogènes au dépond du substrat S ($h^{-1}$) |
| $\eta_1$ | : Constante de réduction de la masse du dépôt par rétro-lavage |
| $\eta_2$ | : Constante de réduction de la résistance du biofilm par rétro-lavage |
| $\eta_3$ | : Constante de réduction de la porosité du gâteau par rétro-lavage |
| $\rho_{fe}$ | : Densité de l'alimentation ($kg.m^{-3}$) |
| $\rho_a$ | : Masse volumique de la matière adsorbée ($kg.m^{-3}$) |
| $\rho_g$ | : Densité de la couche du gel ($kg.m^{-3}$) |
| $\rho_s$ | : Densité des solides retenus dans la membrane ($kg.m^{-3}$) |
| $\rho_c$ | : Densité du gâteau ($kg.m^{-3}$) |
| $\rho_b$ | : Masse volumique de la boue ($kg.m^{-3}$) |

| | |
|---|---|
| $\sigma$ | : Fraction des PMS retenus par la membrane |
| $\sigma'$ | : Surface bloquée par unité de masse de particules ($m^2.kg^{-1}$) |
| $\tau$ | : Taux d'érosion du gâteau par unité de surface ($kg.m^{-2}.s^{-1}$) |
| $\Phi_{Ls}$ | : Fraction en volume des larges espèces mobiles à la surface de la membrane |
| $\Phi_{Lb}$ | : Fraction en volume des larges espèces mobiles dans l'alimentation |
| $\Phi_s$ | : Fraction en volume des espèces de taille inférieure à celle des pores |
| $\Phi_c$ | : Fraction du volume du gâteau |
| $\Psi$ | : Facteur de forme des particules (égal à 1pour des particules sphériques) |
| $\Omega$ | : Constante |

# Liste des figures

Figure I. 1: Principe de la filtration membranaire frontale.....23
Figure I. 2: Le colmatage externe et interne d'une membrane .....24
Figure I. 3: Influence de la taille des particules et la taille des pores sur le mécanisme de colmatage .....28

Figure II. 1: L'algorithme de l'optimisation du paramètre K.....73
Figure II. 2: Les données de flux expérimentales (Choo et Lee 1998) et de flux théoriques optimisés pour les différents modes de colmatage.....74
Figure II. 3: Les données de flux expérimentales (He *et al.* 2005) et de flux théoriques optimisés pour les différents modes de colmatage .....74
Figure II. 4: Optimisation du mode de colmatage en supposant un seul mode de colmatage, étude des données de Ho et Sung (2009) .....75
Figure II. 5: Optimisation du mode de colmatage dans le cas de deux phases de colmatage, étude des données de Ho et Sung (2009) .....75
Figure II. 6: Comparaison des données de Saddoud *et al*. (2007) et Zayen *et al*. (2010).....77
Figure II. 7: Rôle des forces de permeation et de cisaillement dans la formation d'un dépôt à la surface de la membrane.....88
Figure II. 8: Simulations de l'évolution de la masse spécifique du gâteau ainsi que le flux de permeat au cours du temps de filtration ($\alpha_1$= $10^{13}$, $\alpha_2$= $10^{14}$m.kg$^{-1}$ and $\beta_1$=10, $\beta_2$=400m$^2$.kg$^{-1}$)....90
Figure II. 9: Les valeurs de la résistance du gâteau et du flux de permeat en fonction de la variation des paramètres α et β.....90
Figure II. 10: Sensibilité des paramètres du modèle α et β .....91
Figure II. 11: Allure de la variation de la PTM à flux de permeat constant pour différentes valeurs de α et β .....92
Figure II. 12: Les différents mécanismes de colmatage.....94
Figure II. 13: L'effet des forces de cisaillement sur la destruction du gâteau durant la filtration tangentielle .....94
Figure II. 14: L'effet de la relaxation sur la régénération de la membrane.....95
Figure II. 15: L'effet du contre-lavage sur la régénération de la membrane.....95

Figure II. 16: Les différentes phases de colmatage considérées dans le modèle .....95
Figure II. 17: La variation de la porosité du gâteau au cours du temps selon la valeur de $k_\varepsilon$ .....100
Figure II. 18: La variation de la PTM au cours du temps selon la valeur de $k_\varepsilon$ .....100
Figure II. 19: Effet de $k_1$ sur la variation de la résistance de la couche mince de polymères .....101
Figure II. 20: Effet de $k_1$ sur l'évolution de la PTM au cours du temps .....101
Figure II. 21: Effet du flux convectif des PMS sur la résistance totale du colmatage à long terme .....102
Figure II. 22: Comparaison de l'importance de la résistance spécifique hydraulique due à la couche de polymères et celle due au gâteau à différentes flux convectifs de PMS durant une filtration à court terme .....102
Figure II. 23: L'efficacité de la relaxation en fonction de sa fréquence .....103
Figure II. 24: Effet de la relaxation sur le colmatage de la membrane .....103
Figure II. 25: L'efficacité du contre-lavage par rapport à sa fréquence .....105

Figure III. 1: Schéma du pilote de filtration tangentielle .....109
Figure III. 2: Procédé membranaire de filtration en mode tangentiel (membrane tubulaire) .....109
Figure III. 3: Les membranes tubulaires et le carter utilisés .....109
Figure III. 4: Pilote de filtration tangentielle (membrane plane) .....110
Figure III. 5: Cellule de filtration tangentielle (membrane plane) .....110
Figure III. 6: Membranes planes céramiques .....110
Figure III. 7: Le pilote du bioréacteur à membrane immergée .....111
Figure III. 8: Le module de membrane plane (Microdyn-Nadir, Germany) .....112
Figure III. 9: Pilote de filtration frontale .....113
Figure III. 10: Variation du flux de permeat lors de la filtration du digestat Agri1 .....117
Figure III. 11: Variation du flux de permeat lors de la filtration du digestat Agri2 centrifugé ...117
Figure III. 12: Variation du flux de permeat lors de la filtration du digestat Agri2 brut .....117
Figure III. 13: Comparaison du flux de permeat lors de la filtration du digestat Agri2 brut et centrifugé par la membrane MF (0,8µm) .....117
Figure III. 14: Enregistrement de la PTM lors de six cycles de filtration en continue séparés par un lavage chimique .....120

Figure III. 15: Enregistrement de la PTM lors d'une filtration discontinue avec des cycles de relaxation et de rétro-lavage ..... 121
Figure III. 16: (A) résultats des deux approches d'identification des paramètres (B, C et D) ajustement du modèle aux données expérimentales de la filtration du digestat brut par les membranes de taille de pores respective 0,05 ; 0,02 et 0,8µm ..... 124
Figure III. 17: Calage du modèle aux données de flux de la filtration du PVA (146_186kDa) avec la membrane (150kDa) à 28mbar ..... 127
Figure III. 18: Calage du modèle aux données de flux de la filtration du PVA (146_186kDa) avec la membrane (50kDa) à 85mbar ..... 127
Figure III. 19: Calage du modèle aux données de flux de la filtration du PVA (146_186kDa) avec la membrane (50kDa) à 220mbar ..... 127
Figure III. 20: Calage du modèle aux données de flux de la filtration du PVA (13_23kDa) avec la membrane (50kDa) à 220mbar ..... 127
Figure III. 21: Ajustement du modèle aux données de la croissance initiale de la PTM ..... 131
Figure III. 22: Ajustement du modèle aux données de la première ainsi que la seconde phase de colmatage ..... 131
Figure III. 23: Ajustement du modèle à des données expérimentales obtenues à différentes conditions opératoires (X=1,5g/L and S=0,16g/L) ..... 132
Figure III. 24: (A) Ajustement du modèle aux données expérimentales obtenues à faible cisaillement (Tableau III.9, expérience 4) (B) Les résistances des différentes couches de colmatage durant un cycle de filtration ..... 133
Figure III. 25: (A) Ajustement du modèle aux données expérimentales obtenues à faible cisaillement (Tableau III.9, expérience 5) (B) Les résistances des différentes couches de colmatage durant un cycle de filtration ..... 134
Figure III. 26: (A) Ajustement du modèle aux données expérimentales obtenues à faible cisaillement (Tableau III.9, expérience 6) (B) Les résistances des différentes couches de colmatage durant un cycle de filtration ..... 134
Figure III. 27: Ajustement du modèle aux données expérimentales obtenues à fort cisaillement (aération à $6m^3/h$) ..... 136

Figure IV. 1: Représentation schématique du modèle AM2b ..... 141

Figure IV. 2: Evolution des bactéries acidogènes lors d'une filtration continue .....145
Figure IV. 3: Evolution des bactéries méthanogènes lors d'une filtration continue .....145
Figure IV. 4: Evolution de la matière organique lors d'une filtration continue.....145
Figure IV. 5: Evolution des AGV lors d'une filtration continue .....145
Figure IV. 6: Evolution des PMS lors d'une filtration continue .....145
Figure IV. 7: Evolution de la masse du dépôt à la surface de la membrane lors d'une filtration continue .....145
Figure IV. 8: Evolution de la porosité du dépôt lors d'une filtration continue .....146
Figure IV. 9: Evolution de la pression trans-membranaire lors d'une filtration continue .....146
Figure IV. 10: Evolution des résistances des différents modes de.....146
Figure IV. 11: Evolution des bactéries acidogènes lors d'un lavage cyclique .....147
Figure IV. 12: Evolution des bactéries méthanogènes lors d'un lavage cyclique .....147
Figure IV. 13: Evolution de la matière organique lors d'un lavage cyclique .....147
Figure IV. 14: Evolution des AGV lors d'un lavage cyclique .....147
Figure IV. 15: Evolution des PMS lors d'un lavage cyclique.....147
Figure IV. 16: Evolution de la masse du dépôt lors d'un lavage cyclique.....147
Figure IV. 17: Evolution de la porosité du dépôt lors d'un lavage cyclique.....148
Figure IV. 18: Evolution de la pression transmembranaire lors d'un lavage cyclique .....148
Figure IV. 19: Evolution de la résistance des différents colmatages .....148

# Liste des tableaux

Tableau I. 1: Les modèles propres à chaque phénomène de colmatage proposées par (Hermia, 1982).....39
Tableau I. 2: Modèles classiques combinés à pression constante (Bolton *et al.*, 2006).....42
Tableau I. 3: Modèles combinés classiques à flux constant (Bolton *et al*., 2006) .....43
Tableau I. 4: Paramètres du modèle d'Hermia .....46
Tableau I. 5: Modèle développé par Saroj *et al.* (2008).....47
Tableau I. 6: Modèle développé par Ognier *et al.* (2004) .....49
Tableau I. 7: Exemple de modèle considérant simultanément les différents phénomènes de colmatage (Katsoufidou *et al.*, 2005) .....53
Tableau I. 8: Equations décrivant le colmatage pour une filtration tangentielle.....56
Tableau I. 9: Modèle proposé par Wu *et al.* (2011) .....57
Tableau I. 10: Exemple de modèle considérant simultanément les différents phénomènes de colmatage (Ho et Zydney, 2000).....61
Tableau I. 11: Modèle développé par Li et Wang (2006) .....62
Tableau I. 12: Stœchiométrie et expressions de la cinétique du modèle de Robles *et al.* (2013) ..65
Tableau I. 13: Récapitulatif des modèles de colmatage proposés dans la littérature .....67

Tableau II. 1: Solutions de l'équation (I.3) pour les différentes valeurs de n .....72
Tableau II. 2: Détermination du mode de colmatage par les valeurs des moindres carrés, exemple des données de Ho et Sung (2009) .....74
Tableau II. 3: Les conditions opératoires des données à court termes utilisant des membranes MF .....78
Tableau II. 4: Les conditions opératoires des données à court termes utilisant des membranes UF .....80
Tableau II. 5: Les conditions opératoires des données à long termes utilisant des membranes MF .....83

Tableau II. 6: Les conditions opératoires des données à long termes utilisant des membranes UF .....84
Tableau II. 7: Conditions opératoires considérées pour étudier l'effet de la relaxation .....104
Tableau II. 8: Les conditions opératoires considérées pour étudier l'effet du contre-lavage .....105

Tableau III. 1: Conditions opératoires des expériences menées sur le BRM immergée.....112
Tableau III. 2: Caractéristiques de l'effluent AGRI 1 brut.....113
Tableau III. 3: Caractéristiques du digestat agricole AGRI2 brut.....114
Tableau III. 4: Type de colmatage dominant lors de la filtration d'une solution de PVA (1g/L) avec le Pilote 2 .....118
Tableau III. 5: Les valeurs optimisées des paramètres du modèle.....125
Tableau III. 6: Résultats de l'ajustement du modèle de la formation de gâteau aux données expérimentales de flux .....126
Tableau III. 7: Les conditions opératoires biologiques du BRM (Pilote 3) .....129
Tableau III. 8: Paramètres du modèle obtenus pour les données de la filtration continue (Expérience1) .....131
Tableau III. 9: Les paramètres du modèle pour une filtration cyclique sous un faible cisaillement (aération $3m^3/h$).....134
Tableau III. 10: Paramètres du modèle pour la filtration cyclique à fort cisaillement.....136

Tableau IV. 1: Réactions considérées dans le modèle AM2b (Ben yahia *et al*., 2013).....139
Tableau IV. 2: Valeurs des paramètres considérés pour les simulations .....144

# Introduction générale

Le traitement des eaux usées repose sur un grand nombre de procédés unitaires ou couplés définis en fonction des caractéristiques des composés polluants contenus dans ces eaux et de la qualité imposée des eaux traitées. Parmi les différentes étapes de traitement, l'opération de clarification d'une eau est une des étapes majeures, elle repose sur des opérations de décantation et/ou de filtration et permet l'élimination des fractions particulaires, voire colloïdales et turbides en associant la séparation à un conditionnement préalable par voie physico-chimique ou biologique des eaux à traiter.

Depuis une vingtaine d'années, les procédés membranaires de micro et ultra filtration apparaissent comme des outils très performants pour assurer cette étape de clarification des eaux. La grande sélectivité de ces membranes permet en effet de retenir aussi les espèces bactériennes, spores, voire virus, assurant ainsi une désinfection poussée des eaux clarifiées et favorisant soit la réutilisation directe des eaux clarifiées soit la mise en place de traitement aval de finition. La limitation du développement de ces procédés membranaires de clarification reste néanmoins liée à la maîtrise de la perméabilité des membranes en cours d'opération. En effet, la barrière sélective que représente la membrane, provoque la rétention des composés à extraire en surface et dans les pores de la membrane, augmentant ainsi la résistance hydraulique du milieu avec soit une augmentation de la pression de transfert si l'on impose un flux de filtration constant, soit une chute du débit d'eau filtré si l'on travaille à pression de filtration constante. Pour rendre le procédé économiquement acceptable, il est impératif de pouvoir contrôler en ligne ce flux de composés retenus sur la membrane en cours d'opération, soit par des lavages périodiques de la membrane nécessitant des arrêts de fonctionnement, soit par une régénération continue en provoquant par exemple des turbulences externes au voisinage des surfaces filtrantes permettant d'éloigner les matières momentanément accumulées sur la membrane (qui créent ce qui est appelé le colmatage membranaire). Pour optimiser une telle opération, il est indispensable d'avoir des outils permettant (i) de quantifier la dynamique du colmatage par des expériences sur unités pilotes et systèmes industriels et (ii) de prédire par simulation cette dynamique au travers d'outils

de modélisation permettant le dimensionnement des unités mais aussi une conduite optimale en cours d'opération.

Plusieurs Modèles mathématiques ont été proposés en débutant par les modèles adaptés au mode frontal et les modèles décrivant des mécanismes de colmatage individuel, plus simple à modéliser. Etant donné que la majorité des procédés de filtration à échelle industrielle adoptent le mode tangentielle et pour s'approcher de la réalité, de nouveaux modèles ont été proposés introduisant l'effet du cisaillement qui caractérise la filtration tangentielle et considérant la simultanéité des mécanismes contribuant au colmatage; ces modèles mettant en jeu un grand nombre de paramètres, restent difficiles à mettre en application. Par ailleurs, peu de modèles considèrent l'effet d'une régénération périodique en ligne (relaxation et contre-lvage par exemple) généralement opérée lors de la filtration sur du long terme (bioréacteurs à membranes notamment).

Ce travail de thèse a donc été axé sur la définition d'un outil de simulation d'une opération de clarification par membranes poreuses pour identifier les mécanismes dominant du colmatage membranaire lors d'opérations définies, quantifier la dynamique de colmatage et optimiser les conditions de travail (conditions de filtration et conditions de régénération en ligne).

Cette thèse s'intéresse particulièrement au BioRéacteur à Membrane Anaérobie (BRMAn) qui est une technologie qui a fait ses preuves dans le traitement des eaux municipales et industrielles. Elle associe (i) le traitement biologique en milieu anaérobie permettant un traitement quasi-total des polluants organiques avec une production d'une source d'énergie (le méthane) et (ii) le traitement membranaire assurant une séparation totale de la phase solide (la biomasse) et la phase liquide (l'eau traitée), permettant l'obtention d'une eau d'une grande pureté.

Le travail réalisé est synthétisé dans ce manuscrit. Il est présenté sous forme de quatre chapitres complémentaires:

- Le premier chapitre est dédié à une revue bibliographique qui présente (i) les principes de base d'une opération de filtration et les principaux mécanismes à l'origine de la baisse de perméabilité du milieu filtrant en cours d'opération, (ii) les outils de modélisation en filtration frontale, (iii) les outils développés pour mettre en avant le rôle d'un cisaillement tangentiel en surface membranaire pour limiter l'accumulation de composés et enfin (iv)

les étapes séquentielles de régénération d'une membrane lorsque la perméabilité minimale a été atteinte.

- Le deuxième chapitre est dédié à la présentation des modèles simples que nous proposons pour représenter l'évolution de la perméabilité membranaire au cours d'une opération de filtration; modèle à deux paramètres puis trois paramètres pour quantifier d'une part le rôle du cisaillement tangentiel et d'autre part la dynamique d'accumulation de composés sur la membrane à l'origine de la baisse de perméabilité. On considérera successivement une seule famille de composés colmatants, puis deux familles distinguées par la taille des composés.
- Le troisième chapitre est dédié à la validation expérimentale des modèles proposés à partir de suspensions définies (suspensions aqueuses contenant des composés minéraux et organiques, particulaires et en solution). Ce chapitre est décomposé en deux parties, la première présente les conditions expérimentales du travail, la seconde les résultats de filtration et l'analyse de la pertinence des modèles proposés pour représenter ces résultats.
- Le quatrième chapitre est dédié à la présentation du modèle approprié à un BRMAn intégrant la dynamique du système biologique et la dynamique du colmatage.

# CHAPITRE I

## Bibliographie

### Introduction

Ce chapitre de bibliographie est dédié à la présentation des différents modèles de colmatage proposés dans la littérature. Dans la première section on présentera le principe de la filtration frontale en tant que procédé de base de la filtration membranaire. Dans la deuxième section on détaillera les principaux mécanismes de colmatage. La troisième et la quatrième section sont dédiées respectivement à l'introduction du BRMAn et à la présentation des différents paramètres biotiques et abiotiques qui influent sur le colmatage dans le BRMAn. La cinquième et la sixième section sont dédiées respectivement aux modèles associés à la filtration frontale et ceux associés à la filtration tangentielle. Dans la dernière section on présentera les modèles de filtration considérant le lavage périodique de la membrane.

### I.1 Filtration frontale

De façon générale, une membrane peut être définie comme étant une couche mince permettant l'arrêt ou le passage sélectif de substances dissoutes ou non, sous l'action d'une force motrice pouvant être un gradient de potentiel électrique (électrodialyse), un gradient de concentration (pervaporation, dialyse) ou encore de pression (osmose inverse, nanofiltration, ultrafiltration, microfiltration). Les critères de séparation des particules, des molécules ou encore des ions peuvent être d'ordre stérique (dimension et forme), chimique (nature) ou encore dépendre de la charge électrique.

La filtration frontale sur support est l'un des principaux modes adoptés en filtration membranaire à côté de la filtration tangentielle et est caractérisée par le passage perpendiculaire du mélange à séparer par convection sous l'action de la différence de pression transmembranaire comme décrit dans la Figure I.1.

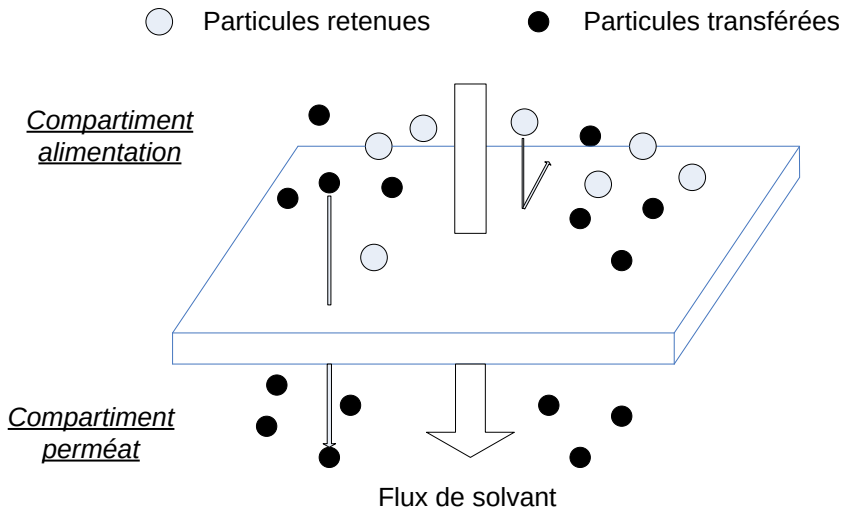



Figure I. 1: Principe de la filtration membranaire frontale

L'efficacité de la filtration est ainsi évaluée en termes de sélectivité et de perméabilité. Pour la microfiltration et l'ultrafiltration, la sélectivité de la membrane est basée sur l'encombrement stérique (les particules ayant une taille supérieure à la taille des pores de la membrane seront retenues par celle-ci). La perméabilité de la membrane est d'autant plus importante que le flux de permeat est élevé. Ce critère est quantifié par la loi de Darcy décrite par l'équation (I.1)

$$J_p = \frac{PTM}{\mu.R} \qquad (I.\ 1)$$

avec

$J_p$ : Flux de permeat ($L.m^{-2}.h^{-1}$)

PTM : Pression trans-membranaire (Pa)

$\mu$ : Viscosité du permeat (Pa.s)

R : Résistance de la membrane ($m^{-1}$).

Lors de la filtration de l'eau déminéralisée, la seule résistance au passage du liquide est assurée par la barrière membranaire. Lors de la filtration d'une suspension, la rétention des éléments en suspension par effet stérique et leur accumulation à la surface et/ou à l'intérieur de la membrane, favorise l'augmentation de la résistance membranaire et par suite la chute de sa perméabilité. Ce phénomène appelé colmatage sera le centre d'intérêt de cette thèse.

I.2 Différents mécanismes de colmatage

Le colmatage peut être défini comme la conséquence des phénomènes résultant du passage de la matière d'une phase liquide (solution à filtrer) à une phase solide (la membrane), formant ainsi un dépôt sur/ou dans la membrane. On distingue le colmatage externe sur la surface de la membrane, du colmatage interne situé dans les pores de la membrane.

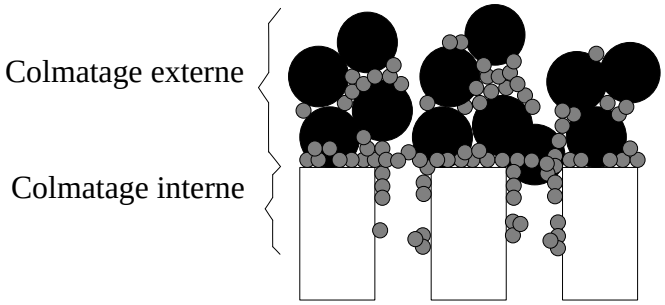



Figure I. 2: Le colmatage externe et interne d'une membrane

On peut distinguer également le colmatage réversible de l'irréversible. D'un point de vue pratique, la partie irréversible est celle dont d'élimination nécessite une procédure chimique. La différence entre le colmatage global et le colmatage irréversible est qualifiée de réversible. C'est donc la partie du colmatage qui est susceptible de disparaître quand la cause est éliminée : pression transmembranaire ramenée à zéro (relaxation), circuit rincé à l'eau.

Il existe plusieurs mécanismes de colmatage, qui dans la pratique, sont généralement présents simultanément. Cependant il est rare que plusieurs mécanismes de colmatage aient une importance égale. L'essentiel est de déterminer celui qui est prépondérant et dans quelles conditions, afin de prendre les mesures aptes à en réduire la cause et/ou l'intensité.

*L'adsorption*

L'adsorption est un phénomène physicochimique qui se produit sous l'effet d'interactions entre certains constituants du fluide et toute surface solide, donc avec la membrane (Caric *et al.* 2000). Elle peut avoir lieu en mettant le fluide au contact de la membrane, avant même que la filtration n'ait commencé et provient majoritairement d'interactions fortes conduisant à des couches irréversibles stables. L'adsorption peut intervenir aussi bien à la surface de la membrane qu'à l'intérieur des pores et contribue ainsi à la fois au colmatage externe et colmatage interne.

L'adsorption sur une membrane dépend de la nature physico-chimique du matériau (les protéines s'adsorbent d'avantage sur une membrane hydrophobe), du type de molécules, du pH (comparé par exemple au point isoélectrique de la molécule) et de présence de cations spécifiques tel que le calcium. D'une manière générale, les paramètres qui favorisent l'adsorption sont les mêmes qui déstabilisent l'espèce dans la solution.

*Dépôt de matière par convection*

Lorsque les fluides contiennent des particules, le flux de convection vers la membrane conduit à un simple phénomène de dépôt (Waeger *et al.*, 2010). Si aucun phénomène n'élimine l'excès de particules à la surface de la membrane (filtration frontale), alors le dépôt croît et le flux de perméat décroît de manière continue au cours du temps. En filtration tangentielle, l'épaisseur du dépôt peut être limitée par les différents phénomènes de transfert dit de retour. Les caractéristiques du dépôt (porosité, densité, stabilité) dépendent des interactions inter-particulaires, de la forme des particules, de leur distribution de taille, du mode d'empilement (aléatoire, orienté par la gravité ou le cisaillement, etc.), du flux et d'une certaine manière de l'âge du dépôt.

*Dépôt de matière par gélification, dénaturation, agrégation, réaction*

Durant la séparation sur membrane, l'apport de matière par convection vers la membrane induit des modifications des conditions physicochimiques (concentration, force ionique, pH, etc.) et du comportement rhéologique du fluide à l'interface membranaire (Ho and Sung, 2009 ; Hong *et al*., 2014). Il peut en découler :

- Des insolubilisations locales, pouvant conduire à la formation d'un gel
- Un « non-écoulement » du fluide à traiter, en effet de nombreux fluides biologiques possèdent, à forte concentration, des seuils d'écoulement, dépendant de la concentration, qui peuvent dépasser la contrainte de cisaillement à la paroi et empêcher la solution de s'écouler
- L'apparition de nouvelles espèces à l'interface membranaire et dans la structure poreuse de la membrane, du fait de différents phénomènes (réaction agrégation colloïdale, dénaturation moléculaire, précipitation minérale, etc.)

L'ensemble de ces phénomènes doit être pris en compte dans les origines du colmatage.

## I.3. BioRéacteur à Membrane Anaérobie (BRMAn)

Le BRMAn est une technologie destinée à traiter les eaux usées industriels et ménagers. Ce procédé consiste à coupler (i) le traitement biologique dans des conditions anaérobies, qui vise l'élimination des polluants organiques tout en produisant du méthane qui est une source d'énergie et (ii) le traitement physique qui vise la séparation des phases solide (la biomasse) et liquide (eaux épurées) grâce à une barrière membranaire de microfiltration ou d'Ultrafiltration.

Le BRMAn a pu s'imposer parmi les technologies du traitement des eaux usées en montrant une grande efficacité (Kang *et al.*, 2002 ; Kanai *et al.*, 2010) en éliminant les polluants organiques à 98% et permettant la réutilisation des eaux traitées.

Le colmatage de la membrane reste le principal inconvénient du BRMAn. Ce phénomène met en jeu des paramètres biotiques liés aux métabolismes des micro-organismes et des paramètres abiotiques liés aux conditions de fonctionnement physico-chimiques du procédé.

## I.4. Effet des paramètres biotiques et abiotiques sur le colmatage des BRMAn

### I.4.1. Nature de la membrane

#### I.4.1.1. Matériau de la membrane

Le type du matériau de la membrane influence le colmatage dans un BRMAn en faisant intervenir deux paramètres qui sont : l'affinité chimique de la membrane aux substances colmatantes induisant leur adsorption au matériau de la membrane et la rugosité de la surface favorisant l'accroche de la matière colmatante. En effet, certaines études ont montré que le colmatage des membranes organiques se fait principalement par formation de gâteau à la surface de la membrane (Kang *et al.*, 2002 ; Choo *et al.*, 2000), ce gâteau est constitué de solides biologiques–organiques susceptibles de s'adsorber sur le matériau organique de la membrane (Choo et Lee, 1996). Pour les membranes organiques, la résistance provenant du colmatage interne des pores dû à l'adsorption des produits particulaires ou solubles à l'intérieur des pores, a été montré moins importante que la résistance due à la formation du gâteau (Choo et Lee, 1996 ; Lee *et al.*, 2001).

Pour les membranes inorganiques, Kang *et al.* (2002) ainsi que Yoon *et al.* (1999) ont trouvé que le colmatage est plutôt attribué au blocage interne des pores qu'à la formation d'un gâteau à la

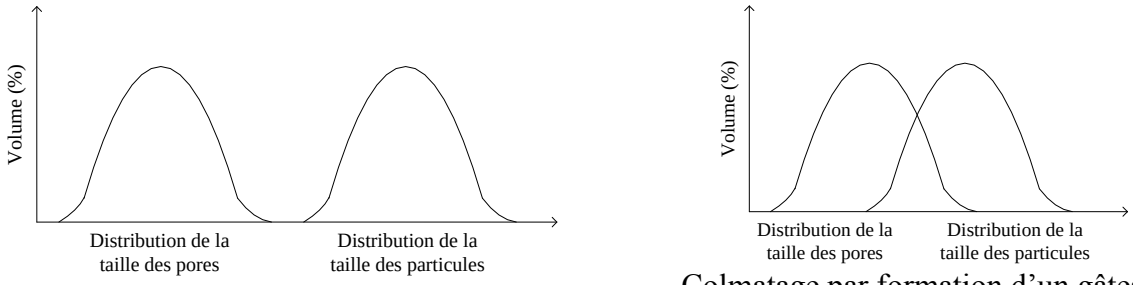
surface de la membrane. Moyennant des observations faites par Microscope Electronique à Balayage (MEB), Yoon *et al.* (1999) ainsi que Choo *et al.* (2000) ont attribué le colmatage interne des membranes inorganiques à la précipitation de la struvite. Kang *et al.* (2002) montrent par ailleurs que le contenu en struvite du colmatant interne dans une membrane inorganique est deux fois plus important que celui observé dans les membranes organiques. Ces résultats sont en quelques sortes contradictoires avec les résultats publiés par Elmaleh et Abdelmoumni (1997) qui n'ont pas observé de colmatage interne en filtrant une biomasse alimenté avec une eau usée synthétique qui ne contient que de l'acide acétique et des nutriments, ainsi que les résultats de Waeger *et al.* (2010) qui montrent que le colmatage dominant pour des membranes inorganiques est dû à la formation d'un gâteau à la surface de la membrane.

La nature hydrophobique de la membrane dans un BRMAn affecte le flux de permeat. Choo *et al.* (2000) démontrent qu'un meilleur flux de permeat est obtenu lorsque la surface de la membrane est hydrophile. Par contre Choo et Lee (1996) qui ont comparé le colmatage de trois membranes à différents matériaux (Polysulfone, cellulosique et fluoropolymère (PVDF)), ont trouvé que la membrane la plus hydrophobe (PVDF) présente le moins de colmatage. Ces résultats suggèrent que l'hydrophobicité de la membrane ne contrôle pas toute seule le colmatage (Choo et Lee, 1996). La charge de la surface de la membrane, affectée par le pH et la force ionique de l'effluent, peut jouer un rôle important dans le colmatage. A part les propriétés chimiques de la membrane, Kang *et al.* (2002) associent la différence du colmatage des membranes organiques et inorganiques aux différences structurales. En effet, les membranes inorganiques possèdent une surface lisse tandis que les membranes organiques ont une surface plus rugueuse et fibreuse qui favorise l'accroche des particules colmatantes. Ghyoot et Verstraete (1997) ont remarqué également que dans un BRMAn le flux de permeat assuré par les membranes en céramique est supérieur au flux assuré avec des membranes organiques.

I.4.1.2. Taille de pores nominale

La taille nominale des pores influence considérablement le mécanisme de colmatage. En effet comme le montre la Figure I.3, lorsque la taille des particules formant l'effluent est supérieure à la taille des pores, ces particules se déposeront sur la surface pour former un gâteau. Par contre lorsque les courbes de distribution de la taille des particules et celle de la distribution de la taille des pores se chevauchent, les particules ayant une taille similaire aux pores vont les bloquer tandis que ceux ayant une taille supérieure aux pores vont former un gâteau. Lee et Choo (1996)

considèrent que le colmatage dépend de la taille des pores de la membrane ainsi que la taille des constituants des digestats. Pour une taille de pores de 0,1 µm, les macro-solutés dont la taille est inférieure à la taille des pores vont facilement passer, contrairement aux colloïdes dont la taille est similaire à la taille des pores et sont en mesure d'entraîner un blocage des pores. Pour une taille de pores légèrement inférieure à 0,1 µm, les macro-solutés peuvent passer et les colloïdes se déposeront sur la surface de la membrane. Pour des tailles de pores inférieures à 0,1 µm, les macro-solutés ainsi que les colloïdes sont totalement retenus par la membrane.




Colmatage par formation d'un gâteau

Colmatage par formation d'un gâteau et blocage des pores

Figure I. 3: Influence de la taille des particules et la taille des pores sur le mécanisme de colmatage

Elmaleh et Abdelmoumni (1997) ont étudié l'effet de la taille des pores dans un BRMAn pour un flux à l'état d'équilibre. Le flux de permeat le plus important dans un BRMAn est associé à un diamètre nominal de pores de 0,45 µm lors de la filtration d'un effluent anaérobie. Par contre lors de la filtration d'un mélange de populations méthanogènes, la taille de pores optimale est à peu près de 0,15 µm. Cette différence indique que la taille de pores optimale est fonction de la population microbienne présente dans l'effluent. He *et al.* (2005) ont étudié quatre membranes planes en polyethersulfone (PES) à différentes tailles de pores (20, 30, 50 et 70 kDa). A court terme (15 min), la chute du flux de permeat est essentiellement due à une polarisation de concentration. Par conséquent, la membrane à pores serrés (20 kDa) présente la chute du flux la plus importante. Par contre, à long terme, la chute du flux est principalement due à la formation d'une couche de colmatage organique et inorganique ce qui entraîne le blocage des pores. La membrane à grand seuil de coupure (70 kDa) présentant un meilleur flux initial est colmatée la première et avec la chute de flux la plus importante (93,7% en 110 jours). Pour les trois autres membranes la chute du flux est similaire, de l'ordre de 70%. En effet He *et al.* (2005) remarquent grâce à des photographies par Microscope à Force Atomique (MFA) que plus le seuil de coupure est important plus la rugosité de la membrane est importante, cette morphologie rugueuse

permettant l'accrochage des matériaux responsables du colmatage. Ces résultats sont cohérents avec les résultats de Wen *et al.* (1999) qui notent que le colmatage est plus important lorsque le flux de permeat est important. La taille de pores influence le mécanisme de colmatage dans un BRMAn. En effet, les membranes MF à large taille de pores favorisent le colmatage interne (Ho et Sung, 2009) et le blocage des pores (Waeger *et al.*, 2010) tandis que les membranes UF à pores serrés favorisent plutôt le dépôt des particules à la surface de la membrane pour former un gâteau (Waeger *et al*., 2010).

### I.4.2. Rôle des conditions opératoires

#### I.4.2.1. Pression Trans-Membranaire (PTM)

Dans un BRMAn, le flux de permeat est contrôlé par différents paramètres que l'on travaille à basse ou haute PTM. A basse PTM comme celles considérées dans les systèmes à membranes immergées, le flux de permeat est contrôlé par la PTM. Sous ces conditions de pression limitée, le flux de permeat croît linéairement avec la PTM appliquée et la vitesse tangentielle n'a pas d'effet considérable sur le flux de permeat (Beaubien *et al*., 1996). Par contre la concentration en MES affecte le flux de permeat et ceci pour des faibles concentrations en MES ($\leq$ 2,5 $g.L^{-1}$) (Beaubien *et al*., 1996). Pour des concentrations importantes, la concentration en MES n'affecte plus le flux de permeat. A une PTM=6,2 kPa, Ho et Sung (2009) observent une chute de la valeur initial de flux en augmentant la MES jusqu'à 6 $g.L^{-1}$, cependant, un meilleur flux stationnaire (6 h de filtration) est noté à une MES de 15-18 $g.L^{-1}$.

Waeger *et al.* (2010) approuvent la filtration à basse PTM dans un BRMAn à membrane externe. En effet, au-delà de 0,5 bar le flux de permeat n'augmente plus avec la PTM.

A des PTM relativement importantes, comme celles utilisées dans les systèmes à membrane externe, le flux de permeat est contrôlé par le transfert de la matière loin de la surface de la membrane. Dans des conditions limitées par le transfert de masse, le flux de permeat est contrôlé par la vitesse tangentielle et la concentration en MES (Beaubien *et al.*, 1996; Padmasiri *et al.*, 2007). Beaubien et *al.* (1996) ont noté une croissance linéaire du flux de permeat en fonction de la vitesse tangentielle le long de la surface de la membrane à haute PTM. D'autre part l'amplitude de la croissance du permeat est inférieure à une concentration élevée en MES. La faible variation peut être due au transfert de masse important vers la membrane et/ou l'augmentation de la viscosité du digestat à des concentrations élevées en MES. Padmasiri *et al.* (2007) ont également

observé une croissance du flux de permeat avec l'augmentation de la vitesse tangentielle dans un BRMAn traitant le lisier de porc. Ceci dit, ils ont noté un plateau au-delà duquel l'augmentation de la vitesse n'entraîne plus l'augmentation du flux de permeat. Ces résultats suggèrent que lorsque la vitesse tangentielle augmente, les limitations imposées par le transfert de masse sont supprimées et le système n'est limité que par la pression. Comme déjà mentionné, le flux de permeat n'est pas affecté par la vitesse tangentielle sous des conditions limitées par la PTM.

Sous des conditions limitées par le transfert de masse, le flux de permeat n'est théoriquement pas affecté par la PTM. Pourtant à haute PTM, Elmaleh et Abdelmoumni (1997) ont noté une décroissance du flux de permeat avec l'augmentation de la PTM. La chute du flux de permeat sous ces conditions a été attribuée à la compressibilité du gâteau.

Bien que le flux de permeat soit fonction de la vitesse tangentielle ainsi que de la concentration en MES pour une haute PTM, la PTM optimale est indépendante de la concentration en MES (Beaubien *et al.*, 1996). La dépendance de la PTM optimale de la vitesse tangentielle est en quelque sorte intuitive car une vitesse tangentielle importante est en mesure d'éliminer le gâteau et permettant la dominance du colmatage interne.

I.4.2.2. Configuration de la membrane et effet du cisaillement

Les deux configurations externe et immergée ont été utilisées dans les BRMAn. Dans un système externe l'effluent à filtrer est pompé du bioréacteur à la membrane. L'eau traitée est collectée du côté permeat de la membrane tandis que la biomasse retenue est recirculée au bioréacteur. La vitesse de recirculation dite aussi vitesse tangentielle ainsi que la Pression Transmembranaire (PTM) adoptée dans la configuration externe sont relativement importants, la vitesse tangentielle va de 1 à 5 $m.s^{-1}$ et la PTM varie de 207 à 690 kPa. Pour la configuration immergée la vitesse tangentielle ainsi que la PTM sont relativement faibles. L'eau traitée est collectée du côté permeat tandis que la biomasse retenue reste dans le bioréacteur. Le gaz est injecté à la base de la membrane. Les bulles de gaz créent un flux ascendant et tangentiel du liquide le long de la membrane. La PTM varie de 21 à 103 kPa et la vitesse tangentielle atteint à peine 0,6 $m.s^{-1}$ (Bérubé et Lei, 2006).

La création de cisaillement au voisinage de la membrane nécessaire à éviter un colmatage rapide de la membrane, est un paramètre essentiel à contrôler d'une configuration à l'autre. Dans la configuration externe le cisaillement est créé par la recirculation de la boue caractérisé par une

vitesse tangentielle. Tandis que dans la configuration immergée c'est le barbotage de l'air ou du biogaz au voisinage de la membrane qui va créer le cisaillement.

Dans un système à membrane externe, la filtration tangentielle permet d'avoir un cisaillement important à la surface de la membrane. Choo et Lee (1998) montrent la possibilité de réduire considérablement la résistance résultante de la polarisation de concentration et du gâteau en augmentant la vitesse tangentielle. Par contre on atteint un plafond à un nombre de Reynolds ≈2000 pour lequel l'augmentation de la vitesse tangentielle n'aura plus d'effet sur la réduction de la résistance (Choo *et al.*, 2000). A la plus haute vitesse atteinte, la résistance du colmatage de surface reste la plus importante de la résistance totale au flux de permeat (Choo et Lee, 1998).

Elmaleh et Abdelmoumni (1997) montrent que la résistance totale du colmatage peut être réduite à un zéro virtuel lorsque la vitesse tangentielle dans une membrane tubulaire dépasse 3 $m.s^{-1}$. Ce résultat suggère que pour ce BRMAn, le colmatage n'est le résultat que du colmatage par gâteau. Le flux de permeat croît linéairement avec l'augmentation du cisaillement dû à la vitesse tangentielle (Elmaleh et Abdelmoumni, 1997), ceci dit le flux atteint un plateau à un certain niveau de cisaillement.

Bourgeous *et al.* (2001) ainsi que Waeger *et al.* (2010) évoque la question du coût énergétique qui augmente avec l'augmentation de la vitesse tangentielle. En effet une augmentation de la vitesse de 1 à 2 $m.s^{-1}$ entraîne une augmentation du flux de permeat de 20% et une augmentation de la consommation de l'énergie de 58%. Waeger *et al.* (2010) trouvent que l'énergie consommée augmente de 30% lorsque la vitesse tangentielle passe de 2 à 3 $m.s^{-1}$ et augmente de 80% en passant à 4$m.s^{-1}$. Sachant que l'augmentation de la vitesse tangentielle améliore le flux de permeat, le choix de la vitesse tangentielle optimale doit se baser sur une comparaison entre l'investissement nécessaire et le coût opérationnel. Waeger *et al.* (2010) estime la vitesse optimale à 3 $m.s^{-1}$.

La vitesse tangentielle peut affecter négativement le flux de permeat dans un BRMAn. Ghyoot et Verstraete (1997) ont indiqué que l'activité de la biomasse peut être affectée par le cisaillement. Choo et Lee (1998) ont indiqué que les forces de cisaillement élevées imposées à l'effluent à des vitesses tangentielles élevées peuvent réduire la taille des particules (Waeger *et al.*, 2010). La taille des particules affecte considérablement le flux de permeat. Choo et Lee (1996) ont suggéré

que les conditions de fort cisaillement dû aux vitesses tangentielles élevées peuvent augmenter la lyse des cellules conduisant à une baisse de l'activité de la biomasse dans un BRMAn (McMahon *et al.*, 2001). Pour un BRM, Kim *et al.* (2001) indiquent qu'un cisaillement important peut entraîner la libération de grandes concentrations d'EPS libres dits aussi Produit Microbiens Solubles (PMS) dans le bioréacteur. Les PMS affectent négativement le flux de permeat dans les BRMAn (Lin *et al.*, 2009 ; Gao *et al.*, 2011).

Dans une configuration immergée, l'augmentation de la quantité de gaz barboté permet d'augmenter le cisaillement au voisinage de la membrane, de même que la vitesse tangentielle pour une membrane externe.

Lee *et al.* (2001) ont indiqué qu'il est possible de maintenir un flux de permeat relativement important dans un BRMAn par barbotage de l'air au-dessous de la membrane immergée, ceci dit les membranes ne peuvent être exposées au barbotage de l'air que 5 s toute les 10 min et ceci car une plus longue aération du milieu engendre des conditions non anaérobie qui va réduire l'activité des bactéries acidogènes. Un barbotage plus long sera nécessaire pour maximiser le flux de permeat dans un BRMAn.

Jeison *et al.* (2008) recirculent le biogaz produit et l'injectent au-dessous des membranes immergées pour créer le cisaillement nécessaire à ralentir le colmatage. Cette étude montre que l'injection du biogaz ne permet pas d'assurer le cisaillement nécessaire pour atteindre un flux critique (au-delà du quel le dépôt commence à s'installer sur la membrane) important, en effet en doublant la vitesse du gaz injecté le flux critique augmente seulement de 1 à 3 $L.m^{-2}.h^{-1}$. En reinjectant le biogaz produit à un débit de 0,75 $L.min^{-1}$, Lin *et al.* (2009) maintiennent un flux de permeat de 7 LMH durant 20 jours d'opération. En dépit de l'injection d'un débit de 5 $L.min^{-1}$ de biogaz, Trzcinski *et al.* (2009) notent une chute de flux de permeat de 8 à 0,8 LMH à cause de la croissance de la concentration en matière en suspension de 2 à 30 $g.L^{-1}$. A des concentrations élevées en MES il serait nécessaire d'injecter un débit supérieur de biogaz, ceci dit ce débit présente un seuil au-delà duquel le flux critique ne croît plus. Jeison et Van lier (2007) trouvent pour une MES de 40 $g.L^{-1}$ et une vitesse du biogaz injecté de 50-60 $m.h^{-1}$, un flux critique de 20 LMH et notent qu'au-delà de cette vitesse, le flux critique n'augmente plus. Pour contrôler le colmatage Martinez-sosa *et al.* (2012) ajoutent au barbotage du biogaz, une recirculation de la boue au voisinage de la membrane.

La différence des conditions hydrodynamiques entre les deux configurations affecte les caractéristiques du digestat dans un BRMAn. Dans la configuration externe présentant des cisaillements plus importants la taille des particules serait plus petite. En effet, dans un BRMAn, une variation de la vitesse tangentielle de 0,1 à 0,7 $m.s^{-1}$ entraîne une diminution de la taille moyenne des particules de 56 à 44 µm (Ho et Sung, 2009). Ceci dit la distribution de la taille des particules dans BRMAn mésophile aussi bien dans la configuration externe ou immergé varie entre 10 et 100 µm (Lin *et al.*, 2009 ; Ho et Sung, 2009 ; Waeger *et al.*, 2010).

Bérubé et Lei (2006) démontrent que le contact physique entre les membranes ayant lieu dans les systèmes immergés qui est fonction de la densité du conditionnement de la membrane, affecte considérablement le flux de permeat.

Hu et Stuckey (2006) ont étudié deux différentes configurations de membranes immergées : une membrane à fibres creuses et un module de membranes planes ayant la même surface, même taille de pores et fabriquées du même matériau. Soumis à un barbotage de biogaz de 5 $L.min^{-1}$, la membrane à fibres creuses présente une PTM plus importante. Le cisaillement créé par le barbotage est plus efficace pour le module de membranes planes.

Pour les BRM aérobie la plupart des installations commercialisées sont de configuration immergée dû à son faible coût énergétique, par contre pour le BRMAn, la plupart des études menées adoptent la configuration externe (Liao *et al.*, 2006)

Le lavage physique consiste principalement en deux opérations (i) la relaxation avec arrêt de la filtration permettant la rétrodiffusion de la matière attaché à la membrane par différence de gradient de concentration et (ii) le rétro-lavage qui consiste à renvoyer le permeat dans le sens inverse de celui de la filtration en vue de détruire mécaniquement le dépôt réversible formé à la surface de la membrane. L'optimisation du rétro-lavage est directement liée à l'optimisation de sa fréquence et de son intensité. Jiang *et al.* (2005) trouvent que pour un BRM un rétro-lavage plus long et moins fréquent (600 s de filtration/45 s de rétro-lavage) est plus efficace qu'un rétro-lavage plus fréquent (200 s de filtration/15 s de rétro-lavage). L'air peut être utilisé en rétro-lavage aussi bien pour des BRM aérobie (Visvanathan *et al.* 1997) que pour des BRM anaérobie (Lee *et al.* 2001), sachant que pour ceci, la quantité d'air injecté ne doit pas affecter les conditions anaérobie du traitement. Lors de la relaxation l'application d'un cisaillement par

l'injection de l'air ou la recirculation de l'effluent lors d'une filtration tangentielle, est en mesure d'améliorer l'efficacité de régénération. Wen *et al.* (1999) ont étudié plusieurs scénarii de relaxation avec des périodes de filtration entre 2 et 8 min et de relaxation entre 0,5 et 2 min. Leurs résultats indiquent que le flux de permeat est le plus élevé à un temps de filtration intermédiaire (4 min) et un temps intermédiaire de relaxation (1 min).

I.4.2.3. Régénération de la membrane

En vue d'éliminer le colmatage irréversible dans un BRM, un lavage chimique est nécessaire pour régénérer la membrane. Un lavage par une solution basique permet d'éliminer les dépôts organiques tandis qu'un lavage par une solution acide permet d'éliminer les dépôts inorganiques (Lee *et al.*, 2001).

Ceci dit certaines études ont noté la possibilité du recouvrement du flux de permeat d'une membrane organique par un contre-lavage par une solution acide (Choo *et al.*, 2000 ; Kang *et al.*, 2002) ou bien avec une solution caustique suivi d'un lavage acide (Lee *et al.*, 2001). En considérant que le colmatage des membranes organiques est attribué essentiellement au dépôt d'un gâteau formé de biomasse et de struvite et qu'un lavage acide permet une totale régénération de la membrane (Kang *et al.*, 2002). Ces résultats suggèrent que l'élimination de la struvite permet le recouvrement du flux de permeat.

Par ailleurs, certaines études ont noté que ce n'est pas tout le temps possible de rétablir le flux de permeat d'une membrane inorganique par contre-lavage avec une solution acide (Choo *et al.*, 2000 ; Kang *et al.*, 2002 ; Yoon *et al.*, 1999). Ces résultats sont en quelque sorte contre intuitifs car le colmatage interne des membranes inorganiques a été principalement attribué à la struvite (Kang et *al.*, 2002 ; Yoon et *al.*, 1999) soluble dans des conditions acides. Kang et *al.* (2002) ont attribué le faible recouvrement observé lors du contre-lavage par une solution acide à la charge positive de la membrane inorganique adopté lors du lavage acide. Ils ont suggéré que la charge positive entraîne des attractions entre la surface de la membrane et les différents solutés dans le digestat.

I.4.3. Rôle des conditions biologiques

I.4.3.1. Temps de Séjour des Boues

Trzcinski et Stuckey (2010) ont traité des déchets solides municipaux à l'aide de deux BRMAn immergés équipés de la même membrane plane MF de *kubota* et des biomasses de concentrations

en MES similaires (4,4 et 5,2 $gMES.L^{-1}$). Les expériences ont été menées à deux Temps de Séjour des Boues (TSB) différents (30 et 300 jours). Ils observent que la matière organique est faiblement hydrolysée avec un court SRT: ceci entraîne une hausse de la concentration de la matière organique dans le réacteur et une croissance lente des bactéries. Ainsi l'accumulation de la matière organique entraîne l'encrassement de la membrane (Nghiem *et al.*, 2006). Par ailleurs, à un court TSB, la concentration des Substances Polymériques Extracellulaires (SPE) croît dans le réacteur et vu que ces produits favorisent la flocculation, la biomasse apparaîtra sous forme de gros flocs qui seront responsables du colmatage de surface. La concentration des SPE diminue dès que la TSB augmente (Massé *et al.*, 2006). Ainsi, en augmentant le TSB, la décroissance de la concentration en SPE entraîne la diminution de la taille des flocs de biomasse et aussi la hausse du nombre de micro-organismes dispersés (Trzcinski et Stuckey, 2010), capable d'entrer dans les pores de la membrane et causer leur constriction.

I.4.3.2. Matière solide En Suspension (MES)

Dans un BRMAn la concentration en matière en suspension est supposée égale à la concentration en micro-organismes qui forment des flocs de taille entre 0,1 et 1 mm (Lin *et al.* 2009). Ces flocs seront totalement retenus par les membranes de microfiltration et d'ultrafiltration généralement utilisées dans un BRM et formeront un gâteau sur la surface de la membrane qui serait responsable de son colmatage. Les micro-organismes possèdent une surface hydrophobe (Nomura *et al.*, 2007) qui favorise leur adhésion aux membranes hydrophobes.

Ho et Sung (2009) ont associé la concentration en MES au mécanisme de colmatage. En effet pour une concentration inférieure ou égale à 10 $gMES.L^{-1}$ le colmatage de la membrane serait dû à la constriction des pores alors que pour des concentrations supérieures à 25 $gMES.L^{-1}$ le colmatage serait dû à la formation d'un gâteau sur la surface de la membrane. Ces résultats coïncident avec ceux de Jeison *et al.* (2008) qui en filtrant des digestats anaérobies à des concentrations allant de 10 à 40 $gMES.L^{-1}$ aussi bien dans des conditions mésophiles que des conditions thermophiles, trouvent que le colmatage est dû principalement à la formation d'un gâteau.

La biomasse concentrée favorise la flocculation et par la suite la formation d'un dépôt. Par contre, pour une boue diluée les particules accèdent plus facilement aux pores de la membrane ce qui entraîne leur blocage rapide.

I.4.3.3. Solides colloïdaux

Choo et Lee (1996, 1998) ont noté que les colloïdes fins jouent un rôle important dans l'augmentation de la résistance hydraulique du gâteau formé dans un BRMAn. La rétrodiffusion des colloïdes fins est moins importante que celle des larges particules. Choo et Lee (1998) ont suggéré que suite à cette faible rétrodiffusion, les colloïdes fins auront tendance à s'accumuler sur la surface de la membrane plus que les larges particules. De plus ils ont suggéré que les petites particules forment un gâteau encore plus dense. Choo et Lee (1996) ont également noté que la résistance du dépôt créée par les colloïdes est supérieure à celle des dépôts créés par les particules solubles et les micro-organismes présents dans un digestat anaérobie. En se basant sur ces résultats ils spéculent qu'une amélioration du flux de permeat peut être obtenue en dégradant les colloïdes en matériaux solubles ou bien par agglomération des colloïdes en grosses particules.

Langenhoff *et al.* (2000) ont observé que la production des PMS dans un bioréacteur anaérobie conventionnel alimenté d'une eau usée synthétique est plus importante lorsque son contenu en colloïdes est important. La production des PMS est en mesure d'augmenter le colmatage.

I.4.3.4. Produits microbiens solubles

Au cours de leurs métabolismes les micro-organismes produisent à leur surface des SPE souvent considérés comme des protéines et des polysaccharides. Ces substances sont libérées aussi dans le milieu vivant et forment ainsi les SPE non-liés appelés également produits microbiens solubles (Laspidou et Rittmann, 2002). Les SPE et les PMS sont considérés comme les principaux responsables du colmatage des membranes (Lin *et al.*, 2009). En effet, les SPE permettent aux micro-organismes d'adhérer aux membranes et de former également des agrégats conduisant au développement d'un biofilm (Gao *et al.*, 2010).

Les PMS ne sont pas identifiés avec précision. Ceci dit ils sont considérés comme étant de la matière organique soluble issue du métabolisme et du décès des micro-organismes. Certaines études ont identifié les PMS comme étant des protéines, polysaccharides, acides humiques, des acides aminés, des antibiotiques, des enzymes extracellulaires etc. Zhou *et al.* (2009) trouvent que les principaux PMS dans un effluent anaérobie sont de longues chaines de polysaccharides et d'esters représentant 55-65% de la matière organique totale. Les PMS anaérobies sont plus complexes que les PMS aérobies. Dans un digesteur anaérobie les méthanogènes présentent les principaux consommateurs de PMS (Zhou *et al.*, 2009). Zhang *et al.* (2006) montrent que la

concentration des PMS décroit lorsqu'on augmente le TSB. Par ailleurs, Lin *et al.* (2009) ont trouvé que la concentration en PMS augmente dans des conditions thermophiles. Langenhoff *et al.* (2000) ont rapporté que pour un bioréacteur anaérobie conventionnel traitant des eaux usées synthétiques, les concentrations en PMS sont plus importantes à des Temps de Séjour Hydraulique (TSH) plus courts ainsi que lorsque le réacteur est alimenté avec des matériaux colloïdaux. Il est ainsi possible de contrôler la concentration en PMS en optimisant les paramètres opératoires.

I.4.3.5. Température

La viscosité de l'eau diminue avec la température; augmenter la température peut donc apparaître favorable à la filtration. Jeison et Van Lier (2008) ont ainsi comparé les caractéristiques des digestats anaérobies dans un BRMAn thermophile et un BRMAn mésophile. Dans les conditions thermophiles la boue anaérobie est caractérisée par des particules de petite taille susceptibles de se déposer sur la membrane pour former un dépôt dense ce qui entraîne un faible flux critique de 6-7 LMH. Par contre dans des conditions mésophile, avec des particules plus larges, le flux critique obtenu est de 20 LMH.

Lin et *al.* (2009) trouvent que la résistance de la membrane dans le BRMAn est 5 à 10 fois plus importante que dans BRMAn mésophile. La comparaison des digestats ainsi que la structure du gâteau formé dans les deux réacteurs révèlent que les conditions thermophiles favorisent la production des PMS, des SPE, biopolymères et des flocs fins à des tailles inférieures à 15 µm. Le gâteau formé dans le BRMAn thermophile est caractérisé par une structure plus dense formé de petites particules et est plus riche en colmatants organiques et inorganiques que dans le cas mésophile. Les conditions thermophiles favorisent un colmatage aigu.

Jeison et Van Lier (2006) ont comparé l'influence de la concentration de la biomasse et le barbotage de biogaz sur la valeur du flux critique. Ils notent que dans des conditions mésophiles (30 °C) où la valeur du flux critique varie de 5 à 21 LMH, l'influence de la concentration de la biomasse est trois fois plus importante que la vitesse du gaz barboté. Sous des conditions thermophiles (55°C), le flux critique varie entre 16 et 23 LMH bien que la vitesse de barbotage soit inférieure de 50% que dans le cas mésophile. L'effet de la concentration en biomasse ainsi que la vitesse de barbotage sur le flux critique est beaucoup moins important que dans le cas mésophile.

## I.5. Modèles de filtration frontale

### I.5.1. Modèles classiques de colmatage

Les modèles classiques décrivent quatre mécanismes de colmatage à savoir le blocage complet, le blocage intermédiaire, la constriction des pores (appelé aussi le blocage standard) et le colmatage par gâteau. Le modèle de constriction des pores considère le rétrécissement des pores à cause de l'adsorption des particules sur le mur des pores. Le modèle de blocage intermédiaire est basé sur la probabilité de bloquer un pore par une particule arrivant vers la membrane. Le modèle de blocage complet suppose que chaque particule se déposant sur la membrane bloquera un pore. Le modèle du colmatage par gâteau suppose un encrassement de la membrane par formation d'un gâteau à la surface. Ces différents mécanismes peuvent être associés aux différents colmatants présents dans un BRMAn. En effet, basé sur la taille des colmatants, on associe la matière solide en suspension au colmatage par gâteau, les colloïdes au blocage complet et matière soluble à la constriction des pores (Wu *et al.*, 2011).

Les modèles classiques de colmatage apparaissent sous plusieurs formes fonctionnelles. Les équations les plus utilisées peuvent être conventionnellement exprimées par l'équation (I. 2) ou bien l'équation (I. 3)

$$\frac{d^2t}{dV^2} = k\left(\frac{dt}{dV}\right)^n \qquad \text{(I. 2)}$$

avec :

V : Volume du permeat ($m^3$)

t : Temps de filtration (s)

k : Constante du modèle d'Hermia

n=3/2 pour le blocage standard, n=2 pour le blocage complet, n=1pour le blocage intermédiaire, n=0 pour la filtration par le gâteau.

$$\frac{dJ_p}{dt} = -k.J_p.\left(J_p\,A_0\right)^{2-n} \qquad \text{(I. 3)}$$

avec :

$$J_p = \frac{1}{A_0}\frac{dV}{dt} \qquad \text{(I. 4)}$$

$J_p$ : Flux de permeat ($L.m^{-2}.h^{-1}$)

$A_0$ : Surface totale de la membrane ($m^2$).

Le Tableau I.1 présente les expressions mathématiques des différentes lois de filtration décrivant le débit du permeat en fonction du temps pour chaque mode de colmatage : le blocage complet, le blocage standard, le blocage intermédiaire et la filtration par le gâteau. Ces différentes expressions présentées par (Hermia, 1982) peuvent être exprimées par l'équation I.3, équation différentielle commune appliquée dans le cas d'une filtration à pression constante.

Ces modèles définis pour une filtration frontale, sont également utilisés en cas de filtration tangentielle (Ho et Sung, 2009).

L'allure des courbes expérimentales peut faciliter la détermination des phénomènes intervenant dans le colmatage. Cependant, certains de ces modèles sont basés sur des hypothèses présentant des limites majeures, tels que la géométrie droite et cylindrique des pores de la membrane qui est une hypothèse simpliste et peu réaliste. Ainsi que l'hypothèse qu'aucun phénomène ne vient contre balancer la convection vers le filtre

Tableau I. 1: Les modèles propres à chaque phénomène de colmatage proposées par (Hermia, 1982)

| Mode de colmatage | Equations | Hypothèses considérées |
|---|---|---|
| Blocage Standard $k_{sb} = \frac{2\,X}{\rho_s \pi\, e\, r_{P0}^2 N_P}$ | $Q = \frac{Q_0}{(1+1/2.k_{sb}.Q_0.t)^2}$ (I. 5) | - Alimentation concentrée en solutés de taille inférieure aux pores<br>- Une membrane avec un ensemble de pores cylindriques réguliers<br>- le volume des pores décroît proportionnellement au volume du permeat dû à l'adsorption et la désorption des solutés sur le mur des pores<br>- la résistance de la membrane augmente suite à la réduction de la taille des pores |

| | | |
|---|---|---|
| Blocage Complet<br>$k_{cb} = \frac{Q_0\ A_b}{A}$ | $Q = Q_0 . \exp(-k_{cb} . t)$ **(I. 6)** | - Flux d'alimentation très dilué<br>- Chaque soluté qui atteint la membrane participe au colmatage en bouchant les pores sans superposition des solutés<br>- La fraction de pore complètement bouchée par les solutés est proportionnelle au flux de permeat<br>- Une décroissance exponentielle du débit est trouvée |
| Blocage Intermédiaire<br>$k_{ib} = A_b / A_{P0}$<br>$A_{p0} = \frac{\mu\ R_0\ Q_0}{PTM_0}$ | $Q = \frac{Q_0}{(1+k_{ib}.Q_0.t)}$ (I. 7) | - chaque soluté peut atteindre la membrane à tout point : Il peut se déposer à la surface, sur un autre soluté déjà déposé ou bien pourrait bloquer un pore<br>- Des solutions diluées avec des solutés et des pores ayant à peu près la même taille. |
| Filtration par le gâteau<br>$k_{cf} = \frac{\alpha\ X\ \mu}{A^2\ PTM_0}$ | $Q = \frac{Q_0}{\sqrt{(1+2.k_{cf}.Q_0{}^2.t)}}$ (I. 8) | - les macromolécules, colloïdes ou agrégats se déposent sur la surface de la membrane en formant un gâteau qui va entraîner une augmentation de la résistance hydraulique de la membrane<br>- Une alimentation encore plus concentrée avec des tailles de solutés supérieure à la taille des pores. |

avec :

$k_{sb}$ : constante de blocage relative au mode standard ($m^{-3}$)

$k_{cb}$ : constante de blocage relative au mode Complet ($s^{-1}$)

$k_{ib}$ : constante de blocage relative au mode intermédiaire ($m^{-3}$)

$k_{cf}$ : constante de blocage relative à la filtration par le gâteau ($s.m^{-6}$)

$Q$ : débit du permeat

$Q_0$ : débit initial du permeat

PTM : Pression transmembranaire (Pa)

$PTM_0$ : Pression transmembranaire initiale (Pa)

$A$ : Surface de la membrane ($m^2$)

$A_{p0}$ : Surface des pores libres à t=0 ($m^2$)

$A_b$ : Pouvoir colmatant de la solution (surface bloquée par unité de volume du permeat) ($m^2.m^{-3}$).

$R_0$ : Résistance intrinsèque de la membrane ($m^{-1}$)

$X$ : Concentration des particules en suspension ($kg.m^{-3}$)

$e$ : Epaisseur de la membrane (m)

$r_{p0}$ : Rayon initial de pores (m)

$N_p$ : Nombre de pores

$\alpha$ : Résistance spécifique du dépôt ($m.kg^{-1}$)

$\mu$ : Viscosité dynamique du permeat (Pa.s)

$\rho_s$ : Densité des solides retenus dans la membrane ($kg.m^{-3}$)

Pris individuellement, ces modèles ne permettent pas de rendre compte de l'ensemble d'une opération de filtration, dans laquelle peuvent se succéder différents phénomènes de colmatage. Ils n'envisagent pas non plus, la simultanéité des mécanismes de colmatage. La représentation de données ne peut donc donner accès qu'au mécanisme dominant.

Le terme $A_b$ indiquant le pouvoir colmatant de la solution (surface bloquée par unité de volume du permeat) est déterminé à partir de l'équation (I.9) proposée par (Hermia, 1982) pour des suspensions diluées ($s \leq 0{,}1\%$).

$$A_b = \frac{1.5\,\gamma_s\,s}{\gamma_0\,d\,\psi} \qquad \text{(I. 9)}$$

avec :

$d$ : diamètre des particules (m)

$s$ : fraction de masse des solides dans la suspension

$\gamma_s$ : masse volumique de la suspension ($kg.m^{-3}$)

$\gamma_0$ : masse volumique des particules ($kg.m^{-3}$)

$\psi$ : facteur de forme des particules (égal à 1pour des particules sphériques).

I.5.2. Modèles classiques combinés

Dans certains cas étudiés la chute du flux ne suit aucun des modèles classiques de colmatage (Bowen *et al.*, 1995). Dans ces cas, la combinaison de ces modèles pourrait probablement décrire les résultats.

De Bruijn *et al.* (2005) ont pris en considération la simultanéité des phénomènes de blocage et ont attribué un degré de participation au colmatage à chaque mécanisme, traduit par un coefficient qui varie entre 0 et 1.

Bolton *et al.* (2006) ont écrit cinq modèles qui combinent les modèles classiques de colmatage. Des équations explicites sont ainsi obtenues. Elles décrivent le volume de permeat en fonction du temps à pression constante (Tableau I.2) et la pression en fonction du temps à flux constant (Tableau I.3). Chacun de ces modèles renferme deux paramètres à optimiser et sont réduit aux modèles individuels en cas d'absence du second mécanisme de colmatage.

Tableau I. 2: Modèles classiques combinés à pression constante (Bolton *et al.*, 2006)

| Les mécanismes décrits | Equations |
|---|---|
| Formation de gâteau, blocage complet | $V = \frac{J_0}{K_{cb}}\left(1 - \exp\left(\frac{-K_{cb}}{K_{cf}\,J_0^2}\left(\sqrt{1 + 2K_{cf}\,J_0^2\,t} - 1\right)\right)\right)$ (I. 10) |
| Formation de gâteau, blocage intermédiaire | $V = \frac{1}{K_{ib}}\ln\left(1 + \frac{K_{ib}}{K_{cf}\,J_0}\left((1 + 2\,K_{cf}\,J_0^2\,t)^{1/2} - 1\right)\right)$ (I. 11) |
| Blocage complet, blocage standard | $V = \frac{J_0}{K_{cb}}\left(1 - \exp\left(\frac{-2\,K_{cb}t}{2+K_{sb}J_0\,t}\right)\right)$ (I. 12) |
| Blocage intermédiaire, blocage standard | $V = \frac{1}{K_{ib}}\,\ln\left(1 + \frac{2\,K_{ib}J_0\,t}{2+K_{sb}\,J_0\,t}\right)$ (I. 13) |
| Formation de gâteau, blocage standard | $V = \frac{2}{K_{sb}}\left(\delta_1\cos\left(\frac{2\pi}{3} - \frac{1}{3}\arccos(\delta_2)\right) + \frac{1}{3}\right)$ (I. 14) |

| | |
|---|---|
| | $\delta_1 = \sqrt{\frac{4}{9} + \frac{4\,K_{sb}}{3\,K_{cf}J_0} + \frac{2\,K_{sb}{}^2 t}{3\,K_{cf}}}$ (I. 15)<br>$\delta_2 = \frac{8}{27\,\delta_1{}^3} + \frac{4\,K_{sb}}{3\,\delta_1{}^3 K_{cf}J_0} - \frac{4\,K_{sb}{}^2 t}{3\,\delta_1{}^3 K_{cf}}$ (I. 16) |

Tableau I. 3: Modèles combinés classiques à flux constant (Bolton *et al*., 2006)

| Les mécanismes décrits | Equations |
|---|---|
| Formation de gâteau, blocage complet | $\frac{PTM}{PTM_0} = \frac{1}{(1-K_{cb}t)}\left(1 - \frac{K_{cf}\,J_0^2}{K_{cb}}\ln(1-K_{cb}t)\right)$ (I. 17) |
| Formation de gâteau, blocage intermédiaire | $\frac{PTM}{PTM_0} = \exp(K_{ib}\,J_0 t)\left(1 + \frac{K_{cf}\,J_0}{K_{ib}}(\exp(K_{ib}\,J_0\,t) - 1)\right)$ (I. 18) |
| Blocage complet, blocage standard | $\frac{PTM}{PTM_0} = \frac{1}{(1-K_{cb}t)\left(1+\frac{K_{sb}\,J_0}{2\,K_{cb}}\ln(1-K_{cb}t)\right)^2}$ (I. 19) |
| Blocage intermédiaire, blocage standard | $\frac{PTM}{PTM_0} = \frac{\exp(K_{ib}\,J_0\,t)}{\left(1-\frac{K_{sb}}{2K_{ib}}(\exp(K_{ib}J_0\,t)-1)\right)^2}$ (I. 20) |
| Formation de gâteau, blocage standard | $\frac{PTM}{PTM_0} = \left(1 - \frac{K_{sb}J_0\,t}{2}\right)^{-2} + K_{cf}\,J_0^2\,t$ (I. 21) |

avec :

$J_0$ : Flux de permeat initial ($L.m^{-2}.h^{-1}$)

$K_{sb}$ : Constante de blocage relative au mode standard ($m^{-1}$)

$K_{cb}$ : Constante de blocage relative au mode Complet ($s^{-1}$)

$K_{ib}$ : Constante de blocage relative au mode intermédiaire ($m^{-1}$)

$K_{cf}$ : Constante de blocage relative à la filtration par le gâteau ($s.m^{-2}$)

PTM : Pression transmembranaire (Pa)

$PTM_0$ : Pression transmembranaire initiale (Pa)

t : Temps de filtration (s).

I.5.3. Modèles classiques couplés

Abdelrasoul *et al.* (2013) ont développé un modèle permettant de quantifier le colmatage en intégrant des modèles décrivant l'évolution de la masse des différentes tailles des particules et les modèles classiques. Il se base sur la probabilité d'attachement des particules entre elles ainsi qu'à la surface de la membrane pour décrire la masse des particules se déposant sur la surface ($m_c$), sur les pores de la membrane ($m_p$) ou bien sur une autre particule ($m_{pp}$), aussi bien pour les larges particules ($a_p \geq D_m/2$) que les petites particules ($D_m/6 < a_p < D_m/2$). Ils considèrent une troisième taille de particules qui sont encore plus petites ($a_p < D_m/6$) qui vont s'adsorber sur les parois des pores et propose un modèle décrivant leur masse $m_w$ (équation I.25). Ils déterminent également la masse du dépôt réversible considéré comme le dépôt formé sur les pores qui serait éliminé par contre lavage et le dépôt irréversible qui serait la somme de $m_s$ et $m_{pp}$.

Ce modèle suppose que la membrane est homogène en termes de propriétés chimiques et ainsi, la probabilité d'attachement entre membrane et particule est la même partout sur la membrane. La probabilité d'attachement particule-particule est aussi la même sur tout le système. Les particules de Latex sont considérées indéformables, sphériques et possédant des propriétés de surface uniforme. La taille des particules de Latex ainsi que la taille des pores de la membrane sont considérées comme les facteurs primaires pour déterminer le mode de colmatage de surface (gâteau, blocage des pores) ou bien le colmatage interne.

Le terme $4^{\alpha pp}$ insinue le fait qu'une particule déposée sur la surface libre de la membrane peut s'attacher aux particules arrivant occupant une surface circulaire ayant 4 fois la surface de cette particule. La probabilité d'attachement particule- particule est considérée nulle pour les petites particules bloquant les pores.

$$m_p = \frac{\alpha_{pm}\varepsilon_0}{4^{\alpha_{pp}}\sigma'}[1 - \exp(-4^{\alpha_{pp}}\sigma'\, m_t)] \quad \text{(I. 22)}$$

$$m_c = \frac{\alpha_{pm}(1-\varepsilon_0)}{4^{\alpha_{pp}}\sigma'}[1 - \exp(-4^{\alpha_{pp}}\,\sigma'\, m_t)] \quad \text{(I. 23)}$$

$$m_{pp} = \alpha_{pp} m_t - \frac{\alpha_{pp}}{4^{\alpha_{pp}}\sigma'}[1 - \exp(-4^{\alpha_{pp}}\sigma'\, m_t)] \quad \text{(I. 24)}$$

avec :

$m_p$ : Masse des particules attachées aux pores des membranes par unité de surface ($kg.m^{-2}$)

$m_c$ : Masse des particules attachées à la surface de la membrane par unité de surface ($kg.m^{-2}$)

$m_{pp}$ : Masse des particules attachées aux autres particules par unité de surface ($kg.m^{-2}$)

$m_t$ : Masse totale des particules retenues par la membrane par unité de surface ($kg.m^{-2}$)

$\alpha_{pm}$ : Probabilité d'attachement entre particule et membrane

$\alpha_{pp}$ : Probabilité d'attachement entres particules

$\varepsilon_0$ : Porosité de la membrane

σ' : Surface bloquée par unité de masse de particules ($m^2.kg^{-1}$)

$$m_w = \frac{N_m}{\sigma'_{xs}\alpha_{pm}B''}\left\{\pi\, D_m L\, B''\, \alpha_{pm} - \ln\left[1 + \exp\left(\pi\, D_m L\, B''\, \alpha_{pm} - \frac{\sigma'_{xs}\alpha_{pm}B''}{N_m} C_{in} V_s\right)\right]\right\} \qquad \text{(I. 25)}$$

avec :

$m_w$ : Masse des particules attachées aux murs des pores par unité de surface ($kg.m^{-2}$)

$V_s$ : Volume accumulé de permeat par unité de surface ($m^3.m^{-2}$)

L : Longueur des pores de la membrane (m)

$N_m$ : Densité des pores

B'' : Coefficient de transfert de masse ($m^{-2}$)

$C_{in}$ : Concentration des particules à l'entrée des pores ($kg.m^{-3}$)

$C_0$ : Concentration des colmatants à l'alimentation ($kg.m^{-3}$)

Indices xs, S et L pour respectivement très petites, petites et larges particules

$$B'' = \frac{2D}{D_m Q \ln\left(\frac{D_m}{2a_p}\right)} \qquad \text{(I. 26)}$$

avec :

D : Coefficient de diffusion

Q : Débit de perméat ($L.h^{-1}$)

$D_m$ : le diamètre des pores (m)

$a_p$ : le rayon des particules (m)

Combinés aux modèles classiques d'Hermia, ces modèles permettent de prédire l'évolution de la pression transmembranaire.

$$\frac{dP'}{dm'_f} = KP'^n \qquad \text{(I. 27)}$$

avec :

P’ : la PTM en fonction du temps ramenée à la PTM initiale

$m'_f$ : la masse des particules responsables du colmatage

Tableau I. 4: Paramètres du modèle d'Hermia

| Mode de colmatage | K | n |
|---|---|---|
| Colmatage par gâteau | $R_c/R_0$ | 0 |
| Blocage complet | $\sigma'$ | 2 |
| Constriction des pores | $2/L.\rho_s$ | $3/2$ |
| Blocage intermédiaire | $\sigma'$ | 1 |

avec :

L : Longueur des pores de la membrane (m)

$R_c$ : Résistance du gâteau ($m^{-1}$)

$R_0$ : Résistance intrinsèque de la membrane ($m^{-1}$)

$\rho_s$ : Densité des solides retenus dans la membrane ($kg.m^{-3}$)

σ’ : Surface bloquée par unité de masse de particules ($m^2.kg^{-1}$)

Abdelrasoul *et al.* (2013) ont ainsi pu exprimer la variation de la PTM (i) lors d’un colmatage par blocage complet pour les larges particules ainsi que pour les petites $P'_p$ (ii) lors du blocage standard dû aux particules les plus petites $P'_w$ (iii) lors d’un colmatage par gâteau par les particules se déposant sur la surface de la membrane $P'_c$.

$$P'_p = \frac{1}{1-\alpha_{pm}\varepsilon_s/4^{\alpha_{pp}}\left[1-\exp\left(-4^{\alpha_{pp}}\,\sigma\,C_0V_s\right)\right]} \qquad \text{(I. 28)}$$

$$P'_w = \frac{1}{\left\{1-\frac{N_m}{\sigma_{xs}\,\rho\,\alpha_{pm}B\,L}\left\{\pi\,D_m\,L\,B\,\alpha_{pm}-\ln\left[1+\exp\left(\pi\,D_m\,L\,B\,\alpha_{pm}-\frac{\sigma_{xs}\alpha_{pm}B}{N_m}C_{in}V_s\right)\right]\right\}\right\}^2} \qquad \text{(I. 29)}$$

$$P'_c = 1 +$$

$$\frac{\widehat{R_c}}{R_m}\left\{C_0V_s - \frac{\alpha_{pm}\varepsilon_s}{4^{\alpha_{pp}}\sigma}[1-\exp(-4^{\alpha_{pp}}\sigma\, m_t)] - \frac{\alpha_{pm}\varepsilon_s}{\sigma}[1-\exp(-\sigma\, m_t)] - \frac{N_m}{\sigma_{xs}\alpha_{pm}B}\left\{\pi\, D_m\, L\, B\, \alpha_{pm} - \ln\left[1+\exp\left(\pi\, D_m\, L\, B\, \alpha_{pm} - \frac{\sigma_{xs}\alpha_{pm}B}{N_m}C_{in}V_s\right)\right]\right\}\right\} \quad \text{(I. 30)}$$

I.5.4. Modèles à flux constant inférieur au flux critique

Le concept du flux critique introduit par Field *et al.* (2005) a offert une base solide pour l'optimisation des conditions opératoires évitant un colmatage rapide de la membrane.

Les études réalisées au-dessous du flux critique ont démontré deux étapes de colmatage : un colmatage continu, lent et irréversible suivi par une croissance brusque de la PTM. Ce saut serait dû à une redistribution du flux à cause du colmatage inhomogène de la membrane, conduisant au niveau de certaines régions à un flux local dépassant le flux critique. Le phénomène derrière ce colmatage n'est toujours pas clair, cependant les travaux récents montrent que les EPS formées d'hydrocarbures, protéines, substances humiques etc., sous leurs formes soluble (dits aussi PMS) et liée, y jouent un rôle majeur (Ye *et al.*, 2005).

Saroj *et al.* (2008) proposent un modèle qui se base sur le rôle des EPS dans la réduction de la surface effective de la membrane. Ce modèle étudié pour un BRM à membrane immergée, traitant l'eau usée municipale, permet de prédire le temps au quel aura lieu le soudain saut de la PTM pour un débit initial constant choisi.

Tableau I. 5: Modèle développé par Saroj *et al.* (2008)

| Equations | Hypothèses |
|---|---|
| $\frac{dA}{dt} = k'\,(C_fQ)(C_bQ)$ (I. 31)<br>$t = \frac{1}{k'C_fC_bQ}\left[\frac{1}{J_0} - \frac{1}{J_p}\right]$ (I. 32)<br>$t_c = \frac{1}{k'C_fC_bQ}\left[\frac{1}{J_0} - \frac{1}{J_{crit}}\right]$ (I. 33) | La réduction de la surface effective est proportionnelle à la masse des EPS libres et des EPS liée<br>la surface effective réuni le blocage des pores et la constriction des pores |

avec :

A : Surface effective de la membrane ($m^2$)

$C_f$ : Concentration des EPS libres ($kg.m^{-3}$)

$C_b$ : Concentration des EPS liés ($kg.m^{-3}$)

$J_0$ : Flux initial du permeat ($L.m^{-2}.h^{-1}$)

$J_p$ : Flux de permeat ($L\ m^{-2}\ h^{-1}$)

$J_{crit}$ : Flux critique ($L.m^{-2}.h^{-1}$)

k' : Constante ($m^2mg^2\ h^{-1}$)

Q : Débit du permeat ($L.h^{-1}$)

r : Constante du modèle de Saroj et al. (2008) ($mbar.m^{-2}.L^{-1}.h^{-1}$)

$t_c$ : Temps critique (h)

Afin de valider ce modèle, les deux paramètres $J_c$ et k' ont été déterminé empiriquement. $J_c$ a été déterminée grâce à la méthode proposée par Le-Clech *et al.* (2003) dite *Stepwise flux increment test*.

La détermination du paramètre k' a été réalisée à partir de la pente k'(Q $C_f$ $C_b$/r) de la courbe droite de 1/PTM en fonction du temps, avec *r* la pente de la courbe linéaire de PTM en fonction de J à court terme.

Ognier *et al.* (2004) se sont basés sur la même hypothèse de la redistribution du flux parmi les pores ouverts dû au colmatage inhomogène, lent et progressif conduisant à l'augmentation du flux local jusqu'à dépasser le flux critique et par la suite une croissance brusque de la PTM. Ceci marque le début de la seconde période de filtration largement modélisée dans la littérature (formation du gâteau).

Durant la première période, les interactions soluté-membrane provoquent la réduction du nombre des pores ouverts au débit du permeat.

Ces hypothèses ont été considérées pour développer des équations représentant l'évolution de la PTM et du flux local durant la première période avec un seul paramètre δ à déterminer.

Au travers les expressions (I.39) et (I.40), Ognier *et al.* (2004) proposent un outil qui permet de comparer l'évolution expérimentale de la PTM, évaluer le seul paramètre du modèle δ et simuler l'évolution de $J_p$, exprimé par rapport à A et prédire le temps critique en cas d'apparition de conditions supra-critiques.

Tableau I. 6: Modèle développé par Ognier *et al.* (2004)

| Equations | Hypothèses |
|---|---|
| $Q = J_P . n_P . S_P$ (I. 34)<br>$\frac{dm}{dt} = k_1 C_{sol}\, Q$ (I. 35)<br>$\frac{dn_P}{dt} = -k_2 m$ (I. 36)<br>$\frac{d(PTM)}{dt} = \mu R_P \frac{d(J_P)}{dt}$ (I. 37)<br>$\frac{d(PTM)}{dt} = \delta PTM^2 t$ avec $\delta = \left(\frac{k_1 k_2 S_P C_{sol}}{\mu\, R_P}\right)$ (I. 38)<br>$PTM = \frac{PTM_0}{1-((\alpha\, PTM_0 t^2)/2)}$ (I. 39)<br>$J_P = \frac{J_{P0}}{1-((\alpha\, J_{P0}\, \mu\, R_P\, t^2)/2)}$ (I. 40)<br>$J_{P0} = Q/A$ (I. 41) | L'environnement poreux initial est comparable à un ensemble de pores homogène $n_p$ défini par une section droite $S_p$ et une longueur $Z_p$. Le débit de permeat Q est maintenu constant<br><br>A un flux sous critique et durant la période 1, le colmatage est supposé dû à différentes interactions particules-membrane. Ainsi il est supposé que la masse des particules m interagissant à chaque instant avec le matériau de la membrane et susceptible d'être retenu dans les pores est proportionnel au débit de matière à travers la membrane<br><br>La variation instantanée du nombre des pores $n_p$ est pris directement proportionnel à la masse des particules interagissant avec le matériau de la membrane et/ ou déposé au moment t dans le pore<br><br>En utilisant la loi de Darcy, la PTM peut être exprimée au moment t comme une fonction des conditions de débit dans les pores<br>Dans des conditions biologiques fixes |

| | |
|---|---|
| | (âge de boue défini et temps de rétention hydraulique), *C* peut être considérée constante<br><br>Vu qu'il n'existe pas de moyens expérimentaux pour évaluer la valeur actuelle de $J_p$, on considère que les propriétés du milieu poreux correspondent à un matériau model qui offre un $J_p$ initial |

avec :

$C_{sol}$ : Concentration des solutés en solution ($kg.m^{-3}$)

$J_p$ : Flux de permeat aux pores ouverts ($L.m^{-2}.h^{-1}$)

$k_1$, $k_2$ : Constantes de proportionnalité

m : Masse des particules interagissant avec la membrane (kg)

$n_p$ : Nombre de pores ouverts à un instant t

PTM : Pression transmembranaire (Pa)

$PTM_0$ : Pression transmembranaire initiale (Pa)

Q : Débit de permeat ($m^3.h^{-1}$)

$R_p$ : Résistance du colmatage des pores ($m^{-1}$)

$S_p$ : Section des pores ouverts ($m^2$)

μ : Viscosité du permeat (Pa.s)

I.5.5. Modèles de résistances en séries - cas de la filtration frontale

Plusieurs travaux ont proposé des modèles décrivant simultanément les différents phénomènes de colmatage (Katsoufidou *et al.*, 2005 ; Ho et Zydney, 2000 ; Song, 1998). Ces modèles se basent sur le modèle classique des résistances en série dérivé de la loi de Darcy. Ils expriment le flux du permeat en fonction de la Pression transmembranaire, la viscosité et la résistance totale de la membrane. Certaines études ne considèrent pas la viscosité de la solution (Song, 1998).

$$J_p = \frac{dV}{dt} = \frac{PTM}{\mu(R_0 + R_t)} \qquad \text{(I. 42)}$$

avec :

$J_p$ : Flux de permeat ($L.m^{-2}.h^{-1}$)
PTM : Pression transmembranaire (Pa)
$R_0$ : Résistance intrinsèque de la membrane ($m^{-1}$)
$R_t$ : Résistance total du colmatage ($m^{-1}$)
V : Volume du permeat ($m^3$)
μ : Viscosité de la solution (Pa.s)

La résistance totale considère généralement la résistance intrinsèque de la membrane $R_0$, qui reste constante et la résistance du colmatage $R_t$ qui augmentera au cours du temps avec le blocage des pores et la croissance du dépôt à la surface de la membrane.

Dans certains travaux, on ajoute un terme pour la résistance crée par la couche de polarisation de concentration au ras de la membrane (Choi *et al.*, 2000 ; Song, 1998). Cette résistance entraîne une croissance de la pression transmembranaire. Considérant que la détermination de ce terme de résistance est difficile, il est plus simple de déterminer la pression crée par la couche de polarisation de concentration, (Song, 1998) propose l'équation (I.43)

$$J_p = \frac{PTM - \Delta P_c}{R_0 + R_c} \qquad (I.\ 43)$$

avec :

$J_p$ : Flux de permeat ($L.m^{-2}.h^{-1}$)
PTM : Pression transmembranaire (Pa)
$R_0$ : Résistance de la membrane ($m^{-1}$)
$R_c$ : Résistance du gâteau ($m^{-1}$)
$\Delta P_c$ : Pression critique (Pa).

Où il élimine le terme de la résistance de la couche de polarisation de concentration et le remplace par la soustraction de la pression dite critique, crée par cette couche. $\Delta P_c$ est déterminée pour une monodispersion grâce à l'equation (I.44)

$$\Delta P_c = \frac{3\ k_b\ T}{4\ \pi\ a_p^3} N_{Fc} \qquad (I.\ 44)$$

avec :

$k_b$ : Constante de Boltzman

T : Température absolue (°K)

$a_p$ : Rayon de particule (m)

$N_{FC}$ : Nombre de filtration critique qui est 11 pour les particules sphériques, uniforme, rigide.

Katsoufidou *et al.* (2005) qui ont étudié le colmatage d'une membrane UF à fibre creuse, considèrent deux types de résistance : la résistance de la membrane et la résistance du gâteau. La variation de la résistance de la membrane est due à deux phénomènes de colmatage, qui sont le blocage interne des pores par les solutés ayant une taille inférieure à celle des pores de la membrane, entraînant la constriction de ces pores et le blocage des pores par les espèces de grande taille qui sont piégés à l'entrée des pores.

Le phénomène de constriction des pores est contrôlé par l'adsorption et la désorption des solutés dans les pores, considérés comme droits et cylindriques. Ce phénomène est décrit par l'équation (I.48)

Pour décrire le phénomène de blocage des pores, Katsoufidou *et al.* (2005) considèrent que le nombre des pores libres par unité de surface de la membrane, décroit avec un taux proportionnel au nombre des pores libres instantanément, au flux et à la concentration des espèces capables de bloquer les pores de la membrane, d'où l'équation (I. 49). Ce même phénomène a été considéré dans le modèle proposé par Ho et Zydney (2000) et décrit par l'équation (I. 82).

Comme résultat du développement simultané du gâteau, les larges espèces mobiles sont appauvries à la surface de la membrane puisqu'elles sont retenues dans le gâteau. Les deux mécanismes sont essentiellement compétitifs et le blocage des pores devrait cesser quand le gâteau atteint une certaine épaisseur multiple du diamètre des espèces retenues.

Pour tenir compte de cet effet, une simple expression est supposée relier la fraction des larges particules à la surface et dans l'alimentation $\Phi_{Ls}$ et $\Phi_{Lb}$ de la forme de l'équation (I. 50)

Kuberkar et Davis (2000), considèrent des hypothèses similaires dans leur modélisation de la filtration simultanée des protéines et des cellules de levure

Les larges cellules de levure forment un gâteau qui agit comme un filtre pour les agrégats de protéines et réduit leur concentration à la surface de la membrane et leur efficacité à bloquer les pores. Une expression identique à l'équation (I. 50), a été proposée pour prendre en compte cet effet.

Ainsi, la forme finale de la résistance de la membrane qui tient en compte de la réduction des pores et le blocage à la surface proposé par Katsoufidou *et al.* (2005) est présentée dans l'équation (I.51).

La résistance du gâteau formé à la surface de la membrane qui est composé des larges espèces retenues. Cette résistance dépend de la résistance spécifique du gâteau $R'_c$ et de l'épaisseur du gâteau (équation I.52).

Tableau I. 7: Exemple de modèle considérant simultanément les différents phénomènes de colmatage (Katsoufidou *et al.*, 2005)

Le flux total

$$J_p = \frac{dV}{dt} = \frac{PTM}{\mu(R_m + R_c)} \quad \text{(I. 45)}$$

La constriction des pores

$$\frac{dm_a}{dt} = k'_a \phi_s - k_d\, m \quad \text{(I. 46)}$$

$$m_a\,(t) = \rho_a \pi \left(D_0^2 - D_p(t)^2\right) L/4 \quad \text{(I. 47)}$$

$$\frac{d\widehat{D}}{dt} = -k_a \Phi_s + k_d\left(\widehat{D}^{-1} - \widehat{D}\right) \quad \text{(I. 48)}$$

Blocage des pores

$$\frac{df_p}{dt} = -k_b \Phi_{Ls}\, J_p\, f_p \quad \text{(I. 49)}$$

$$\Phi_{Ls} = \Phi_{Lb} \exp(-k_t\, H) \quad \text{(I. 50)}$$

$$R_m = R_0\, \widehat{D}^{-4} f_p^{-1} \quad \text{(I. 51)}$$

Développement du gâteau

$$R_c = R'_c\, h \quad \text{(I. 52)}$$

$$\frac{dh}{dt} = J_p\, \Phi_{Lb}/\Phi_c \quad \text{(I. 53)}$$

avec :

$A_0$ : Surface totale de a membrane ($m^2$)

$C_0$ : Concentration de l'alimentation en protéines ($kg.m^{-3}$)

$\widehat{D}$ : Diamètre de pore normalisé = $D/D_0$

$D_0$ : Diamètres de la membrane propre (m)

D : Diamètres de la membrane colmatée (m)

$f_p$ : Fraction des pores libres

f' : Fraction des protéines qui contribue à la croissance du dépôt

h : Epaisseur du gâteau (m)

$J_p$ : Flux de permeat ($m^3.m^{-2}.s^{-1}$)

$k_t$ : Constante devrait être en relation à la taille des espèces relevantes ainsi qu'aux propriétés du gâteau

$k_b$ : Constante liée au blocage des pores ($m^{-1}$)

$k_a$ : Constante d'adsorption ($s^{-1}$)

$k_a$' : Constante d'adsorption ($kg.s^{-1}$)

$k_d$ : Coefficient de désorption ($s^{-1}$)

$k_b$ : Constante relative au blocage des pores ($m^{-1}$)

L : Longueur du pore (m)

$m_a$ : Masse adsorbée dans les pores (kg)

$R_0$ : Résistance initiale de la membrane ($m^{-1}$)

$R_m$ : Résistance de la membrane ($m^{-1}$)

$R_c$ : Résistance du gâteau ($m^{-1}$)

$R'_c$ : Résistance spécifique du gâteau ($m^{-2}$)

$R_{p0}$ : Résistance initiale du dépôt (la résistance associée à un seul agrégat) ($m^{-1}$)

α' : Surface bloquée par unité de masse de colmatants ($m^2.kg^{-1}$)

$\rho_a$ : Masse volumique de la matière adsorbée ($kg.m^{-3}$)

$\Phi_{Ls}$ : Fraction en volume des larges espèces mobiles à la surface de la membrane

$\Phi_{Lb}$ : Fraction en volume des larges espèces mobiles dans l'alimentation

$\Phi_s$ : Fraction en volume des espèces de taille inférieure à celle des pores

$\Phi_c$ : Fraction du volume du gâteau.

## I.6. Modèles de filtration tangentielle

### I.6.1. Adaptation des modèles classiques à la filtration tangentielle

Field *et al.* (1995) ainsi que De Bruijn *et al.* (2005) ont modifié les lois classiques de colmatage en tenant compte des mécanismes d'élimination des particules à la surface de la membrane par les forces de cisaillement crées par le flux tangentiel d'alimentation.

De Bruijn *et al.* (2005) ont étudié l'Ultrafiltration tangentielle des protéines par un module de membrane tubulaire, tandis que Field *et al.* (1995) ont étudié le colmatage en utilisant deux systèmes de filtration : un procédé tangentiel avec une membrane tubulaire et un système de filtration frontale avec une membrane plane. Ils ont également introduit le concept de flux critique au-dessous duquel on n'observe pas de décroissance du flux en fonction du temps et au-dessus duquel on observe un colmatage. Ils ont enfin proposé un système d'équations différentielles appropriées respectivement à l'ultrafiltration (UF) la microfiltration (MF) tangentielle (Tableau I.8). Le modèle de constriction des pores garde son expression classique vu que les forces de cisaillement du mode tangentielle n'interviennent qu'à la surface de la membrane.

Tous ces modèles proposés sont sous la forme générale de l'équation (I.54)

$$-\frac{dJ_p}{dt}\, J_p^{n-2} = K\left(J_p - J_{crit}\right) \quad \text{(I. 54)}$$

Pour la filtration sur gâteau, n=0, pour le blocage complet n=2, pour le blocage intermédiaire n=1

On associe à la constante K et l'indice n différentes valeurs dépendant du mécanisme de colmatage et $J_{crit}$ est considéré comme le flux critique qu'il ne faut pas dépasser si on veut éviter le colmatage.

Tableau I. 8: Equations décrivant le colmatage pour une filtration tangentielle

| Phénomène de colmatage | (Field *et al*., 1995) Filtration MF | (De Bruijn *et al*., 2005) Filtration UF |
|---|---|---|
| Blocage Complet | $-\frac{dJ_p}{dt} = (A_b\, J_0/\varepsilon_0)\, J_p - B\, J_0$ (I. 55)<br>$J_c = B\varepsilon_0/A_b$ (I. 56) | $-\frac{dJ_p}{dt} = k_{cb}.\left(J_p - J_{crit}\right)$ (I. 57)<br>$J_{crit} = \frac{2.\rho_s.d_s.\psi.\varepsilon_{m,0}.\dot{\gamma}}{3.\rho_{fe}.m_s}$ (I. 58)<br>$k_{cb} = \frac{3.\rho_{fe}.m_s.J_0}{2.\rho_s.d_s.\psi.\varepsilon_{m,0}}$ (I. 59) |
| Filtration sur gâteau | $-\frac{1}{{J_p}^2}\frac{dJ_p}{dt} = \frac{\alpha\, k_c\, J_p}{J_0 R_0} - \frac{\alpha\, \tau}{J_0 R_0}$ (I. 60)<br>$J_s = \tau/k_c$ (I. 61)<br>$k_c = \rho_{fe} f_s$ (I. 62) | $-\frac{1}{{J_p}^2}\frac{dJ_p}{dt} = k_{cf}\left(J_p - J_{crit}\right)$ (I. 63)<br>$J_{crit} = \frac{\rho_c.Q_{c,de}}{\rho_{fe}.m_s.A}$ (I. 64)<br>$k_{cf} = \frac{\eta_{pe}.\alpha.\rho_{fe}.m_s}{PTM}$ (I. 65) |
| Blocage Intermédiaire | $-\frac{1}{J_p}\frac{dJ_p}{dt} = A_b J_p - B'$ (I. 66)<br>$J_{int} = B'/A_b$ (I. 67) | $-\frac{1}{J_p}\frac{dJ_p}{dt} = k_{ib}\left(J_p - J_{crit}\right)$ (I. 68)<br>$J_{crit} = \frac{2.\rho_s.d_s.\psi.\varepsilon_{m,0}.\dot{\gamma}}{3.\rho_{fe}.m_s}$ (I. 69)<br>$k_{ib} = \frac{3.\rho_{fe}.m_s}{2.\rho_s.d_s.\psi.\varepsilon_{m,0}}$ (I. 70) |

avec :

$A_b$ : Surface bloquée par unité de volume du permeat ($m^{-1}$)

B : Constante introduisant l'effet du cisaillement lors du blocage complet ($s^{-1}$)

B' : Constante introduisant l'effet du cisaillement lors du blocage intermédiaire ($s^{-1}$)

$d_s$ : Diamètre des solides (m)

$f_s$ : Fraction des solides en suspension qui forment le gâteau

$J_s$ : Flux critique pour la loi de filtration sur gâteau ($ms^{-1}$)

$J_c$ : Flux critique pour la loi du blocage complet ($ms^{-1}$)

$J_{int}$ : Flux critique pour la loi du blocage intermédiaire ($ms^{-1}$)

$k_c$ : Constante de filtration sur gâteau ($kg/m^3$)

$m_s$' : Fraction de masse de soluté retenue dans la membrane (kg/kg)

PTM : Pression transmembranaire (Pa)

$Q_{cde}$ : Débit de destruction du gâteau ($m^3.s^{-1}$)

$R_0$ : Résistance hydraulique initiale ($m^{-1}$)

$\tau$ : Taux d'érosion du gâteau par unité de surface ($kg.m^{-2}.s^{-1}$)

$\alpha$ : Résistance spécifique du gâteau ($m.kg^{-1}$)

$\dot{\gamma}$ : Taux de cisaillement ($s^{-1}$)

$\varepsilon_0$ : Porosité initiale de la membrane

$\rho_{fe}$ : Densité de l'alimentation ($kg.m^{-3}$)

$\rho_s$ : Densité des solides retenus dans la membrane ($kg.m^{-3}$)

$\rho_c$ : Densité du gâteau ($kg.m^{-3}$)

$\Psi$ : Facteur de forme.

I.6.2. Modèles de résistance en séries - cas de la filtration tangentielle

Wu *et al.* (2011) considèrent que les différents mécanismes de colmatage évoluent simultanément en vue d'établir un modèle mathématique qui prend en compte l'effet de synergie existant entre les différents facteurs qui influencent le colmatage. Ce modèle considère l'effet des matières solubles, les matières colloïdales et la matière en suspension présents dans une boue activée, en associant à ces composants respectivement le colmatage par constriction des pores, le blocage complet et le colmatage par la formation d'un gâteau. Cette hypothèse est basée sur la taille de ces différents composants. L'effet du cisaillement lors d'une filtration frontale est modélisé en considérant une fraction $f_s$ des solides en suspension qui participera à la formation du gâteau. Cette fraction correspond aux petites particules qui ne sont pas entraînées par les forces de cisaillement.

Tableau I. 9: Modèle proposé par Wu *et al.* (2011)

| Equations | Hypothèses |
|---|---|
| Colmatage par formation de gâteau<br>$\frac{dR_c}{dt} = f_s\ \alpha J_L X$ (I. 71)<br>$\frac{d\alpha}{dt} = b\ J_L(C_s + C_c)$ (I. 72)<br>$J_L = \frac{Q}{A(t)}$ (I. 73)<br>Blocage des pores<br>$\frac{dA}{dt} = \alpha'\ Q\ C_c \frac{n}{n+R_{ca}}$ (I. 74) | Le gâteau peut servir de pré-filtre aux matières solubles et colloïdales, ce qui réduirait leurs disponibilités à provoquer la constriction des pores et le blocage complet.<br><br>Le gâteau serait consolidé par les matières soluble et colloïdale retenues. Ceux-ci peuvent lier les grosses particules entraînant |

| | |
|---|---|
| Constriction des pores<br>$R_{mc} = R_0 \left(1 + b'Q\, C_s \frac{n'}{n'+R_{ca}}\, t\right)^2$ (I. 75)<br><br>Résistance totale<br><br>$R_T = R_{mc} + R_c$ (I. 76) | l'augmentation de la résistance spécifique du gâteau.<br><br>Le blocage des pores entraîne la réduction de la surface de la membrane<br><br>La constriction des pores initiale est due au dépôt des matières solubles à l'intérieur des pores ce qui augmente la résistance de la membrane. La constriction des pores s'arrête lorsque l'entrée du pore est totalement bloquée.<br><br>La formation du gâteau réduit la constriction des pores et le blocage complet |

avec :

- A : Surface de la membrane ($m^2$)
- b : Constante de consolidation de la résistance du gâteau ($m^3.kg^{-2}$)
- b' : Paramètre de constriction des pores (kg)
- $C_s$ : Concentration des composants solubles ($kg.m^{-3}$)
- $C_c$ : Concentration des composants colloïdaux ($kg.m^{-3}$)
- $f_s$ : Fraction des solides en suspension qui forment le gâteau
- $J_L$ : Flux de permeat local ($m^3.m^{-2}.s^{-1}$)
- n, n' : Constantes empiriques
- Q : Débit de permeat ($m^3.s^{-1}$)
- $R_c$ : Résistance du gâteau ($m^{-1}$)
- $R_{mc}$ : Résistance de la membrane due à la constriction des pores ($m^{-1}$)
- $R_0$ : Résistance de la membrane ($m^{-1}$)
- X : Concentration en solide en suspension ($g.L^{-1}$)

α : Résistance spécifique du gâteau ($m.kg^{-1}$)

α' : Paramètre de blocage des pores ($m^2.kg^{-1}$).

Ho et Zydney (2000) ont développé un modèle mathématique (Tableau I.10) pour décrire le débit de permeat. Ce modèle considère le colmatage initial dû au blocage des pores et le colmatage dû au développement du gâteau de protéines sur les zones initialement bloquées. Le modèle tient en compte explicitement de l'inhomogénéité de l'épaisseur du gâteau sur les différentes zones de la membrane provenant d'une dépendance du temps de blocage des pores à la surface.

Ce modèle a été confronté à des données expérimentales obtenues par ultrafiltration frontale d'une solution d'Albumine de sérum bovin avec une membrane en polycarbonate pour des conditions expérimentales qui favorisent la formation du gâteau.

Ce même modèle considéré par Vela *et al.* (2008), décrit la dynamique du colmatage sous des conditions expérimentales similaires avec faibles vitesses tangentielles utilisées pour la filtration tangentielle d'une solution de polyethylene glycol (PEG).

L'absence du phénomène de blocage des pores sous certaines conditions expérimentales et la possibilité de la formation de la couche de gel à très court terme peut être une raison de l' écart observé entre les résultats prédits et expérimentaux. Dans ce sens cet écart peut être aussi dû aux hypothèses du modèle qui peuvent ne pas être correctes pour les conditions expérimentales utilisées. Par exemple, certains pores pourront être totalement bloqués. De plus une couche de gel peut être formée sur toute la surface de la membrane et non pas seulement sur la surface dont les pores ont été déjà bloqués.

Le modèle de Ho et Zydney (2000) a été également utilisé par Ye *et al.* (2005) pour prédire le flux lors de la microfiltration frontale d'une solution d'alginates en tant que solution modèle d'EPS (Extracellular Polymeric substances), par une membrane Polyflorure de vinylidène.

Vela *et al.* (2007) ont considéré le modèle proposé par Bhattacharjee et Bhattacharya (1992), exprimé dans l'équation (I.77), en utilisant leurs données de filtration de la solution de PEG. Le modèle permet de prédire ces données essentiellement pour une faible vitesse tangentielle et pour de longues durées.

$$J_p = \left(\frac{\mu(R_m+R_a+R_{osm})^2}{PTM^2} + \frac{2\,\alpha\,C_0\,\mu}{PTM}\,t\right)^{-\frac{1}{2}} \qquad \text{(I. 77)}$$

avec :

$C_0$ : Concentration de l'alimentation ($kg.m^{-3}$)

$J_p$ : Flux de permeat ($m^3.m^{-2}.s^{-1}$)

PTM : Pression transmembranaire (Pa)

$R_m$ : Résistance hydraulique de la membrane ($m^{-1}$)

$R_a$ : Résistance dû à l'adsorption ($m^{-1}$)

$R_{osm}$ : Résistance de la pression osmotique ($m^{-1}$)

$\alpha$ : Résistance spécifique de la couche du gel ($m.kg^{-1}$)

$\mu$ : Viscosité dynamique du permeat (Pa.s).

Basé sur le modèle de la résistance en série, ce modèle intègre dans la même expression analytique la pression osmotique ainsi que la formation d'une couche de gel. Il tient aussi compte de la contribution du colmatage par adsorption.

Le modèle considère que la concentration du gel est indépendante de la PTM appliquée et qu'une fois l'équilibre de l'adsorption du soluté atteint, la résistance de l'adsorption reste constante.

Dans la littérature, lorsqu'on utilise ce modèle, ses paramètres sont empiriquement estimés à partir des résultats expérimentaux. Dans l'étude réalisée par Vela *et al.* (2007), tous les paramètres du modèle sont théoriquement calculés sans utiliser de données empiriques.

La résistance spécifique du gâteau est donnée par la relation de Kozeny-Carman (équation I.78)

$$\alpha = 45.\frac{(1-\varepsilon)}{\varepsilon^3.a_s^2.\rho_g} \qquad \text{(I. 78)}$$

$$\varepsilon = 1 - C_{gv} \qquad \text{(I. 79)}$$

avec :

$\varepsilon$ : Porosité du gâteau

$a_s$ : Rayon des molécules de soluté (m)

$\rho_g$ : Densité de la couche du gel ($kg.m^{-3}$)

$C_{gv}$ : Concentration de la couche du gel ($kg.m^{-3}$).

Tableau I. 10: Exemple de modèle considérant simultanément les différents phénomènes de colmatage (Ho et Zydney, 2000)

Le débit total

$$Q = Q_{ouvert} + Q_{bloqué} \quad \text{(I. 80)}$$

Le débit au niveau des zones ouvertes

$$Q_{ouvert} = \frac{PTM}{\mu\, R_m} A_{ouvert} \quad \text{(I. 81)}$$

$$\frac{dA_{ouvert}}{dt} = -\alpha'\, Q_{ouvert}\, C_0 \quad \text{(I. 82)}$$

$$A_{ouvert} = A_0 \exp\left(-\frac{\beta\, PTM\, C_0}{\mu\, R_m} t\right) \quad \text{(I. 83)}$$

$$Q_{ouvert} = Q_0 \exp\left(-\frac{\beta\, PTM\, C_0}{\mu\, R_m}\, t\right) \quad \text{(I. 84)}$$

Le débit au niveau des zones bloquées (ou colmatées)

$$Q_{bloqué} = \int \frac{PTM}{\mu\,(R_m+R_c)}\, dA_{bloqué} \quad \text{(I. 85)}$$

$$dA_{bloqué} = -dA_{ouvert} = \frac{\alpha'\, PTM\, C_0}{\mu\, R_m} A_0 \exp\left(-\frac{\alpha'\, PTM\, C_0}{\mu\, R_m} t_p\right) dt_p \quad \text{(I. 86)}$$

$$Q_{bloqué} = Q_0 \int_0^t \frac{\alpha'\, PTM\, C_0}{\mu\,(R_m+R_c)} \exp\left(\frac{-\alpha'\, PTM\, C_0}{\mu\, R_m} t_p\right) dt_p \quad \text{(I. 87)}$$

Le débit total

$$Q = Q_0 \left[\exp\left(-\frac{\alpha'\, PTM\, C_0}{\mu\, R_m} t\right) + \frac{R_m}{R_m+R_c}\left(1 - \exp\left(-\frac{\alpha'\, PTM\, C_0}{\mu\, R_m}\, t\right)\right)\right] \quad \text{(I. 88)}$$

La résistance du gâteau $R_c$

$$\frac{dR_c}{dt} = R'_c \frac{dm_p}{dt} = f_s R' J_{bloqué} C_0 \quad \text{(I. 89)}$$

$$J_{bloqué} = \frac{PTM}{\mu\,(R_m+R_p)} \quad \text{(I. 90)}$$

$$R_c = (R_m + R_{p0}) \sqrt{1 + \frac{2\, f_s R'_c\, PTM\, C_0}{\mu (R_m+R_{p0})^2}\, t - R_m} \quad \text{(I. 91)}$$

### I.6.3. L'approche par section

Un modèle récent a été développé par Li et Wang (2006) pour simuler le colmatage de la membrane dans un BRM immergée. Une approche par section a été utilisée pour décrire la distribution non-uniforme de l'intensité de cisaillement turbulent et son effet sur le colmatage. Le modèle considère la dynamique de l'attachement de la biomasse dû aux forces convectives lors de la filtration et le détachement du dépôt par les forces de cisaillement créées par l'aération.

La résistance totale du colmatage est décomposée en résistance due au colmatage des pores, et à la formation d'un film de boue dynamique (gâteau).

Ce modèle permet la simulation du phénomène de colmatage dans un BRM immergé que ce soit en aérobie ou en anaérobie, à travers la croissance de la PTM au cours du temps à flux de permeat constant.

Dans la mesure où les propriétés d'un système biologique varient au cours du temps, ce modèle présente des limites provenant du fait qu'il considère constants certains paramètres dont on sait qu'ils varient au cours du temps tels que la concentration de la boue et la résistance spécifique du gâteau formé à la surface de la membrane.

Tableau I. 11: Modèle développé par Li et Wang (2006)

| Equations | Hypothèses |
|---|---|
| L'évolution de la biomasse attachée à la surface de la membrane<br>$\frac{dM_{sf}}{dt} = \left(\frac{dM_{sf}}{dt}\right)_a - \left(\frac{dM_{sf}}{dt}\right)_d$ (I. 92)<br>$\left(\frac{dM_{sf}}{dt}\right)_a = \frac{24\ C\ J_i^2}{24J_i + C_d d\ G_i} = E\ J_i\ C$ (I. 93)<br>$E = \frac{F_a}{F_a + F_l}$ (I. 94)<br>$\left(\frac{dM_{sf}}{dt}\right)_d = \frac{\beta'\ (1 - K_{ST})\ G_i\ M_{sf}^2}{\gamma V_f + M_{sf}} = k_d M_{sf}$ (I. 95) | La masse de la boue cumulée sur la surface est la différence entre la masse attachée à celle détachée.<br>la probabilité E du dépôt d'une particule sur la membrane est réglée par les forces de trainée $F_a$ et de portance $F_l$<br>Durant la filtration dans un BRM à membrane immergée, les matières en |

| | |
|---|---|
| $k_d = \frac{k_r\, M_{sf}}{k_S + M_{sf}}$ (I. 96)<br>La variation de l'intensité de cisaillement le long de la surface<br>$\frac{G_i}{G_0} = \begin{cases} \frac{1}{10} + \frac{9}{20}\left[1 + \sin\frac{(2\varepsilon_i - \varepsilon_a)\pi}{2\varepsilon_a}\right] & \varepsilon_i < \varepsilon_a \\ 1 & \varepsilon_i \geq \varepsilon_a \end{cases}$ (I. 97)<br>$G_0 = \left(\frac{\rho_b g\, q_a}{\mu_b}\right)^{1/2}$ (I. 98)<br>Détachement de la boue lors de la phase d'arrêt<br>$\frac{dM_{sf}}{dt} = -\frac{\beta'\,(1 - K_{ST})G_i\, M_{sf}^2}{0.1\,\gamma\, V_f\, \theta_f + M_{sf}}$ (I. 99)<br>La résistance totale pour une section<br>$R_t = R_0 + R_p + R_{sf} + R_{sc}$ (I. 100)<br>$R_P = r_P \sum J_i\, \theta_f$ (I. 101)<br>où<br>$R_P = r_P V_W$ (I. 102)<br>$R_{sc} = r_{sc} M_{sc}$ (I. 103)<br>$R_{sf} = r_{sf} M_{sf}$ (I. 104)<br>$PTM = \mu\, J_0 R_t$ (I. 105)<br><br>avec :<br>$\frac{1}{R_t} = \sum_{i=1}^{n}\left(\frac{\Delta\varepsilon_i}{R_i}\right)$ (I. 106) | suspension dans la biomasse d'une concentration *C* approche la surface de la membrane avec un taux de *CJ*<br><br>$K_d$ varie en fonction de $M_{sf}$, $K_d$ atteint un maximum pour un film épais de biomasse et diminue avec l'épaisseur du film. D'où la formule similaire au modèle de Langmuir<br><br>$k_r$ dépend de l'intensité de cisaillement G ainsi que de l'adhésion de la biomasse $K_{ST}$<br><br>$k_s$ régularise l'efficacité de détachement et dépends des propriétés du film de biomasse et de la durée d'aspiration<br><br>L'intensité de cisaillement $G_i$ pour une section $\Delta\varepsilon_i$ suit une allure sinusoïdale avec un minimum supposé égal au 1/10 de $G_0$<br><br>Durant la relaxation le film de biomasse n'est soumis qu'au détachement et le coefficient de compression $\gamma$ est réduit au 1/10$^{ème}$.<br><br>$R_0$ est supposée constante |

avec :

C : Concentration de la boue (kg.m$^{-3}$)

$C_d$ : Coefficient des forces de trainée et de portance

$d$ : Taille des particules (m)

$g$ : Gravité moyenne à l'équateur ($m.s^{-2}$)

$G_0$ : Intensité de cisaillement apparente ($s^{-1}$)

$G_i$ : Intensité de cisaillement au niveau de la section i de la membrane ($s^{-1}$)

$J_i$ : Flux local à travers la section i de la membrane ($m^3.m^{-2}.jour^{-1}$)

$J_0$ : Flux total ($m^3.m^{-2}.jour^{-1}$)

$K_{ST}$ : Adhérence des particules de biomasse

$k_d$ : Coefficient de désorption ($s^{-1}$)

$k_r$ : Paramètre intermédiaire ($s^{-1}$)

$k_s$ : Paramètre intermédiaire ($kg.m^{-2}$)

$M_{sf}$ : Masse de la biomasse attachée à la membrane ($kg.m^{-2}$)

$q_a$ : Intensité d'aération ($L.m^{-2}.s^{-1}$))

$R_0$ : Résistance intrinsèque de la membrane ($m^{-1}$)

$R_p$ : Résistance du colmatage des pores ($m^{-1}$)

$R_{sc}$ : Résistance de la couche stable de gâteau ($m^{-1}$)

$R_{sf}$ : Résistance du film dynamique ($m^{-1}$)

$R_t$ : Résistance totale ($m^{-1}$)

$V_f$ : Production d'eau Durant un cycle de filtration ($m^3.m^{-2}$)

$V_w$ : Production totale d'eau ($m^3.m^{-2}$)

$\beta'$ : Coefficient d'érosion du film dynamique (sans dimension)

$\gamma$ : Coefficient de compression du film dynamique de biomasse ($kg.m^{-3}.s^{-1}$)

$\varepsilon_i$ : Surface de la membrane accumulée jusqu'à la section i

$\varepsilon_a$ : Fraction de la surface de la membrane avec une intensité de cisaillement réduite

$\theta_f$ : Période de filtration d'un cycle de fonctionnement (min)

$\rho_b$ : Masse volumique de la boue ($kg.m^{-3}$).

## I.7. Modèles avec régénération de la membrane

La régénération de la membrane est une procédure qui permet de maintenir l'efficacité de la séparation membranaire dans un BRM. Robles *et al.* (2013) ont proposé un modèle qui tient compte de quatre processus physiques qui caractérisent la séparation membranaire dans un BRM immergé qui sont : la formation d'un gâteau au cours de la filtration, la consolidation du colmatage irréversible, l'élimination du gâteau par barbotage de biogaz au dessous de la

membrane (décapage) et le détachement du gâteau par un contre-lavage (Tableau I.12). Ce modèle prédit l'évolution de la PTM au cours du temps par un modèle de résistance en séries basé sur la loi de Darcy :

$$PTM = J_p\ \mu\ (R_0 + m_c\alpha + m_i\alpha_i). \qquad (I.\ 107)$$

Avec $J_p$ le flux de permeat, μ (Pa.s) la viscosité du permeat, $R_0$ ($m^{-1}$) la résistance intrinsèque de la membrane, $m_c$ ($kg.m^{-2}$) la masse du gâteau par unité de surface, $m_i$ ($kg.m^{-2}$) la masse du dépôt irréversible par unité de surface, α ($m.kg^{-1}$) la résistance spécifique du gâteau et $\alpha_i$ ($m.kg^{-1}$) la résistance spécifique du dépôt irréversible.

Tableau I. 12: Stœchiométrie et expressions de la cinétique du modèle de Robles *et al.* (2013)

| Processus j | Composants i | | | |
|---|---|---|---|---|
| | $X_{TS}$ | $X_{mc}$ | $X_{mi}$ | Expression de la cinétique |
| 1.Formation d'un gâteau | -1 | 1 | | $Q.X$ (I. 108) |
| 2.Décapage de la membrane par barbotage de biogaz | 1 | -1 | | $q_{d,max}.M_{X_{mc}}.I_d.DRB_V.X_{m_c}$ (I. 109) |
| 3.Détachement du gâteau par un contre-lavage | 1 | -1 | | $q_{CL,max}.Q.M_{X_{mc}}.X_{m_c}$ (I. 110) |
| 4. consolidation du colmatage irréversible | | -1 | 1 | $q_{CI,max}.X_{m_c}$ (I. 111) |

avec :

$K_{S,X_{mc}}$ : Constante de demi-saturation

$q_{d,max}$ : Vitesse maximale de décapage

$q_{CL,max}$ : Vitesse maximale de détachement par contre lavage

$q_{CI,max}$ : Vitesse de la formation du colmatage irréversible

Q : Débit du permeat ($m^3.s^{-1}$)

X : Concentration de la matière solide en suspension ($kg.m^{-3}$)

$X_{mc}$ : Masse sèche du gâteau à la surface de la membrane (kg)

$DRB_V$ : Débit du recyclage du biogaz par volume d'effluent d'alimentation ($m^3.h^{-1}$).

$M_{X_{mc}}$ est une fonction qui permet de tenir en compte la diminution du taux de détachement du dépôt au fur et à mesure que le dépôt disparaît. $I_d$ est une fonction empirique qui décrit l'impact de travailler au dessous ou au dessus des conditions critiques.

$$M_{X_{mc}} = \frac{X_{m_c}}{K_{S,X_{mc}} + X_{m_c}} \quad \text{(I. 112)}$$

$$I_d = \frac{1}{1 + K_F\, e\left(J_p(\beta_1.DRB_V + \beta_2.X_{TS} + \gamma)\right)} \quad \text{(I. 113)}$$

avec $K_F$ ($Pa.s^{-1}$) un paramètre représentant le taux de colmatage lorsque $J_p$ (le flux de permeat) tend vers 0 ; $\beta_1$, $\beta_2$ et $\gamma$ sont les paramètres du modèle.

Zarragoitia *et al.* (2008) proposent également un modèle qui tient en compte de l'effet des cycles de la relaxation ainsi que de l'aération sur la régénération de la membrane. Ce modèle se base sur le modèle de colmatage proposé par Li et Wang (2006) qui prend en considération le détachement du dépôt dû aux forces de cisaillement.

Conclusion

Vu l'importance du colmatage dans la dégradation des performances des procédés membranaires, plusieurs modèles ont été proposés pour quantifier se phénomène en décrivant la croissance de la PTM à un flux de permeat constant et la chute du flux pour une PTM constante. Le Tableau I.13 récapitule l'apport de chaque modèle ainsi que ses limites. La plupart des modèles proposés décrivent le colmatage lors d'une filtration frontale caractérisée par une hydrodynamique plus simple que la filtration tangentielle. Ceci dit les procédés industriels adoptent principalement le

mode tangentiel. Les modèles adaptés à la filtration tangentielle proposés dans littérature sont complexes vu le nombre de paramètres qu'ils mettent en jeu et sont ainsi difficiles à utiliser en pratique. D'autre part peu de modèles considèrent l'effet du lavage périodique adoptés dans tous les procédés industriels. Au moment où plusieurs modèles de colmatage intègrent les phénomènes biologiques ayant lieu dans un bioréacteur aérobie, il existe peu de modèles qui intègrent l'évolution du système biologique dans un digesteur anaérobie. L'objectif de ce travail est donc de proposer un modèle simple adapté à la filtration tangentielle intégrant l'effet du lavage périodique. Couplé à un modèle décrivant la dynamique du système biologique, le modèle proposé sera adapté au cas du BRMAn.

Tableau I. 13: Récapitulatif des modèles de colmatage proposés dans la littérature

| Références | Avantages | Limites |
|---|---|---|
| Hermia (1982) | -Se base sur des phénomènes physiques pour décrire en détail différents mécanismes de colmatage<br>- un seul paramètre à déterminer pour valider chaque modèle | -ne considère pas la possibilité de la simultanéité des mécanismes de colmatage<br>-Limité à la filtration frontale<br>- ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |
| Bolton *et al.* (2006) | -tient en compte de la simultanéité des phénomènes de colmatage | -Limité à la filtration frontale<br>-fait intervenir beaucoup de paramètres<br>- Se limite la simultanéité de deux mécanismes de colmatage<br>- ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |
| Abdelrasoul *et al.* (2013) | - Associer le mode de colmatage à la taille des particules<br>-quantification du colmatage par prédiction de la masse des dépôts et la variation de la PTM<br>- Prédiction de la probabilité d'attachement des particules à la | -Limité à la filtration frontale<br>-fait intervenir beaucoup de paramètres<br>- ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |

| | | |
|---|---|---|
| | membrane | |
| Saroj *et al.* (2008) | -Prédit le temps critique correspondant au début du saut de la PTM<br>-considère le rôle des colmatants solubles<br>- 2 paramètres à déterminer pour valider le modèle | -Limité à la filtration frontale<br>-Ne considère pas le rôle de la matière en suspension dans le colmatage<br>-Ne permet pas un suivi en continu du colmatage<br>- ne définit pas les mécanismes de colmatage<br>- ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |
| Ognier *et al.* (2004) | -tient en compte de l'inhomogénéité du colmatage à la surface de la membrane<br>-Prédit le temps critique correspondant au début du saut de la PTM<br>- 1 paramètre à déterminer pour valider le modèle | -Limité à la filtration frontale<br>-ne considère pas les opérations de régénération de la membrane<br>- ne permet pas de prédire l'évolution de la PTM après le début du saut<br>- ne définit pas les mécanismes de colmatage |
| Katsoufidou *et al.* (2005) | -considère 3 mécanismes de colmatage<br>-considère la simultanéité des mécanismes<br>-Décrit l'adsorption et la désorption de la matière soluble lors de la constriction des pores | -Limité à la filtration frontale<br>-ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |
| Field *et al.* (1995) | -considère l'effet du cisaillement lors d'une filtration tangentielle<br>- l'effet du cisaillement est quantifié | -ne considère pas la possibilité de la simultanéité des mécanismes de colmatage<br>- ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |
| De Bruijn *et* | -considère l'effet du cisaillement | -ne considère pas la possibilité de la |

| | | |
|---|---|---|
| *al.* (2005) | lors d'une filtration tangentielle<br>- l'effet du cisaillement est quantifié | simultanéité des mécanismes de colmatage<br>- beaucoup de paramètres physiques sont considérés<br>- ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |
| Wu *et al.* (2011) | -considère l'effet du cisaillement lors d'une filtration tangentielle<br>- considère différents mécanismes de colmatage<br>- considère la simultanéité des mécanismes de colmatage | - met en jeu plusieurs paramètres<br>-Difficulté de quantifier l'effet du cisaillement<br>- ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |
| Ho et Zydney (2000) | -considère l'effet du cisaillement lors d'une filtration tangentielle<br>-tient en compte de l'inhomogénéité du colmatage à la surface de la membrane | - ne définit pas les mécanismes de colmatage<br>-Difficulté de quantifier l'effet du cisaillement<br>- ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |
| Li et wang (2006) | -considère l'effet du cisaillement lors d'une filtration tangentielle<br>-tient en compte de l'inhomogénéité du colmatage à la surface de la membrane dû à l'inhomogénéité du cisaillement<br>-Permet de quantifier l'effet du cisaillement | - met en jeu plusieurs paramètres<br>- ne considère pas les opérations de régénération de la membrane |
| Robles *et al.* (2013) | -considère l'effet du cisaillement lors d'une filtration tangentielle<br>- Considère l'effet des opérations de régénération de la membrane | - met en jeu plusieurs paramètres |

# CHAPITRE II

## Modélisation de la filtration

Introduction

Ce chapitre est dédié au travail de modélisation que j'ai entrepris dans ce doctorat. Le chapitre est divisé en trois sections. La première est dédiée à l'identification d'un mécanisme de colmatage unique responsable de la dégradation des performances de séparation dans des BRMAn. Ce travail se base sur une procédure numérique utilisant les modèles de colmatage proposés par Hermia (1982) permettant de mettre en évidence de l'effet de certains paramètres biotiques et abiotiques sur le colmatage dans BRMAn. Des résultats de la littérature seront ainsi utilisés et traités par la méthode de travail proposée pour identifier l'origine dominante du colmatage.

Prenant en compte cette origine dominante, une approche du colmatage adaptée à une filtration tangentielle est alors proposée dans la deuxième section de ce chapitre avec la définition d'un modèle simple à deux paramètres considérant une seule famille de colmatants.

Pour pallier les limitations de ce premier modèle, la troisième section de ce chapitre est dédiée à la définition d'un second modèle à trois paramètres, adapté également à la filtration tangentielle mais décrivant plus en détail l'évolution du colmatage en considérant deux familles de colmatants qui diffèrent essentiellement par la taille des composés à retenir au regard du seuil de coupure des membranes. Par ailleurs, ce modèle prend en compte le lavage périodique nécessaire à une régénération ponctuelle de la membrane en cours d'opération. Une étude qualitative de ce modèle est également présentée dans cette section.

### II.1. Identification du mécanisme de colmatage dominant par une approche d'optimisation

D'après la littérature, nous savons bien que les digestats anaérobies sont des effluents complexes en mesure d'entraîner différents mécanismes de colmatage qui peuvent survenir simultanément ou bien successivement. Il n'en reste pas moins que le but de ce travail est de déterminer le

mécanisme de colmatage dominant pour un BRMAn. Nous serons amenés à étudier les mécanismes de colmatage des membranes de micro et d'ultra filtration généralement utilisées dans les BRM qui entraîneront une décroissance du flux de permeat au cours de la procédure de filtration. Dans cette étude nous nous sommes basés sur les quatre modèles proposés par Hermia (1982) qui décrivent séparément quatre différents modes de colmatage : un mode de colmatage interne de la membrane par la constriction des pores et trois modes de colmatage de surface à savoir le blocage complet des pores, le blocage intermédiaire des pores et le colmatage par la formation d'un gâteau. Basé sur une approche d'optimisation et moyennant des données expérimentales de flux de permeat en fonction du temps obtenues à court et à long termes que nous avons extraites de la littérature, nous proposons une procédure systématique pour l'identification du mécanisme de colmatage dominant.

On doit rappeler que les expériences dites à court termes sont des expériences de courte durée et durant lesquelles aucun lavage n'est appliqué. Par contre pour les expériences dites à long termes des cycles de lavages sont appliqués pour éviter le colmatage rapide de la membrane. Dans ce cas, le modèle prédit la dégradation des performances de la filtration sur des opérations longues.

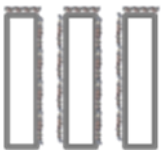
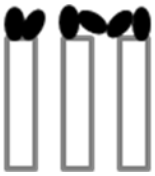
### II.1.1. Méthode d'identification du mode de colmatage

Les seuls modèles décrivant séparément les différents modes de colmatage d'une membrane sont ceux proposés par Hermia en 1982. Ces modèles réalisés pour une filtration frontale ont été modifiés par Field *et al*. (1995) qui ont insérés un paramètre d'érosion du dépôt pour prendre en compte l'effet du cisaillement crée par la recirculation du permeat dans le cas d'une filtration tangentielle. Dans cette étude on a considéré les modèles d'Hermia pour déterminer le mécanisme de colmatage le plus significatif pouvant survenir dans un BRMAn.

Dans cet optique, on a collecté, à partir de la littérature, des données expérimentales décrivant la variation du flux de permeat en fonction du temps de filtration dans un BRMAn, de 32 expériences réalisées sans cycles de lavage dites à court termes et des expériences menés avec des cycles périodiques de lavage dites à long termes.

Les modèles considérés dans cette étude sont présentés dans le Tableau II.1. Ces modèles représentent les solutions analytiques de l'équation (I.3) correspondantes à chaque valeur de n (3/2, 1, 2 ou 0).

Tableau II. 1: Solutions de l'équation (I.3) pour les différentes valeurs de n

| | **Mode de colmatage** | **Expression du flux** |
|---|---|---|
| | Formation du gâteau<br>n=0 | $J_p = \frac{J_0}{(2K_{cf}J_0^2\,t+1)^{\frac{1}{2}}}$ (II. 1)<br>$K_{cf} = k\,A^2$ (II. 2)<br>$K_{cf} = \frac{\alpha\,C\,\mu_P}{\rho_s \Delta P}$ (II. 3) |
|  | Constriction des pores<br>n=3/2 | $J_p = \frac{4J_0}{\left(K_{sb}\,J_0^{\frac{1}{2}}\,t+2\right)^2}$ (II. 4)<br>$K_{sb} = k\,A^{1/2}$ (II. 5)<br>$K_{sb} = \frac{2\,C\,J_0^{1/2}}{\rho_s\,e}$ (II. 6) |
|  | Blocage intermédiare<br>n=1 | $J_p = \frac{J_0}{K_{ib}J_0 t+1}$ (II.7)<br>$K_{ib} = k\,A$ (II. 8)<br>$K_{ib} = \frac{C}{\rho_s\,h}$ (II. 9) |
| | Blocage complet<br>n=2 | $J_p = J_0\exp(-K_{cb}t)$ (II. 1)<br>$K_{cb} = k$ (II. 11)<br>$K_{cb} = \frac{J_0 C}{\rho_s\,h}$ (II. 12) |

En vue de déterminer le mode de colmatage responsable de la chute du flux pour les données extraites de la littérature, on considère les expressions du flux relatives aux quatre mécanismes de colmatage présentés dans le Tableau II.1. Plus précisément, on considère le flux de permeat en fonction du temps, on fixe la valeur du flux initial $J_0$ et on optimise les paramètres $K_{cf}$, $K_{sb}$, $K_{ib}$ et

$K_{cb}$ correspondant à chaque modèle. L'expression qui décrit le mieux les donnés expérimentales (l'expression présentant la valeur minimale du moindre carré) suggère le mécanisme le plus probable responsable de la chute du flux observée. Nous supposerons que ce mécanisme est le seul responsable du colmatage. L'optimisation de ces paramètres a été réalisée moyennant la méthode des moindres carrés programmée avec le logiciel Matlab R2008b. La procédure utilisée est représentée graphiquement dans la figure II.1.

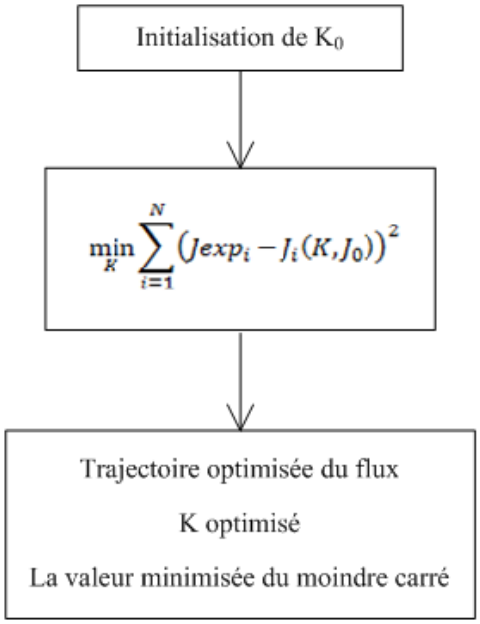



Figure II. 1: L'algorithme de l'optimisation du paramètre K

Ainsi, une trajectoire optimale est obtenue pour chaque mode de colmatage. La figure II.2 présente les données expérimentales publiées par Choo et Lee (1998) ainsi que les trajectoires théoriques des quatre mécanismes. Dans le cas présent, le modèle le plus en adéquation aux données expérimentales est le modèle de formation de gâteau (n=0) tracé en ligne continue. La même procédure a été utilisée pour les expériences à long terme. La figure II.3 montre des données expérimentales à long terme (He *et al.*, 2005) correspondantes aux flux de permeat avant et après chaque opération de lavage et le modèle qui décrit le mieux ces donnés est le modèle du blocage complet (n=2).

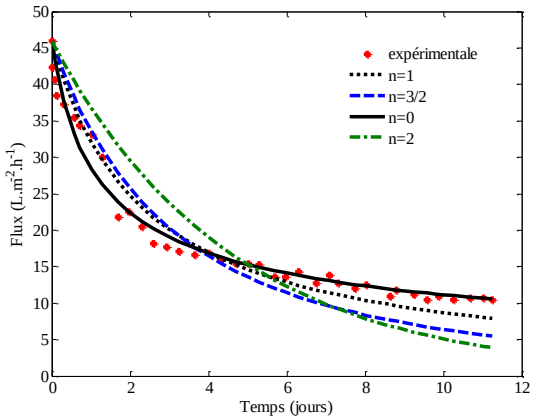



Figure II. 2: Les données de flux expérimentales (Choo et Lee 1998) et de flux théoriques optimisés pour les différents modes de colmatage

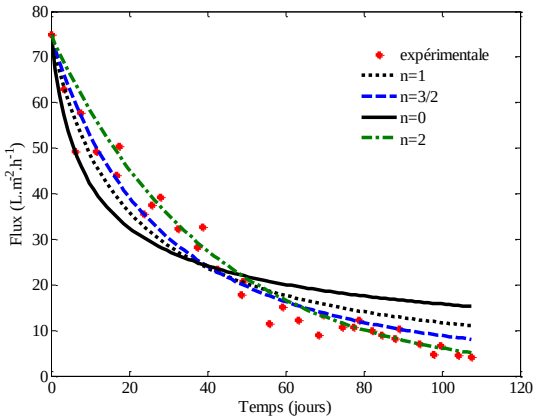



Figure II. 3: Les données de flux expérimentales (He *et al.* 2005) et de flux théoriques optimisés pour les différents modes de colmatage

Dans le cas où l'expression du flux optimal ne permet pas de décrire les donnés expérimentales (Figure II.4), on partage les données expérimentales en deux périodes. Pour la première période on fixe $J_0$ à la première valeur du flux correspondant au temps initial $t_{0,1}$. $t_{0,end}$ correspond au flux qui ne vérifie plus la première phase et correspond à $t_{0,2}=t_{0,end}$, la valeur initiale de la seconde phase. Le mécanisme de colmatage pour chaque phase est ensuite déterminé de la même manière que décrite précédemment. Un exemple de ce cas est présenté dans la figure II.5 où la décroissance du flux passe par deux phases. La première phase est décrite par le modèle de constriction des pores (optimisé dans le Tableau II.2) tandis que la seconde phase correspond au modèle de blocage intermédiaire.

Tableau II. 2: Détermination du mode de colmatage par les valeurs des moindres carrés, exemple des données de Ho et Sung (2009)

| Mode de colmatage | Formation de gâteau | Constriction des pores | Blocage intermédiaire | Blocage complet |
|---|---|---|---|---|
| Le moindre carré $\min_{K} \sum_{i=1}^{N} \left(Jexp_i - J_i(K, J_0)\right)^2$ | $1{,}87\ 10^{-14}$ | $3{,}65\ 10^{-16}$ | $1{,}28\ 10^{-15}$ | $5{,}94\ 10^{-15}$ |

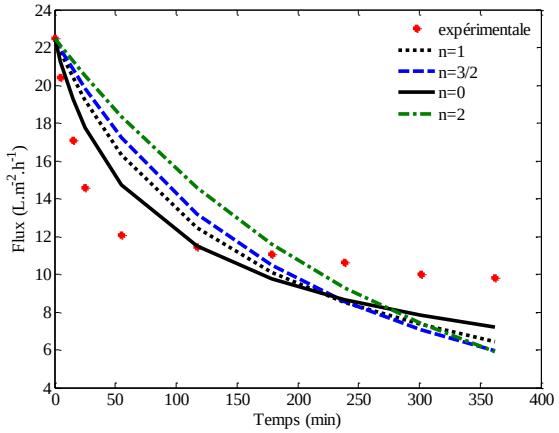



Figure II. 4: Optimisation du mode de colmatage en supposant un seul mode de colmatage, étude des données de Ho et Sung (2009)

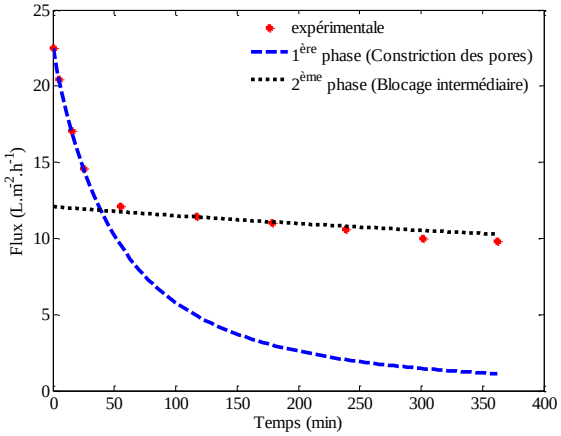



Figure II. 5: Optimisation du mode de colmatage dans le cas de deux phases de colmatage, étude des données de Ho et Sung (2009)

II.1.2. Tendance générale du colmatage

Les Tableaux II.3 et II.4 présentent les conditions opératoires des BRMAn pour lesquelles les données de flux à court terme ont été étudiées. Le mode de colmatage identifié ainsi que la valeur de $K_{cf}$, $K_{sb}$, $K_{ib}$ ou $K_{cb}$ optimisé (selon le mode de colmatage optimal) sont également mentionnés.

L'analyse des Tableaux II.3 et II.4 montre que le colmatage pour les expériences à court terme aussi bien dans le cas de l'ultra ou microfiltration, passe par deux phases de colmatage successives correspondantes à deux différents mécanismes de colmatage. Dans certains cas, les deux phases sont contrôlées par le même mode de colmatage, ceci dit le paramètre optimisé présente des valeurs différentes d'une phase à l'autre. Ceci est illustré par le cas des données de Kang *et al.* (2002) (Tableau II.3, ligne 4), où le modèle de colmatage par formation de gâteau prédit très bien les données expérimentales de la première phase avec une valeur optimisée du paramètre $K_{cf}$= 2,06 $10^4$ s.m$^{-2}$ ainsi que les données de la seconde phase avec une valeur de $K_{cf}$=500,58 s.m$^{-2}$. Ceci était également le cas des données d'Elmaleh et Abdelmoumni (1997) (Tableau II.3, ligne 6) pour lequel le modèle de blocage complet modèlise le mieux les deux phases de colmatage avec différentes valeurs du paramètre $K_{cb}$.

En considérant les résultats obtenus pour les données expérimentales à court terme, on remarque qu'au cours de la première phase, le mode de colmatage diffère d'un cas à l'autre que ce soit pour

la Microfiltration ou bien l'Ultrafiltration. Par contre la seconde phase de colmatage est principalement contrôlée par la formation d'un gâteau.

Pour les données à long termes, présentés dans les Tableaux II.5 et II.6, l'analyse des résultats montre que contrairement aux expériences à courts termes, un seul mode de colmatage est trouvé pour presque tous les cas étudiés. Aussi bien pour les cas de la microfiltration que l'Ultrafiltration, le colmatage de surface est responsable de la chute du flux de permeat. Ceci dit on note que le paramètre $K_{cf}$ relatif au colmatage par gâteau varie d'un cas à un autre. Ce paramètre, comme le montre l'équation II.6, dépend des caractéristiques du gâteau. En effet, en considérant le cas de Saddoud *et al*. (2007) et celui de Zayen *et al*. (2010) (Tableau II.6), on note que les deux expériences utilisent des BRMAn fonctionnant sous des conditions opératoires similaires pour traiter respectivement des eaux usées municipales et des lixiviats. Ces expériences diffèrent principalement par la nature de l'effluent et par la concentration en MES (0,38 $gMES.L^{-1}$ et 0,68 $gMES.L^{-1}$). Les données de Zayen *et al*. (2010) présentent la variation du flux au cours de deux cycles de filtration séparées par un lavage chimique. L'analyse du mode de colmatage révèle que les données des deux travaux suivent le modèle du colmatage par gâteau.

L'analyse des valeurs du paramètre optimisé $K_{cf}$ révèle des valeurs similaires pour les deux cycles qui forment les données de Zayen *et al*. (2010) ($K_{cf}$=199,570 $s.m^{-2}$ et $K_{cf}$=258,840 $s.m^{-2}$). Ces valeurs sont plus importantes que la valeur de $K_{cf}$ obtenue pour les données de Saddoud et al. (2007) ($K_{cf}$=20,351 $s.m^{-2}$). En considérant le modèle de la formation de gâteau (Tableau II.1), on peut dire que plus la valeur de $K_{cf}$ est élevée, plus la chute du flux est importante. Comme le montre la Figure II.6, la chute du flux est plus importante dans le cas de Zayen *et al*. (2010). Cette différence pourrait être due aussi bien à la teneur en MES qu'à la nature de l'effluent traité qui engendre un gâteau plus dense.

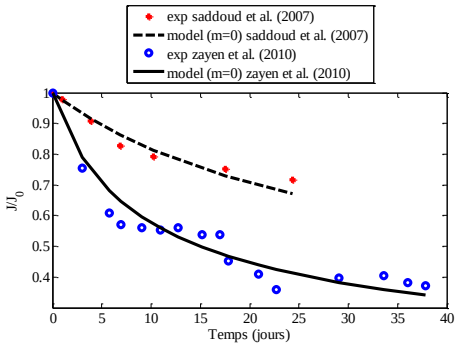



Figure II. 6: Comparaison des données de Saddoud *et al*. (2007) et Zayen *et al*. (2010)

Tableau II. 3: Les conditions opératoires des données à court termes utilisant des membranes MF

| Ligne | Références | Temps (h) | Membrane | Seuil de coupure | MES (g/L) | T (°C) | Mode de filtration | Substrat | Paramètre optimisé | Mode de colmatage |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 1 | Ho et Sung (2009) | 6,66 | Tubulaire (polytetrafluoroethylene), KNH | 1 µm | 9 | 25 | Tangentiel (0,1-0,7 $m.s^{-1}$) | Eaux usées municipales | 1ère phase | |
| | | | | | | | | | $0,13\ s^{-1/2}$ ±0,0014 (1%) | Constriction des pores |
| | | | | | | | | | 2ème phase | |
| | | | | | | | | | $3,9\ m^{-1}$ ±0,1872 (4,8%) | Blocage intermédiaire |
| 2 | Kocadagistan et Topcu (2007) | 1 | Plane (acétate de cellulose), Schleicher & Schuel | 0,2 µm | 1,5 | 35 | Tangentiel | Eaux usées municipales | 1ère phase | |
| | | | | | | | | | $4,1\ 10^{-3}\ s^{-1}$ ±$2\ 10^{-4}$ (4,87%) | Blocage complet |
| | | | | | | | | | 2ème phase | |
| | | | | | | | | | *$1,22\ 10^{5}\ s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| 3 | Kang *et al*. (2002) | 150 | Tubulaire (propylène), Microdyne (Germany) | 0,2 µm | 2 | 55 | Tangentiel (3 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'une distillerie d'alcool | 1ère phase | |
| | | | | | | | | | *$1,28\ 10^{4}\ s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2ème phase: flux constant | |
| 4 | Kang *et al*. (2002) | 150 | Tubulaire (revêtue de $ZrO_2$), Carbosep (France) | 0,14 µm | 2 | 55 | Tangentiel (3 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'une distillerie d'alcool | 1ère phase | |
| | | | | | | | | | *$2,06\ 10^{4}\ s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2ème phase | |
| | | | | | | | | | $500,58\ s.m^{-2}$ ±21,6705 (4,33%) | Formation de gâteau |

*Les cas où l'erreur est supérieure à 10%

| Ligne | Références | Temps (h) | Membrane | Seuil de coupure | MES (g/L) | T (°C) | Mode de filtration | Substrat | Paramètre optimisé | Mode de colmatage |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 5 | Elmaleh et Abdelmoumni (1997) | 3,5 | Tubulaire (revêtue de $ZrO_2$), Carbosep (France) | 0,2 µm | 0,13 | 35 | Tangentiel | Acide acétique mélangé à des nutriments dans de l'eau de robinet | 1st phase | |
| | | | | | | | | | *4,10 $10^{6}$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2nd phase | |
| | | | | | | | | | 1,77 $10^{-5}$ $s^{-1}$ ±0,0172 $10^{-4}$ (9,71%) | Blocage complet |
| 6 | Elmaleh et Abdelmoumni (1997) | 3,5 | Tubulaire (revêtue de $ZrO_2$), Carbosep (France) | 0,14 µm | 0,13 | 35 | Tangentiel | Acide acétique mélangé à des nutriments dans de l'eau de robinet | 1st phase | |
| | | | | | | | | | *1,46 $10^{-4}$ $s^{-1}$ | Blocage complet |
| | | | | | | | | | 2nd phase | |
| | | | | | | | | | *7,2 $10^{-6}$ $s^{-1}$ | Blocage complet |
| 7 | Lee *et al*. (2001) | 24 | Membrane of mixed esters of cellulose | 0,5 µm | 0,5-0,7 | 35 | Frontal | Eaux usées d'élevage porcin | 0,12 $s^{-1/2}$ ±0,0032 (2,66%) | Constriction des pores |

*Les cas où l'erreur est supérieure à 10%

Tableau II. 4: Les conditions opératoires des données à court termes utilisant des membranes UF

| Ligne | Références | Temps (h) | Membrane | Seuil de coupure | MES (g/L) | T (°C) | Mode de filtration | Substrat | Paramètre optimisé | Mode de colmatage |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 1 | Choo et Lee (1998) | 288 | Plane (Fluoropolymère), DDS (danemark) | 20 kDa | 1,15 | 53-55 | Tangentiel (0,5 - 1,25 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'une distillerie d'alcool | 5,69 $10^4$ $sm^{-2}$ ±0,4725 $10^4$ (8,29%) | Formation de gâteau |
| 2 | Elmaleh et Abdelmoumni (1997) | 3,5 | Tubulaire (revêtue de $ZrO_2$), Carbosep (France) | 0,08 µm | 0,13 | 35 | Tangentiel | Acide acétique mélangé à des nutriments dans de l'eau de robinet | 1ère phase | |
| | | | | | | | | | *3,17 $10^{-4}$ $s^{-1}$ | Blocage complet |
| | | | | | | | | | 2ème phase | |
| | | | | | | | | | *35636 $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| 3 | Lin *et al.* (2009) | 504 | Plane (PVDF) | 70 kDa | 20,66 | 55 | Frontal | Condensat d'évaporat-eur | 1ère phase | |
| | | | | | | | | | *3,83 $10^7$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2ème phase : flux constant | |
| 4 | Waeger *et al.* (2010) | 5,83 | Tubulaire ($TiO_2$), Atech | 0,05 µm | 19,7 | 37 | Tangentiel (3 $m.s^{-1}$) | Déchets organiques ménagers | 1ère phase | |
| | | | | | | | | | 2,16 $10^5$ $s.m^{-2}$ ±0,1634 $10^5$ (7,55%) | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2ème phase : flux constant | |

* Les cas où l'erreur est supérieure à 10%

| Ligne | Références | Temps (h) | Membrane | Seuil de coupure | MES (g/L) | T (°C) | Mode de filtration | Substrat | Paramètre optimisé | Mode de colmatage |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 5 | Waeger *et al*. (2010) | 4 | Tubulaire ($TiO_2$), Atech | 0,05 µm | 19,7 | 37 | Tangentiel (3 $m.s^{-1}$) | Déchets organiques ménagers | 1er cycle | |
| | | | | | | | | | *9,43 $10^5$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2ème cycle | |
| | | | | | | | | | *2,25 $10^5$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 3ème cycle ;1ère phase | |
| | | | | | | | | | *1,49 $10^7$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 3ème cycle ; 2ème phase | |
| | | | | | | | | | *1,78 $10^6$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| 6 | Gao *et al*. (2010) | 480 | Plane (Polyetherimide, PEI), Membrane Technology & research, Inc. (Menlo Park, CA) | 30 kDa | - | 30 | Tangentiel | Eaux usées reconstitu-ées | *2,07 $10^5$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| 7 | He *et al*. (2005) | 2 | Plane (Polyethersulfone , PES), Shanghai Institute of Applied Physics | 20 kDa; | 0,6-1 | 37 | Cross flow (1,4-1,5 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'usine d'agroalim-entaire | 1st phase | |
| | | | | | | | | | *8,12 $10^6$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2nd phase | |
| | | | | | | | | | 1,86 $m^{-1}$ ±0,03 (1,63%) | Blocage intermédi-aire |

*Les cas où l'erreur est supérieure à 10%

| Ligne | Références | Temps (h) | Membrane | Seuil de coupure | MES (g/L) | T (°C) | Mode de filtration | Substrat | Paramètre optimisé | Mode de colmatage |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 8 | He *et al*. (2005) | 2 | Plane (Polyethersulfone, PES), Shanghai Institute of Applied Physics | 30 kDa; | 0,6-1 | 37 | Tangentiel (1,4-1,5 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'usine d'agroalim-entaire | 1st phase | |
| | | | | | | | | | *1,23 $10^6$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2nd phase | |
| | | | | | | | | | *2,25 $10^4$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| 9 | | 2 | Plane (Polyethersulfone, PES), Shanghai Institute of Applied Physics | 50 kDa | 0,6-1 | 37 | Tangentiel (1,4-1,5 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'usine d'agroalim-entaire | 1st phase | |
| | | | | | | | | | *1,46 $10^6$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2nd phase | |
| | | | | | | | | | *1,32 $10^4$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| 10 | | 2 | Plane (Polyethersulfone, PES), Shanghai Institute of Applied Physics | 70 kDa | 0,6-1 | 37 | Tangentiel (1,4-1,5 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'usine d'agroalim-entaire | 1st phase | |
| | | | | | | | | | *6,17 $10^5$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | 2nd phase | |
| | | | | | | | | | *1,35 $10^4$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |

*Les cas où l'erreur est supérieure à 10%

Tableau II. 5: Les conditions opératoires des données à long termes utilisant des membranes MF

| **Référen-ces** | **Temps de manipu-lation (jours)** | **Membrane** | **Seuil de coupure** | **Lavage** | **TSB (jours)** | **MES (g/L)** | **T (°C)** | **Mode de filtration** | **Substrat** | **Paramètre optimisé** | **Mode de colmatage** |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Jeison *et al*. (2009) | 200 | Tubulaire ($Al_2O_3$), Atech | 0,2µm | filtration/ contre lavage 5min/20s | - | 28 | 55 | Tangentiel (1,5 $m.s^{-1}$) | Substrat non acidifié constitué de 40% gélatine, 40% amidon et 20% éthanol | * 43592 $s.m^{-2}$ | Formation de gateau |
| Lee *et al*. (2001) | 85 | Membrane d'esters de cellulose mélangés | 0,5µm | Filtration/ contre lavage 10min/5s | - | 0,5-0,7 | 35 | Frontal | Eaux usées d'élevage porcin | 8 $10^{-7}$ $s^{-1}$ ±0,614 $10^{-7}$ (7,67%) | Blocage complet |
| Trzcinski *et al*. (2009) | 200 | Plane (Polyethylè-ne), Kubota | 0,4µm | Barbotage de gaz | - | 3,31 | 35 | Frontal | Lixiviats issus du compostage de papier | * 128110 $s.m^{-2}$ | Formation de gateau |
| Trzcinski *et al*. (2010) | 120 | Plane (Polyethylè-ne), Kubota | 0,4µm | Barbotage de gaz | 30 | 4,4 | 35 | Frontal | Déchets solides municipaux | 0,9248 $m^{-1}$ ±0,0792 (8,56%) | Blocage intermédia ire |

| | | | | | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Trzcinski *et al*. 2010 | 120 | Plane (Polyethylè-ne), Kubota | 0,4µm | Barbotage de gaz | 300 | 5,2 | 20 | Frontal | Déchets solides municipaux | * 1,6777 $10^7$ $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |

Tableau II. 6: Les conditions opératoires des données à long termes utilisant des membranes UF

| **Référen-ces** | **Temps de manipu-lation (jours)** | **Membrane** | **Seuil de coupure** | **Lavage** | **TSB (jours)** | **MES (g/L)** | **T (°C)** | **Mode de filtration** | **Substrat** | **Paramètre optimisé** | **Mode de colmatage** |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Saddoud *et al*. (2007) | 170 | Tubulaire (TiO2), Atech | 100kDa | | - | 0,38 | 37 | Tangentiel (3 $m.s^{-1}$) | Eaux usées municipales | * 20351 $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| Zayen *et a*l. (2010) | 85 | Tubulaire (TiO2), Atech | 100kDa | Lavage chimique entre les cycles durant 1h | - | 0,68 | 37 | Tangentiel (3 $m.s^{-1}$) | Lixiviats d'une décharge municipale | 1st cycle | |
| | | | | | | | | | | * 199570 $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | | 2nd cycle | |
| | | | | | | | | | | * 258840 $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| Padmasiri *et al*. (2007) | 130 | Tubulaire (PES), Weir Envig, Paarl, South Africa | 20kDa | Lavage chimique toutes les semaines et tous les mois | - | 20 | 37 | Tangentiel (0,9 $m.s^{-1}$) | Lisier de porc | * 34913 $s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |

| | | | | | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| He *et al*. (2005) | 110 | Plane (PES), Shanghai Institute of Applied Physics | 20kDa | Rétrolavage par le permeat 30min /jour Et lavage chimique 1fois/10jours Durant 1h | - | 0,6-1 | 37 | Tangentiel (1,4-1,5 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'usine d'agroalim-entaire | 1,47 $10^{-7}$ $s^{-1}$ ±0,095 $10^{-7}$ (6,78%) | Blocage complet |
| | 110 | Plane (Polyethersulfone, PES), Shanghai Institute of Applied Physics | 30kDa | Rétrolavage par le permeat 30min /jour Et lavage chimique 1fois/10jours Durant 1h | - | 0,6-1 | 37 | Tangentiel (1,4-1,5 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'usine d'agroalim-entaire | 1,5 $10^{-7}$ $s^{-1}$ ±0,094 $10^{-7}$ (6,26%) | Blocage complet |
| | 110 | Plane (Polyethersulfone, PES), Shanghai Institute of Applied Physics | 50kDa | Rétrolavage par le permeat 30min /jour Et lavage chimique 1fois/10jours Durant 1h | - | 0,6-1 | 37 | Tangentiel (1,4-1,5 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'usine d'agroalim-entaire | 1,5 $10^{-7}$ $s^{-1}$ ±0,115 $10^{-7}$ (7,66%) | Blocage complet |

| | | | | | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | 110 | Plane (Polyethersulfone, PES), Shanghai Institute of Applied Physics | 70kDa | Rétrolavage par le permeat 30min /jour Et lavage chimique 1fois/10jours Durant 1h | - | 0,6-1 | 37 | Tangentiel (1,4-1,5 $m.s^{-1}$) | Eaux usées d'usine d'agroalim-entaire | $3\ 10^{-7}\ s^{-1}$ $\pm 0{,}189\ 10^{-7}$ (6,3%) | Blocage complet |

| | | | | | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Abdullah *et al.* (2005) | 45 | Tubulaire (Polysulfone), PCI | 200kDa (0,1µm) | Lavage à l'eau tous les jours | 1250-16,1 | 12,7-21,8 | - | Tangentiel | Boue issue du traitement des eaux usées | $5\ 10^{-7}\ s^{-1}$ $\pm 0{,}329\ 10^{-7}$ (6,58%) | Blocage complet |
| Waeger *et al*. (2010) | 5,83h | Tubulaire ($TiO_2$), Atech | 0,05 µm | Lavage à l'eau | - | 19,7 | 37 | Tangentiel | Déchets organiques ménagers | * $7{,}62\ 10^{-5}\ s^{-1}$ | Blocage complet |
| Gao *et al*. (2010) | 60 | Plane (cPVDF), Membrane Technology & research, Inc. (Menlo Park, CA) | 100kDa | Pas de lavage | 50 | - | 30 | Tangentiel | Eaux usées reconstituées | 1st phase | |
| | | | | | | | | | | * $67068\ s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |
| | | | | | | | | | | 2nd phase | |
| | | | | | | | | | | * $8031{,}2\ s.m^{-2}$ | Formation de gâteau |

*Les cas où l'erreur est supérieure à 10%

## II.2. Modèle du colmatage par gâteau à deux paramètres

### II.2.1. Hypothèses

Afin d'obtenir un modèle simple, plusieurs hypothèses ont été prises en compte. En effet, La taille des particules formant la suspension à filtrer est supposée supérieure à la taille des pores de la membrane. Ces particules seront donc totalement retenues par celle-ci. Par ailleurs, nous avons considéré la formation d'un gâteau à la surface de la membrane comme l'unique mode de colmatage. Considérant l'effet du cisaillement créé au voisinage de la membrane par le flux d'alimentation lors d'une filtration tangentielle, le dépôt formé à la surface de la membrane sera la différence entre la masse des particules ramenées vers la membrane par les forces de perméation et la masse des particules entraînées par les forces de cisaillement. Le gâteau formé est supposé garder la même porosité au cours du temps de filtration et par suite une résistance spécifique constante.

Ce modèle décrira, à une PTM constante, la décroissance du flux de permeat due à la hausse de la résistance hydraulique de la membrane au cours du temps de filtration selon la loi de Darcy.

### II.2.2. Bilan de matière

L'établissement du bilan de matière à la surface de la membrane (équation. II.13) permet de déterminer la masse du dépôt accumulé par unité de surface $m_c$ à un temps t et son influence sur la décroissance du flux de permeat. Durant une courte période de filtration dt, la masse spécifique des particules accumulées peut être estimée par la différence entre la masse spécifique des particules entraînées vers la membrane par les forces de permeation au cours de la filtration $dm_{in}$ et la masse spécifique des particules détachées de la surface de la membrane par les forces de cisaillement $dm_{out}$ comme le montre la Figure II.7.

$$dm_c/dt = dm_{in}/dt - dm_{out}/dt \qquad \text{(II. 13)}$$

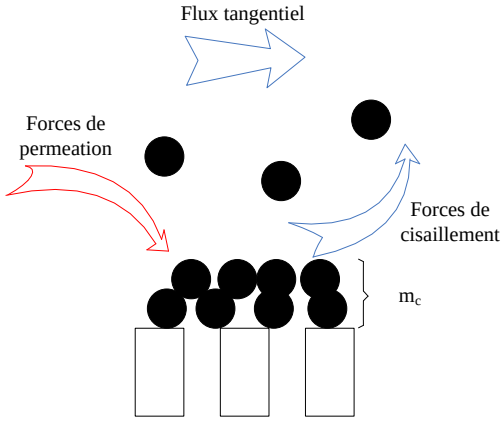



Figure II. 7: Rôle des forces de permeation et de cisaillement dans la formation d'un dépôt à la surface de la membrane

A un temps t, la masse spécifique additionnée par les forces de permeation est considérée comme proportionnelle à la concentration de la matière en suspension X supposée constante et au flux de permeat comme indiqué dans l'équation II.14.

$$\frac{dm_{in}}{dt} = X.J_p \qquad \text{(II. 14)}$$

La masse spécifique des particules détachées au cours d'une courte période due à la contrainte de cisaillement est supposée proportionnelle à (i) la masse spécifique des particules accumulées à un temps t (supposée proportionnelle à l'épaisseur instantanée du gâteau) et (ii) au flux spécifique des particules entraînées vers la membrane par les forces de permeation $dm_{in}/dt$ (II.15). Cette relation est basée sur les hypothèses suivantes, (i) lorsque $m_c$ est faible, le détachement est limitée, (ii) au moment où $m_c$ atteint sa valeur maximale (égale à l'épaisseur de la sous-couche laminaire), le flux de particules détachées est égal au flux de particules entraînées vers la surface de la membrane dû à la filtration. Dans cette relation, β apparait comme un coefficient représentant la capacité des forces du cisaillement de détacher les particules déposées.

$$\frac{dm_{out}}{dt} = \frac{dm_{in}}{dt}.\frac{m_c}{m_{c,lim}} = \beta\,\frac{dm_{in}}{dt}.m_c \qquad \text{(II. 15)}$$

Dans la relation II.15, $m_{c,lim}$ est supposée une fonction inverse de la contrainte de cisaillement locale, exprimé par le critère β (avec $\beta = 1/m_{c,lim}$). La variation de la masse spécifique des particules accumulées par unité de surface est exprimée par l'équation II.16.

$$\frac{dm_c}{dt} = X\,J_p(1 - \beta m_c) \qquad \text{(II. 16)}$$

Afin de décrire la variation du flux de permeat $J_p$, nous avons considéré le modèle de résistance en séries basé sur la loi de Darcy (équation II.17)

$$J_p = \frac{PTM}{\mu\,(R_0+R_c)} \qquad \text{(II. 17)}$$

Avec PTM la pression transmembranaire, μ la viscosité dynamique du permeat, $R_0$ la résistance intrinsèque de la membrane et $R_c$ la résistance du gâteau. $R_c$ et $R_0$ sont exprimées respectivement par les équations II.18 et II.19.

$$R_c = \alpha\, m_c \qquad \text{(II. 18)}$$

$$R_0 = \frac{PTM}{\mu\, J_0} \qquad \text{(II.19)}$$

Avec α et $J_0$ représentent respectivement la résistance spécifique du gâteau et le flux de permeat initial obtenu pour la membrane à l'état propre.

Les équations II.16 et II.20 présentent les relations fondamentales du modèle de gâteau finalement obtenu. Deux paramètres principaux sont ainsi identifiés comme α et β. L'identification de ces paramètres permet la simulation de l'évolution de la masse spécifique du gâteau dans un BRM, la résistance du gâteau et la décroissance du flux de permeat au cours du temps de filtration.

$$\begin{cases} \frac{dm_c}{dt} = X\, J_p\,(1-\beta m_c) \\ J_p(t) = \frac{PTM}{\left(\frac{PTM}{J_0}+\mu\alpha\, m_c(t)\right)} \end{cases} \qquad \text{(II. 20)}$$

Le modèle obtenu préserve la positivité de $m_c$. En effet, $\beta m_c \leq 1$ et par conséquent $dm_c/dt \geq 0$.

II.2.3. Comportement qualitatif du modèle

Les simulations du modèle ont été obtenues moyennant le logiciel matlab R2008b.

Une étude préliminaire du comportement qualitatif du modèle a été menée. Les simulations numériques (Figure II.8) confirment la croissance de la masse spécifique du gâteau au cours du temps jusqu'à atteindre une valeur stationnaire qui correspond à un équilibre entre l'accumulation des particules due à la filtration et leur détachement dû aux forces de cisaillement. Ce phénomène induit à une décroissance du flux de permeat au cours du temps jusqu'à atteindre un état d'équilibre.

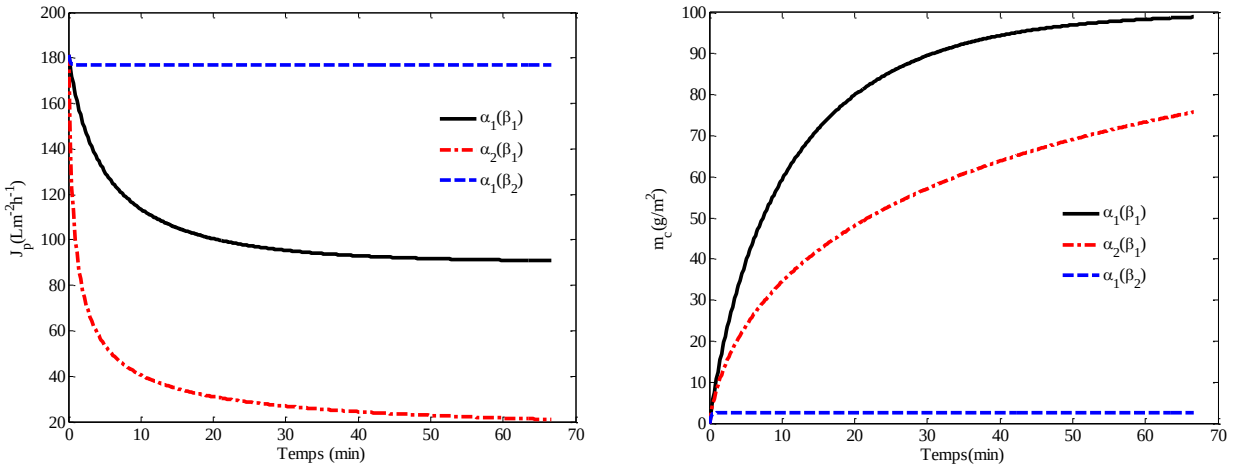



Figure II. 8: Simulations de l'évolution de la masse spécifique du gâteau ainsi que le flux de permeat au cours du temps de filtration ($\alpha_1$= $10^{13}$, $\alpha_2$= $10^{14}$ m.kg$^{-1}$ and $\beta_1$=10, $\beta_2$=400 m$^2$.kg$^{-1}$)

La croissance de α entraîne la chute du flux de permeat et la hausse de la résistance du gâteau. La croissance de β entraîne une augmentation du flux de permeat qui atteint plus rapidement sa valeur stationnaire et la décroissance de la masse du dépôt et de sa résistance.

II.2.4. Prédiction des conditions de la phase stationnaire

La Figure II.9 présente une illustration de l'influence des paramètres α et β sur deux variables clés qui représentent la performance d'un procédé de filtration, à savoir les valeurs de la résistance du gâteau $R_{c,max}$ et du flux de permeat $J_{p,end}$ à la phase stationnaire obtenue à l'équilibre entre le dépôt et le détachement des particules à la surface de la membrane.

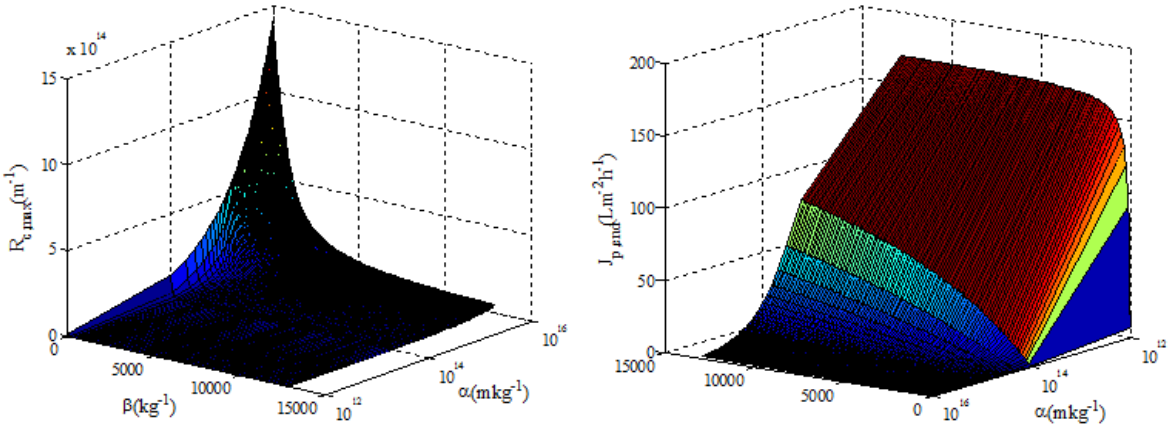



Figure II. 9: Les valeurs de la résistance du gâteau et du flux de permeat en fonction de la variation des paramètres α et β

La Figure II.9 met en évidence les points suivant (i) pour une faible valeur de α (<$10^{13}$m.kg$^{-1}$), la résistance du gâteau semble faible et ainsi il ne serait pas nécessaire d'appliquer un cisaillement important pour maintenir un flux de permeat élevé (ii) par contre pour un α important (>$10^{14}$m.kg$^{-1}$), l'influence de β est évidente sauf que son efficacité peut être rapidement limitée pour une valeur élevée de α excepté en combinant le cisaillement et d'autre opérations de lavage de surface (la relaxation et le contre-lavage).

Une étude de sensibilité a été également menée pour étudier l'effet de la résistance spécifique du gâteau α (m.kg$^{-1}$) et le paramètre de cisaillement β (m$^2$.kg$^{-1}$), sur les sorties du modèle. La variation de ces paramètres entraîne une variation importante de la résistance du gâteau ainsi que le flux de permeat à la phase stationnaire $R_{c,max}$ and $J_{p,end}$ (Figure II.10). Ces sorties sont sensibles aux paramètres α et β qui doivent être bien optimisés pour bien contrôler le système.

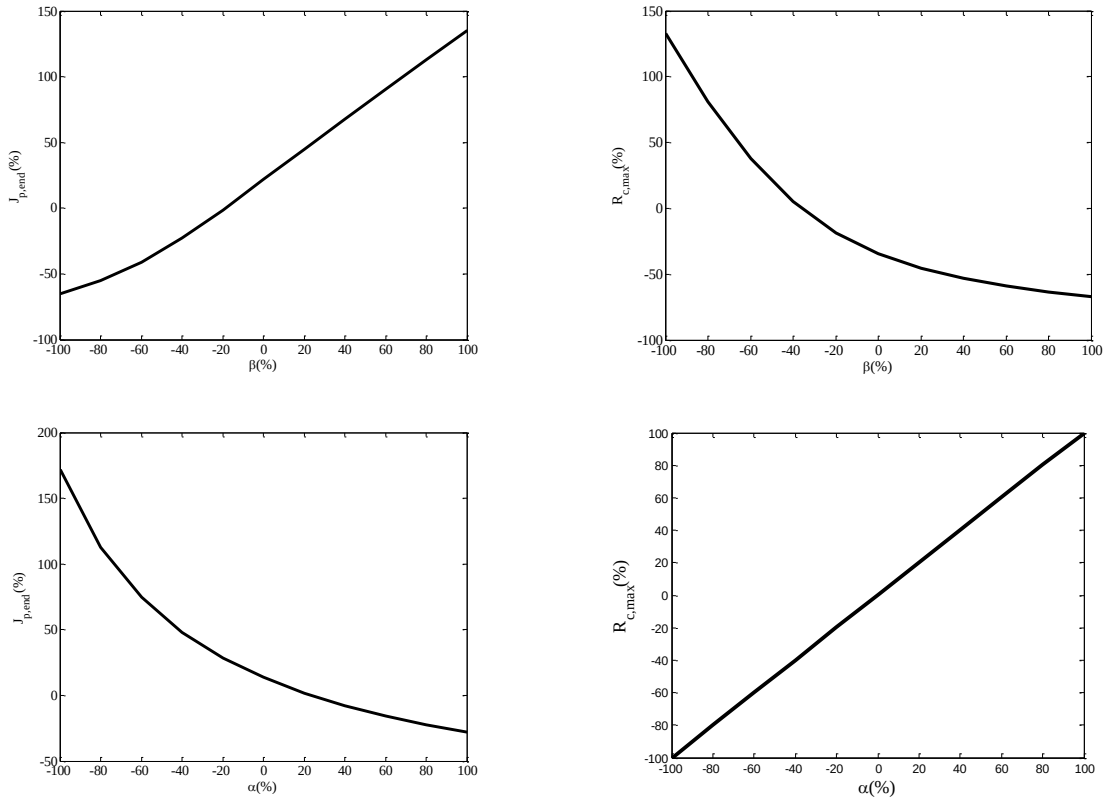



Figure II. 10: Sensibilité des paramètres du modèle α et β

II.2.5. Extension à la filtration à flux constant

Le modèle à deux paramètres conçu à la base pour décrire la décroissance du flux de permeat pour une PTM constante, peut servir également à décrire la croissance de la PTM pour un flux de permeat constant (cas des BRM immergée). La Figure II.11 montre l'évolution de la PTM à un

flux constant qui croît jusqu'à atteindre un état stationnaire. Dans la littérature, cette allure correspond à l'évolution de la PTM à court termes (Ognier *et al*., 2004).

Les effets des paramètres α et β sont également mis en évidence dans la Figure II.9. En effet la croissance du paramètre α entraîne une croissance plus rapide de la PTM qui atteint une valeur pseudo-stationnaire plus élevée. D'autre part, pour une même résistance spécifique du gâteau α, l'augmentation de l'intensité du cisaillement exprimé par le paramètre β, entraîne la formation d'un dépôt moins épais avec une PTM moins élevée à la phase pseudo-stationnaire.

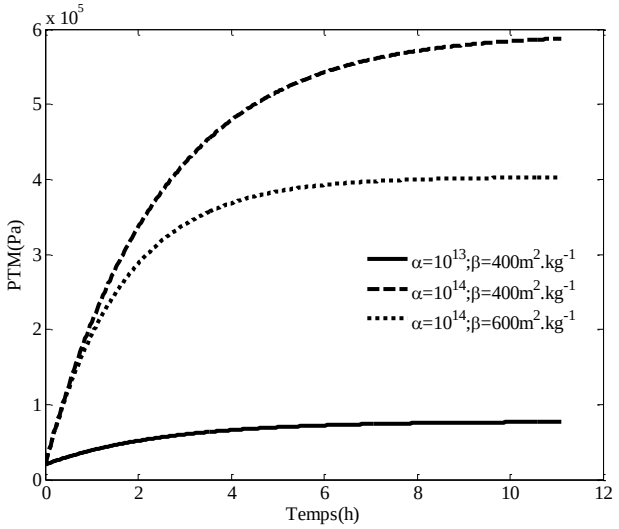



Figure II. 11: Allure de la variation de la PTM à flux de permeat constant pour différentes valeurs de α et β

II.3. Modèle du colmatage de surface à trois paramètres

Comme on l'a expliqué précédemment dans la section (I.5.4), en filtrant des suspensions biologiques à flux de permeat constant, le colmatage de la membrane est traduit par une croissance de la PTM. L'allure de la PTM souvent trouvée dans la littérature est caractérisée par une première croissance lente due au colmatage progressif de la membrane, suivie d'un saut de la PTM qui traduit un colmatage sévère de la membrane. Le modèle à deux paramètres ne permet de modéliser que la première phase ce qui le limite à des manipulations à court terme. Dans cette section, un deuxième modèle est proposé sur la base du premier modèle en vu de modéliser l'allure de la croissance de la PTM à long terme. L'originalité de ce nouveau modèle est résumée en trois points. En effet, il (i) considère en plus de la MES, l'effet des PMS largement reconnu dans littérature comme responsable majeur du colmatage dans un BRM (ii) permet une meilleure

description de l'évolution de la PTM et (iii) intègre l'effet du lavage périodique (relaxation et rétro-lavage).

### II.3.1. Hypothèses du modèle de colmatage de surface à trois paramètres

Lors de la filtration d'une biomasse avec des membranes, la dynamique du colmatage est supposée due à trois phénomènes de colmatage représentés dans la Figure II.12 : (i) l'adsorption des polymères à la surface de la membrane et le blocage des pores réduisant significativement le nombre de pores ouverts et ainsi la perméabilité de la membrane, (ii) l'accumulation des particules de biomasse ainsi que les larges produits solubles (par rapport au seuil de coupure des membranes) à la surface de la membrane en formant progressivement un dépôt structuré ayant une perméabilité inférieure à celle de la membrane et (iii) l'adsorption des petites molécules solubles qui s'introduisent à l'intérieur des pores et interagissent avec le matériau de la membrane induisant la constriction des pores et ainsi la réduction de la perméabilité de la membrane.

Néanmoins, plusieurs études faites sur le colmatage des membranes dans un bioréacteur à membrane, ont prouvé que d'une façon générale le colmatage interne est mineur comparé au colmatage de surface (Waeger *et al.*, 2010 ; Charfi *et al.*, 2012). Ce constat est particulièrement vérifié pour des concentrations élevées en MES et lors d'une ultrafiltration (Ho et Sung, 2009 ; Charfi *et al.*, 2012). En se basant sur ces constats et visant le développement d'un modèle simple, nous avons négligé la résistance due la constriction des pores suite à un colmatage interne.

Même si les particules en suspension sont totalement retenues par la membrane pour former un dépôt, l'application d'un cisaillement suffisamment efficace éviterait significativement le colmatage de la formation du dépôt et diminuerait ainsi l'effet colmatant des particules en suspension (De Bruijn *et al*., 2005 ; Heran *et al*., 2012). La résistance au transfert serait donc due au développement d'un film mince (un biofilm au cas des bioréacteurs) qui contribuerait à la chute de la perméabilité de la membrane, notamment si le blocage des pores est associé à la formation du film. En effet lors d'une filtration tangentielle, les larges polymères solubles comme les PMS ou les SPE retenus par la membrane ont un faible flux critique et sont plus facilement transportés vers la membrane par le flux imposé (Li *et al*., 1998). Ce phénomène caractérise la première phase de colmatage et fait de la concentration de ces fractions solubles, un paramètre majeur qui contrôle le colmatage lors de cette première phase. La majorité des fractions solubles

interagissant avec le matériau de la membrane et causant le blocage des pores, est identifiée par Wu *et al*. (2008) comme des PMS. L'accumulation de ces composés (Figure II.12) entraîne (i) la formation d'une couche mince sur la surface de la membrane caractérisée par une faible perméabilité, (ii) le blocage de certains pores de la surface ouverte de la membrane et (iii) la modification de la structure du dépôt en réduisant sa porosité (Gao *et al*., 2010 ; Lin *et al*., 2009 ; Hughes *et al*., 2006).

Les Figures II.13, II.14 et II.15 illustrent les actions de contrôle pouvant être menées en réponse à l'évolution des principales procédures de lavage. Le cisaillement entraîne la réduction de l'épaisseur du dépôt formé en favorisant le détachement des particules externes et le mouvement laminaire du dépôt qui contribue à la destruction du dépôt externe. Durant une période de relaxation, le cisaillement est maintenu par contre l'effet convectif de la filtration sur les particules est arrêté induisant ainsi l'intensification de l'effet de cisaillement (Figure II.14). Ceci dit la relaxation ne permet pas l'élimination de la mince couche de matière soluble accumulée à la surface de la membrane et bloquant ses pores. Néanmoins, lors d'un rétro-lavage (Figure III.15), les composés bloquant physiquement les pores sont éjectés et le mince dépôt (incluant le biofilm) peut être détruit. Le seul phénomène non concerné par les précédents modes de régénération de la perméabilité, est l'adsorption interne des petites molécules à l'intérieur des pores de la membrane dont le détachement nécessite un lavage chimique. Ce phénomène apparait généralement comme le moins intensif (Kang *et al*., 2002).

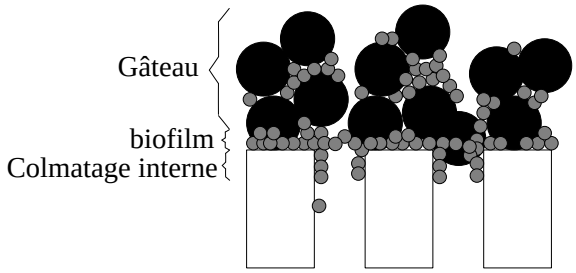



Figure II. 12: Les différents mécanismes de colmatage

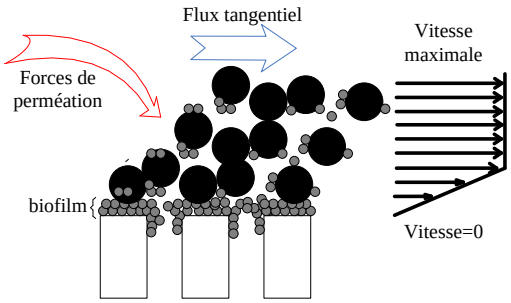



Figure II. 13: L'effet des forces de cisaillement sur la destruction du gâteau durant la filtration tangentielle

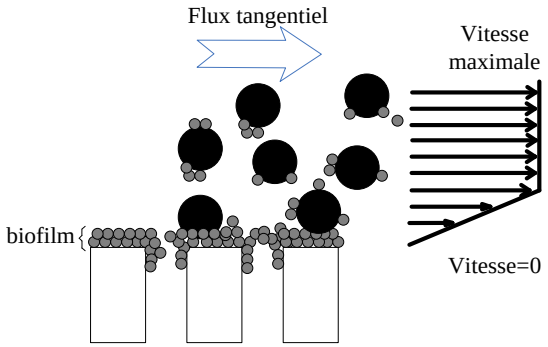



Figure II. 14: L'effet de la relaxation sur la régénération de la membrane

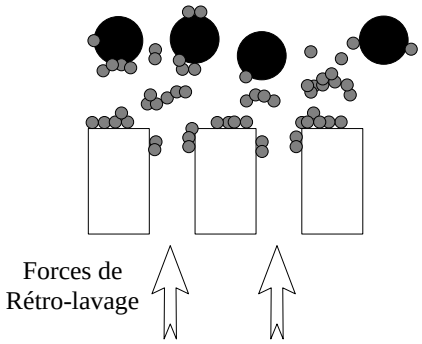



Figure II. 15: L'effet du contre-lavage sur la régénération de la membrane

II.3.2. Formulation mathématique

Dans cette section nous proposons un modèle basé sur deux groupes de colmatants totalement retenus par le seuil de coupure de la membrane qui diffèrent particulièrement par leur taille (Charfi *et al*., 2015). La matière en suspension est retenu à la surface de la membrane pour former un gâteau, les larges composés solubles ayant une taille similaire aux pores de la membrane sont partiellement retenus aussi bien à l'intérieur du gâteau réduisant ainsi sa porosité et sa perméabilité, qu'à la surface de la membrane en bloquant ses pores et en formant une mince couche colmatante (Figure II.16). La résistance hydraulique du système peut être renforcée par ces phénomènes combinés (Lee *et al*., 2002).

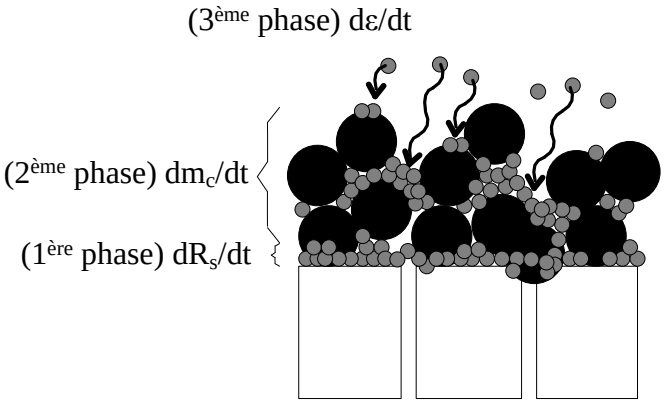



Figure II. 16: Les différentes phases de colmatage considérées dans le modèle

Durant la phase de filtration, le modèle est présenté par l'ensemble de ces équations :

$$PTM = \mu . J_p . (R_t) \quad \text{(II. 21)}$$

avec PTM (Pa) est la pression transmembranaire, μ est la viscosité du permeat, $J_p$ est le flux de permeat et $R_t$ est la résistance totale de la membrane colmatée.

$$R_t = R_0 + R_S + R_c \qquad \text{(II. 22)}$$

Dans l'équation II.22, $R_0$ représente la résistance intrinsèque de la membrane, Rs est la résistance de la première couche mince de colmatage et $R_c$ est la résistance du gâteau.

$$R_0 = \frac{PTM_0}{\mu\ J_p} \qquad \text{(II. 23)}$$

avec $PTM_0$ (Pa) est la valeur initiale de la pression transmembranaire.

Selon la valeur de la masse du dépôt $m_c$, la dynamique de $R_s$ est modélisée comme suit :

$$\frac{dR_S}{dt} = k_1.\ J_p.\sigma.S \qquad \text{(II. 24)} \qquad \text{si } m_c \leq m_s$$

$$\frac{dR_S}{dt} = 0 \qquad \text{(II. 25)} \qquad \text{si } m_c > m_s$$

avec $m_s$ ($g.m^{-2}$) est la masse spécifique de la première couche mince de colmatage.

Finalement la résistance du gâteau est donnée par l'équation II.26

$$R_c = \alpha\, m_c \qquad \text{(II. 26)}$$

où α ($m.kg^{-1}$) est la résistance spécifique du gâteau et $m_c$ ($g.m^{-2}$) la masse du dépôt par unité de surface dont la dynamique est exprimée par l'équation II.27.

$$\frac{dm_c}{dt} = J_p.(\sigma.S + X).\big(1 - \beta(m_c - m_s)\big). \qquad \text{(II. 27)}$$

avec S ($gDCO.L^{-1}$) la concentration totale des PMS, X ($gDCO.L^{-1}$) la concentration de la matière en suspension, σ la fraction des PMS retenue par la membrane et β ($m^2.g^{-1}$) le paramètre de cisaillement.

La dynamique de la porosité du gâteau ε est:

$$\frac{d\varepsilon}{dt} = -k_\varepsilon\, B \qquad \text{(II.28)}$$

où:

$$k_\varepsilon = k_2.J_p.\sigma.S \qquad \text{(II.29)}$$

$$B = \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon + b}\right) \qquad \text{(II.30)}$$

$$\alpha = \frac{180\,(1-\varepsilon)}{\rho_s\, d^2\, \varepsilon^3} \qquad \text{(II.31)}$$

$$\frac{d\alpha}{dt} = -k_3\,\frac{(2\varepsilon_0 - 2k_\varepsilon t - 3)}{(\varepsilon_0 - k_\varepsilon t)^4} \qquad \text{(II. 32)}$$

$$k_3 = \frac{180\, k_\varepsilon}{\rho_s\, d^2} \quad \text{(II. 33)}$$

avec d le diamètre moyen de la taille des particules formant le gâteau et $\rho_s$ est la densité du gâteau.

Lors d'une filtration menée à flux de permeat constant, la pression transmembranaire croît au cours du temps pour compenser la croissance de la résistance hydraulique due à l'accumulation des composées au dessus et à l'intérieur de la membrane. La variation de la PTM est ainsi basée sur la loi de Darcy et est exprimée par le modèle des résistances en série (équation II.21). La résistance totale de la membrane colmatée est ainsi exprimée par l'équation II.22. La résistance intrinsèque de la membrane $R_0$ pouvant être quantifiée en filtrant de l'eau déminéralisée (équation II.23).

$R_s$ est la résistance hydraulique due à l'installation du film de PMS à la surface de la membrane, conduisant à un blocage partiel des pores et ainsi une décroissance de la porosité de la membrane. Seul un rétro-lavage est en mesure de réduire ce phénomène colmatage et sa résistance.

L'évolution au cours du temps de la résistance hydraulique $R_s$ due à l'accumulation des composés solubles larges à la surface de la membrane, incluant le blocage des pores, est exprimée par l'équation (II.24). Cette accumulation est supposée dépendre uniquement de la concentration des larges composés solubles retenus par la membrane ($\sigma$.S) et du flux de permeat, et ceci, jusqu'à atteindre une épaisseur critique correspondante à une masse de dépôt critique notée $m_s$, identifiée comme la masse spécifique du dépôt restant à la surface de la membrane après relaxation. Lorsque la masse du dépôt $m_c$ devient supérieure à la valeur critique $m_s$, les forces de cisaillement sont censées arrêter l'évolution de cette résistance comme décrit dans l'équation II.25.

La dynamique de la formation du dépôt est basée sur le modèle à deux paramètres proposé dans la section précédente (section II.2) (Charfi *et al*., 2014). L'accumulation des particules à la surface de la membrane est supposée liée à un bilan de matière entre le flux de particules entraînées vers la membrane par les forces de permeation et l'intensité du détachement des

particules due aux forces de cisaillement représentées par le coefficient β. Afin d'améliorer ce premier modèle, la variation de la masse spécifique du gâteau $m_c$ est maintenant supposée due à l'accumulation simultanée des particules capable également de retenir les larges polymères solubles qui contribuent à la construction du dépôt. La dynamique de la masse spécifique du gâteau est ainsi exprimée par l'équation II.27. La résistance du gâteau résultante est déterminée par l'équation II.26.

L'accumulation des larges composés solubles à l'intérieur du dépôt entraîne la décroissance de la porosité de ce dépôt (Mc Carthy *et al*., 2002). Comme exprimé dans les équations II.28 et II.29, la décroissance de la porosité du gâteau ε est supposée dépendante de la concentration des polymères solubles retenus par la membrane (σ.S) présents dans la suspension et du flux de permeat $J_p$. Le paramètre B qui apparaît dans l'équation II.28 est une fonction qui garantit la positivité de ε indépendamment de la durée de la filtration. Pour exprimer la résistance spécifique du gâteau on a eu recourt à la relation de Kozeny-Carman II.31 (Katsoufidou *et al*., 2005). La décroissance de la porosité du gâteau conduit à une croissance de la résistance spécifique du gâteau exprimée par l'équation (II.32).

En considérant les relations II.28 et II.31, la constante $k_3$ est donnée par l'équation II.33. Le paramètre $k_3$ est ainsi proportionnel à $k_\varepsilon$, ce qui signifie que l'effet du paramètre $k_3$ sur les sorties du modèle, serait le même que le paramètre $k_\varepsilon$.

II.3.3. Intégration du lavage de la membrane

La relaxation est prouvée efficace à éliminer le gâteau formé à la surface de la membrane (Wu *et al.*, 2008), cependant elle ne permet pas un déblocage des pores (Hong *et al.*, 2008). Basé sur ces deux idées, nous avons proposé l'équation (II.34) pour décrire la variation de la masse du dépôt durant la phase de relaxation. Le gâteau représenté par la masse $m_c$, est supposé être composé par deux couches superposées, (i) une couche externe qui peut être détachée par la contrainte de cisaillement et (ii) une couche mince représenté par $m_s$ directement en contact de la membrane qui est insensible au flux tangentiel et qui peut être éliminée par rétrolavage. Ainsi l'effet de détachement du flux tangentiel est supposé proportionnel à la différence ($m_c$-$m_s$). Si cette différence est élevé le détachement sera élevé, cependant lorsque $m_c$=$m_s$, le détachement par flux tangentiel sera nul.

Durant la phase de relaxation, la filtration est arrêtée et la masse du gâteau ne dépend que des forces de cisaillement (Figure II.14). Ces forces permettent de détacher principalement les particules externes du dépôt et induisent un déplacement laminaire du dépôt dont l'intensité dépend de la position local des particules. Ainsi $m_c$ décroît rapidement (équation II.34) jusqu'à atteindre la valeur de $m_s$. L'intensité du colmatage va ainsi décroître et faire décroître la PTM. La variation de la $m_c$ durant la phase de relaxation peut être exprimée ainsi :

$$\frac{dm_c}{dt} = -\beta\,(m_c - m_s) \qquad \text{(II. 32)}$$

Durant cette phase, la porosité du gâteau ε, la résistance spécifique du gâteau α et la résistance de la couche mince $R_s$ sont maintenues constantes.

Durant la phase du rétro-lavage (Figure II.15), si on suppose que le colmatage externe et le blocage des pores sont totalement réversibles, le dépôt incluant $m_s$ est censé être éliminé. Ceci dit l'efficacité du contre-lavage dépend de la résistance du dépôt c'est-à-dire sa compacité pouvant être différente entre $m_s$ et $m_c$ ainsi que de l'intensité du contre-lavage. Les efficacités du lavage du gâteau et de la couche de polymères sont exprimées respectivement par les paramètres $\eta_1$ and $\eta_2$ (équations II.35 et II.36). L'effet du rétrolavage sur la porosité du gâteau est exprimé par le paramètre $\eta_3$ (équation II.37). Si la réversibilité totale du colmatage est atteinte et si l'adsorption interne reste négligeable, la résistance totale va ainsi décroître jusqu'à atteindre la résistance intrinsèque de la membrane ($R_0$). La décroissance de la masse spécifique du gâteau ainsi que la résistance du dépôt mince de polymères et la croissance de la porosité du gâteau due au rétro-lavage sont exprimées respectivement par les équations II.35, II.36 et II.37.

$$\frac{dm_c}{dt} = -\eta_1\, m_c \qquad \text{(II.35)}$$

$$\frac{dR_S}{dt} = -\eta_2\, R_S \qquad \text{(II.36)}$$

$$\frac{d\varepsilon}{dt} = -\eta_3\, \varepsilon \qquad \text{(II.37)}$$

II.3.4. Influence des paramètres du modèle sur le colmatage

Pour évaluer l'intérêt du modèle proposé et mettre en évidence le phénomène de colmatage selon des valeurs spécifiques des différents paramètres du modèle, nous avons effectué des simulations numériques.

II.3.4.1. Influence des paramètres $k_2$ et $\sigma.S.J_p$ sur la porosité du gâteau

La variation de la porosité du gâteau est supposée proportionnelle aux paramètres $k_2$ et ($S.\ \sigma.J_p$) (équations II.28 et II.29) et leurs importances respectives sur la dynamique du colmatage peuvent être représentées à travers le paramètre $k_\varepsilon$ grâce à leur proportionnalité. L'influence de ce paramètre est mise en évidence dans les Figures II.17 et II.18. Plus la valeur de $k_\varepsilon$ est importante, plus la décroissance de la porosité du gâteau et le saut de la PTM sont rapides.

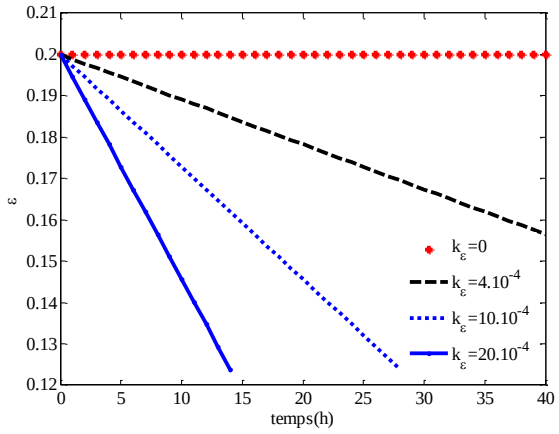



Figure II. 17: La variation de la porosité du gâteau au cours du temps selon la valeur de $k_\varepsilon$

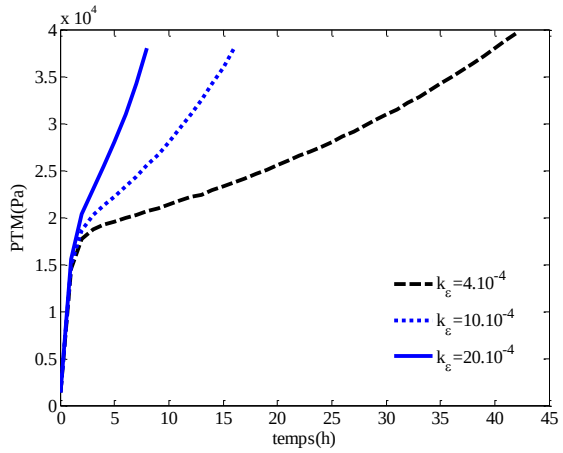



Figure II. 18: La variation de la PTM au cours du temps selon la valeur de $k_\varepsilon$

II.3.4.2. Influence des paramètres $k_1$ et ($S.\ \sigma.\ J_p$) sur la résistance $R_s$

Comme exprimé dans l'équation II.27, la variation de $R_s$ au cours du temps est directement proportionnelle au critère $k_1$et au flux convectif des PMS ($S.\sigma.J_p$). L'effet de la variation d'un de ces critères ($k_1$) est présenté dans les Figures II.19 et II.20. Plus la valeur du critère considéré est importante (l'illustration est donnée pour $k_1$), plus la résistance de la couche mince de polymères ainsi que la croissance de la PTM sont importantes.

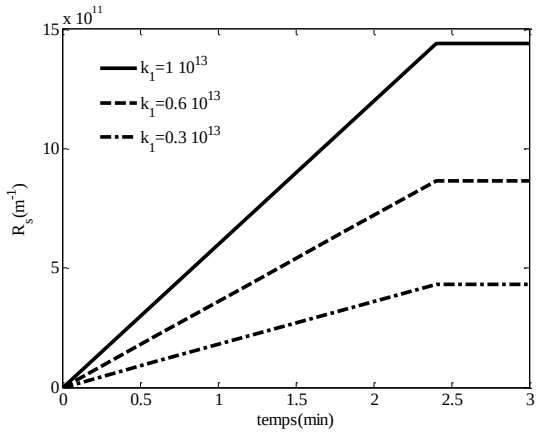



Figure II. 19: Effet de $k_1$ sur la variation de la résistance de la couche mince de polymères

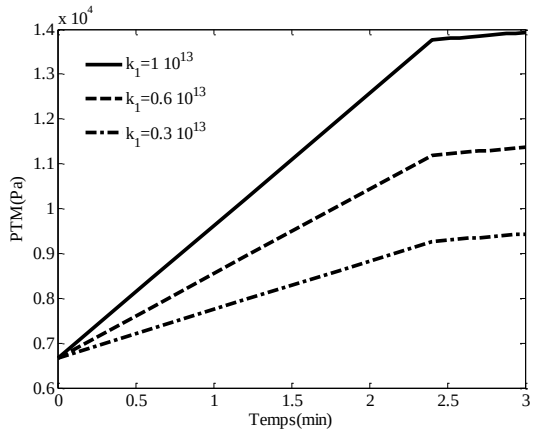



Figure II. 20: Effet de $k_1$ sur l'évolution de la PTM au cours du temps

II.3.4.3. Effet de (S. $\sigma$.$J_p$) sur l'évolution simultanée de $R_s$ et de $R_c$

Le rôle de l'ensemble de la résistance du gâteau ainsi que la résistance de la couche mince dans la croissance de la résistance totale du colmatage au cours d'une expérience à long terme sont illustrés dans la Figure II.21. Cette figure illustre également le rôle des PMS dans la dynamique du colmatage ainsi que son effet sur l'intensité de la résistance du colmatage. En effet, plus le flux des polymères solubles dû à la croissance de la concentration des PMS est élevé, plus la croissance de la résistance totale sera rapide. La Figure II.22 montre que durant une filtration à court terme la résistance de la couche mince $R_s$ est dominante par rapport à celle du gâteau $R_c$. Ce phénomène est plus intense pour des concentrations plus élevées de PMS. Cette dynamique est ainsi déterminante selon le temps conventionnel des cycles de filtration lors de l'application de relaxations et de rétro-lavages périodiques.

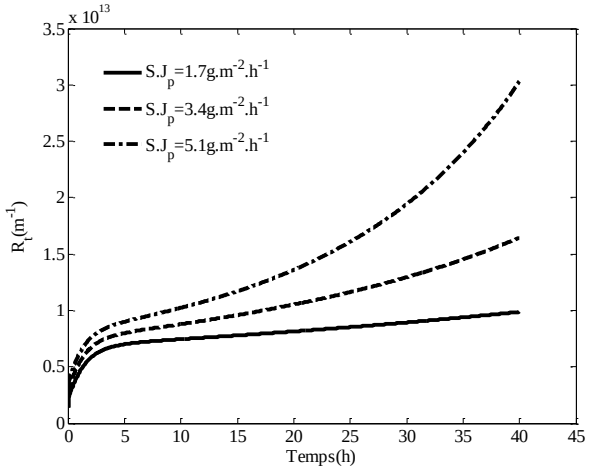



Figure II. 21: Effet du flux convectif des PMS sur la résistance totale du colmatage à long terme

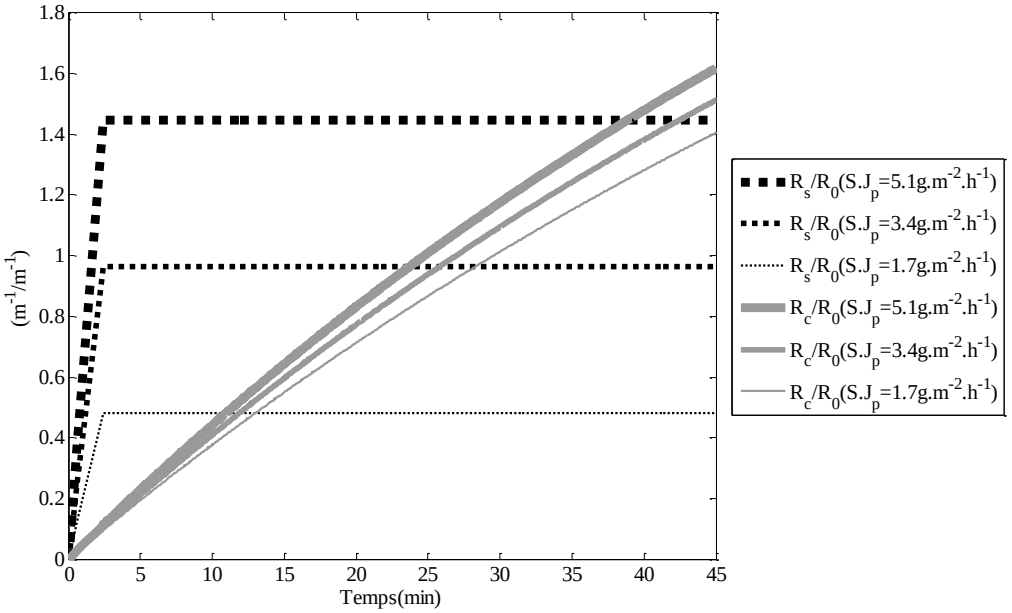



Figure II. 22: Comparaison de l'importance de la résistance spécifique hydraulique due à la couche de polymères et celle due au gâteau à différentes flux convectifs de PMS durant une filtration à court terme

II.3.5. Influence des paramètres du modèle sur la régénération de la membrane

Ce modèle a été développé afin d'optimiser les cycles de filtration incluant des lavages périodiques de relaxation et de rétro-lavage. En se basant sur les équations II.34-II.37, on a réalisé des simulations pour analyser le rôle de la fréquence ainsi que l'intensité du lavage sur la résistance résiduelle du gâteau et du film de polymères.

La Figure II.23 montre quelques simulations décrivant l'effet de la relaxation lorsqu'on opère à différents temps de relaxation et différentes intensités. Les valeurs des paramètres considérées pour les simulations sont présentées dans le Tableau II.7.

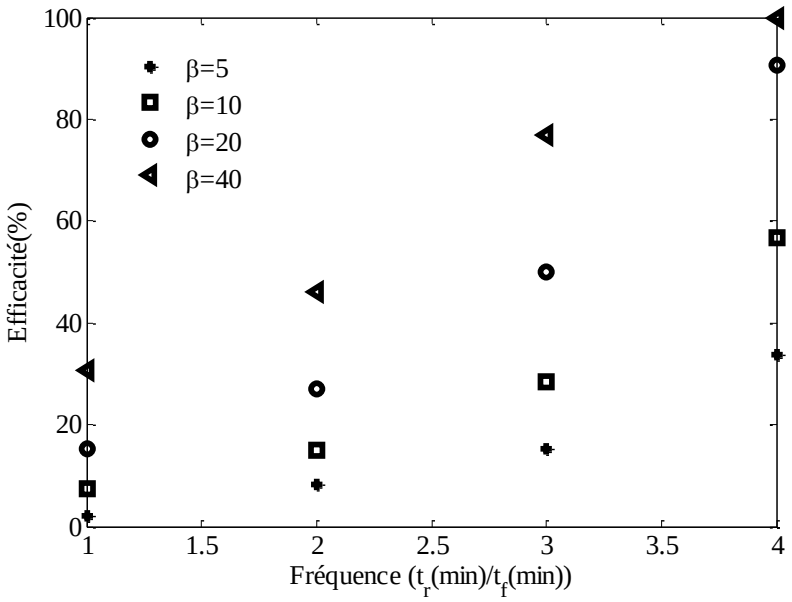



Figure II. 23: L'efficacité de la relaxation en fonction de sa fréquence

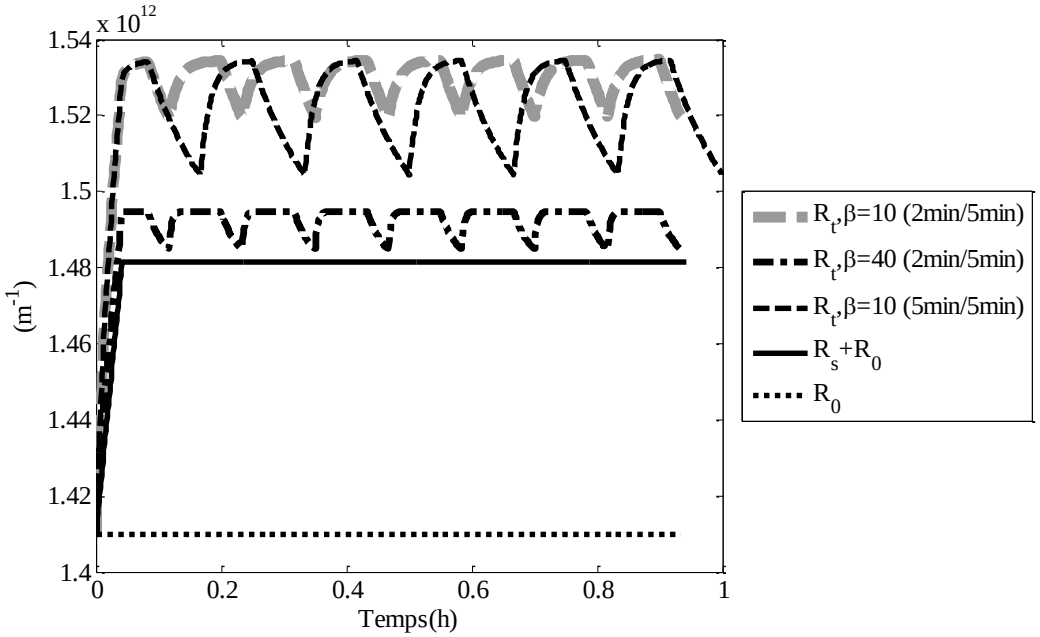



Figure II. 24: Effet de la relaxation sur le colmatage de la membrane

Tableau II. 7: Conditions opératoires considérées pour étudier l'effet de la relaxation

| | |
|---|---|
| $\varepsilon_0$ | 0,2 |
| d | $10^{-5}$ m |
| $k_1$ | 0,1 $10^{13}$ |
| $J_p$ | 17 $Lm^{-2}h^{-1}$ |
| $\sigma.S$ | 0,1g/L |
| X | 1g/L |

Ainsi que supposé dans ce modèle, la résistance de la couche mince de polymères $R_s$ n'est pas éliminée par relaxation. Selon les conditions de relaxation, $R_c$ peut être partiellement ou totalement éliminée. La relaxation est plus efficace pour une fréquence et un cisaillement plus importants (Figure II.23). L'efficacité de la relaxation est déterminée par le ratio de la résistance du gâteau éliminé à la fin de la durée de relaxation sur la résistance du gâteau à la fin de la durée de filtration. Il est aussi important de noter que $t_r/t_f=1$ n'est pas une condition rentable et ainsi un compromis entre les différentes conditions opératoires est à trouver.

La Figure II.24 présente l'évolution de la résistance totale pour différentes conditions de relaxation. Pour éliminer totalement le gâteau, la Figure II.24 indique une solution possible d'une relaxation à $\beta=40m^2.g^{-1}$associée à une fréquence de 2min de relaxation chaque 5min de filtration.

Le contre-lavage est considéré comme une opération de lavage plus efficace puisque il permet l'élimination de la couche mince et le débouchage des pores bloqués. Deux paramètres qui contrôlent l'opération du contre-lavage sont mis en évidence dans la Figure II.25 : la fréquence du contre-lavage et le paramètre $\eta_1$ qui contrôle la cinétique de la destruction du gâteau. Le paramètre $\eta_1$ est proportionnel au flux de contre-lavage et à la facilité de la destruction du dépôt. Ainsi un meilleur lavage est obtenu pour un $\eta_1$ élevé et contre-lavage plus fréquent. Pour les conditions opératoires considérées dans ces simulations (Tableau II.8), une régénération totale de la membrane (récupération d'une résistance $R_0$), est obtenue pour $\eta_1$ égal à $300h^{-1}$ et une fréquence de contre-lavage de 1min toute les 30min de filtration.

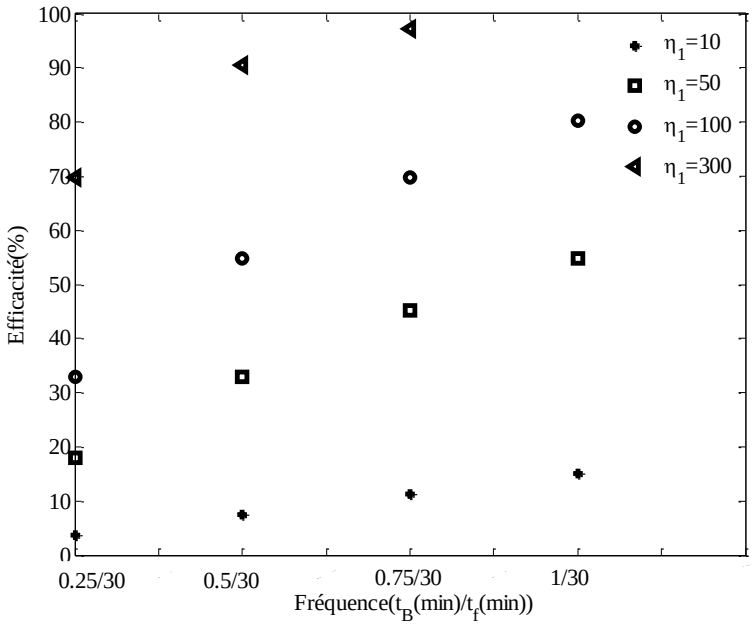



Figure II. 25: L'efficacité du contre-lavage par rapport à sa fréquence

Tableau II. 8: Les conditions opératoires considérées pour étudier l'effet du contre-lavage

| | |
|---|---|
| $\varepsilon_0$ | 0,2 |
| d | $10^{-5}$ m |
| $k_1$ | 0,1 $10^{13}$ |
| $\beta$ | $5m^2.g^{-1}$ |
| $\eta_2$ | 200 |
| $J_p$ | 17 $Lm^{-2}h^{-1}$ |
| $\sigma.S$ | 0,1g/L |
| X | 1g/L |

Conclusion

Dans ce chapitre, on a pu démontrer que pour des expériences de filtration sur BRMAn à court terme, le colmatage se fait en deux phases contrôlées par un même ou par différents mécanismes de colmatage. L'étude du colmatage pour des expériences à long terme, montre la possibilité de prédire le colmatage par le modèle de colmatage par gâteau. La formation d'un gâteau à la surface de la membrane est le mécanisme majeur responsable du colmatage dans un BRMAn. En se basant sur cette hypothèse, deux modèles décrivant le colmatage lors d'une filtration

tangentielle ont été proposés. Le premier modèle supposant un seul mécanisme de colmatage (formation de gâteau) et une seule famille de colmatant (les MES) permet de décrire le colmatage à court terme en simulant, à PTM constante, la décroissance du flux de permeat jusqu'à atteindre un état stationnaire ainsi que la croissance de la PTM pour un flux constant jusqu'à atteindre un état d'équilibre. Le développement de ce modèle fait apparaître deux paramètres déterminants à savoir la résistance spécifique du gâteau $\alpha$ et un paramètre $\beta$ qui représente l'effet du cisaillement sur la limitation de l'épaisseur du dépôt à la surface de la membrane.

Ce premier modèle, ne permettant pas de modéliser le saut de la PTM atteint à long termes qui suit l'état d'équilibre, un deuxième modèle simple à trois paramètres est proposé pour le compléter. En plus des MES, une deuxième famille de colmatant de petite taille est ainsi considéré pour simuler les PMS. Ces colmatants seront responsables de l'installation d'une première couche de colmatage à grande résistance, participeront également à la formation du gâteau qui s'installe au dessus de la première couche et permettront de réduire la porosité du gâteau au cours du temps induisant ainsi le saut de la PTM. Tenant en compte l'effet du lavage périodique pour la régénération de la membrane (relaxation et rétro-lavage), le deuxième modèle permettra de prédire le colmatage pour un procédé membranaire fonctionnant à long terme.

# CHAPITRE III

## Analyse des modèles et validation

Introduction

Ce chapitre est dédié à la validation des deux modèles proposés dans le chapitre précédent. Il est présenté en trois sections. Dans la première section on présente le matériel et les méthodes adoptés pour l'obtention des données expérimentales nécessaires à la validation des modèles proposés. Dans la deuxième section on étudie la validation du modèle à deux paramètres moyennant des données de filtrations de digestats et de suspensions de polymères. La troisième section est dédiée à la validation du modèle à trois paramètres moyennant des données prélevées sur un BRM.

### III.1. Matériel et méthodes

#### III.1.1.Identification du type de colmatage

En vue de déterminer la nature du colmatage d'une membrane de résistance intrinsèque $R_0$, et de quantifier la résistance des différents colmatages (interne et externe), nous avons adopté une méthode expérimentale qui consiste à déterminer la résistance totale de la membrane $R_t$ après filtration à partir de la valeur du flux de permeat mesuré en se basant sur la loi de Darcy (III.1) (Waeger *et al*., 2010)

$$R_t = \frac{PTM}{\mu\, J_p} \quad \text{(III. 1)}$$

Avec $J_p$ le flux de permeat et μ la viscosité du permeat

La deuxième étape consiste à mettre la membrane sous un fil d'eau pour éliminer le dépôt accumulé à la surface de la membrane. La mesure de la perméabilité de la membrane à l'eau permet la détermination d'une nouvelle résistance $R_m$ qui est la somme de la résistance du colmatage interne $R_i$ et la résistance intrinsèque de la membrane $R_0$.

L'équation III.2 permet de calculer la résistance du gâteau $R_c$

$$R_c = R_t - R_m \text{ (III. 2)}$$

La résistance du colmatage interne est calculée par l'équation III.3.

$$R_i = R_m - R_0 \quad \text{(III. 3)}$$

III.1.2. Détermination expérimentale de la résistance spécifique du gâteau

Cette méthode permet la détermination de la résistance spécifique α d'un gâteau obtenu lors de la filtration frontale d'une suspension à pression transmembranaire constante. Elle consiste à enregistrer au cours de la filtration le volume de permeat en fonction du temps. Le traçage de la courbe t/V=f(V) nous permet d'obtenir une droite. Selon le modèle du colmatage par formation de gâteau proposé par Hermia (1982) (équation III.4), la droite obtenue aura une pente égale à $(\alpha\, X\, \mu / 2\, A^2 PTM_0)$. Comme les paramètres X, μ, A et PTM sont des constantes connues, il est donc possible de déterminer la valeur de α ($m.kg^{-1}$).

$$\frac{t}{V} = \frac{1}{J_0\, A} + \frac{\alpha\, X\, \mu}{2A^2\, PTM}\, V \qquad \text{(III. 4)}$$

A : Surface de la membrane ($m^2$)

$J_0$ : Flux initial du permeat ($L.m^{-2}.h^{-1}$)

PTM : Pression transmembranaire (Pa)

t : Temps de filtration (s)

V : Volume de permeat ($m^3$)

X : Concentration de la matière en suspension ($kg.m^{-3}$)

μ : Viscosité du permeat (Pa.s)

III.1.3. Pilotes et membranes utilisées

Afin de valider les modèles proposés dans cette thèse, il faut disposer de données expérimentales de la variation de la PTM à un flux de permeat constant ou bien la variation du flux de permeat à PTM constante. Pour cela nous avons suivi le fonctionnement de plusieurs pilotes à différentes configurations

III.1.3.1. Pilote de filtration tangentielle à membrane tubulaire (Pilote 1)

Etant donné que le colmatage de la membrane peut être suivi par la décroissance du flux de permeat, nous avons mesuré ce paramètre lors de la filtration de digestats produits par un digesteur anaérobie traitant des déchets agricoles. Le procédé utilisé est un pilote de filtration en

mode tangentielle du constructeur Membralox (Figures III.1 et III.2). Des membranes tubulaires en céramique ont été utilisées (Figure III.3). Leur taille de pores est de 0,8, 0,05 et 0,02 µm. Leur surface est de 55 $cm^2$. La température à l'intérieur de l'enceinte d'alimentation est maintenue à 37 °C grâce à un bain thermostaté. Les manipulations sont réalisées à une pression de 0,5 bar atteint par injection d'air comprimé et une vitesse de recirculation de 1,7 $m.s^{-1}$ est assurée par une pompe de recirculation.

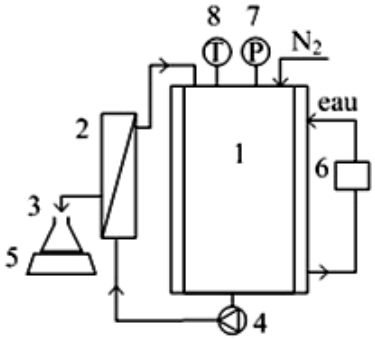



Figure III. 1: Schéma du pilote de filtration tangentielle

Figure III. 2: Procédé membranaire de filtration en mode tangentiel (membrane tubulaire)

(1) Enceinte d'alimentation, (2) module membranaire, (3) récupération de perméat, (4) pompe de recirculation, (5) balance, (6) boucle thermostatée, (7) manomètre, (8) thermomètre.

Figure III. 3: Les membranes tubulaires et le carter utilisés

III.1.3.2. Pilote de filtration tangentielle à membrane plane (Pilote 2)

Un deuxième dispositif expérimental de filtration membranaire a été utilisé. Ce pilote de filtration tangentielle (Figure III.4) est équipé d'une membrane en céramique plane d'une surface de 56 $cm^2$ (Figure III.6).

Figure III. 4: Pilote de filtration tangentielle (membrane plane)

Figure III. 5: Cellule de filtration tangentielle (membrane plane)

(1) enceinte d'alimentation, (2) cellule de filtration, (3) pompe de recirculation, (4) balance, (5) alimentation de la cellule de filtration, (6) retentat, (7) permeat.

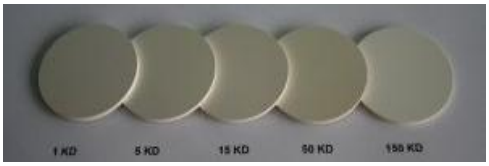



Figure III. 6: Membranes planes céramiques

Ce pilote a servi à filtrer des suspensions d'un polymère le Poly-Vinyle-alcool (PVA). Les expériences ont été menées à PTM constante (28, 85 et 220 mbar) et à température ambiante.

III.1.3.3. Bioréacteur à membrane immergée (Pilote 3)

Pour générer des données expérimentales de l'évolution de la PTM à flux de permeat constant, nous avons suivi le fonctionnement d'un bioréacteur à membrane immergée (Figure III.7). Ce BRM est composé de deux réacteurs de 30L chacun montés en série, le premier fonctionnant sous conditions anoxiques et le second en aérobie. Le taux de recirculation appliqué est de 400% par

rapport au débit d'alimentation. Le module de filtration (Figure III.8) formé de membranes polymériques planes (Microdyn-Nadir, Germany) est immergé dans le réacteur aérobie. Il présente une surface filtrante de 0,34 $m^2$ et un diamètre de pores de 0,04 µm.

La filtration est menée à flux de permeat constant de 17 $L.m^{-2}.h^{-1}$ en mode semi-continu moyennant une pompe volumétrique Netzch qui aspire le permeat en aval de la membrane. La régénération de la membrane est effectuée de deux manières (i) injection de fines bulles d'air à travers les membranes par des diffuseurs d'air placé juste au dessous du module membranaire (ii) lavage hydraulique de la membrane par des cycles de relaxation et de rétro-lavage. En effet les cycles de filtration de 10 min sont composés de 8,75 min de filtration suivie d'un arrêt de 1,25 min. Lors de cet arrêt on effectue deux cycles de relaxation de 0,25 min séparés de 0,75 min de rétro-lavage (les durées considérées sont proposées par le fournisseur de la membrane). Le rétro-lavage se fait par l'eau récupérée dans le permeat.

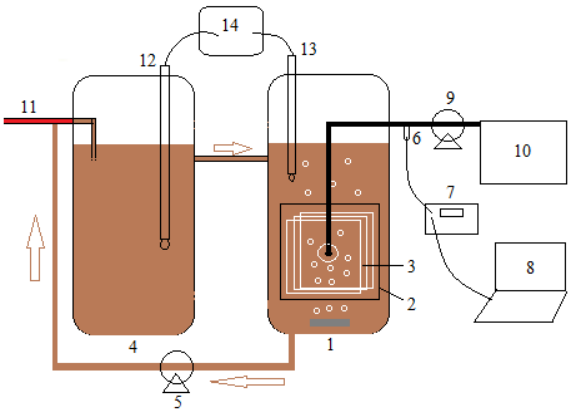



Figure III. 7: Le pilote du bioréacteur à membrane immergée

(1) réacteur aéré, (2) module de filtration, (3) membrane, (4) réacteur anoxique, (5) pompe de recirculation, (6) capteur de pression, (7) afficheur de pression, (8) contrôle par ordinateur, (9) pompe volumétrique Netzsch, (10) bac de perméat, (11) alimentation, (12) capteur du potentiel redox, (13) capteur de pH, (14) afficheur du pH et du potentiel redox

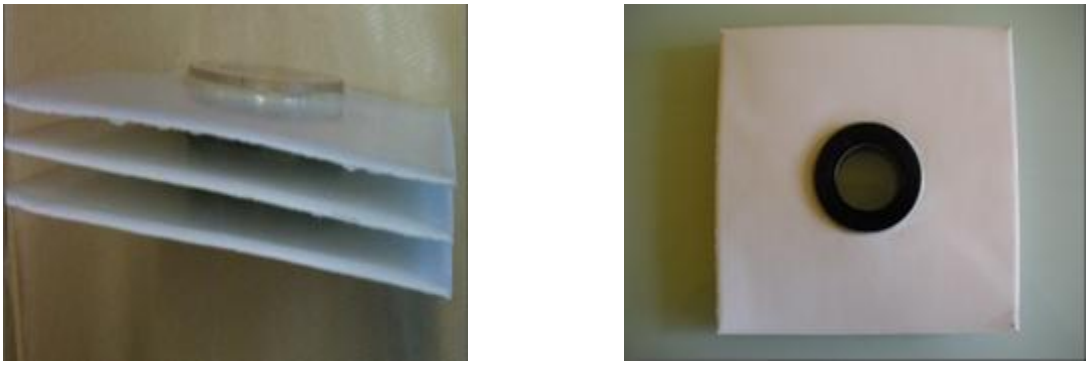


Figure III. 8: Le module de membrane plane (Microdyn-Nadir, Germany)

Deux types d'expériences ont été menées (Tableau III.1), (i) des filtrations en continu (sans cycles de lavage) et des filtrations en discontinues (avec relaxation et retro-lavage).

Tableau III. 1: Conditions opératoires des expériences menées sur le BRM immergée

| Expérience | Mode | Débit d'aération ($m^3/h$) | TSH (h) | TSB (jours) |
|---|---|---|---|---|
| 1 | Continu | 3 | 10 | 40 |
| 2 | Continu | 3 | 10 | 40 |
| 3 | Continu | 3 | 10 | 40 |
| 4 | Cyclique | 3 | 10 | 40 |
| 5 | Cyclique | 3 | 10 | 40 |
| 6 | Cyclique | 3 | 10 | 40 |
| 7 | Cyclique | 6 | 10 | 60 |

III.1.3.4. Pilote de filtration frontale à membrane plane (Pilote 4)

Un quatrième pilote de filtration frontale a été également utilisé (Figure III.9). La membrane employée est organique et plane de taille de pores de 0,45 µm. Ce pilote nous a servi à filtrer en mode frontal des digestats. Le suivi du volume de permeat au cours du temps nous a servi à déterminer la résistance spécifique du gâteau formé à la surface de la membrane lors de la filtration frontale d'une suspension de digestat.

Figure III. 9: Pilote de filtration frontale

(1) réservoir d'air comprimé, (2) cellule de filtration frontale

III.1.4. Suspensions filtrées

III.1.4.1. Les digestats

Deux digestats ont été étudiés : Agri 1et Agri 2. Ils ont été prélevés de bioréacteurs anaérobies traitant des déchets agricoles. Les caractéristiques de ces effluents sont présentées dans les Tableaux III.2 et III.3. Afin de diminuer leurs concentrations en matière en suspension, une première centrifugation a été réalisée par le fournisseur. Elle a été suivie par un second prétraitement de centrifugation à 20 °C, pendant 15 min à 2500 g que nous avons effectué. La concentration des digestats centrifugés (Agri1 cent et Agri2 cent) est de 4 g/L.

Tableau III. 2: Caractéristiques de l'effluent AGRI 1 brut

| | | |
|---|---|---|
| Matières Sèches | 11,37 | % de la matière brute |
| Matière en suspension ($\rho$=1000 kg/m$^3$) | 113,7 | (gMES/L) |
| Matières Organiques | 7,53 | % de la matière brute |
| Demande Chimique en Oxygène totale | 134,21 | $gO_2/kg_{matière\ brute}$ |
| Carbone Total | 36,50 | $gC/kg_{matière\ brute}$ |
| *Carbone Soluble* | 13,49 | $gC/kg_{matière\ brute}$ |
| Azote Total Kjeldhal | 7,50 | $gN/kg_{matière\ brute}$ |
| Azote ammoniacal total | 4,28 | $gN/kg_{matière\ brute}$ |

| | | |
|---|---|---|
| *Azote ammoniacal soluble* | 3,56 | $gN/kg_{matière\ brute}$ |

Tableau III. 3: Caractéristiques du digestat agricole AGRI2 brut

| | | |
|---|---|---|
| Matières Sèches | 24,02 | % de la matière brute |
| Matières Organiques | 20,97 | % de la matière brute |
| Demande Chimique en Oxygène totale | 291,12 | $gO_2/kg_{matière\ brute}$ |
| Carbone Total | 107,30 | $gC/kg_{matière\ brute}$ |
| *Carbone Soluble* | 10,44 | $gC/kg_{matière\ brute}$ |
| Azote Total Kjeldhal | 3,22 | $gN/kg_{matière\ brute}$ |
| Azote ammoniacal total | 1,87 | $gN/kg_{matière\ brute}$ |
| *Azote ammoniacal soluble* | - | $gN/kg_{matière\ brute}$ |

III.1.4.2. Les suspensions de polymères

Pour étudier la filtrabilité des polymères solubles dit PMS présents dans les BRM et qui sont considérés comme responsables majeurs du colmatage (section I.4.3.4) (Nuengjamnong *et al*. 2005), nous avons filtré par des membranes UF, à différents seuils de coupures (150 et 50 kDa), trois suspensions de Poly-Vinyle-alcool (PVA) de différents poids moléculaires : 146_186 kDa, 31_50 kDa et 13_23 kDa.

III.1.5. Méthodes d'analyse

III.1.5.1. Analyse de la concentration de la Matière en suspension

Pour analyser les Matières solides En Suspension (MES) d'un digestat de volume V, on commence par séparer la matière en suspension du surnageant par un montage Buchner qui consiste en une filtration sous vide par une membrane 0,45 µm. La membrane portant le dépôt de MES à la surface est mise dans une étuve à 105 °C pendant 2 h pour évaporer l'eau du dépôt. Après mise en étuve, la membrane est pesée. La différence entre la masse mesurée et la masse initiale de la membrane nous donne la masse des particules en suspension dans le volume de digestat V (APHA, WEF, AWWA, 1998).

III.1.5.2. Analyse de la concentration des polymères

Pour déterminer la concentration des suspensions de PVA après filtration dans les solutions de retentat et de permeat, nous avons utilisé un COT-mètre qui permet une analyse du carbone total.

Puisque le carbone représente 54% de la masse totale du polymère, la concentration en polymère des solutions analysées par le COT-mètre est obtenue en multipliant la concentration affichée par 1,85.

III.1.5.3. Analyse de la DCO

Des « kits DCO » contenant du dichromate de potassium, de l'acide sulfurique, du sulfate d'argent et du sulfate de mercure sont utilisés dans cette méthode d'analyse. Le principe de la méthode consiste à déterminer la quantité d'oxygène produite par le dichromate de potassium après réaction avec les matières oxydables contenues dans l'échantillon à analyser. Cette quantité correspond à la DCO. L'échantillon est oxydé par une solution sulfurique chaude de dichromate de potassium avec du sulfate d'argent comme catalyseur. Les chlorures sont masqués par le sulfate de mercure. La concentration des ions $Cr^{3+}$ verts est ensuite dosée par spectrophotométrie. 1 mol de $K_2Cr_2O_7$ correspond à 1,5 mol d'$O_2$, 1 mg.$L^{-1}$ de DCO=1 mg.$L^{-1}$ de $O_2$.

III.2. Résultats expérimentaux

III.2.1. Filtration des digestats

Les flux de permeat en fonction du temps sont mesurés sur le Pilote 1, toutes les minutes, lors de la filtration sous une PTM constante de 0,5 bar, de trois digestats (Agri1, Agri2 brut et Agri2 centrifugé) avec des membranes tubulaires en céramique de différentes tailles de pores (0,02, 0,05 et 0,8 µm).

Les Figures III.10, III.11 et III.12, représentent la dynamique du flux de permeat enregistrée lors de la filtration des effluents Agri1, Agri2 centrifugé et Agri2 brut respectivement, moyennant des membranes à différentes tailles de pores. La Figure III.13 représente l'évolution temporelle du flux de permeat obtenue lors de la filtration des effluents Agri2 centrifugé et brut par la même membrane de taille de pore 0,8 µm.

Dans toutes les expérimentations menées, on note une chute du flux en fonction du temps jusqu'à atteindre une valeur stationnaire. La filtration du digestat Agri1, ayant une concentration de 4 gMES.$L^{-1}$ (Figure III.10), moyennant les membranes de tailles de pores 0,02 et 0,8 µm, révèle un meilleur flux initial pour la membrane de microfiltration (MF) (de 1,5 fois supérieur à la membrane d'ultrafiltration (UF)). En revanche, la chute du flux enregistrée après 80 min de manipulation est plus élevée pour la membrane UF (97%) par rapport à une chute de 92% pour

MF. A l'état stationnaire le flux de la membrane UF est très faible par rapport à la membrane MF. En outre, la chute du flux de la membrane UF se fait plus rapidement que la membrane MF. Ceci pourrait être dû au blocage des pores de la membrane UF, cette dernière ayant des tailles de pores similaires à la taille des particules en suspension.

La même manipulation a été menée sur le digestat Agri 2 centrifugé caractérisé par une concentration similaire au digestat Agri 1 (4 $gMES.L^{-1}$). Avec un flux initial plus important pour la membrane MF (395 $L.m^{-2}.h^{-1}$), on note après 80 min de filtration, une chute de flux similaire de 91% aussi bien pour la membrane MF que pour la membrane UF (Figue III.11). Comme noté dans le cas précédent la chute du flux de la membrane UF se fait plus rapidement que la membrane MF.

La filtration du digestat Agri 2 brut ayant une concentration de 40 $gMES.L^{-1}$ moyennant les membranes de tailles de pores de 0,02, 0,05 et 0,8 µm, révèle une évolution du flux de permeat similaire pour les trois membranes étudiées comme le montre la Figure III.12. On peut en déduire que le colmatage des membranes ne dépend pas de la taille des pores des membranes lors de la filtration d'un digestat à concentration élevé en MES. Ceci peut être expliqué par le fait que les grosses particules qui forment le digestat concentré sont retenues de la même manière par les trois membranes formant ainsi un gâteau ayant des caractéristiques similaires dans les trois cas étudiés.

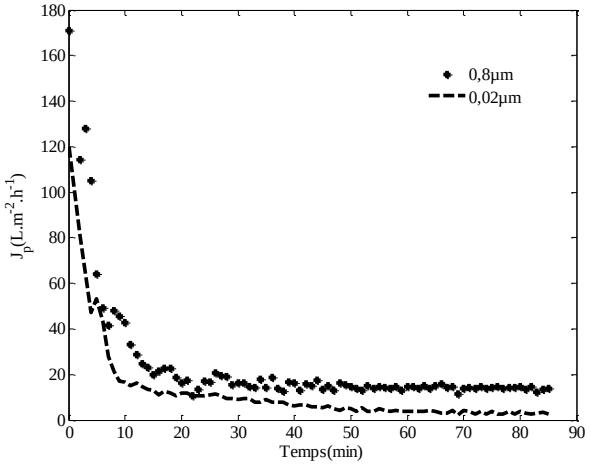



Figure III. 10: Variation du flux de permeat lors de la filtration du digestat Agri1

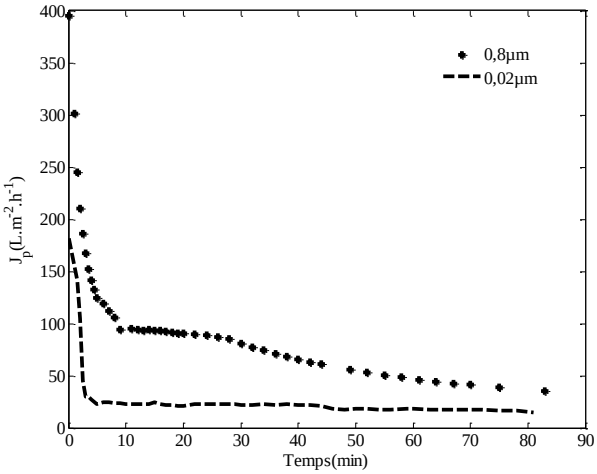



Figure III. 11: Variation du flux de permeat lors de la filtration du digestat Agri2 centrifugé

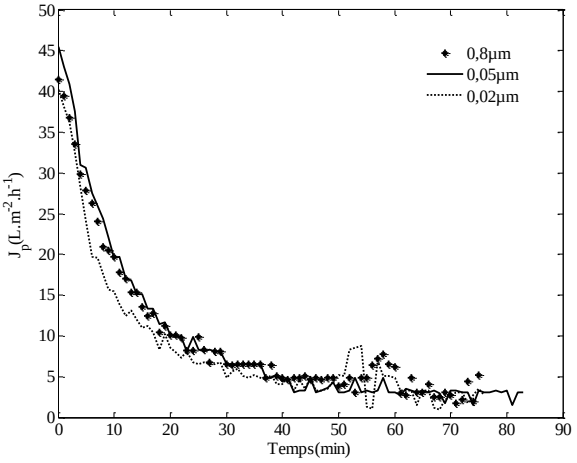



Figure III. 12: Variation du flux de permeat lors de la filtration du digestat Agri2 brut

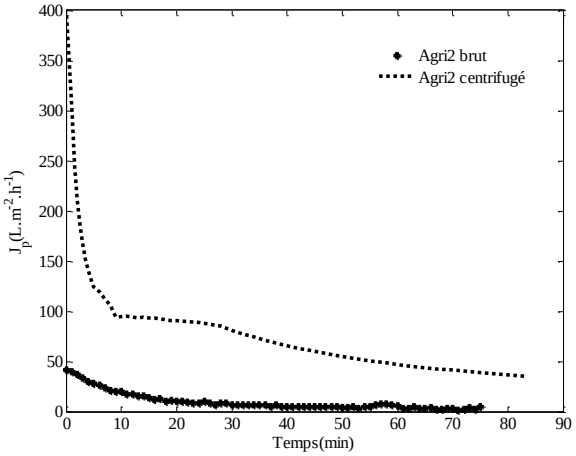



Figure III. 13: Comparaison du flux de permeat lors de la filtration du digestat Agri2 brut et centrifugé par la membrane MF (0,8 µm)

La comparaison de la variation du flux de permeat lors de la filtration par la même membrane (0,8 µm) du digestat Agri 2 brut (40 gMES.L$^{-1}$) et centrifugé (4 gMES. L$^{-1}$) (Figure III.13), révèle un flux initial beaucoup plus important pour le digestat centrifugé. La chute du flux est également plus importante dans le cas du digestat concentré (la chute est de 93%) comparé au cas du digestat centrifugé (88%).

### III.2.2.Filtration de solutions de polymères

Comme souligné dans la section I.4.3.4, les PMS qui sont des polymères solubles, s'avèrent des responsables majeurs du colmatage dans un BRMAn (Gao *et al*., 2010). En vu d'étudier le colmatage dû à ce type de composants, nous avons filtré des solutions de Poly-Vinyle-Alcool (PVA). Des expériences de filtration de 13 h ont été menées moyennant des solutions de Poly-Vinyle-Alcool (PVA) à différents poids moléculaires (146_186 kDa, 31_50 kDa et 13_23 kDa) avec deux membranes UF ayant différents seuils de coupures (50 et 150 kDa). Une chute exponentielle du flux de permeat jusqu'à atteindre une phase stationnaire, est notée dans toutes les manipulations conduites (Figures III.15-III.18). Pour étudier la nature du colmatage responsable de la chute du flux de permeat, une méthode expérimentale qui est la méthode des lavages décrite dans la section (III.1.1) est adoptée.

Le Tableau III.4 résume les résultats obtenus pour chacune des filtrations menées.

Tableau III. 4: Type de colmatage dominant lors de la filtration d'une solution de PVA (1g/L) avec le Pilote 2

| N° expérience | PVA (kDa) | Seuil de coupure de la membrane (kDa) | PTM (mbar) | Origine de la résistance | Résistance ($m^{-1}$) | Contribution dans la résistance totale (%) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 1 | 146_186 | 150 | 28 | Intrinsèque | $1,37\ 10^{12}$ | 23,22 |
| | | | | Gâteau | $3,50\ 10^{12}$ | 59,25 |
| | | | | interne | $1,03\ 10^{12}$ | 17,53 |
| 2 | 31_50 | 150 | 28 | Intrinsèque | $1,37\ 10^{12}$ | 39,26 |
| | | | | Gâteau | $5,40\ 10^{11}$ | 15,40 |
| | | | | interne | $1,58\ 10^{12}$ | 45,34 |
| 3 | 146_186 | 50 | 220 | Intrinsèque | $1,97\ 10^{12}$ | 15,74 |
| | | | | Gâteau | $9,87\ 10^{12}$ | 78,90 |
| | | | | interne | $6,71\ 10^{11}$ | 5,36 |
| 4 | 13_23 | 50 | 220 | Intrinsèque | $1,97\ 10^{12}$ | 17,24 |
| | | | | Gâteau | $8,96\ 10^{12}$ | 78,45 |

| | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | interne | 4,93 $10^{11}$ | 4,31 |
| 5 | 146_186 | 50 | 85 | Intrinsèque | 2,21 $10^{12}$ | 36,56 |
| | | | | Gâteau | 2,78 $10^{12}$ | 46,07 |
| | | | | interne | 1,05 $10^{12}$ | 17,37 |

Lors de la filtration d'une suspension de PVA (146_186 kDa) par la membrane (50 kDa) (exp.3 et 5), le colmatage s'avère principalement dû à un colmatage par gâteau pour les deux PTM étudiées (220 et 85 mbar). Ayant une taille supérieure à la taille des pores de la membrane, les polymères sont retenus à la surface de la membrane et forment ainsi un dépôt. Ce dépôt présente une résistance plus importante lors de la filtration à 220 mbar (9,87 $10^{12}$ $m^{-1}$) qu'à 85 mbar (2,78 $10^{12}$ $m^{-1}$). La nature colloïdale des polymères, favorise leur entassement en augmentant la PTM (Hughes *et al*., 2006).

La filtration d'une suspension de PVA (146_186 kDa) par la membrane (150 kDa) à une PTM de 28 mbar (exp. 1), entraîne également un colmatage dû principalement à la formation d'un gâteau. La taille des polymères supérieure à la taille des pores serait également à l'origine du dépôt. Bien que la PTM considérée soit inférieure à celle appliquée à l'expérience 5, la résistance du dépôt mesurée à l'expérience 1 (3,50 $10^{12}$ $m^{-1}$) est supérieure est celle obtenue à l'expérience 5 (2,78 $10^{12}$ $m^{-1}$). Ceci peut être expliqué par le fait que la suspension filtrée ayant une taille de polymères qui va de 146 à 186 kDa, contient des particules ayant une taille similaire à la taille des pores de la membrane (150 kDa), ce qui risque de boucher les pores et peut engendrer une augmentation de la résistance du dépôt.

Durant l'expérience 2, la filtration d'une suspension de PVA (31_50 kDa) par une membrane (150 kDa) à 28 mbar, engendre un colmatage dû principalement à l'introduction des polymères à l'intérieur des pores de la membrane.

Durant l'expérience 4, la filtration d'une suspension de PVA (13_23 kDa) par une membrane (50 kDa) à 220 mbar, entraîne un colmatage par la formation d'un gâteau. Puisque la taille des polymères est à priori inférieure à la taille des pores de la membrane, on pourrait s'attendre à ce que ces polymères s'introduisent à l'intérieur des pores. Le colmatage par gâteau qui s'installe sur la membrane serait donc dû à une agrégation des polymères en amont de la membrane qui a

engendré la formation de polymères de taille supérieure à celle des pores de la membrane. Ce phénomène d'agrégation serait dû à une polarisation de concentration des polymères au ras de la membrane. Ce phénomène n'est pas noté lors de l'expérience 2 menée à une faible PTM (28 mbar).

III.2.3. Suivi du colmatage dans un bioréacteur à membrane immergée

Dans un réacteur à membrane immergée fonctionnant à un flux de permeat constant, le colmatage de la membrane entraîne une augmentation de la PTM. Le suivi de l'évolution du colmatage dans un BRM à membrane immergée a été conduit en enregistrant l'évolution de la PTM au cours du temps lors de quatre cycles de filtration en continue de trois jours chacun séparés par un lavage chimique (Figure III.14) et lors d'une filtration discontinue de 8 jours faisant intervenir des cycles de relaxation et de rétro-lavage (Figure III.15).

Les cycles de filtration continue présentent une allure croissante de la PTM dans laquelle on distingue une première phase de croissance qui se termine par un état stationnaire, suivi d'une deuxième phase de croissance rapide de la PTM largement observée dans la littérature connue sous le nom de « saut de la PTM ». Comme mentionné dans la littérature (section I.5.4), la première phase de croissance correspond à la formation d'un gâteau à la surface de la membrane qui atteint une épaisseur limite conditionnée par les contraintes de cisaillements. Le saut de la PTM est dû un colmatage important de la membrane.

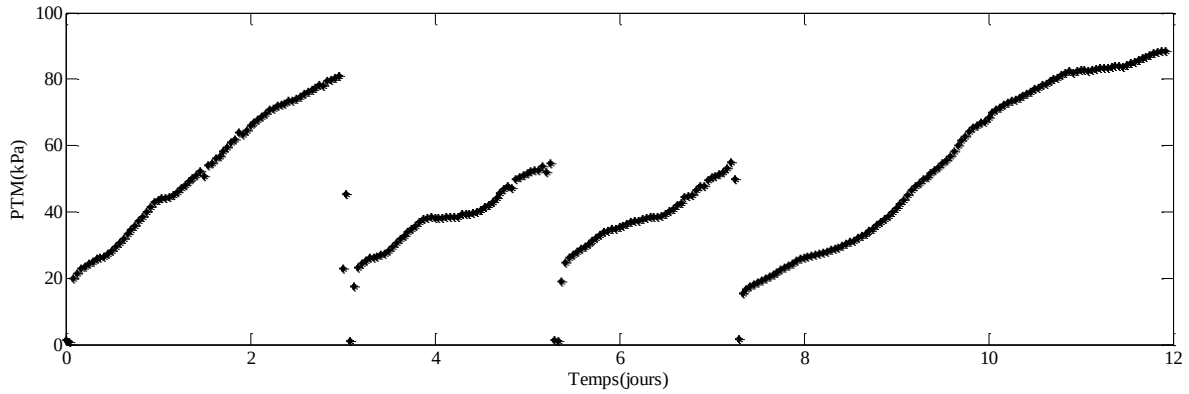



Figure III. 14: Enregistrement de la PTM lors de quatre cycles de filtration en continue séparés par un lavage chimique

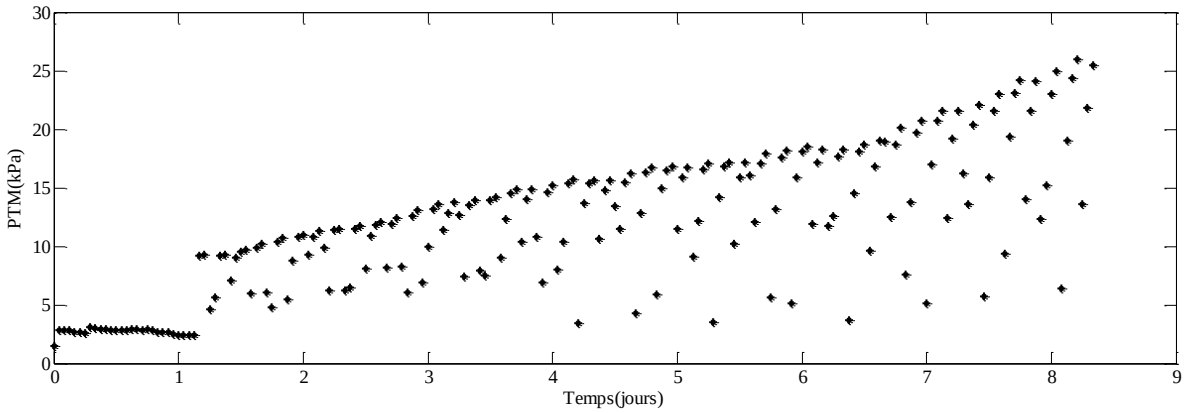



Figure III. 15: Enregistrement de la PTM lors d'une filtration discontinue avec des cycles de relaxation et de rétro-lavage

Le suivi de la PTM lors de la filtration discontinue durant 8 jours, montre une croissance de la PTM qui atteint 25 kPa. L'effet du lavage périodique est mis en évidence, en effet, lors de la filtration continue, la PTM atteignant une valeur de 80kPa au bout de 3 jours de filtration.

En dépit des lavages périodiques par relaxation et rétro-lavage, la PTM continue de croître. Ceci indique que le lavage effectué ne permet pas une régénération totale de la membrane. On peut en déduire l'installation progressive d'un colmatage irréversible dont l'élimination nécessite un lavage chimique de la membrane.

## III.3. Validation du modèle de colmatage par gâteau à deux paramètres

### III.3.1. Identification des paramètres du modèle de colmatage par gâteau à deux paramètres

Les valeurs des paramètres ont été identifiées à l'aide de données expérimentales par la méthode des moindres carrés programmée sous matlab R2008b. Les données considérées sont les valeurs de flux à PTM constante obtenues lors de la filtration de digestats par le pilote 1.

Il est difficile de déterminer expérimentalement les deux paramètres du modèle : la résistance spécifique du gâteau α et le paramètre de cisaillement β.

Deux approches ont été suivies. La première considère la valeur de α obtenue expérimentalement par une filtration frontale et la valeur de β obtenue par ajustement de la variation simulée du flux de permeat aux données expérimentales. La seconde approche considère une simulation globale qui vise l'obtention des valeurs optimales des deux paramètres α et β par la méthode des

moindres carrés pour ajuster les données simulées du flux de permeat aux données expérimentales (équation II. 23).

La Figure III.16A présente l'évolution de $J_p$ obtenu (i) expérimentalement lors de la filtration d'un effluent obtenu d'un digesteur anaérobie par une membrane MF (0,8 µm), (ii) par la simulation (S1) réalisée en considérant la valeur de α mesurée expérimentalement par une filtration frontale, (iii) par la simulation (S2) lors de la détermination des paramètres α et β par la simulation globale.

Il est clair que la simulation qui considère la valeur expérimentale de α obtenue par une filtration frontale ($10^{15}$ m.kg$^{-1}$) n'est pas capable de décrire la variation réelle de $J_p$ même en fixant une valeur élevée de β (supérieure à $10^4$ m$^2$.kg$^{-1}$). Ce point confirme le fait que le dépôt obtenu en mode tangentiel ne possède pas les mêmes caractéristiques que celui obtenu en mode frontal notamment en termes de résistance spécifique (Gasmi 2012). En dépit du fait que les forces de cisaillement sont supposées entraîner les grosses particules et former un dépôt très dense, la résistance spécifique du gâteau obtenue en mode tangentiel apparaît moins importante que celle obtenue en mode frontal favorisant une accumulation rapide et importante de matière caractérisée par une résistance spécifique élevée.

Par ailleurs, l'approche de la simulation globale s'avère un outil intéressant pour la détermination des valeurs de α et β avec un ajustement qualitatif satisfaisant aux données expérimentales.

### III.3.2. Confrontation modèle et expériences

Afin d'évaluer ce modèle, nous avons eu recourt à trois séries de données expérimentales. Ces données ont été obtenues lors de la filtration du même digestat anaérobie sous les mêmes conditions opératoires (les mêmes conditions de cisaillement) moyennant trois membranes qui diffèrent par leur taille de pores (0,8 µm ; 0,05 µm ; 0,02 µm).

Au cours de la filtration, on observe une chute exponentielle du flux (Figures III.16 A, III.16 B, III.16 C et III.16 D), qui est due à l'installation rapide d'un dépôt à la surface de la membrane, en liaison avec la concentration élevée en MES (40 g. L$^{-1}$) de l'effluent filtré (Ho et Sung, 2009). Considérant la similarité des conditions de filtration (mêmes contraintes de cisaillement, même suspension filtrée), le gâteau formé aurait des caractéristiques similaires (même si des pores serrés devraient retenir de plus petites particules). Lors de l'ajustement du modèle aux données

obtenues moyennant la membrane 0,05 µm (Figure III.16B), les valeurs trouvées pour les paramètres sont respectivement 5,8427 $10^{13}$ m.kg$^{-1}$ pour α et 237 m$^2$.kg$^{-1}$pour β. Ces valeurs optimales ont été utilisées pour l'ajustement du modèle sur les deux autres séries de données relatives à la membrane 0,02 µm (Figure III.16 C) et la membrane 0,8 µm (Figure III.16 D). Les courbes de simulation obtenues donnent une représentation qualitative satisfaisante pour l'évolution du flux de permeat au cours du temps de filtration. Ceci dit, avec un coefficient de détermination $R^2$ de 80%, nous pouvons observer un écart entre les données théoriques et expérimentales à la fin des expériences. Néanmoins, ce modèle permettra le développement d'un outil d'optimisation de la procédure de lavage de la membrane au cours d'une opération de filtration, il est ainsi important que le modèle puisse donner une illustration satisfaisante de la formation du gâteau et une valeur suffisamment précise de sa résistance spécifique durant les premières 10 à 20 min de chaque cycle de filtration.

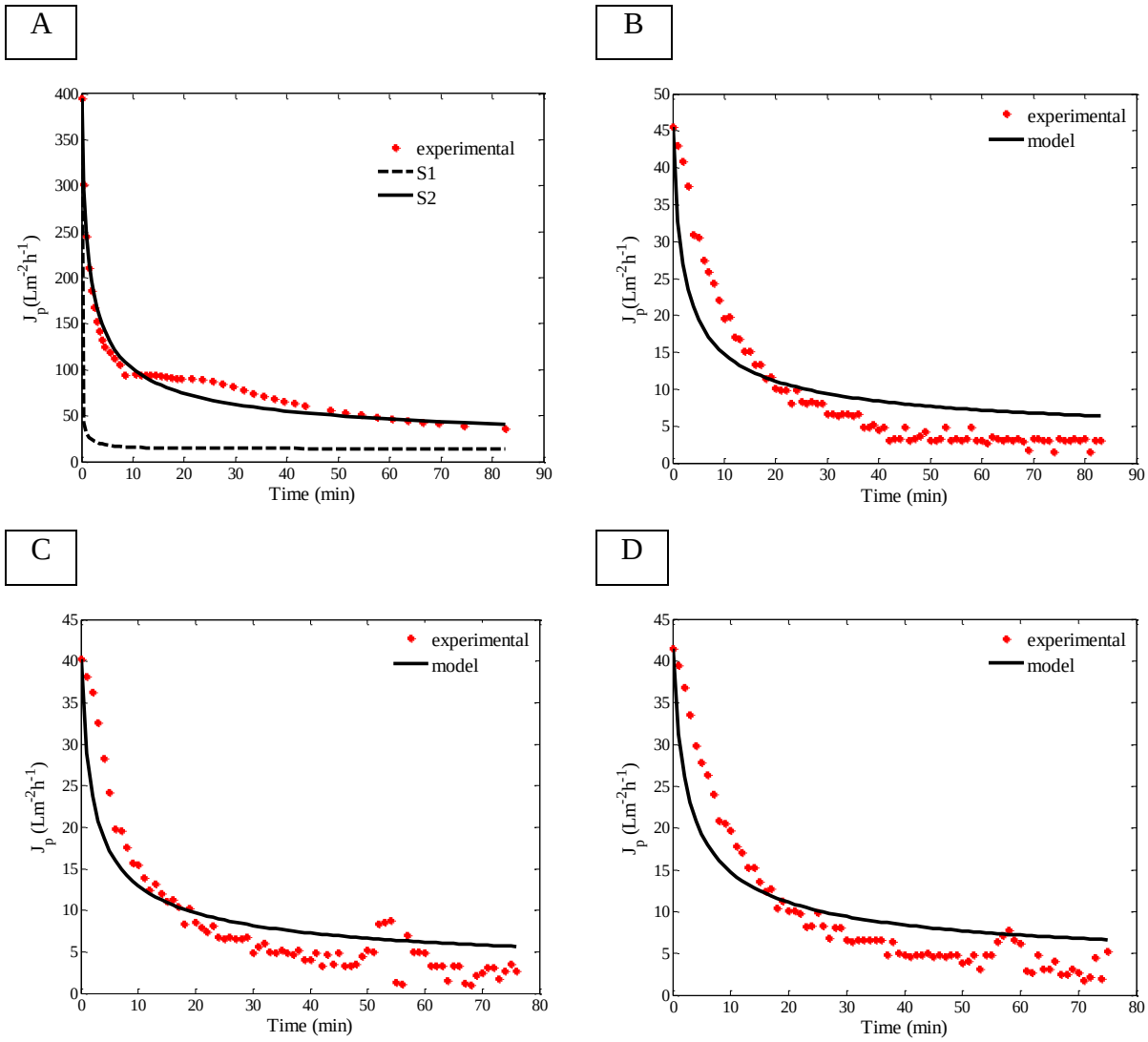



Figure III. 16: (A) résultats des deux approches d'identification des paramètres (B, C et D) ajustement du modèle aux données expérimentales de la filtration du digestat brut par les membranes de taille de pores respective 0,05 ; 0,02 et 0,8µm

Le Tableau III.5 présente d'autres exemples de valeurs de α et β obtenues pour les données de la filtration du même effluent (la phase liquide de la centrifugation des digestats Agri 1 et Agri 2). Ces effluents se caractérisent par une faible concentration en MES (4 g. $L^{-1}$).

Etant donné que les filtrations ont été réalisées sous les mêmes conditions de cisaillement, nous obtenons des valeurs similaires pour toutes les données étudiées. Les valeurs de la résistance spécifique du gâteau obtenues dans le cas des effluents centrifugés, sont plus importantes que ceux des effluents bruts, ce qui prouve le rôle déterminant des petites particules qui restent dans la suspension centrifugée sur la résistance du gâteau. Par ailleurs, le α obtenu pour la membrane

UF (0,02 µm) apparaît plus important que celui obtenu pour la membrane MF (0,8 µm). En effet, la centrifugation du digestat ne maintient que les petites particules dans la phase liquide. Ainsi le seuil de coupure de la membrane joue un rôle important dans la sélectivité des petites particules, la structuration du dépôt et les mécanismes de colmatage dominants.

Tableau III. 5: Les valeurs optimisées des paramètres du modèle

| **Effluent centrifugé** | **Taille des pores de la membrane (µm)** | **gMES. $L^{-1}$** | **α** | **β** | **Moindre carré** | **$R^2$** |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Agri 1 | 0,8 | 4 | $0,13\ 10^{14}$ | 258,25 | $4,88\ 10^{-10}$ | 97% |
| Agri 1 | 0,02 | 4 | $1,83\ 10^{14}$ | 263,42 | $5,06\ 10^{-10}$ | 85% |
| Agri 2 | 0,8 | 4 | $0,88\ 10^{14}$ | 265,44 | $6,05\ 10^{-10}$ | 87% |
| Agri 2 | 0,02 | 4 | $3,37\ 10^{14}$ | 281,12 | $2,49\ 10^{-10}$ | 87% |

Les valeurs optimisées de α sont de l'ordre de grandeur de celles trouvées dans la littérature (Lin *et al*., 2011). Néanmoins, comme le montre la Figure III.16 et qui est décrit dans la littérature, la résistance hydraulique due à l'accumulation des particules sur la surface de la membrane continue à augmenter au cours du temps à cause de la densification du gâteau incluant le développement du biofilm, le blocage des pores et l'adsorption. Il est ainsi important de compléter ce modèle.

### III.3.3. Validation du modèle de colmatage par gâteau à deux paramètres moyennant les données de filtration du polymère PVA

La méthode des lavages a révélé que lors de la filtration d'une suspension de PVA par une membrane UF, le principal mode de colmatage observé est la formation d'un gâteau à la surface de la membrane. En se basant sur ces résultats, nous avons essayé de valider le modèle de la

formation de gâteau que nous avons proposé dans cette section et ceci à l'aide des données expérimentales de la variation du flux de permeat au cours du temps de filtration.

En utilisant la méthode de la minimisation des moindres carrés, nous avons identifié les paramètres du modèle α (la résistance spécifique du gâteau) et β (le paramètre de cisaillement) affichés sur le Tableau III.6.

Tableau III. 6: Résultats de l'ajustement du modèle de la formation de gâteau aux données expérimentales de flux

| PVA (kDa) | Seuil de coupure de la membrane (kDa) | PTM (mbar) | α ($m.kg^{-1}$) | β ($m^2.kg^{-1}$) | $R^2$ |
|---|---|---|---|---|---|
| 146_186 | 150 | 28 | $1,58\ 10^{14}$ | $1,84\ 10^{4}$ | 88,21% |
| 146_186 | 50 | 85 | $2,39\ 10^{14}$ | $1,19\ 10^{4}$ | 94,81% |
| 146_186 | 50 | 220 | $1,47\ 10^{15}$ | $3,03\ 10^{4}$ | 65,48% |
| 13_23 | 50 | 220 | $3,21\ 10^{15}$ | $6,48\ 10^{4}$ | 44,95% |

Nous avons également quantifié l'efficacité de l'ajustement du modèle aux données expérimentales par le calcul du coefficient de détermination $R^2$ (Tableau III.6).

Les données de flux théorique sont tracées avec les données expérimentales sur les Figures (III.17-II.20). D'après les allures des courbes représentées sur ces Figures, le modèle décrit convenablement la chute du flux de permeat pour les quatre cas étudiés.

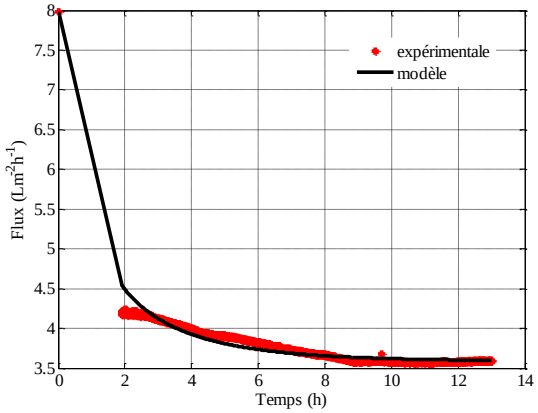



Figure III. 17: Calage du modèle aux données de flux de la filtration du PVA (146_186 kDa) avec la membrane (150 kDa) à 28 mbar

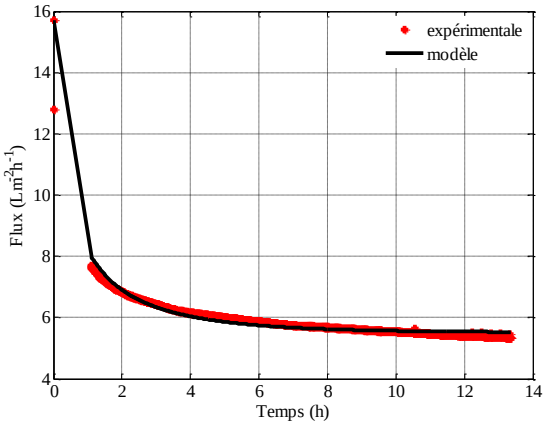



Figure III. 18: Calage du modèle aux données de flux de la filtration du PVA (146_186 kDa) avec la membrane (50 kDa) à 85 mbar

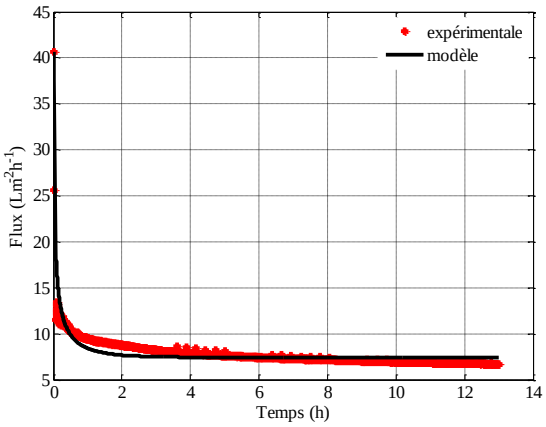



Figure III. 19: Calage du modèle aux données de flux de la filtration du PVA (146_186 kDa) avec la membrane (50 kDa) à 220 mbar

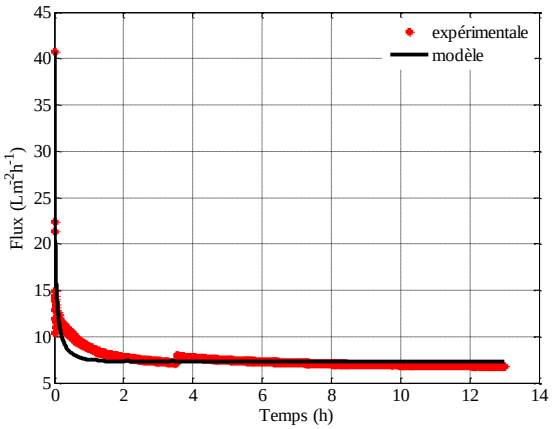



Figure III. 20: Calage du modèle aux données de flux de la filtration du PVA (13_23 kDa) avec la membrane (50 kDa) à 220 mbar

Le calcul du coefficient $R^2$ montre que le modèle est capable de décrire la chute du flux lors de la filtration du PVA (146_186 kDa) avec la membrane 150 kDa à 28 mbar ($R^2$=88,21%) ainsi que pour la filtration du PVA (146_186 kDa) avec la membrane 50 kDa à 85 mbar ($R^2$=94,81%). Ceci confirme la nature du colmatage révélé par la méthode des lavages qui est la formation du gâteau. Par contre, le modèle manifeste moins d'efficacité à décrire la chute du flux lors de la filtration du PVA (146_186 kDa) avec la membrane 50 kDa à 220 mbar ($R^2$=65,48%) et encore moins pour le cas de la filtration PVA (13_23 kDa) avec la membrane 50 kDa à 220 mbar ($R^2$=44,95%). Puisque la méthode des lavages révèle la formation d'un dépôt comme principal

mode de colmatage l'écart entre le modèle est les données expérimentales peut être dû au changement des caractéristiques du gâteau au cours du temps. En effet le modèle suppose une résistance spécifique du gâteau constante au cours du temps de filtration. Cette hypothèse est vérifiée pour les manipulations réalisées à 28 et 85 mbar. Par contre elle n'est pas vérifiée dans les manipulations menées à 220 mbar. En effet l'augmentation de la PTM entraîne la compression du dépôt de polymères et par suite la variation de sa résistance spécifique au cours du temps de filtration (Bugge *et al*., 2012 ; Jorgensen *et al*., 2012).

Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons considéré les cas où l'efficacité de l'ajustement du modèle est faible et nous avons vérifié le modèle avec les données de flux à court terme correspondante à 0,5 h de filtration. A court terme le coefficient $R^2$ s'améliore considérablement. En effet, dans le cas de la filtration du PVA (146_186 kDa) à 220 mbar, à court terme, le coefficient $R^2$ passe de 65,48% à 95,87% et pour le cas de la filtration du PVA (13_23 kDa) à 220 mbar, de 44,95% à 83,36%. Ces résultats confirment qu'à court terme le colmatage est dû principalement à la formation d'un gâteau ayant une résistance spécifique constante et qu'à long terme les caractéristiques du dépôt évoluent.

III.4. Validation du modèle de colmatage de surface à trois paramètres

Afin de valider le modèle incluant les phases de lavage, nous avons comparé des simulations à des données expérimentales obtenues sur un BRM à échelle laboratoire d'un volume de 60 L, traitant une solution synthétique de polluants biodégradables. Le réacteur est alimenté d'un substrat synthétique composé d'acétate de sodium ($CH_3COONa$) comme matière organique facilement biodégradable et de chlorure d'ammonium ($NH_4Cl$) comme matière azotée. D'autres sels comme le phosphate d'ammonium ($(NH_4)_2HPO_4$) sont également additionnés pour assurer la régulation du pH. Ce substrat synthétique est dilué à l'eau du robinet. La concentration du $N\text{-}NH_4$ est fixée à 125 $mg.L^{-1}$.

Les conditions opératoires considérées dans les expérimentations conduites, sont indiquées dans le Tableau III.7. Même si la solution d'alimentation, le TSH et le TSB sont similaires pour les six premières expériences, les concentrations en MES et PMS déterminées, montrent un écart. En effet, pour favoriser une croissance rapide de la concentration de la biomasse dans le réacteur, nous n'avons pas extrait de boue durant la première expérience. Par ailleurs, pour analyser la dynamique du colmatage, nous avons diminué l'intensité d'aération dans les expériences 4 et 6,

ce qui a conduit à une stratification de la concentration des MES dans le bioréacteur, avec une concentration plus faible en haut du réacteur où est immergée la membrane. Les concentrations des MES et des PMS indiquées dans le Tableau III.7, sont ainsi mesurées dans la suspension qui traverse le module membranaire.

Tableau III. 7: Les conditions opératoires biologiques du BRM (Pilote 3)

| Expériences | DCO ($mg.L^{-1}$) | $NH_4^+$ ($mg.L^{-1}$) | P (mg/L) | TSH (h) | TSB (jours) | MES(X) ($g.L^{-1}$) | PMS retenus (S) ($g.L^{-1}$) |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 1 | 250 | 125 | 2,5 | 10 | 40 | 2,1 | 0,19 |
| 2 | 250 | 125 | 2,5 | 10 | 40 | 1,57 | 0,16 |
| 3 | 250 | 125 | 2,5 | 10 | 40 | 1,54 | 0,16 |
| 4 | 250 | 125 | 2,5 | 10 | 40 | 0,67 | 0,21 |
| 5 | 250 | 125 | 2,5 | 10 | 40 | 1 | 0,19 |
| 6 | 250 | 125 | 2,5 | 10 | 40 | 0,6 | 0,10 |
| 7 | 250 | 125 | 2,5 | 10 | 60 | 2,09 | 0,11 |

Pour minimiser le colmatage de la membrane deux voies ont été adoptées : (i) injection continue de fines bulles d'air à travers le module de la membrane par un diffuseur d'air placé juste au dessous du module membranaire, (ii) introduction d'une relaxation et d'un contre-lavage périodiques après chaque cycle de filtration continue qui dure 8,75 min à un flux constant de 17 $L.m^{-2}.h^{-1}$, 0,25 min de relaxation, 0,75 min de contre-lavage et 0,25 min de relaxation.

La DCO a été mesurée dans le permeat ainsi que dans le surnageant de la biomasse filtrée obtenu après 2 h de décantation de la biomasse. La concentration des larges polymères retenus par la membrane, est estimée à 93% de la concentration de la DCO dans le surnageant (S). La concentration des particules (X) est assimilée à la concentration des MES. Cette concentration est exprimée en termes de $gDCO.L^{-1}$ basé sur la concentration des MES mesurée et le fait que la croissance de 1 g de biomasse implique la consommation de 1,42g de $O_2$.

$$X(gDCO/L) = X(gMES/L) \times 1.42(gDCO/gMES) \quad (III.6)$$

La viscosité du permeat μ et la densité du gâteau $\rho_s$ sont supposées constantes ($\mu=10^{-3}$ Pa.s, $\rho_s=10^3$ kgm$^{-3}$) ainsi que la résistance intrinsèque de la membrane $R_0$ et le flux de permeat $J_p$ ($R_0=1{,}41\ 10^{12}$ m$^{-1}$ et $J_p=17$ L.m$^{-2}$.h$^{-1}$).

Une première validation a été réalisée moyennant des données d'une filtration continue (sans lavage) répétée 3 fois dans les conditions de l'expérience 1 (Tableau III.7). A l'aide de la méthode des moindres carrés, le modèle a été ajusté à ces données expérimentales.

A l'issu de cet ajustement, trois paramètres ont été optimisés: la taille moyenne des particules formant le gâteau (d), le paramètre de cisaillement (β) et le paramètre de la décroissance de la porosité ($k_\varepsilon$). Compte tenu de la possibilité de l'existence de différents jeux de paramètres conduisant au même degré d'ajustement, nous avons vérifié l'identifiabilité des paramètres. L'étude théorique de l'identifiabilité est souvent difficile à réaliser. Pour cela, une approche numérique a été adoptée. Elle consiste à lancer de nombreuses optimisations tout en variant les conditions initiales des paramètres à identifier. L'application de cette procédure dans le cas présent, a révélé une combinaison unique des paramètres optimisés.

Pour les valeurs optimales de ces paramètres mentionnées dans les tableaux III.8 et III.10, une étude d'incertitude a été menée pour estimer l'écart type.

Les valeurs obtenues pour ces paramètres pour coller les simulations aux données expérimentales correspondantes à la lente croissance de la PTM au cours du temps, sont présentées dans le Tableau III.8. Afin d'évaluer l'efficacité de l'ajustement, on a mesuré le coefficient de détermination $R^2$ et les valeurs obtenues sont affichées sur les Figures III.21 et III.22. Lors de l'ajustement aux données à court terme (Figure III.21), les valeurs de $R^2$ obtenues sont supérieures à 96% pour les trois cas étudiés. Le modèle permet ainsi de décrire convenablement l'évolution de la PTM au cours de cette phase contrôlée principalement par la déposition des particules en suspension sur la surface de la membrane. Ceci dit lors de l'ajustement à la totalité des données expérimentales (à long terme) (Figure III.22), les valeurs de $R^2$ obtenues sont légèrement inférieures à celles obtenues pour la phase initiale. Cet écart est probablement dû aux autres mécanismes de colmatage non considérés dans le modèle qui auraient contribué au saut de la PTM, comme le blocage des pores dû à l'adsorption des éléments solubles à l'intérieur des pores de la membrane.

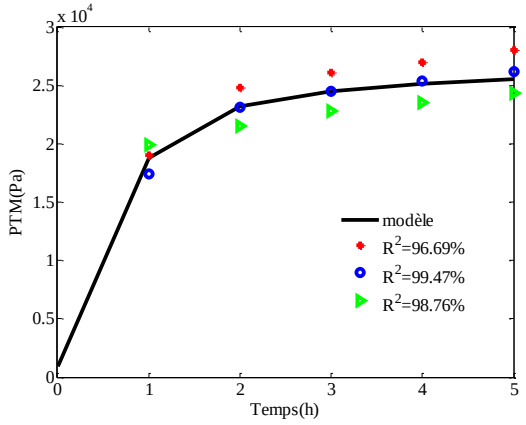



Figure III. 21: Ajustement du modèle aux données de la croissance initiale de la PTM

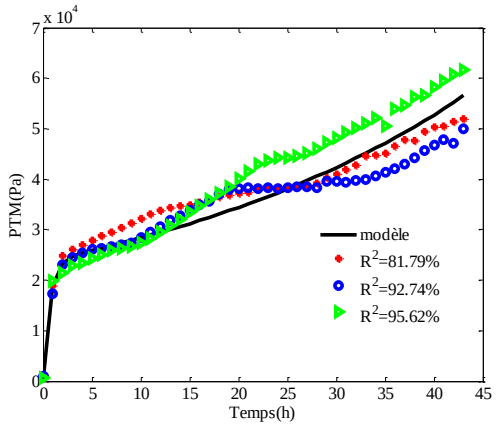
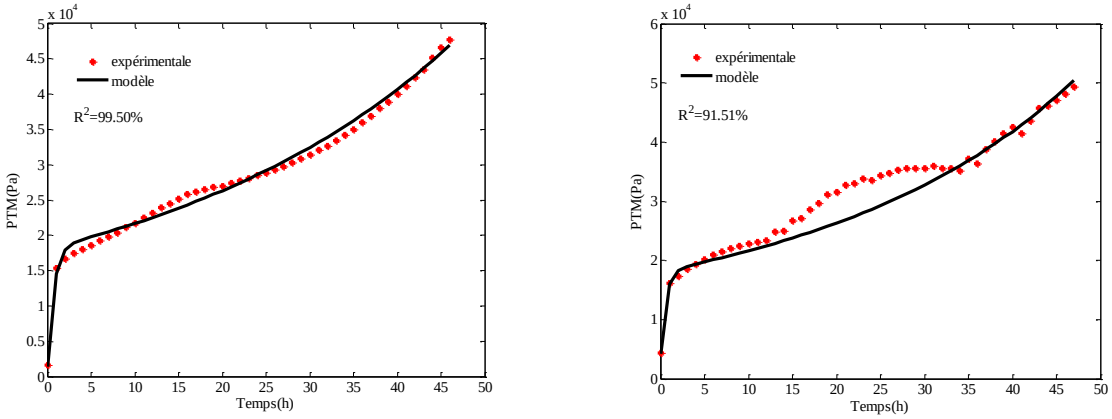



Figure III. 22: Ajustement du modèle aux données de la première ainsi que la seconde phase de colmatage

Tableau III. 8: Paramètres du modèle obtenus pour les données de la filtration continue (Expérience1)

| Paramètres théoriques | | Unité |
|---|---|---|
| $\varepsilon_0$ | 0,2 | - |
| $\beta$ | 0,055±1,99% | $m^2.g^{-1}$ |
| $k_2$ | 2,5 $10^{-4}$±4,14% | $m^2.h.g^{-1}$ |
| $k_\varepsilon$ | 8 $10^{-4}$±4,14% | |
| d | 1,3 $10^{-5}$±1,03% | m |
| Conditions expérimentales | | |
| X | 2,98 | $gDCO.L^{-1}$ |
| $\sigma.S$ | 0,19 | $gDCO.L^{-1}$ |

Le modèle a également été ajusté aux données expérimentales obtenues dans d'autres conditions (X=1,5g/L and S=0,16g/L) (Figure III.23). Même en changeant les caractéristiques de la suspension, le modèle décrit bien l'évolution de PTM expérimentale avec un $R^2$ supérieur à 90%.




Expérience 2 Expérience 3

Figure III. 23: Ajustement du modèle à des données expérimentales obtenues à différentes conditions opératoires (X=1,5g/L and S=0,16g/L)

Durant une filtration à long terme, un lavage cyclique est appliqué. On a ainsi réalisé une seconde validation du modèle avec les données d'une filtration cyclique. Les simulations du modèle ont été comparées avec trois séries de données expérimentales de PTM (Figures III.24-III.26). Puisque ces données ont été obtenues dans les mêmes conditions opératoires (débit d'aération et flux de permeat) que les données expérimentales de la précédente validation, nous avons fixé les valeurs de β et d à celles identifiés lors de la précédente validation (les données de la filtration continue). Les données théoriques de la PTM obtenues par le modèle proposé sont présentées dans les figures III.24A, III.25A et III.26A. Les valeurs des paramètres fixés pour la validation sont présentées dans le Tableau III.9. L'évolution de la PTM simulée colle bien aux données expérimentales. Pour chacune des séries de données expérimentales étudiées, on présente l'évolution théorique des résistances de la couche mince de polymères $R_s$ et du gâteau ainsi que la résistance totale (Figures III.24B, III.25B et III.26B).

Les données expérimentales présentées dans les Figures III.24A et III.26A ont été obtenues à des conditions opératoires similaires (Tableau III.9), excepté pour la concentration des PMS (S). Le modèle permet la détermination de la valeur de la masse spécifique de la couche mince formée principalement de PMS responsable de la première phase du colmatage qui sont respectivement 0,1 et 0,07 $g.m^{-2}$ des résistances respectives de 8,1 $10^{11}$ and 7,33 $10^{11}$ $m^{-1}$ (Figures III.24B et III.26B). Ceci confirme que des concentrations plus élevées de PMS entraîne un biofilm plus

épais et ainsi un colmatage plus intense comme mentionné par Pan *et al*. (2010) and Ho et Sung (2009).

En comparant l'évolution globale de la PTM dans les cas de la filtration cyclique et de la filtration continue, la croissance de la PTM est trouvée 32 fois plus importante dans le cas de la filtration continue.

Les Figures III.24B, III.25B et III.26B, montrent que dans les conditions considérées, l'effet de la relaxation sur l'élimination du gâteau est négligeable par rapport à celui du rétro-lavage qui permet dans ce cas d'éliminer l'ensemble du gâteau et de la couche mince des PMS. L'application d'un cisaillement plus important (une aération plus importante) est en mesure d'améliorer l'efficacité de la relaxation.

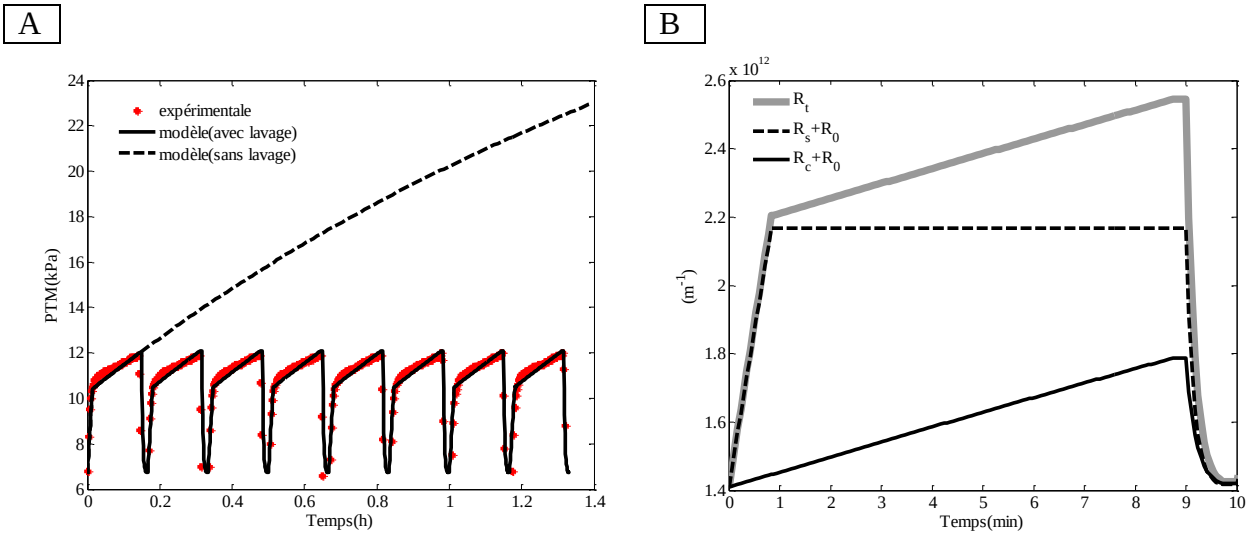



Figure III. 24: (A) Ajustement du modèle aux données expérimentales obtenues à faible cisaillement (Tableau III.9, expérience 4) (B) Les résistances des différentes couches de colmatage durant un cycle de filtration

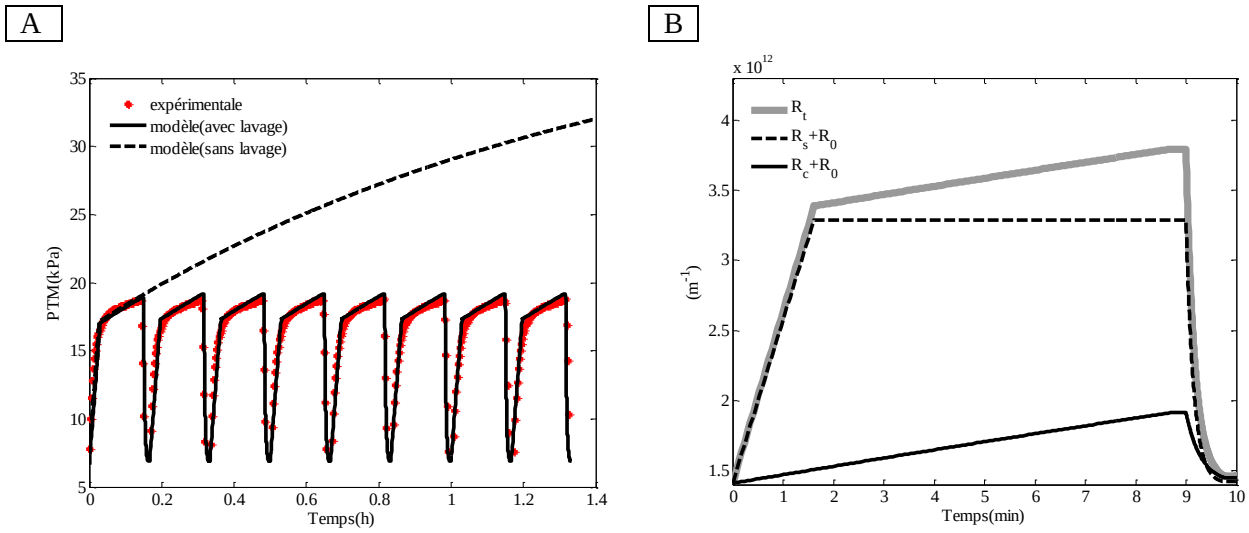



Figure III. 25: (A) Ajustement du modèle aux données expérimentales obtenues à faible cisaillement (Tableau III.9, expérience 5) (B) Les résistances des différentes couches de colmatage durant un cycle de filtration

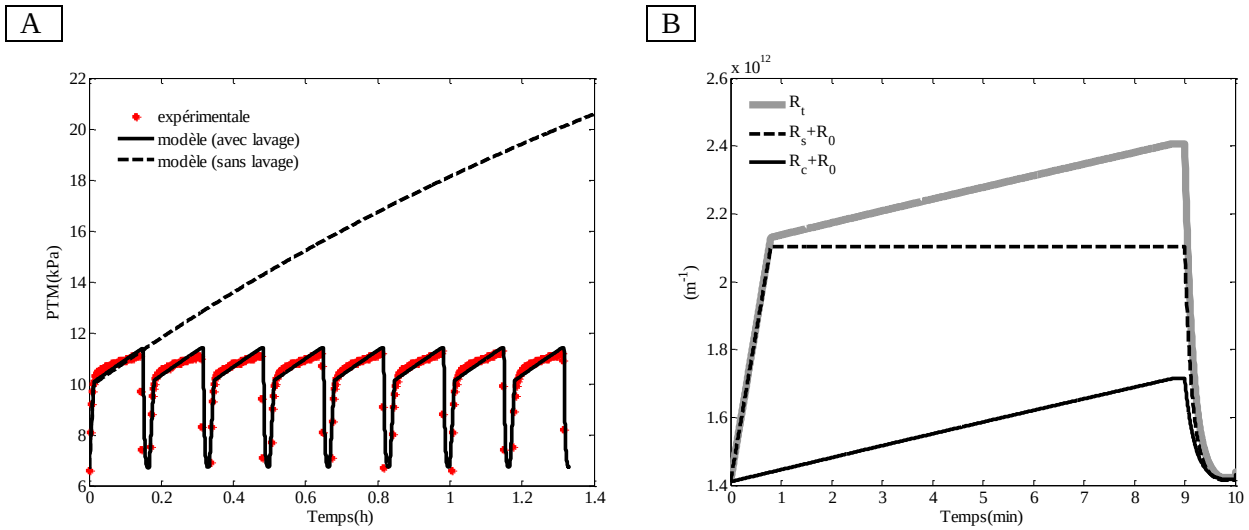



Figure III. 26: (A) Ajustement du modèle aux données expérimentales obtenues à faible cisaillement (Tableau III.9, expérience 6) (B) Les résistances des différentes couches de colmatage durant un cycle de filtration

Tableau III. 9: Les paramètres du modèle pour une filtration cyclique sous un faible cisaillement (aération $3m^3/h$)

| | **Expérience 4** | **Expérience 5** | **Expérience 6** | Unité |
|---|---|---|---|---|
| Paramètres théoriques | | | | |
| $\varepsilon_0$ | 0,2 | 0,2 | 0,2 | - |
| $\beta$ | 0,055 | 0,055 | 0,055 | $m^2.g^{-1}$ |
| d | $1,3\ 10^{-5}$ | $1,3\ 10^{-5}$ | $1,3\ 10^{-5}$ | m |

| | | | | |
|---|---|---|---|---|
| $k_1$ | $1,5\ 10^{13}$ | $2,5\ 10^{13}$ | $3\ 10^{13}$ | |
| $m_s$ | 0,1 | 0,24 | 0,07 | $g.m^{-2}$ |
| $k_2$ | $2,5\ 10^{-4}$ | $2,5\ 10^{-4}$ | $2,5\ 10^{-4}$ | |
| $k_\varepsilon$ | $8,92\ 10^{-4}$ | $8\ 10^{-4}$ | $4,25\ 10^{-4}$ | |
| $\eta_1$ | 400 | 400 | 400 | |
| $\eta_2$ | 400 | 400 | 400 | |
| $\eta_3$ | 0,055 | 0,048 | 0,025 | |
| Paramètres expérimentaux | | | | |
| X | 0,95 | 1,42 | 0,85 | $gDCO.L^{-1}$ |
| σ.S | 0,21 | 0,19 | 0,10 | $gDCO.L^{-1}$ |

III.5. Etude de l'effet du cisaillement

En augmentant l'aération à 6 $m^3.h^{-1}$ et par conséquent le cisaillement, on a obtenu de nouvelles données expérimentales de PTM (expérience 7, Tableau III.7) que l'on a également utilisé pour ajuster dessus le modèle proposé (Figure III.27). Il a été possible de décrire la variation de la PTM par le modèle de colmatage par formation de gâteau (section II.2) correspondant au principal mécanisme de colmatage. L'augmentation du cisaillement favorise l'entraînement des polymères solubles ce qui conduit à la disparition de la première phase qui correspond au dépôt de PMS.

Les paramètres déterminés par le modèle sont présentés dans le Tableau III.10. L'augmentation du cisaillement est traduite par une hausse de la valeur du paramètre de cisaillement β qui passe de 0,055 (expériences à faible cisaillement) à 9,48 $m^2.g^{-1}$ et qui entraîne la décroissance de la taille moyenne des particules de 13 à 2,33 µm. Ce phénomène est souvent observé dans les BRM (Ho et Sung, 2009; Waeger *et al*., 2010).

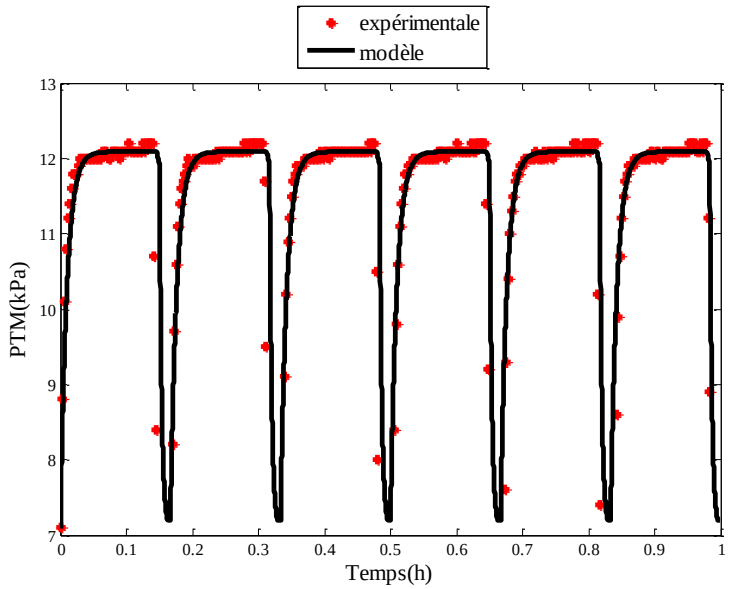



Figure III. 27: Ajustement du modèle aux données expérimentales obtenues à fort cisaillement (aération à 6 $m^3.h^{-1}$)

Tableau III. 10: Paramètres du modèle pour la filtration cyclique à fort cisaillement

| | **Expérience 7** | Unité |
|---|---|---|
| Paramètres théoriques | | |
| $\varepsilon_0$ | 0,2 | - |
| $\beta$ | 9,48±0,73% | $m^2.g^{-1}$ |
| d | 2,33 $10^{-6}$±0,36% | m |
| $\eta_1$ | 400 | |
| $\eta_3$ | 0,012 | |
| Conditions expérimentales | | |
| X | 2,96 | $gDCO.L^{-1}$ |
| $\sigma$.S | 0,11 | $gDCO.L^{-1}$ |

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté l'étude menée pour valider les deux modèles proposés. Pour le modèle à deux paramètres, l'ajustement des données théoriques du flux de permeat sur des données expérimentales obtenues lors de la filtration tangentielle à court terme de digestat et de suspensions de polymère PVA, a révélé une efficacité d'ajustement de 80%. Le modèle

permet une prédiction qualitative satisfaisante de la variation du flux de permeat à PTM constant. Les effets de deux paramètres, la résistance spécifique du gâteau et l'intensité de cisaillement sur la limitation du développement du gâteau, ont été mis en évidence. Ce modèle permet d'estimer la résistance spécifique du gâteau lors d'une filtration tangentielle difficile à déterminer expérimentalement.

Des données de PTM obtenues à flux de permeat constant sur un BRM immergé, ont servi à valider le modèle à trois paramètres. L'exercice d'ajustement des données théoriques et des données expérimentales a révélé une efficacité supérieure à 90%. Ceci confirme les hypothèses qui sous-tendent ce modèle à savoir que l'évolution du colmatage lors de la filtration d'une suspension de biomasse passe par trois phases. La première phase est caractérisée par une augmentation de la PTM due au développement d'un film à la surface de la membrane qui induit un blocage des pores dû à la rétention des larges composants solubles (correspondent aux PMS). La seconde phase est caractérisée par une croissance de la PTM due à la formation du gâteau par les solides en suspension et les PMS. La troisième phase reflète la décroissance progressive de la porosité du gâteau due à la rétention des PMS à l'intérieur de la structure du gâteau induisant progressivement un saut de la PTM. L'effet des différents modes de régénération de la membrane (cisaillement au voisinage de la membrane, relaxation et rétro-lavage) a été mis en évidence. Ce modèle aidera au développement d'un outil de contrôle et d'optimisation des paramètres de filtration incluant les cycles de relaxation et de rétro-lavage.

# CHAPITRE IV

## Couplage des modèles de colmatage et des modèles biologiques

### Introduction

Au moment où plusieurs travaux s'intéressent au couplage des modèles de filtration aux modèles ASM propres aux systèmes biologiques aérobies (Lee *et al*., 2002 ; Zarragoitia-Gonzalez *et al*., 2008 ; Pimentel *et al*., 2013), peu de travaux visent le couplage des modèles de filtration aux modèles biologiques propres aux systèmes anaérobies.

Dans le chapitre précédent nous avons pu développer un modèle qui décrit la dynamique du colmatage lors de la filtration d'une suspension biologique à long terme. Dans le but de développer un modèle propre aux BRMAn, nous proposons dans ce chapitre un modèle mathématique qui couple le modèle de colmatage à un modèle décrivant la dynamique du système biologique dans le digesteur.

### IV.1. Formulation du modèle

#### IV.1.1. Hypothèses

La dynamique du système biologique se base sur le modèle AM2b proposé par Benyahia *et al*. (2013) développé pour un bioréacteur à membrane anaérobie (Figure IV.1) sous un ensemble d'hypothèses. La dynamique du système biologique inclut deux réactions : l'acidogenèse et la méthanogenèse qui font intervenir deux types de micro-organismes : acidogènes, notés $X_1$, et méthanogènes notés $X_2$. Les bactéries $X_1$ consomment la matière organique notée S1 et produisent des acides gras volatils (AGV) notés $S_2$. Les AGV sont, à leur tour, consommés par l'écosystème $X_2$ pour produire du méthane. La croissance ainsi que le décès des deux types de bactéries, engendrent la production des PMS. Les PMS sont au même temps consommés par $X_1$ pour produire $S_2$. Ces différentes réactions sont résumées dans le Tableau IV.1 sous la forme d'un schéma réactionnel (Bastin et Dochain, 1990).

Tableau IV. 1: Réactions considérées dans le modèle AM2b (Ben yahia *et al*., 2013)

Acidogenèse

$$k_1^* S_1 \rightarrow X_1 + k_2^* S_2 + k_4^* CO_2$$

Méthanogenèse

$$k_3^* S_2 \rightarrow X_2 + k_5^* CO_2 + k_6^* CH_4$$

Acidogenèse et la production des PMS

$$k_1^* S_1 \rightarrow X_1 + k_2^* S_2 + b_3 S + k_4^* CO_2$$

Méthanogenèse et la production des PMS

$$k_3^* S_2 \rightarrow X_2 + b_3 S + k_5^* CO_2 + k_6^* CH_4$$

Dégradation des PMS

$$b_1 S \rightarrow X_1 + b_2 S_2 + k_7^* CO_2$$

La production des PMS lors de la dégradation des micro-organismes

$$k_{d1} X_1 \rightarrow k_{d1} S \qquad k_{d2} X_2 \rightarrow k_{d2} S$$

Avec :

$X_1$ : Concentration des micro-organismes acidogènes ($g.L^{-1}$)

$X_2$ : Concentration des micro-organismes méthanogènes ($g.L^{-1}$)

$S_1$ : Concentration de la matière organique ($g.L^{-1}$)

$S_2$ : Concentration des Acides Gras volatils ($g.L^{-1}$)

S : Concentration des PMS ($g.L^{-1}$)

$k_1^*$ : Coefficient de dégradation de $S_1$ par $X_1$

$k_2^*$ : Coefficient de production de $S_2$ à partir de $S_1$

$k_3^*$ : Coefficient de dégradation de $S_2$ par $X_2$

$k_4^*$ : Coefficient de production de $CO_2$ à partir de $S_1$

$k_5^*$ : Coefficient de production de $CO_2$ à partir de $S_2$

$k_6^*$ : Coefficient de production de $CH_4$ à partir de $S_2$

$k_7^*$ : Coefficient de production de $CO_2$ à partir de PMS

$b_1$ : Coefficient de dégradation des PMS par $X_1$

$b_2$ : Coefficient de production de $S_2$ à partir de PMS

$b_3$ : Coefficient de production de PMS à partir de $S_1$

$b_4$ : Coefficient de production de PMS à partir de $S_2$

$k_{d1}$ : Taux de décroissance des acidogènes

$k_{d2}$ : Taux de décroissance des méthanogènes

Mis à part les hypothèses d'ordre biologique, d'autres hypothèses liées au procédé sont utilisées. Le bioréacteur est considéré homogène en tout point. Par ailleurs, la biomasse acidogène $X_1$ et la biomasse méthanogène $X_2$ sont totalement retenues par la membrane. Par contre les substrats (la matière organique ($S_1$) et les AGV ($S_2$)) ne sont pas retenus par celle-ci. Une fraction des PMS produits est retenue par la membrane et participera à son colmatage. La fraction de la biomasse attachée par les forces de permeation et celle détachée par les forces de cisaillement ou bien par les opérations de lavage est considérée négligeable par rapport à la concentration de la biomasse dans le réacteur. Ainsi, le colmatage de la membrane et sa régénération sont supposés ne pas avoir d'effet sur la dynamique du système biologique. Lors des opérations de lavage, on suppose l'arrêt des débits d'alimentation en substrats, de soutirage de boue et de permeat.

Le modèle AM2b est couplé au modèle de colmatage à trois paramètres proposé dans la section II.3 considérant les différents phénomènes d'encrassement lors d'une filtration à débit constant : formation d'une première couche de PMS jusqu'à atteindre une épaisseur critique au-delà de la quelle vient se déposer un gâteau formé de matière en suspension et PMS et en fin l'introduction des PMS dans les pores du gâteau entraînant une augmentation de résistance spécifique traduite par un saut de la PTM.

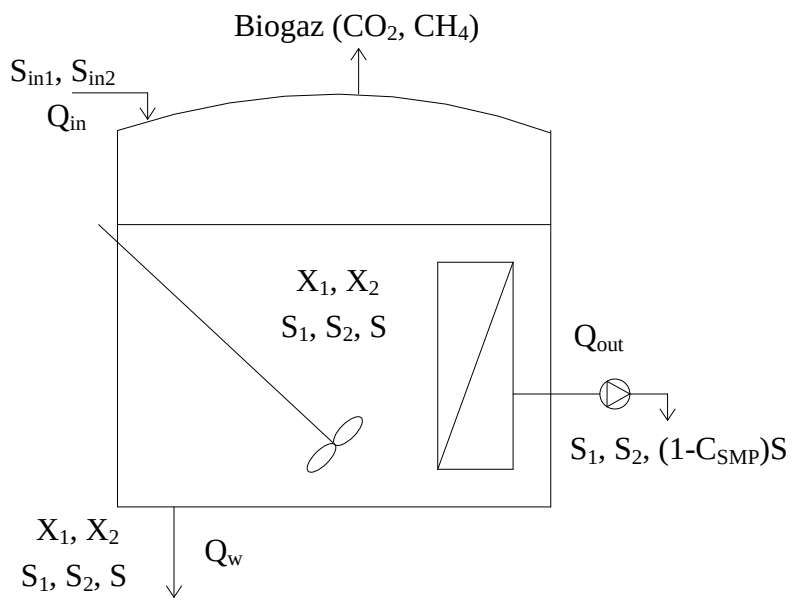



Figure IV. 1: Représentation schématique du modèle AM2b

IV.1.2. Les équations du modèle

IV.1.2.1. Phase de filtration

$$\frac{dX_1}{dt} = \left(\mu_1(\mathrm{S}_1) + \mu_{smp}(\mathrm{S}) - k_{d1} - \frac{Q_w}{V_R}\right) X_1 \qquad \text{(IV. 1)}$$

$$\frac{dX_2}{dt} = \left(\mu_2(\mathrm{S}_2) - k_{d2} - \frac{Q_w}{V_R}\right) X_2 \qquad \text{(IV. 2)}$$

$$\frac{dS_1}{dt} = \left(\frac{Q_{in}.S_{1in}}{V_R}\right) - \left(\left(\frac{Q_{out}}{V_R} + \frac{Q_w}{V_R}\right).S_1\right) - (k_1^*.\mu_1(\mathrm{S}_1).X_1) \qquad \text{(IV. 3)}$$

$$\frac{dS_2}{dt} = \left(\frac{Q_{in}.S_{2in}}{V_R}\right) - \left(\left(\frac{Q_{out}}{V_R} + \frac{Q_w}{V_R}\right).S_2\right) - (k_3^*.\mu_2(\mathrm{S}_2).X_2) + \left(k_2^*.\mu_1(\mathrm{S}_1) + b_2.\mu_{smp}(\mathrm{S})\right) X_1 \qquad \text{(IV.4)}$$

$$\frac{dS}{dt} = -\left(\left(\sigma.\frac{Q_{out}}{V_R} + \frac{Q_w}{V_R}\right).S\right) + \left(b_3.\mu_1(\mathrm{S}_1) + k_{d1} - b_1.\mu_{smp}(\mathrm{S})\right).X_1 + (b_4.\mu_2(\mathrm{S}_2) + k_{d2}).X_2$$

(IV. 5)

$$\frac{dm_c}{dt} = Q_{out}.(X_t + \sigma.S).\left(1 - \beta(m_c - m_s)\right) \qquad \text{(IV. 6)}$$

$$\frac{d\varepsilon}{dt} = -k_\varepsilon.\sigma.\frac{Q_{out}}{A}.S.\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon+\mathrm{b}}\right) \qquad \text{(IV. 7)}$$

$$\frac{dR_s}{dt} = k_s^*.\sigma.\frac{Q_{out}}{A}.S \qquad \text{(IV. 8)}$$

$$Q_{in} = Q_{out} + Q_w \text{ (IV. 9)}$$

$$X_t = X_1 + X_2 \quad \text{(IV. 10)}$$

$$\mu_1 = \mu_{\max 1} \cdot \frac{S_1}{K_1 + S_1} \quad \text{(IV. 11)}$$

$$\mu_2 = \mu_{\max 2} \cdot \frac{S_2}{K_2 + S_2 + \frac{S_2^2}{K_i}} \quad \text{(IV. 12)}$$

$$\mu_{smp} = \mu_{\max 3} \frac{S}{K_3 + S} \quad \text{(IV. 13)}$$

$$\alpha = \frac{180\,(1-\varepsilon)}{\rho_s\, d^2\, \varepsilon^3} \quad \text{(IV. 14)}$$

$$R_c = \alpha . \frac{m_c}{A} \quad \text{(IV. 15)}$$

$$PTM = \mu . (R_0 + R_s + R_c) \quad \text{(IV. 16)}$$

Avec :

| | |
|---|---|
| A | : Surface de la membrane ($m^2$) |
| σ | : Fraction des PMS retenus par la membrane |
| d | : Diamètre des particules (m) |
| $K_1$ | : Constante de demi-saturation associée au substrat $S_1$ |
| $K_2$ | : Constante de demi-saturation associée au substrat $S_2$ |
| $K_3$ | : Constante de demi-saturation associée au substrat S |
| $k_\varepsilon$ | : Constante de décroissance de la porosité du gâteau |
| $k_s^*$ | : Constante de croissance de la résistance de la couche de PMS |
| $Q_{in}$ | : Débit d'alimentation ($L.h^{-1}$) |
| $Q_{out}$ | : Débit de permeat ($L.h^{-1}$) |
| $Q_w$ | : Débit de soutirage des boues ($L.h^{-1}$) |
| $R_c$ | : Résistance du gâteau ($m^{-1}$) |
| $R_s$ | : Résistance de la couche de PMS ($m^{-1}$) |
| $S_{1in}$ | : Alimentation en substrat $S_1$ ($g.L^{-1}$) |
| $S_{2in}$ | : Alimentation en substrat $S_2$ ($g.L^{-1}$) |
| $V_R$ | : Volume du réacteur ($m^3$) |
| $X_t$ | : Concentration totale de la biomasse ($g.L^{-1}$) |
| α | : Résistance spécifique du gâteau ($m.kg^{-1}$) |
| β | : Paramètre de cisaillement ($m^2.kg^{-1}$) |

$\varepsilon$ : Porosité du gâteau

$\mu$ : Viscosité du permeat (Pa.s)

$\mu_1$ : Taux de croissance des bactéries acidogènes au dépond du substrat $S_1$ ($h^{-1}$)

$\mu_2$ : Taux de croissance des bactéries méthanogènes ($h^{-1}$)

$\mu_{smp}$ : Taux de croissance des bactéries acidogènes au dépond du substrat S ($h^{-1}$)

$\mu_{max1}$ : Taux de croissance maximal des bactéries acidogènes au dépond du substrat $S_1$ ($h^{-1}$)

$\mu_{max2}$ : Taux de croissance maximal des bactéries méthanogènes ($h^{-1}$)

$\mu_{max3}$ : Taux de croissance maximal des bactéries acidogènes au dépond du substrat S ($h^{-1}$)

$\rho_s$ : Densité des solides retenus dans la membrane ($kg.m^{-3}$)

IV.1.2.2. Phase de relaxation

La phase de relaxation est caractérisée par l'annulation de la force motrice de la filtration par l'arrêt de la pompe d'extraction du permeat ($Q_{out}$=0). Pour conserver le volume des digestats dans le réacteur, les pompes d'alimentation de substrat ainsi que la pompe d'extraction des boues sont arrêtées ($Q_{in}$= $Q_w$ =0). En arrêtant la force motrice de filtration, les forces de permeation entraînant les particules vers la membrane s'annulent. Le dépôt constitué lors de la phase de filtration ne sera soumis qu'aux forces de cisaillement permettant le détachement d'une partie du dépôt comme le décrit l'équation (IV.22).

$$\frac{dX_1}{dt} = \left(\mu_1(\mathrm{S}_1) + \mu_{smp} - k_{d1}\right)X_1 \quad \text{(IV. 17)}$$

$$\frac{dX_2}{dt} = (\mu_2(\mathrm{S}_2) - k_{d2})X_2 \quad \text{(IV. 18)}$$

$$\frac{dS_1}{dt} = -(k_1^*.\mu_1(\mathrm{S}_1).X_1) \quad \text{(IV. 19)}$$

$$\frac{dS_2}{dt} = -(k_3^*.\mu_2(\mathrm{S}_2).X_2) + \left(k_2^*.\mu_1(\mathrm{S}_1) + b_2.\mu_{smp}(\mathrm{S})\right)X_1 \quad \text{(IV. 20)}$$

$$\frac{dS}{dt} = \left(b_3.\mu_1(\mathrm{S}_1) + k_{d1} - b_1.\mu_{smp}(\mathrm{S})\right).X_1 + (b_4.\mu_2(\mathrm{S}_2) + k_{d2}).X_2 \quad \text{(IV. 21)}$$

$$\frac{dm_c}{dt} = -\beta.(\mathrm{m_c} - \mathrm{m_s}) \quad \text{(IV. 22)}$$

IV.1.2.3. Phase de retro-lavage

Durant la phase de retro-lavage, la dynamique du système biologique est la même que celle de la phase de relaxation (avec $Q_{out}$=$Q_{in}$=$Q_w$=0). Les équations IV.23, IV.24 et IV.25 décrivent respectivement la variation de la masse du dépôt, la résistance de la couche des PMS et celle de la porosité du gâteau pour décrire l'effet du rétro-lavage sur la régénération de la membrane.

$$\frac{dm_c}{dt} = -\eta_1 . m_c \quad \text{(IV. 23)}$$

$$\frac{dR_s}{dt} = -\eta_2 . R_s \quad \text{(IV. 24)}$$

$$\frac{d\varepsilon}{dt} = -\eta_3 . \varepsilon \quad \text{(IV. 25)}$$

## IV.2. Simulations

Les sorties du modèle couplé ont été simulées sous matlab R2008b. Deux cas sont présentés : le cas de la filtration en continue et le cas du lavage périodique par relaxation et rétro-lavage.

### IV.2.1. Cas d'une filtration en continu

Les Figures IV.2 jusqu'à IV.10 présentent les simulations obtenues lors d'une filtration en continu. Ces figures montrent la variation des paramètres biologiques : les biomasses acidogènes et méthanogènes, la matière organique, les AGV et les PMS (Figures IV.2-6). Pour les valeurs des paramètres du modèle trouvées dans la littérature (Benyahia *et al.*, 2013 ; Bernard *et al.*, 2001) et indiquées dans le Tableau IV.2, ces variables atteignent un état d'équilibre à partir de 15h. La masse spécifique du gâteau croît jusqu'à atteindre un état d'équilibre à 10 g.m$^{-2}$ (Figure IV.7). La décroissance de la porosité du gâteau (Figure IV.8) entraîne la croissance de la PTM. La Figure IV.9 montre une première phase de croissance lente de la PTM suivi d'un saut qui commence à 25h de filtration. L'allure de la résistance totale du dépôt suit l'allure de la PTM (Figure IV.10).

Tableau IV. 2: Valeurs des paramètres considérés pour les simulations

| $S_{1in}$ | $S_{2in}$ | $X_{1in}$ | $X_{2in}$ | $k_1^*$ | $k_2^*$ | $k_3^*$ | $b_1$ | $b_2$ | $b_3$ | $b_4$ | $\beta$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 5 | 0,5 | 0,5 | 0,5 | 25 | 15 | 16 | 40 | 0,6 | 3 | 1,3 | 0,1 |

| $k_{d1}$ | $k_{d2}$ | $V_R$ | $\rho_s$ | d | $\mu$ | $\sigma$ | $R_0$ | $Q_{out}$ | $\varepsilon_0$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 0,18 | 0,18 | 50 | $10^3$ | $10^{-5}$ | $10^{-3}$ | 0,5 | $10^{12}$ | 5 | 0,2 |

| $Q_w$ | $k_\varepsilon$ | $k_s^*$ | $\mu_{max1}$ | $\mu_{max2}$ | $\mu_{max3}$ | $K_1$ | $K_2$ | $K_3$ | $K_i$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 0,06 | $10^{-3}$ | $5\ 10^{15}$ | 0,4 | 0,5 | 0,14 | 7,1 | 0,54 | 3 | 15 |

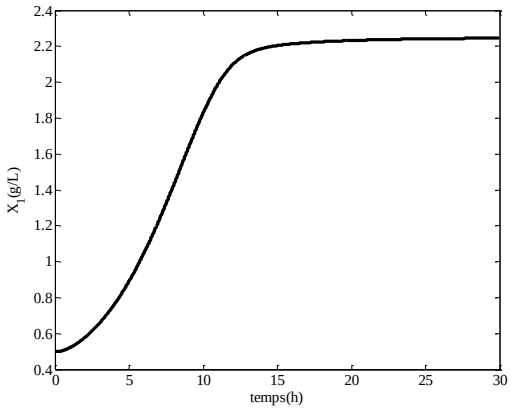



Figure IV. 2: Evolution des bactéries acidogènes lors d'une filtration continue

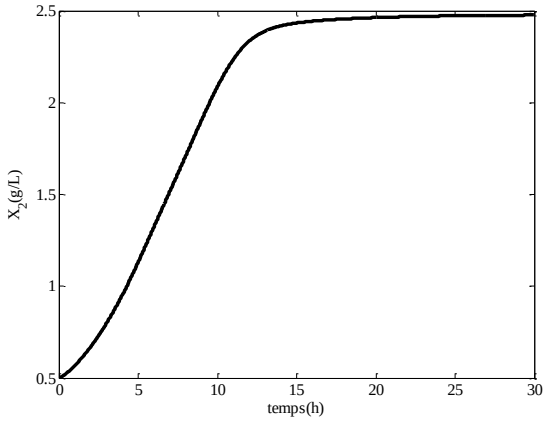



Figure IV. 3: Evolution des bactéries méthanogènes lors d'une filtration continue

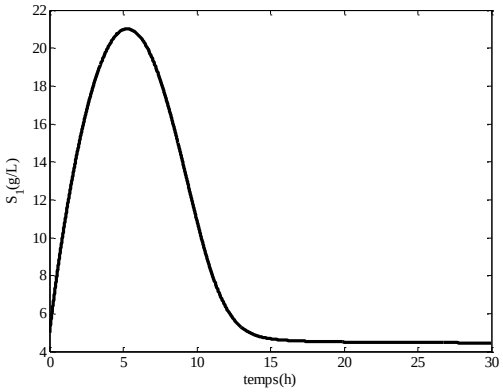



Figure IV. 4: Evolution de la matière organique lors d'une filtration continue

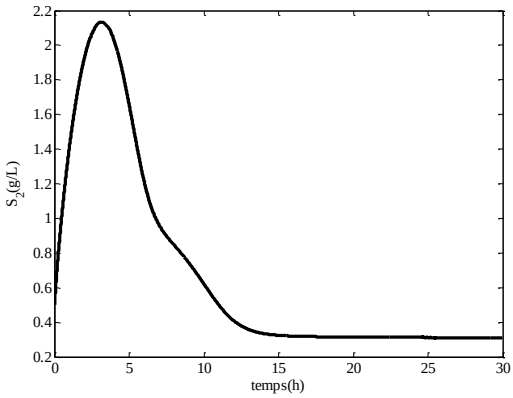



Figure IV. 5: Evolution des AGV lors d'une filtration continue

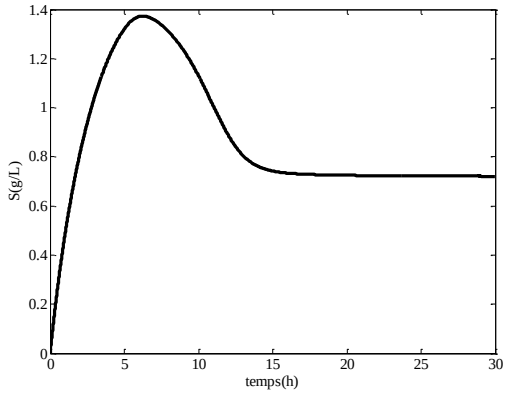



Figure IV. 6: Evolution des PMS lors d'une filtration continue

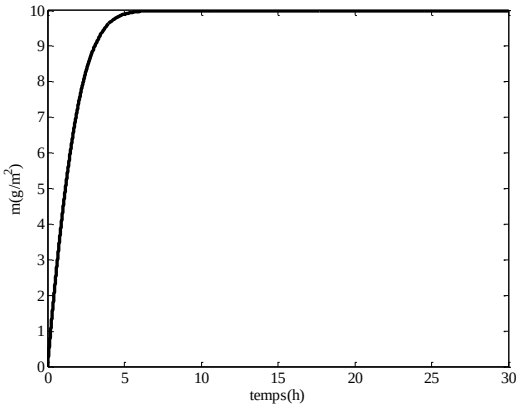



Figure IV. 7: Evolution de la masse du dépôt à la surface de la membrane lors d'une filtration continue

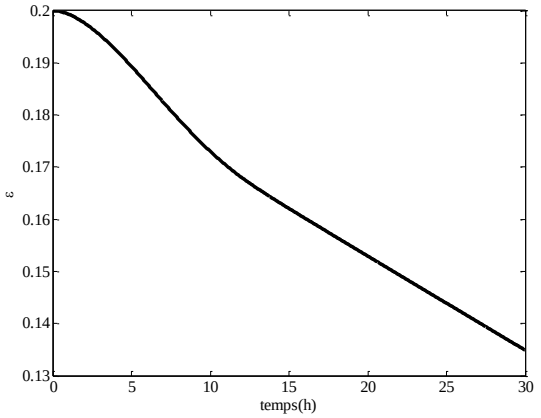



Figure IV. 8: Evolution de la porosité du dépôt lors d'une filtration continue

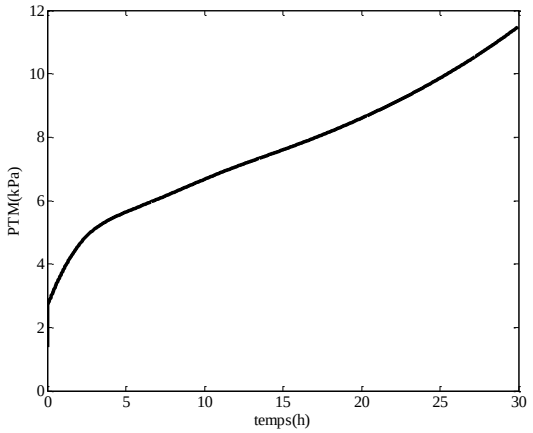



Figure IV. 9: Evolution de la pression trans-membranaire lors d'une filtration continue

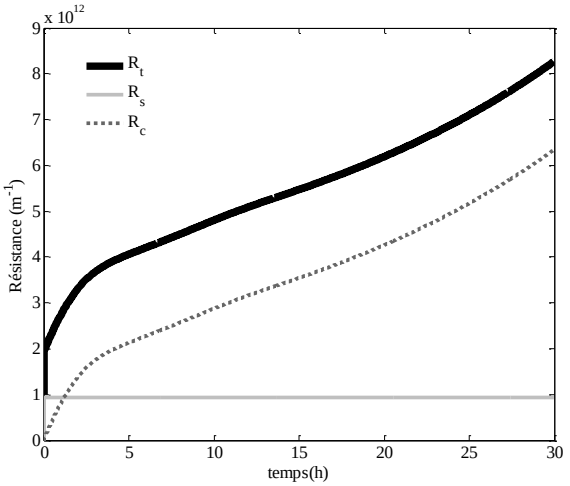



Figure IV. 10: Evolution des résistances des différents modes de colmatage lors d'une filtration continue

IV.2.1. Cas d'une filtration avec lavage périodique

Pour réaliser les simulations dans le cas d'un lavage périodique (relaxation et rétro-lavage), on a adopté les mêmes valeurs des paramètres du modèle dans le cas de la filtration continue. Les variables caractérisant le système biologique montrent une allure similaire au cas de la filtration continue (Figures IV.11-IV.15). L'effet du lavage est plus apparent pour les variables décrivant le colmatage de la membrane. En effet, la chute de la porosité atteint une valeur de 0,14 pour une filtration continue au bout de 30 h de filtration, alors qu'elle ne varie presque pas dans le cas d'un lavage périodique. De même la PTM atteint 11,5 kPa au bout de 30 h de filtration en continue alors qu'elle n'atteint que 6 kPa avec un lavage cyclique.

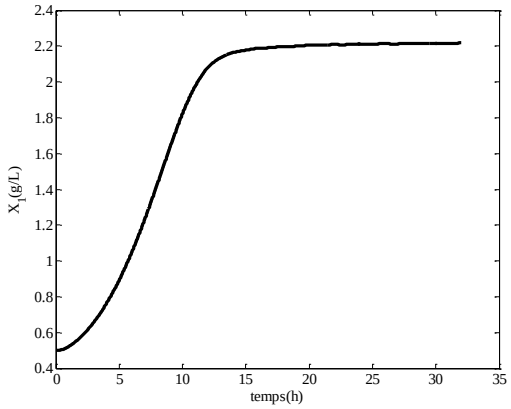



Figure IV. 11: Evolution des bactéries acidogènes lors d'un lavage cyclique

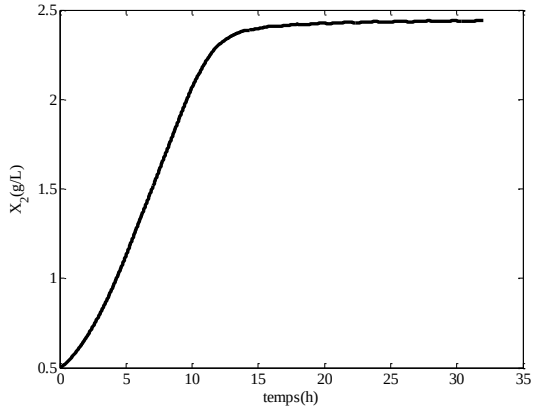



Figure IV. 12: Evolution des bactéries méthanogènes lors d'un lavage cyclique

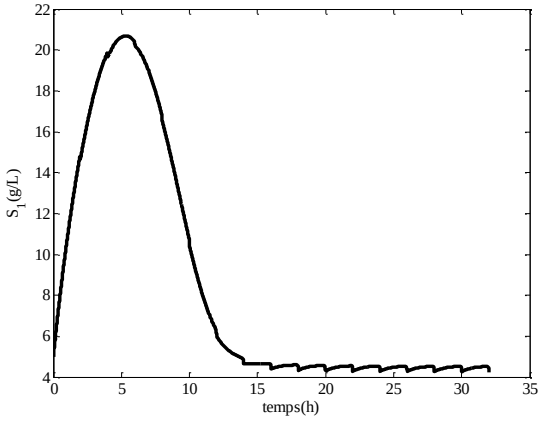



Figure IV. 13: Evolution de la matière organique lors d'un lavage cyclique

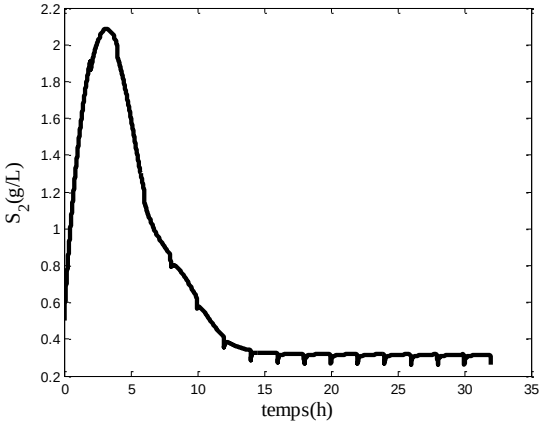



Figure IV. 14: Evolution des AGV lors d'un lavage cyclique

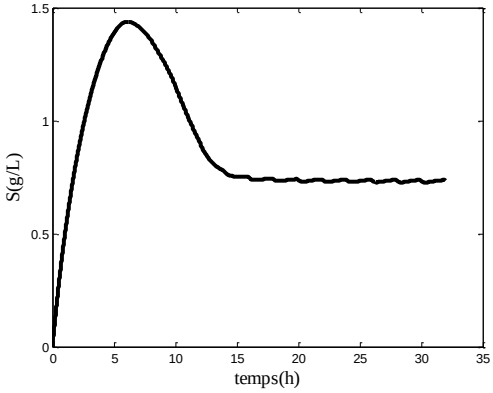



Figure IV. 15: Evolution des PMS lors d'un lavage cyclique

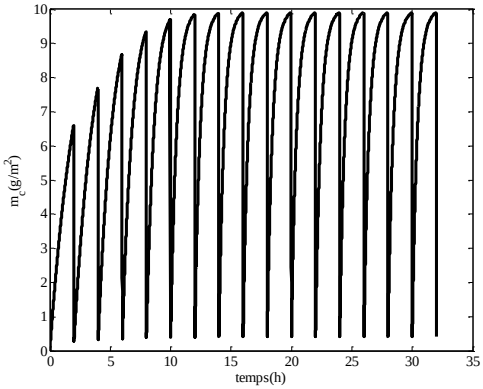



Figure IV. 16: Evolution de la masse du dépôt lors d'un lavage cyclique

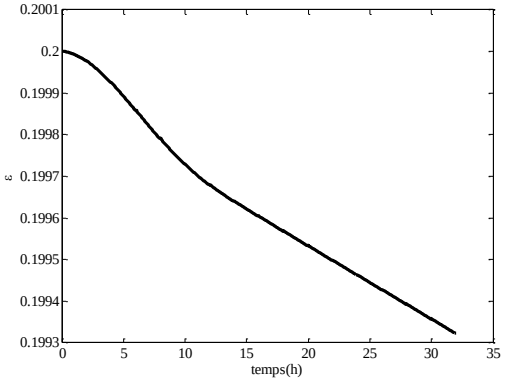



Figure IV. 17: Evolution de la porosité du dépôt lors d'un lavage cyclique

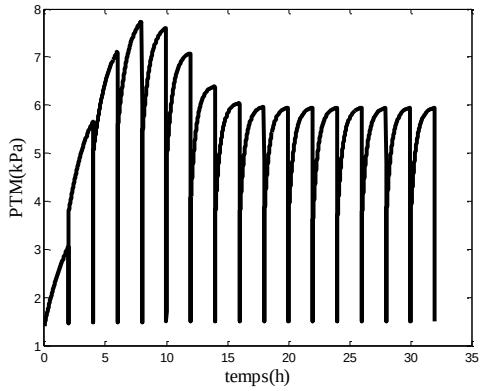



Figure IV. 18: Evolution de la pression transmembranaire lors d'un lavage cyclique

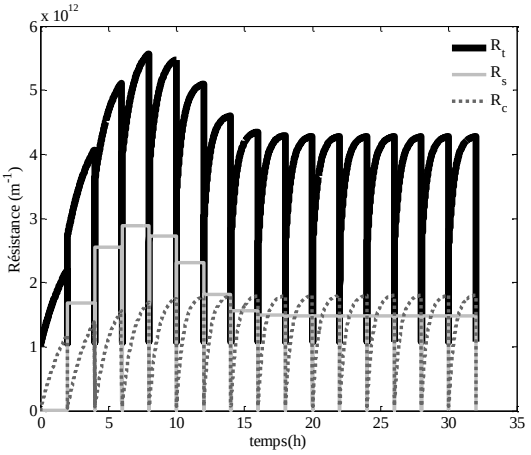



Figure IV. 19: Evolution de la résistance des différents colmatages

Conclusion

Un modèle qui intègre les paramètres du système biologique anaérobie et celles du système de filtration a été proposé dans ce chapitre. Les données de simulations montrent une description qualitative satisfaisante de la variation des paramètres étudiés. Un ajustement de ce modèle sur des données expérimentales est nécessaire pour sa validation et pour l'identification des différents paramètres.

# Conclusion générale

Le colmatage reste l'inconvénient majeur qui handicape l'expansion des procédés membranaires. Alors que cette technologie présente de nombreux atouts, il s'avère nécessaire de contrôler ce phénomène. Un outil d'optimisation et de contrôle en ligne des paramètres opératoires influençant le colmatage serait une solution intéressante pour améliorer la performance des procédés membranaires.

Jusqu'à aujourd'hui plusieurs modèles mathématiques ont été proposés pour quantifier le colmatage. Les modèles les plus simples se limitent au mode de filtration frontale peu utilisée à l'échelle industrielle ou bien à la description des mécanismes de colmatage individuels assez éloignés de la réalité. Les modèles adaptés au mode tangentiel tenant compte de l'effet du cisaillement ou supposant des mécanismes simultanés intègrent un grand nombre de paramètres limitant leur applicabilité pour contrôler et optimiser les conditions opératoires de ces procédés.

Il était donc important de proposer un outil simple permettant de suivre la dynamique du colmatage dans un procédé membranaire fonctionnant en mode tangentiel et d'identifier les différents mécanismes responsables du colmatage en vu d'optimiser les conditions de filtration et la procédure de régénération de la membrane.

Dans cette thèse nous avons commencé par l'identification du mode de colmatage responsable de la dégradation de la perméabilité de la membrane dans un BRMAn. Cette étude a révélé le colmatage par formation de gâteau comme mécanisme majeur responsable du colmatage.

En se basant sur les résultats de l'identification du mode de colmatage, nous avons proposé un premier modèle simple à deux paramètres, adapté au mode tangentiel, supposant les particules en suspension comme les seuls colmatants et la formation d'un gâteau comme le seul mécanisme de colmatage. Ce modèle permet de prédire la décroissance du flux de permeat à une PTM constante ainsi que la croissance de la PTM à un flux constant. Ajusté à des données de flux de permeat obtenues par filtration de digestats anaérobies, ce premier modèle montre une description qualitative satisfaisante des données expérimentales. Par contre l'efficacité d'ajustement

enregistré est limitée avec un coefficient de détermination $R^2$ de 80%. Décrivant une filtration en continue (sans lavage), ce modèle se limite à des manipulations de courte durée.

Dans une seconde partie, nous avons donc proposé d'améliorer ce modèle afin de pouvoir prédire l'évolution de la PTM à flux constant, à long terme, aussi bien pour une filtration en continue qu'avec des phases de lavage périodique. Ainsi un deuxième modèle à trois paramètres a été développé. Il complète le premier en considérant trois phases de colmatage : un premier dépôt dense formé principalement des PMS s'installe sur la surface de la membrane entraînant un blocage des pores, suivi de la formation d'un gâteau qui met en jeu la matière en suspension et les PMS, suivi d'une troisième phase caractérisée par la décroissance de la porosité du gâteau due à la rétention des PMS dans les pores du dépôt. En outre, ce deuxième modèle tient compte des cycles de rétro-lavage et de relaxation pour la régénération de la membrane. Comparé à des données de pression transmembranaire mesurées sur un BRM immergé aérobie fonctionnant en mode continu et en mode cyclique avec des lavages périodiques, ce modèle révèle une description satisfaisante qualitative et quantitative des données expérimentales avec un $R^2$ supérieur à 90%.

Les deux modèles proposés s'avèrent utiles pour l'optimisation des paramètres de fonctionnement d'un BRM. En effet le premier modèle, avec seulement deux paramètres à déterminer, serait pratique pour des opérations de contrôle. Il permet de quantifier et de caractériser le dépôt formé en mode tangentiel en déterminant sa résistance spécifique. Ce modèle permet également de quantifier l'intensité du cisaillement au voisinage de la surface de la membrane lors d'une filtration tangentielle. Le deuxième modèle, permet de quantifier le colmatage lors d'un fonctionnement à long terme d'un BRM aussi bien lors d'une filtration continue qu'avec lavage périodique de la membrane. Ce modèle met en évidence l'effet des MES ainsi que les PMS sur la formation du dépôt responsable du colmatage et permet de quantifier l'effet de la relaxation et du rétro-lavage sur la régénération de la membrane selon l'intensité d'aération et le temps de lavage.

Etant donné la rareté des modèles de colmatage adaptés aux BRMAn, un troisième modèle est proposé dans cette thèse. Le développement de ce modèle est basé sur l'approche du couplage d'un modèle simple décrivant la dynamique du système biologique au modèle de colmatage à trois paramètres développé également dans le cadre de cette thèse. En couplant deux modèles

simples, on entend proposer un modèle de complexité limitée qui servira d'outil pratique pour contrôler les procédés des BRMAn. Révélant des simulations qualitativement satisfaisantes, une étude de validation de ce modèle devrait être menée dans l'avenir.

Les MES et les PMS sont considérés comme les principaux responsables du colmatage aussi bien dans le BRM aérobie que dans le BRM anaérobie. Ceci dit une étude de validation du deuxième modèle avec des données prélevées sur un BRM anaérobie serait judicieuse.

Trouver une relation entre le paramètre de cisaillement $\beta$ et certains paramètres physiques mesurables tels que le nombre de Reynolds ou le taux de cisaillement permettra de mieux identifier et contrôler ce paramètre. De même, trouver une relation entre les paramètres mis en jeu lors du rétro-lavage ($\eta_1$, $\eta_2$ et $\eta_3$) et le débit de l'aération où l'injection du biogaz dans le cas anaérobie, serait d'un grand intérêt pour mieux contrôler la régénération de la membrane.

Les modèles proposés dans cette thèse décrivent le macro-colmatage dû à la formation du gâteau et le micro-colmatage dû à la formation du biofilm. Cependant, le nano-colmatage dû à l'adsorption de la matière soluble à l'intérieur des pores de la membrane n'est pas étudié. Bien que considéré comme la moins importante, il serait intéressant d'intégrer cette échelle de colmatage dans un nouveau modèle qui complètera le second modèle proposé.

Une perspective importante de ce travail consiste à proposer un outil qui reste simple pour permettre une compréhension et une exploitation aisées par un personnel d'exploitation.

# Références

Abdelrasoul, A., Doan, H., Lohi, A. (2013) A mechanistic model for ultrafiltration membrane fouling by latex. Journal of Membrane Science 433, 88-99.

APHA, WEF, AWWA (1998) Standard methods for the examination of water and wastewater. In: Clesceri, L. S, Greenberg, A. E., Eaton, A. D. (Eds.), 20th ed. American Public Health Association, Washington, DC.

Araujo Pimentel, G., A. Vande Wouwer, A. Rapaport, J. Harmand (2013) Modeling of submerged membrane bioreactors with a view to control, IWA ICA2013, September 18-20, Narbonne, France."

Bastin, G., Dochain, D. (1990). On-line estimation and adaptive control of bioreactors. Elsevier, 1990.

Bhattacharjee, S., Bhattacharya, P.K. (1992) Flux decline behaviour with low molecular weight solutes during ultrafiltration in an unstirred batch cell, Journal of Membrane Science 72, 149-161.

Beaubien, A., Bâty, M., Jeannot, F., Francoeur, E., Manem, J. (1996) Design and operation of anaerobic membrane bioreactors: development of a filtration testing strategy. Journal of Membrane Science 109, 173-184.

Benyahia, B., Sari, T., Cherki, B., Harmand, J. (2013) Anaerobic membrane bioreactor modeling in the presence of soluble microbial products (SMP)-the anaerobic model AM2b. Chemical Engineering Journal 228, 1011-1022.

Bernard, O., Hadj-Sadok, Z., Dochain, D., Genovesi, A., Steyer, J. P. (2001) Dynamical model development and parameter identification for an anaerobic wastewater treatment process. Biotechnology and Bioengineering 75, 424-438.

Bérubé, P. R., Lei, E. (2006) The effect of hydrodynamic conditions and system configurations on the permeate flux in a submerged hollow fiber membrane system. Journal of Membrane Science 271, 29-37

Bolton, G. R., Boesch, A. W., Lazzara, M. J. (2006) The effects of flow rate on membrane capacity: Development and application of adsorptive membrane fouling models. Journal of Membrane Science 279, 625-634.

Bourgeous, K. N., Darby, J. L., Tchobanoglous, G. (2001) Ultrafiltration of wastewater: effects of particles, mode of operation, and backwash effectiveness. Water research 35(1), 77-90

Bowen, W.R., Calvo, J.I., Hermindez, A. (1995) Steps of membrane blocking in flux decline during protein microfiltration. Journal of Membrane Science 101, 153-165.

Bugge. T. V., Jørgensen, M. K., Christensen, M. L., Keiding, K. (2012) Modeling cake buildup under TMP-step filtration in a membrane bioreactor: cake compressibility is significant. Water Research, 4330-4338.

Caric, M. D., Milanovic, S. D., Krstic, D. M., Tekic, M. N. (2000) Fouling of inorganic membranes by adsorption of whey proteins. Journal of membrane science 165, 83-88.

Charfi, A., Ben Amar, N., Harmand, J. (2012) Analysis of fouling mechanisms in anaerobic membrane bioreactors. Water Research 46, 2637-2650.

Charfi, A., Harmand, J., Ben Amar, N., Grasmick, A., Heran, M. (2014) Deposit membrane fouling: influence of specific cake layer resistance and tangential shear stresses. Water Science and Technology 70 (1), 40-46.

Charfi, A., Yang, Y., Harmand, J., Ben Amar, N., Heran, M., Grasmick, A. (2015) Soluble Microbial Products and Suspended Solids influence in membrane fouling dynamics and interest of punctual relaxation and/or backwashing. Journal of Membrane Science 475, 156-166.

Choi, S. W., Yoon, J. Y, Haam, S., Jung, J. K., Kim, J. H., Kim, W. S. (2000) Modeling of the Permeate Flux during Microfiltration of BSA-Adsorbed Microspheres in a Stirred Cell. Journal of Colloid and Interface Science 228, 270–278

Choo, K. H, Lee, C. H. (1996) membrane fouling mechanisms in the membrane coupled anaerobic bioreactor. Water Research 30 (8), 1771-1780.

Choo, K. H., Lee, C. H. (1998) Hydrodynamic behavior of anaerobic biosolids crossflow filtration in the membrane anaerobic bioreactor, Water Research 32(11), 3387-3397.

Choo, K. H.; Kang, I. J.; Yoon, S. H.; Park, H.; Kim, J. H.; Adlya, S.; Lee, C. H. (2000) Approaches to Membrane Fouling Control in Anaerobic Membrane Bioreactors. Water Sci. Technol., 41 (10–11), 363.

De Bruijn, J.P.F., Salazar, F.N., Boroquez, R. (2005) Membrane blocking in ultrafiltration-a new approach to fouling, Trans. IChemE C, Food Bioprod. Process. 83, 211–219.

Elmaleh, S., Abdelmoumni, L. (1997) Cross-flow filtration of an anaerobic methanogenic suspension. Journal of Membrane Science 131, 261-274.

Field, R. W., Wu, D., Howell, J. A., Gupta, B. B. (1995) Critical flux concept for microfiltration fouling. Journal of Membrane Science 100, 259-272.

Gao, D.W., Zhang, T., Tang, C. Y., Wu, W. M., Wong, C. Y., Lee, Y. H., Yeh, D. H., Criddle, C. S. (2010) Membrane fouling in an anaerobic membrane bioreactor: Differences in relative abundance of bacterial species in the membrane foulant layer and in suspension. Journal of Membrane Science 364, 331-338.

Gao, W. J., Lin, H. J., Leung, K. T., Schraft, H., Liao, B. Q. (2011) Structure of cake layer in a submerged anaerobic membrane bioreactor. Journal of Membrane Science 347, 110-120.

Gasmi, A. (2012) Intérêt d'un bioréacteur à membranes immergées pour le traitement de la pollution azotée dans une usée carencée en matière organique. phD thesis, Université Montpellier2.

Ghyoot, W. R., Verstraete, W. H. (1997) coupling membrane filtration to anaerobic primary sludge digestion. Environmental Technology 18, 569-580.

Ho, J., Sung, S. (2009) Effects of solid concentrations and cross-flow hydrodynamics on microfiltration of anaerobic sludge. Journal of Membrane Science 345, 142–147.

Ho, C. C., Zydney A. L. (2000) A Combined Pore Blockage and Cake Filtration Model for Protein Fouling during Microfiltration. Journal of Colloid and Interface Science 232, 389–399

He, Y., Xu, P., Li, C., Zhang, B. (2005) High-concentration food wastewater treatment by an anaerobic membrane bioreactor. Water Research 39, 4110-4118.

Heran, M., Aryal, R., Shon, H.K., Vigneswaran, S., Elmaleh, S., Grasmick, A. (2012) Determining Criteria to optimize HF SMBR control. Water Environment Research 84 (2), 115-119.

Hermia, J. (1982) Constant pressure blocking filtration laws-application to power law non-Newtonian fluids. Trans IChemE 60, 183-187.

Hong, H., Zhang, M., He, Y., Chen, J., Lin, H. (2014) Fouling mechanisms of gel layer in submerged membrane bioreactor. Bioresource Technology 166, 295-302.

Hughes, L. D., Field, R. W. (2006) Crossflow filtration of washed and unwashed yeast suspensions at constant shear under nominally sub-critical conditions, Journal of Membrane Science 280, 89-98.

Hu, A. Y., Stuckey, D. C. (2006) Treatment of dilute wastewaters using a novel submerged anaerobic membrane bioreactor. Journal of Environmental Engineering 132 (2) 190-198.

Jeison, D., Plugge, C.M., Pereira, A., Van Lier, J.B. (2009) Effects of the acidogenic biomass on the performance of an anaerobic membrane bioreactor for wastewater treatment. Bioresource Technology 100, 1951-1956

Jeison, D, Van Betuw, Van Lier, J. B. (2008) Feasibility of anaerobic membrane bioreactors for the treatment of wastewaters with particulate organic matter. Separation Science and Technology 43, 3417-3431.

Jeison D., Van Lier J. B. (2007) cake formation and consolidation : main factors governing the applicable flux in anaerobic submerged membrane bioreactors (AnSMBR) treating acidified wastewaters. Separation and Purification Technology 56, 71-78.

Jeison D., Van Lier J. B. (2006) Cake layer formation in anaerobic submerged membrane bioreactors (AnSMBR) for wastewater treatment. Journal of Membrane Science 284, 227-236.

Jiang, T., Kennedy, M.D., Guinzbourg, B.F., Vanrolleghem, P.A., Schippers, J.C. (2005) Optimising the operation of a MBR pilot plant by quantitative analysis of the membrane fouling mechanism. Water Science and Technology 51, 19–25.

Jørgensen, M. K., Bugge. T. V., Christensen, M. L., Keiding, K. (2012) Modeling approach to determine cake buildup and compression in a high-shear membrane bioreactor. Journal of Membrane Science 409-410, 335-345.

Kanai, M., Ferre, V., Wakahara, S., Yamamoto, T., Moro, M. (2010) **A novel combination of methane fermentation and MBR — Kubota Submerged Anaerobic Membrane Bioreactor process**. Desalination 250, 964-967.

Kang, I. J., Yoon, S. H., Lee, C. H. (2002) Comparison of the filtration characteristics of organic and inorganic membranes in a membrane-coupled anaerobic bioreactor. Water Research 36, 1803-1813.

Katsoufidou, K., Yiantsios, S.G., Karabelas, A.J. (2005) A study of ultrafiltration membrane fouling by humic acids and, flux recovery by backwashing: Experiments and modeling. Journal of Membrane Science 266, 40–50.

Kim, J. S., Lee, C. H., Chang, I. S. (2001) Effect of pump shear on the performance of a crossflow membrane bioreactor. Water research 35(9), 2137-2144.

Kocadagistana, E., Topcub, N. (2007) Treatment investigation of the Erzurum City municipal wastewaters with anaerobic membrane bioreactors. Desalination 216, 367-376.

Kuberkar, V. T., Davis, R. H. (2000) Modeling of fouling reduction by secondary membranes, Journal of Membrane Science 168, 243–258

Laspidou, C. S., Rittmann, B. E. (2002) A unified theory for extracellular polymeric substances, soluble microbial products, and active and inert biomass. Water Research 36, 2711-2720.

Lee, Y., Cho, J., Seo, Y., Jae, W. L., Ahn, K. H. (2002) Modeling of submerged membrane bioreactor process for wastewater treatment, Desalination 146, 451-457.

Lee, S.M., Jung, J.Y., Chung, Y.C. (2001) Novel method for enhancing permeate flux of submerged membrane system in two-phase anaerobic reactor. Water Research 35 (2), 471-477.

Liao, B. Q., Kraemer, J. T., Bagley, D. M. (2006) Anaerobic Membrane Bioreactors: Applications and Research Directions. Critical Rev. Environ. Sci. Technol. 36(6), 489-530.

Li, X. Y., Wang,X. M. (2006) Modelling of membrane fouling in a submerged membrane bioreactor. Journal of Membrane Science 278, 151–161

Li, H., Fane, A. G., Coster, H. G. L., Vigneswaran, S. (1998) Direct observation of particle deposition on the membrane surface during crossflow microfiltration, Journal of Membrane Science 149, 83-97.

Lin, H., Liao, B. Q., Chen, J., Gao, W., Wang, L., Wang, F., Lu, X. (2011) New insights into membrane fouling in a submerged anaerobic membrane bioreactor based on characterization of cake sludge and bulk sludge. Bioresource Technology 102, 2373-2379.

Lin, H.J., Xie, K., Mahendran, B., Bagley, D.M., Leung, K.T., Liss, S.N., Liao, B.Q. (2009) Sludge properties and their effects on membrane fouling in submerged anaerobic membrane bioreactors (SAnMBRs). Water Research 43, 3827-3837.

Langenhoff, A. A. M., Intrachandra, N., Stuckey, D. C. (2000) Treatment of dilute soluble and colloidal wastewater using an anaerobic baffled reactor : influence of hydraulic retention time. Water Research 34 (4) 1307-1317.

Le-Clech, P., Jefferson, B., Chang, I.S., Judd, S. (2003) Critical flux determination by the flux-step method in a submerged membrane bioreactor. J. Membr. Sci. 227, 81-93.

Liew Abdullah, A.G., Idris, A., Ahmadun, F.R., Baharin, B.S., Emby, F., Megat Mohd Noor, M.J., Nour, A.H. (2005) A kinetic study of a membrane anaerobic reactor (MAR) for treatment of sewage sludge. Desalination 183, 439-445.

Martinez-Sosa, D., Helmreich, B., Horn, H. (2012) Anaerobic submerged membrane bioreactor (AnSMBR) treating low-strength wastewater under psychrophilic temperature conditions. Process Biochemistry 47, 792-798.

Massé, A., Sperandio, M., Cabassud, C. (2006) Comparison of sludge characteristics and performance of a submerged membrane bioreactor and an activated sludge process at high solids retention time. Water Research 40, 2405-2415.

McCarthy, A. A., Walsh, P. K., Foley, G. (2002) Characterising the packing and dead-end filter cake compressibility of the polymorphic yeast Kluyveromyces marxianus var. marxianus NRRLy2415, Journal of Membrane Science 198, 87-94.

McMahon, K. D., Stroot, P. G., Mackie, R. I., Raskin, L. (2001) Anaerobic codigestion of municipal solid waste and biosolids under various mixing conditions-II: Microbial population dynamics. Water Research 35, 1817-1827.

Nghiem, L.D., Oschmann, N., Schäfer, A.I. (2006) Fouling in grey water recycling by direct ultrafiltration. Desalination 187, 283-290.

Nomura, T., Yoshihara, A., Nagao, T., Tokumoto, H., Konishi, Y. (2007) Effect of the surface characteristics of *Methanosarcina barkeri* on immobilization to support materials. Advanced Powder Technology 18(5), 489–501.

Ognier, S., Wisniewski, C., Grasmick, A. (2004) Membrane bioreactor fouling in sub-critical filtration conditions: a local critical flux concept. Journal of membrane Science 229, 171-177.

Padmasiri, S. I., Zhang, J., Fitch, M., Norddahl, B., Morgenroth, E., Raskin, L. (2007) Methanogenic population dynamics and performance of an anaerobic membrane bioreactor (AnMBR) treating swine manure under high shear conditions. Water Research 41, 134-144.

Pan, J. R., Su, Y. C., Huang, C., Lee, H. C. (2010) Effect of sludge characteristics on membrane fouling in membrane bioreactors, Journal of membrane Science 349, 287-294.

Robles, A., Ruano, M. V., Ribes, J., Seco, A., Ferrer, J. (2013) A filtration model applied to submerged anaerobic MBRs (SAnMBRs), Journal of membrane science, 444, 139-147.

Saddoud, A., Ellouze, M., Dhouib, A., Sayadi, S. (2007) Anaerobic membrane bioreactor treatment of domestic wastewater in Tunisia. Desalination 207, 205-215.

Saroj, D. P., Guglielmi, G., Chiarani, D., Andreottola, G. (2008) Subcritical fouling behavior modelling of membrane bioreactors for municipal wastewater treatment: The prediction of the time to reach critical operating condition. Desalination 231, 175–181.

Song, L. (1998) Flux decline in cross-flow microfiltration and ultrafiltration: mechanisms and modeling of membrane fouling. Journal of membrane science 139, 183-200.

Tansel, B., Sager, J., Garland, J., Xu, S., Levine, L., Bisbee, P. (2006). Deposition of extracellular polymeric substances (EPS) and micro topographical changes on membrane surfaces during intermittent filtration conditions. Journal of Membrane Science 285, 225-231.

Trzcinski, A.P., Stuckey, D.C. (2009) Continuous treatment of the organic fraction of municipal solid waste in an anaerobic twostage membrane process with liquid recycle. Water Research 43, 2449-2462.

Trzcinski, A.P., Stuckey, D.C. (2010) Treatment of municipal solid waste leachate using a submerged anaerobic membrane bioreactor at mesophilic and psychrophilic temperatures: analysis of recalcitrants in the permeate using GC-MS. Water Research 44, 671-680.

Tsuneda, S., Aikawa, H., Hayashi, H., Yuasa, A., Hirata, A. (2003) Extracellular polymeric substances responsible for bacterial adhesion onto solid surface. FEMS Microbiology Letters 223 (2), 287-292.

Vela, M. C. V., Blanco, S. A., Garcia, J. L., Gozalvez-Zafrilla, J. M., Rodriguez, E. B. (2007) Modelling of flux decline in crossflow ultrafiltration of macromolecules : comparison between predicted and experimental results. Desalination 204, 328-334.

Vela, M. C. V., Blanco, S., A., Garcia, J. L., Rodriguez, E. B. (2008) Fouling dynamics modelling in the Ultrafiltyration of PEGs. Desalination 222, 451-456.

Visvanathan, C., Yang, B.S., Muttamara, S., Maythanukhraw, R. (1997) Application of air backflushing technique in membrane bioreactor. Water Science and Technology 36, 259–266.

Wu, J., He, C., Jiang, X., Zhang, M. (2011) Modeling of the submerged membrane bioreactor fouling by the combined pore constriction, pore blockage and cake formation mechanisms. Desalination 279, 127-134.

Waeger, F., Delhaye, T., Fuchs, W. (2010) The use of ceramic microfiltration and ultrafiltration membranes for particle removal from anaerobic digester effluents. Separation and Purification Technology 73, 271-278.

Wen, C., Huang, X., Qian, Yi (1999) Domestic wastewater treatment using an anaerobic bioreactor coupled with membrane filtration. Process Biochemistry 35, 335-340.

Ye, Y., Le Clech, P., Chen, V., Fane, A. G., Jefferson, B. (2005) Fouling mechanisms of alginate solutions as model extracellular polymeric substances. Desalination 175, 7-20.

Yoon, S. H; Kang, I. J.; Lee, C. H. (1999) Fouling of Inorganic Membrane and Flux Enhancement in Membrane-Coupled Anaerobic Bioreactor. Sep. Sci. Technol., 34, 709.

Zarragoitia-Gonzalez, A., Schetrite, S., Alliet, M., Jauregui-Haza, U., Albasi, C. (2008) Modelling of submerged membrane bioreactor: Conceptual study about link between activated slugde biokinetics, aeration and fouling process, Journal of membrane science 325, 612-624.

Zayen, A., Mnif, S., Aloui, F., Fki, F., Loukil, S., Bouaziz, M., Sayadi, S. (2010) Anaerobic membrane bioreactor for the treatment of leachates from Jebel Chakir discharge in Tunisia. Journal of Hazardous Materials 177, 918-923.

Zhang, J., Chua, H. C., Zhou, J., Fane, A. G. (2006) Foactors affecting the membrane performance in submerged membrane bioreactors. Journal of Membrane Science 248, 54-66.

Zhou, W., Wu, B., She, Q., Chi, L., Zhang, Z. (2009) Investigation of soluble microbial products in a full-scale UASB reactor running at low organic loading rate. Bioresource Technology 100, 3471–3476.

# ANNEXE

Calcul d'erreur

Afin de quantifier l'ajustement des modèles aux données expérimentales, nous avons déterminé le coefficient de détermination $R^2$ exprimé par l'équation (III.5).

$$R^2 = 1 - \frac{\Sigma(y_{exp} - y_{th})^2}{\Sigma(y_{exp} - y_{moy})^2} \quad \text{(III. 5)}$$

avec $y_{exp}$ les données expérimentales, $y_{th}$ les données théoriques déterminées par le modèle et $y_{moy}$ la moyenne des données expérimentales.