

Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse (INSA de Toulouse)

Cotutelle internationale avec :
Université Laval (Quebec)

Présentée et soutenue par :

Nicolas PHILIPPE

Le 13 février 2014

Titre :

Analyse statistique et modélisation multivariée de l'évolution long terme de la perméabilité dans un bioréacteur à membranes à échelle réelle

École doctorale et discipline ou spécialité :

ED MEGEP : Génie des procédés et de l'environnement

Unité de recherche :

Directeur(s) de Thèse :

Mathieu Spérandio, Professeur, LISBP-INSA toulouse
Peter Vanrolleghem, Professeur, Univ Laval, Quebec

Rapporteurs :

Alain Grasmick, Professeur Université II, Montpellier
Ingmar Nopens, Professeur, Université de Gent, Head of Biomath Group

Autre(s) membre(s) du jury :

Luis Sancho, Researcher - Environmental Engineering Dept., CEIT, San Sebastian
Claire Albasi, DR CNRS, LGC, Toulouse
Yvan Racault, DR, IRSTEA
Anne-Emmanuelle Stricker, IAE, IRSTEA
Bruno Barillon, Ingénieur de recherche, Suez Environnement.

Abstract

The membrane bioreactor (MBR) technology used for advanced domestic wastewater treatment consists of an activated sludge process, based on suspended bacterial growth for pollutant removal, followed by a membrane separation stage instead of conventional settling.

The MBR technology has become increasingly popular for full-scale applications since the beginning of the last decade due to its superior treatment efficiency, but it suffers from two main economic drawbacks. On the one hand, its energy consumption is still high, due to scouring of membranes by coarse air bubbles for mechanical fouling control. On the other hand, the process is more difficult to operate, especially due to membrane operation (chemical cleaning, operational parameter setting,...) and requires better trained operators. One of the main goals of research is to improve knowledge about membrane fouling in order to find methods to predict and slow down its evolution.

Modelling is a tool to develop, assess and numerically adjust theories on MBR behaviour, in order to perform process optimisation. The aim is to integrate the different process aspects into one equation system : filtration, biological and chemical processes, and energy consumption, using hydrodynamic and oxygen transfer models.

Even if there are many separate models (filtration models, biological models, aeration models), they are not fully compatible, nor adapted for fouling prediction. Furthermore the complexity of the described phenomena is often prohibitive and not adapted for their application in large scale and long term experiments.

This work presents a new statistical tool, designed and applied for the investigation of links between operational variables and fouling indicators. This approach, based on multivariate regressions, has been designed especially to study full-scale plants at a long term time scale. The selection of input variables remains flexible, because the data array available at full-scale and on large time-scale is more restricted than in laboratory scale studies. The model coefficients are determined for each considered filtration unit separately, because deterministic fouling laws seem to differ between plants, or even between membrane units.

The tool was applied on a full-scale MBR plant designed for 67000 person equivalent and equipped with hollow fiber membranes set up in four separate membrane tanks. The plant has been monitored for one year. Explanatory variables in this case are permeate flux, food to mass ratio, sludge retention time, iron dose, MLSS concentration and temperature. They were confronted with three fouling indicators : the daily permeability drift, the short term fouling rate within each flux step, and an indicator of hydraulic reversibility of fouling. The main conclusions are that the daily mean flux is the main contributor to long-term fouling, followed by temperature and sludge retention time. The MLSS concentration, even if positively correlated with the short-term fouling rate, is negatively correlated with the long-term fouling rate, suggesting that rapid and reversible particle deposition can build a protection against less reversible fouling.

Coefficients of this multivariate analysis were then used in a predictive model for long-term permeability evolution. Results show that it allows predicting the permeability trend for two months after a four-month calibration period. This kind of model could be used in further full-scale applications to anticipate fouling and make MBR operation easier.

Résumé

La technologie des bioréacteurs à membranes (BRMs) pour le traitement des eaux résiduaires urbaines combine le principe des boues activées, utilisant la capacité de cultures libres de bactéries à dégrader la pollution, à une séparation membranaire qui remplace la décantation.

En contrepartie de son excellente efficacité épuratoire qui a favorisé son développement à l'échelle industrielle depuis le début des années 2000, elle présente deux principaux freins économiques. Sa consommation énergétique est encore élevée, en particulier à cause de l'aération grosses bulles utilisée pour limiter le colmatage des membranes. De plus la conduite du procédé, en particulier la gestion des membranes (lavages, réglages des automatismes), est plus complexe et nécessite un personnel mieux formé. Un des enjeux de la recherche est de mieux comprendre le colmatage des membranes et de trouver des méthodes pour prédire et ralentir son évolution.

La modélisation est un moyen d'élaborer des théories sur le fonctionnement des installations, de les vérifier et de les ajuster pour ensuite les utiliser dans l'optimisation des BRM. Son objectif est d'intégrer dans un même système d'équations les différentes facettes du procédé : la filtration, les processus biologiques et chimiques en jeu dans la boue activée, et l'énergie qu'elles consomment, via des modèles hydrodynamiques et des modèles de transfert d'oxygène.

Si un grand nombre de modèles partiels (modèles de filtration, modèles biologiques, modèles d'aération...) existent, ils ne sont pas toujours adaptés pour se combiner. De plus leur complexité est souvent inadaptée à des études sur site réel et sur le long terme.

Durant la thèse, un outil statistique a été conçu et mis en application pour étudier les liens entre un jeu de variables opératoires et des indicateurs du colmatage des membranes. Cette approche basée sur des régressions multivariées a été spécialement conçue pour une étude sur des installations grande échelle et sur le long terme. Cela se traduit d'une part par une flexibilité sur la nature des variables prises en compte par la méthode car le panel des variables accessibles sur des installations grandeur réelle est plus restreint qu'en laboratoire. D'autre part la méthode est basée sur un apprentissage effectué sur chaque unité de filtration, sans a priori sur des lois physiques dont la validité semble varier suivant les modules membranaires.

La mise en application a été effectuée sur un BRM d'une capacité de 67000 équivalents habitants équipé de membranes fibres creuses installées dans quatre cellules séparées, et suivi pendant un an. Les variables explicatives utilisées ici sont le flux de perméat, l'âge de boue, la charge massique, la quantité de fer ajoutée, la concentration en MES des boues et la température du perméat. Elles ont été confrontées à trois indicateurs du colmatage : la dérive journalière de perméabilité, la vitesse de colmatage court terme interne à chaque palier de flux, et un indicateur de réversibilité par rétrolavage. Il en ressort que le flux moyen journalier est le principal contributeur des évolutions long terme de la perméabilité, suivi de la température et de l'âge de boue. La concentration en MES, bien que positivement corrélée au colmatage court terme, est en revanche inversement corrélée au colmatage long terme suggérant qu'un dépôt de particules rapide et réversible par rétrolavages protégerait la membrane contre un colmatage moins réversible.

Les coefficients de cette analyse multivariée ont ensuite été utilisés dans un modèle prédictif des évolutions long terme de la perméabilité. Les résultats permettent de prédire les tendances des évolutions de perméabilité sur deux mois après un apprentissage de quatre mois. Ils ouvrent la voie d'un outil d'anticipation utilisable sur le terrain, pour faciliter la conduite des installations.

Table des matières

Introduction Générale	1
I Revue bibliographique	5
I.1 La technologie des bioréacteurs à membranes	7
I.1.1 Les boues activées	7
I.1.2 Historique de BRMs	9
I.1.3 Avantages et inconvénients des BRMs	11
I.1.3.1 Avantages	11
I.1.3.2 Inconvénients	13
I.2 Enjeux de la recherche sur les BRMs	15
I.2.1 Consommation énergétique	15
I.2.1.1 Consommation totale des BRMs grandeur réelle	15
I.2.1.2 Répartition de la consommation énergétique	16
I.2.1.3 Leviers pour la diminution de la consommation énergétique	17
I.2.2 Production de boues	21
I.2.3 Traitement des micro-polluants	21
I.2.4 Durée de vie des membranes	22
I.3 Bibliographie : mécanismes du colmatage	25
I.3.1 Biblio : Colmatage VS Flux	26
I.3.1.1 Colmatage court-terme : notion de flux critique	26
I.3.1.2 Influence du flux sur le colmatage long-terme : notion de blocage des pores	29
I.3.2 Biblio : Colmatage VS Conditions opératoires	30
I.3.2.1 Influence des conditions opératoires sur les caractéristiques des boues	31
I.3.2.2 Influence des conditions opératoires sur les conditions hydrodynamiques au voisinage des membranes	47
I.3.2.3 Caractérisation du colmatage	48
I.3.2.4 Influence de la phase particulaire des boues sur le colmatage	50
I.3.2.5 Influence de la phase soluble et colloïdale sur le colmatage	54
I.3.2.6 Conclusion	59
I.4 Modélisation intégrée des BRMs dans la littérature	61
I.4.1 Aperçu des modèles de filtration et de leurs variables d'entrée	61
I.4.1.1 Généralités sur les modèles de filtration	62
I.4.1.2 Les principaux mécanismes du colmatage	65

I.4.1.3	Variables d'entrée des modèles de filtration	71
I.4.1.4	Conclusion sur les modèles de filtration	73
I.4.2	Aperçu des modèles biologiques	73
I.4.2.1	Modèles de boues activées classiques	74
I.4.2.2	Modèles ASM adaptés aux BRMs sans variables d'état supplémentaire	76
I.4.2.3	Modélisation de la production de PMS	77
I.4.3	Transferts d'oxygène et consommation énergétique	82
I.4.3.1	Transferts d'oxygène en eau claire	82
I.4.3.2	Transferts d'oxygène en boue	83
I.4.3.3	Modélisation de la consommation énergétique	86
I.4.4	Conclusion sur la compatibilité des modèles	87
I.4.5	Modèles intégrés existants	87
I.4.6	Modélisation statistique du colmatage	91
I.5	Objectifs de la thèse	93
I.5.1	Objectifs à long terme	93
I.5.1.1	Diminution de la consommation énergétique des BRMs	93
I.5.1.2	Modélisation intégrée	94
I.5.2	Objectifs court-terme	95
I.5.2.1	Étude grandeur réelle	95
I.5.2.2	Modélisation statistique et prédiction du colmatage des membranes	95
II	Instrumentation et caractérisation du fonctionnement d'un BRM grandeur réelle	97
II.1	Présentation de la station	99
II.1.1	Choix de la station	99
II.1.2	Description du procédé	99
II.1.3	Performances du traitement	103
II.2	Mesures en ligne effectuées	105
II.2.1	Débits et flux d'entrée/sortie	105
II.2.2	Mesures dans les BA et les CM	106
II.2.3	Boues extraites	107
II.2.4	Quantité de Fer introduite	107
II.2.5	Données de la supervision	107
II.2.6	Mesures de transferts d' O_2	108
II.3	Correction et validation des données	111
II.3.1	Analyses	111
II.3.2	Comparaisons entre données capteurs et analyses	112
II.3.2.1	Calage des sondes SCAN DCO et NH_4^+ en entrée	112
II.3.2.2	Calage des sondes DCO et NO_3^- dans le perméat	113
II.3.2.3	Calage des sondes MES et O_2 dans les boues	113
II.3.3	Bilans 24h	115

II.3.3.1	Bilans hydrauliques	115
II.3.3.2	Validation des flux DCO et azote entrant	116
II.3.3.3	Validation de la production de boues	117
II.4	Calcul des variables de fonctionnement	119
II.4.1	Calcul de la charge massique et de l'âge de boue dynamique	119
II.4.1.1	Charge massique	119
II.4.1.2	Âge de boue	120
II.4.2	Protocole initial	121
II.4.3	Contraintes techniques, modification du plan d'expérience	122
II.4.4	Conditions réelles de fonctionnement	122
III	Caractérisation, analyse statistique et modélisation du colmatage dans le BRM suivi	125
III.1	Détermination et suivi des indicateurs du colmatage	129
III.1.1	Fonctionnement de la filtration du BRM	129
III.1.1.1	Automate de gestion du flux	129
III.1.1.2	Variations caractéristiques du flux et de la PTM	130
III.1.1.3	Perméabilité calculée par l'exploitant	132
III.1.2	Corrections de la perméabilité et automatisation du calcul	132
III.1.2.1	Corrections de la perméabilité	132
III.1.2.2	Impact des corrections sur la perméabilité calculée	138
III.1.2.3	Comparaison avec les valeurs de la littérature	139
III.1.2.4	Détection des paliers de flux	141
III.1.2.5	Cycles journaliers de perméabilité	143
III.1.3	Calcul des indicateurs du colmatage	143
III.1.3.1	Vitesse de colmatage instantanée (iPE)	143
III.1.3.2	Dérive journalière de perméabilité (dPE)	145
III.1.3.3	Indicateur de l'impact des rétrolavages (iBW)	145
III.1.3.4	Indicateur de l'impact des lavage de maintenance	147
III.2	Approches statistiques et outils utilisés	151
III.2.1	Différentes approches statistiques	152
III.2.2	ACP : Analyse en Composantes Principales	153
III.2.3	Régression multivariée et PLSR	154
III.2.4	Préparation des données	155
III.2.5	Modélisation des évolutions long terme du colmatage	155
III.3	Corrélations entre variables opératoires et colmatage	157
III.3.1	Corrélations entre les variables d'entrée	157
III.3.2	Analyse univariée	160
III.3.2.1	Relations entre variables opératoires et indicateurs du colmatage	160
III.3.2.2	Influence du flux sur le colmatage	163
III.3.3	Analyse multivariée	167

III.3.3.1 Relations entre conditions opératoires et indicateur long terme	167
III.3.3.2 Relations entre conditions opératoires et indicateurs court terme	168
III.3.4 Conclusions et discussion	169
III.3.4.1 Apports de la méthode multivariée par rapport à l'étude univariée	169
III.3.4.2 Conclusion sur les effets des variables opératoires sur le colmatage	170
III.4 Modélisation de la perméabilité	173
III.4.1 Introduction	173
III.4.2 Prédiction de dPE grâce aux indicateurs court terme	174
III.4.3 Prédiction de dPE grâce aux variables opératoires	176
III.4.3.1 Influence de la durée du calage	176
III.4.3.2 Prédiction avant le lavage de régénération avec une durée de calage supérieure à 200 jours	178
III.4.3.3 Prédiction après le lavage de régénération	178
III.4.4 Discussion	179
III.4.4.1 Prédiction de la perméabilité	179
III.4.4.2 Perspectives d'utilisation d'une telle méthode statistique	180
Conclusion générale	183
Bibliographie	190
ANNEXES	209
A Protocole expérimental pour déceler la présence d'une activité biologique déphosphatante	209
B Résultats de mesure d'activité déphosphatante : deux exemples	215
C Application sur un autre BRM	219
D Quelques résultats d'analyses des PMS dans le BRM étudié	233

Liste des tableaux

I.2.1	Différents types de lavages	19
I.3.1	Valeurs du flux critique reportées dans la littérature	28
I.3.2	Influence des MES sur le colmatage dans la littérature	52
I.3.3	Influence de la nature des PMS sur le colmatage	56
I.3.4	Influence de la nature de PMS sur le colmatage	57
I.4.1	Principaux modèles de filtration de la littérature (R_M est la résistance intrinsèque de la membrane, R_g est la résistance du gâteau, R_{gD} est la résistance du gâteau réversible hydrauliquement, R_{gS} est la résistance du gâteau non réversible hydrauliquement, R_B est la résistance du biofilm, R_F est la résistance du colmatage interne, R_{irr} est le colmatage irréversible (vieillessement))	66
I.4.2	Modèles ASM adaptés à la production et dégradation de PMS	80
I.4.3	Modèles intégrés de la littérature	89
II.1.1	Principales caractéristiques de fonctionnement du BRM étudié. Les valeurs fournies sont des moyennes ou des plages de variations sur la période du suivi (janvier-août 2011)	102
II.1.2	Flux de phosphore et quantités de fer ajoutées (année 2011 entière)	103
II.2.1	Sondes installées par l'Irstea sur le BRM	106
III.1.1	Différentes relations de la littérature pour décrire la dépendance de la viscosité de l'eau à la température	133
III.1.2	Paramètres intermédiaires du calcul des pertes de charge	134
III.1.3	Valeurs de perméabilité dans la littérature avec des membrane Zenon Zeeweed	140
III.1.4	Caractéristiques de la base de données obtenue sur les paliers de filtration	142
III.3.1	Matrice des corrélations de Spearman entre les variables opératoires	159
III.4.1	Paramètres de la régression bivariée entre dPE et (iPE,iBW)	175

Table des figures

I.1.1	Schéma simplifié des processus en jeu dans le traitement par boues activées	8
I.1.2	Membranes tubulaires (à gauche), membranes planes (au centre), et fibres creuses (à droite). En haut : vue d'ensemble d'un module, et en bas : vue rapprochée des membranes	9
I.1.3	Différentes configurations : (i) membranes en boucle externe, (ii) membranes immergées dans un bassin biologique et (iii) membranes immergées dans un bassin séparé	11
I.1.4	Types de filtration et espèces retenues (source : Office international de l'eau)	12
I.2.1	Consommation spécifique des BRMs dans la littérature (non exhaustif), et part de l'aération fines bulles et grosses bulles, rapportées au volume de perméat produit, (Gil et al., 2010; Delrue, 2008; Fenu et al., 2010; Van Bentem et al., 2010; Brepols et al., 2010)	16
I.3.1	Schéma de la filtration en BRM	26
I.3.2	Exemple d'expériences de paliers de flux successifs pour la mise en évidence du flux critique. A gauche : Le-Clech et al. (2006) ; à droite : De la Torre et al. (2010)	27
I.3.3	Facteurs influençant le flux critique	27
I.3.4	Différence dans le flux critique des différents types de membranes (Guglielmi et al., 2007)	29
I.3.5	Influence de la vitesse transversale du fluide sur le flux critique selon (Verrecht et al., 2008)	30
I.3.6	Schéma des interactions globales entre conditions opératoires et colmatage des membranes	30
I.3.7	Représentation des différents thèmes abordés dans l'étude de l'influence des conditions opératoires sur les caractéristiques des boues	32
I.3.8	Différents moyens d'obtenir et de caractériser les fractions particulaires et solubles des exopolymères	34
I.3.9	Influence de l'âge de boue sur les concentrations en EPS (protéines et polysaccharides)	36
I.3.10	Influence des variables opératoires sur la taille et la structure des floes	38
I.3.11	Provenance et devenir des PMS dans les boues, les mots en gras correspondent aux principales tendances identifiées	41
I.3.12	Influence de l'âge de boue sur les concentrations en PMS (protéines, polysaccharides, et DCO du surnageant)	42
I.3.13	Taille de PMS dans quelques études. Ce schéma représente des tendances peu précises.	44
I.3.14	Filasses accumulées en haut d'un module de filtration, prises en photo au début d'un lavage de régénération	46
I.3.15	Résultats d'études de l'impact des MES sur la viscosité sur des installations grandeur réelle (Delrue et al., 2011; Reid et al., 2008)	47
I.3.16	Différents moyens de caractériser le colmatage des membranes	48
I.3.17	Influence des différentes phases sur les différents types de colmatage	49

I.3.18	Exemples d'images de microscopie des membranes. En haut à droite (Le-Clech et al., 2007), des vues en coupe d'une membrane et sa couche colmatante de polysaccharides. En bas à droite quatre images CLSM 3D de membranes colmatées par des boues de différents âges (Sweity et al., 2011). A gauche Ng et al. (2006) mettent en évidence un biofilm fissuré ($A_B = 3j$).	49
I.3.19	Influence des conditions opératoires sur le colmatage particulaire	51
I.3.20	Estimations de correspondance entre poids et taille moléculaire. Les valeurs de Logan (2011) sont données pour des polysaccharides, les autres pour les contenus organiques en général	55
I.4.1	Sous parties du procédé et différents liens qui font l'objet de modèles dans la littérature	62
I.4.2	Graphe représentant la relative absence de corrélation entre l'influence des caractéristiques des boues sur le colmatage et leur prise en compte dans les modèles de filtration	71
I.4.3	Notations harmonisées pour le fractionnement des boues activées selon Corominas et al. (2010)	75
I.4.4	Schéma de la représentation matricielle de Gujer d'un modèle ASM	75
I.4.5	Exemple de schématisation des processus de formation et dégradation des exopolymères (Janus and Ulanicki, 2010). Cette représentation reprend presque tous les procédés utilisés dans les autres modèles pour décrire ces substances.	77
I.4.6	Évolutions des modèles biologiques intégrant les PMS depuis les années 2000	78
I.4.7	paramètre α en fonction des MES dans la littérature (Henkel et al., 2011; Krampe and Krauth, 2003; Racault et al., 2011; Germain et al., 2007)	84
I.4.8	Paramètre α en fonction de A_B et des MVS (Henkel et al., 2011)	85
I.4.9	Principaux postes de consommation énergétique d'un BRM et leurs interactions	86
I.4.10	Avancées de la modélisation biologique, de la filtration et de l'aération	88
I.4.11	Influence des équilibres entre particules et colloïdes sur le colmatage (Guglielmi et al., 2007)	88
II.1.1	Schéma du BRM	100
II.1.2	Vue d'ensemble du BRM	101
II.2.1	Emplacement des sondes de l'équipe d'Irstea et de l'exploitant	105
II.3.1	Données de DCO issues des analyses d'échantillons moyens 24h (analyses Irstea et autosurveillance) et de la sonde S : :CAN (moyennes 24h). La valeur retenue est la courbe en vert.	113
II.3.2	Données de concentration et flux journalier en NH4 et NTK. La valeur retenue est la courbe en bleu ciel.	114
II.3.3	Données de concentration des MES, avec les valeurs avant et après calage	114
II.3.4	Principe du bilan de masse sur la DCO et l'azote (Racault et al., 2011)	116
II.3.5	Différents moyens de calculer la production de boue, et corrections qui en découlent	118
II.4.1	Protocole du suivi de la station d'épuration suivie initialement prévu.	121
II.4.2	Evolution de l'âge de boue (dynamique) et des MES dans la station d'épuration.	123
II.4.3	Protocole du suivi de la station d'épuration effectif.	123

III.1.1	Automate de gestion du flux dans chaque bassin membranaire. Comme le volume de la filière est voulu constant, le calcul est basé sur le flux d'entrée, divisé par 4 car il est réparti sur les 4 CM, puis auquel on applique un facteur k pour réguler le niveau de boue, ce qui donne le débit de perméat. La même consigne est multipliée par 5 pour atteindre le taux de recirculation voulue.	130
III.1.2	Variations caractéristiques du flux et de la PTM en période de forte (gauche) et faible (droite) charge hydraulique	131
III.1.3	Corrélation entre le flux et la PTM. La PTM à l'origine de la droite de perméabilité est la PTM_0 (cf III.1.2.1.3)	131
III.1.4	Variations de la viscosité en fonction de la température entre 0 et 25 degrés	133
III.1.5	PTM non nulle à flux nul	137
III.1.6	Evolutions de la PTM_0 pendant le suivi.	137
III.1.7	À gauche ($PTM_0 > 0$), la correction de la perméabilité donne le bon résultat, à droite ($PTM_0 < 0$) elle multiplie l'erreur par deux	138
III.1.8	Perméabilité corrigée en température (gauche), avec correction de la PTM_0 (milieu), avec correction des pertes de charge (droite)	139
III.1.9	Perméabilité calculée par l'exploitant (pointillés) et perméabilité après les corrections supplémentaires (lignes pleines). Les valeurs obtenues à la fin du suivi pour la CM4, que ce soit par les calculs de l'exploitant ou les nôtres sont aberrantes en raison d'un dysfonctionnement du capteur de pression.	140
III.1.10	Observation des cycles journaliers de perméabilité et comparaison avec les cycles journaliers de flux. Les boîtes à moustaches sont obtenues à partir des données collectées sur chaque palier de filtration. L'abscisse est donnée en heure depuis minuit.	144
III.1.11	Evolutions de la vitesse de colmatage instantanée (boîtes à moustaches) et de la perméabilité (ligne) sur les quatre bassins membranaires	145
III.1.12	Vitesse de colmatage journalière (dPE) pendant le suivi (pointillés), confrontés aux valeurs de perméabilité (lignes pleines) dans les quatre CMs	146
III.1.13	Évolutions de l'indicateur de réversibilité par rétrolavages (boîtes à moustaches) et de la perméabilité (ligne) sur les quatre cellules membranaires	148
III.1.14	Impact des lavages de maintenance. Chaque flèche représente un lavage de maintenance, et sa longueur équivaut à 8 fois la différence entre la perméabilité moyenne des 24h après et avant le lavage.	149
III.2.1	Schéma des différentes approches statistiques utilisées	152
III.3.1	Variations des variables opératoires pendant le suivi du BRM. Les deux arrêts de la filtration sur la CM2 sont dûs à des pannes du surpresseur d'aération grosses bulles de la CM2.	158
III.3.2	Projection des variables d'entrée sur les deux premières composantes de l'ACP (CM1). 64% de la variance globale sont représentés par les deux premières composantes.	160
III.3.3	Coefficients de corrélation de Spearman entre dPE (en haut à gauche), iPE (en haut à droite), iBW (en bas à gauche) et iLM (en bas à droite) et les autres variables (indicateurs du colmatage et variables opératoires)	161
III.3.4	Vitesse de colmatage instantanée en fonction du flux sur tous les paliers éligibles	164
III.3.5	Dérive journalière de perméabilité en fonction du flux moyen journalier.	166

III.3.6	Coefficients de la régression multivariée entre les variables opératoires normalisées et centrées et dPE. Pour chaque variable, les quatre barres représentent les coefficients des modèles liés aux quatre CM.	167
III.3.7	Coefficients de la régression multivariée entre les variables opératoires normalisées et centrées et iPE (indicateur de colmatage instantané)	168
III.3.8	Coefficients normalisés de la régression multivariée entre les variables opératoires et iBW (indicateur d'efficacité des rétrolavages)	169
III.4.1	Les trois approches envisagées pour modéliser la perméabilité. Seules la deuxième et la troisième sont présentées dans ce manuscrit.	174
III.4.2	Perméabilité prédite par régression bivariée entre le couple (iBW , iPE) et dPE . Les pointillés verticaux représentent la réinitialisation du modèle le jour des lavages de régénération	175
III.4.3	Perméabilité donnée par le modèle et perméabilité mesurée. La durée de la période de calage utilisée est comprise entre 130 et 230 jours. Chaque colonne de la figure représente une cellule membranaire.	177
III.4.4	Erreur sur la perméabilité prédite au terme d'une validation de 60 jours à partir du 1 ^{er} septembre en fonction de la durée de la période de calage du modèle.	178

Introduction générale

L'augmentation du niveau de vie de la population mondiale est fortement corrélée à une augmentation de la consommation d'eau, et par voie de conséquence, à une augmentation des rejets d'eau usée dans les milieux naturels. Une partie de cette consommation est due à l'amélioration des conditions d'hygiène (évacuation des excréments, et douches fréquentes), une autre à l'augmentation de la consommation liée à la production de biens (agriculture, industrie). Cela conduit à une diminution de la quantité et de la qualité de nos ressources en eau propre à la consommation.

Pour faire face à ces enjeux, des normes en vigueur et à venir mises en place de par le monde visent à surveiller et à encadrer la qualité de nos rejets. Alors qu'avant les années 2000, à l'échelle de l'Europe, ces normes visaient presque exclusivement les pollutions majeures (quantité globale de matière organique sous ses différentes formes azotée, carbonée et phosphorée), aujourd'hui certaines substances dites "prioritaires" ou "micro-polluants", du fait de leur effet toxique pour l'homme et l'environnement malgré leur faible concentration, deviennent concernées. Que ce soit sur les pollutions majeures ou les micro-polluants, les normes se durcissent du fait de la prise en compte dans les politiques publiques des travaux de recherche sur l'impact de la pollution sur l'environnement et la santé.

Devant ces défis, les procédés mis au point et utilisés pendant le XX^e siècle (principalement les boues activées séparées par décantation, mais aussi parfois le lagunage, ou une simple coagulation/floculation physico-chimique) commencent à atteindre leurs limites : le risque de rejets dans le milieu naturel jusqu'alors toléré l'est de moins en moins, et les normes sur les pourcentages d'abattement se durcissent. En 2008, la Commission européenne avait menacé la France de poursuites judiciaires, avec risque d'amendes à la clé, si elle ne se mettait pas "rapidement" en conformité. Bruxelles jugeait que certaines installations n'étaient pas adéquates dans 140 localités, dont la capitale, Paris. Cela souligne les besoins de mise à niveau des installations.

La solution réside parfois dans l'élargissement de la capacité des installations existantes, ou dans l'ajout d'une étape de traitement dite *tertiaire* (traitement UV, ultra ou nano-filtration de l'eau traitée...), mais souvent le besoin de procédés plus performants émerge. Parmi ces procédés, on peut citer les *biofiltres*, qui consistent en un passage lent des eaux usées dans un support granulaire recouvert d'un biofilm ; les *MBBR* (Moving Bed Biofilm Reactor), dans lesquels les eaux usées sont traitées dans un réacteur rempli de supports plastiques fluidisés et recouverts d'un biofilm ; et les bioréacteurs à membranes (BRMs) qui font l'objet de la

présente thèse.

Le procédé bioréacteur à membranes conserve le principe de fonctionnement des boues activées (culture libre dans des bassins d'aération séquentielle), mais le clarificateur secondaire est remplacé par une étape de filtration membranaire (souvent de l'ultrafiltration) pour séparer l'eau interstitielle des boues. Il combine plusieurs avantages, comme la compacité, mais surtout la performance et la fiabilité du traitement, qui ouvrent la possibilité d'une éventuelle réutilisation pour des usages non domestiques de l'eau traitée. Sa mise en œuvre à grande échelle depuis le début des années 2000 confirme son intérêt : même si seules 0.5% des eaux usées urbaines sont traitées par des BRMs en Europe à l'heure actuelle (ce qui représente néanmoins l'équivalent en eaux rejetées par 2 millions d'habitants), le procédé connaît une croissance d'environ 10% par an.

La contrepartie à l'utilisation des BRMs est leur coût. Jusqu'alors, le coût d'investissement d'un BRM était significativement supérieur à celui d'une boue activée classique, à cause du prix des membranes. En raison de l'utilisation de surfaces de membranes de plus en plus importantes, ce prix a substantiellement baissé, et le coût d'investissement des BRMs devient concurrentiel. En effet le procédé étant compact, les économies réalisées sur la partie génie civil compensent désormais le prix des membranes. Cependant, les prix d'exploitation de telles stations restent élevés, en raison de leur forte consommation énergétique en grande partie liée aux méthodes de limitation du colmatage et de lavage des membranes.

Pour maîtriser le colmatage des membranes à moindre coût, sa compréhension est nécessaire. De nombreux projets de recherche visent à identifier les composés des boues qui participent au colmatage ainsi que les processus qui influencent leurs concentrations. D'autres ciblent l'influence des conditions hydrodynamiques sur les mécanismes du colmatage. L'intégration de l'ensemble de ces aspects dans un même modèle est un des défis de la recherche sur les BRMs à ce jour. Un tel modèle, accompagné d'un outil de prédiction de la consommation énergétique des appareillages, permettrait d'optimiser chaque variable en tenant compte des différents types d'interactions entre les processus biologiques, physiques et chimiques en jeu. Si des résultats encourageants sont obtenus avec pour terrain expérimental des réacteurs de laboratoire (dont la taille varie entre 1l et quelques m^3), leur validation sur des BRMs grandeur réelle reste un sujet peu exploré, et avec un succès limité. Les difficultés inhérentes aux conditions réelles d'exploitation (manque de données fines, multiplicité des bassins, faible plage de variation des variables opératoires etc.) ne permettent pas de travaux de recherche aussi fins que sur des installations de laboratoire. Néanmoins, l'analyse détaillée d'installations grandeur réelle permet de valider (ou invalider) des idées issues d'expérimentations à petite échelle.

La présente thèse s'attache à mettre en évidence des liens existants entre les processus biologiques issus des conditions de fonctionnement des boues activées et le comportement de la filtration, cela en se basant sur des données issues d'une installation grandeur réelle.

La première partie de la thèse est une étude bibliographique relative au colmatage des membranes des BRMs et à la modélisation intégrée du procédé. La seconde partie présente le BRM grandeur réelle étudié pendant l'étude et la méthodologie du suivi. La troisième partie présente le traitement des données pour

caractériser le colmatage des membranes, et les résultats d'une étude statistique des liens entre les variables opératoires et le comportement de la filtration dans le cas de l'installation suivie. Ces liens sont ensuite utilisés dans un but de prédiction des évolutions sur le long terme de la perméabilité des membranes.

Première partie

Revue bibliographique

Chapitre I.1

La technologie des bioréacteurs à membranes

Ce chapitre introduit la technologie des bioréacteurs à membranes (BRM) par quelques rappels sur les boues activées (bioréacteurs), sur l'historique de l'introduction des membranes pour la séparation des boues, puis quelques éléments supplémentaires sur la filtration dans les bioréacteurs à membranes.

I.1.1 Les boues activées

Le traitement par boues activées exploite la capacité de bactéries à dégrader les matières organiques carbonées, azotées et phosphorées contenues dans les eaux résiduaires. Une population bactérienne dense est entretenue dans des bassins aérés pour favoriser leur contact avec les espèces chimiques à dégrader. Des processus biologiques dépendant de la quantité et du type de bactéries présentes, de l'oxygène disponible (sous la forme d'oxygène dissous ou sous forme combinée avec de l'azote comme les nitrates) et d'autres variables opératoires sont alors impliqués dans la dégradation des polluants. La figure 1.1.1 résume de façon très simplifiée les principaux processus biologiques en jeu. Deux types de bactéries sont représentés ici. D'une part, les bactéries *hétérotrophes* qui utilisent la matière organique pour leur croissance. Du grec *heteros* (autre) et *trophos* (nutrition), ce terme indique qu'elles produisent la matière organique qui les constitue (croissance) en se nourrissant d'une autre matière organique externe. D'autre part, les bactéries *autotrophes* (du grec *auto* : seul et *trophos*), produisent de la matière organique à partir de matière minérale. Ces bactéries autotrophes croissent à partir d'ammonium (NH_4^+) issu en grande partie de l'hydrolyse de l'urée (ayant lieu dans le réseau de collecte avant l'arrivée dans la station) et d'autres composés inorganiques comme les carbonates HCO_3^- (CO_2 dissous). Ces bactéries sont appelées *nitrifiantes*. L'oxygène nécessaire aux processus aérobies est fourni par des systèmes d'aération, qui sont dans la plupart des stations récentes des diffuseurs de fines bulles d'air. Quand l'oxygène dissous manque et seulement dans ce cas, les bactéries hétérotrophes utilisent les nitrates comme oxydant (dénitrification), ce qui implique un besoin de phases sans aération pour pouvoir éliminer les nitrates.

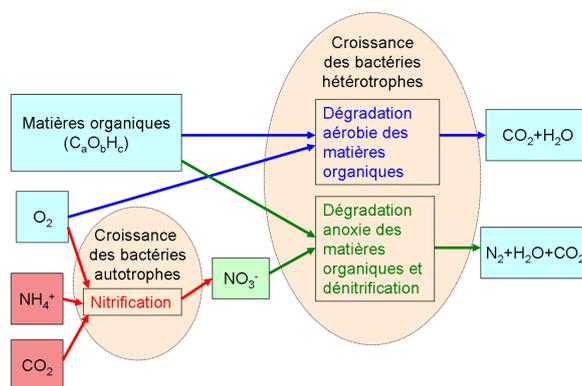


FIGURE I.1.1 – Schéma simplifié des processus en jeu dans le traitement par boues activées

On peut distinguer plusieurs éléments clés dans la gestion des boues activées. Le premier réside dans la gestion de l'aération, pour que les successions des phases de présence/absence d' O_2 permettent une dégradation optimale des matières organiques, du NH_4^+ et des nitrates suivant les objectifs fixés par les réglementations. Le second réside dans la gestion de la concentration en bactéries, qui se fait par extraction régulière d'une partie des boues. La concentration des boues doit être suffisamment élevée pour permettre une bonne assimilation des polluants par les bactéries, mais aussi suffisamment basse pour d'une part ne pas trop limiter les transferts d'oxygène, et d'autre part, permettre la décantation dans le cas d'un procédé à clarification secondaire. Il en résulte une régulation du temps moyen de séjour des particules, donc de la biomasse, appelé *âge de boue* (A_B).

Lors du fonctionnement normal du procédé, les bactéries s'agglomèrent sous forme de *flocs*, qui sont des amas ayant une taille de l'ordre du micromètre au millimètre. Pour former un floc cohérent, les bactéries produisent des polymères attachés à la surface et formant un gel. La taille des flocs, leur densité et leur cohérence sont influencés par les propriétés de ces molécules, et par le type de bactéries présentes. Par exemple, certaines conditions de fonctionnement favorisent le développement de bactéries filamenteuses. Ces bactéries modifient la structure du floc pour le rendre plus ouvert et moins dense. Les conditions de pH, de température, de quantité ou de qualité de nutriments disponibles, d'oxygène dissous, etc... ont toutes un rôle important dans la formation et la structure des flocs.

Dans la plupart des installations construites, les flocs sont séparés de l'eau interstitielle par décantation dans un clarificateur. Ce procédé (boues activées suivi de décantation) est appelé dans la présente thèse *boues activées classiques* (BAC). Un troisième point clé de la gestion des BAC est le maintien de conditions favorisant la formation de flocs (floculation) suffisamment denses pour décanter efficacement (et en particulier un développement limité des bactéries filamenteuses). Sans maîtriser ces conditions, l'exploitation s'expose à des risques de rejets de matières en suspension dans l'effluent, voire de lessivage des boues. De plus, des bactéries isolées, et certains composants des boues volumineux mais légers ne sont pas éliminés par la

décantation.

Cette contrainte est en partie supprimée dans le procédé qui fait l'objet de cette thèse : le BRM.

I.1.2 Historique de l'introduction de la filtration des boues dans le traitement des effluents domestiques

A la fin des années 60 la société anglaise Dorr-Oliver développa les premiers bioréacteurs équipés d'ultra-filtration (Smith et al., 1969) à la place de la décantation, pour le traitement d'eaux usées industrielles. Les débuts de l'application du procédé aux eaux usées domestiques du procédé ont eu lieu au Japon, dans les années 1970 et 1980. Les membranes utilisées étaient des membranes externes tubulaires (figure I.1.2, colonne de gauche). Ces membranes développent une surface faible par rapport au volume occupé, ce qui limite la surface disponible pour des installations de taille et de prix raisonnables. Cela conduit à de forts flux de filtration, souvent supérieurs à $100 L.m^{-2}.h^{-1}$ (LMH) (Gander et al., 2000). La vitesse tangentielle du fluide au voisinage de la membrane doit alors être élevée pour éviter le colmatage par dépôt de particules. L'énergie dépensée par les pompes de recirculation des modules membranaires par rapport au volume de perméat produit est donc élevée (Gander et al., 2000). De plus, le prix au mètre carré des membranes était très élevé, et de telles installations réalisées à grande échelle auraient eu un coût d'investissement prohibitif.



FIGURE I.1.2 – Membranes tubulaires (à gauche), membranes planes (au centre), et fibres creuses (à droite). En haut : vue d'ensemble d'un module, et en bas : vue rapprochée des membranes

Les membranes tubulaires, souvent en céramique, mais aussi parfois en matériaux organiques (Martin-Garcia et al., 2011), filtrent de l'intérieur des membranes vers l'extérieur. Ces membranes sont encore utilisées

pour des usages spécifiques (certains effluents industriels, installation de petite capacité) car leur matériau et leur structure leur confère une très bonne résistance mécanique, thermique et chimique (par exemple la céramique permet des rétrolavages fréquents avec des produits chimiques concentrés, ou encore de forts pics de flux).

Depuis, plusieurs facteurs ont favorisé le développement économique de la technologie. Des alternatives moins énergivores au procédé BRM à membranes externes tubulaires sont apparues. De plus, les réglementations sur les rejets dans les milieux récepteurs se sont durcies, et la technologie membranaire, performante en termes de rejets, a évolué. Les prix des membranes au m^2 ont substantiellement baissé. Ainsi, les BRMs ont pris une place croissante dans le marché des stations d'épuration depuis le début des années 2000.

Cette évolution tient d'abord au développement de deux types de membranes : les membranes planes et les fibres creuses (figure I.1.2 centre et droite respectivement). Leur principale particularité par rapport aux membranes tubulaires est qu'elles filtrent de l'extérieur vers l'intérieur. Les conditions hydrodynamiques nécessaires à la limitation des dépôts à leur surface ne sont plus atteintes par pompage de la boue à l'intérieur des membranes, mais par obtention d'un flux transversal, turbulent et triphasique par injection de grosses bulles d'air en dessous des modules membranaires.

De plus, la surface développée par unité de volume occupé (aux alentours de $50 m^2.m^{-3}$ pour les membranes planes, de $150 m^2.m^{-3}$ pour les fibres creuses) est plus grande que pour les membranes tubulaires ($10 m^2.m^{-3}$). Cette augmentation a des répercussions sur l'apport d'énergie à fournir pour la limitation du colmatage à deux niveaux :

- Pour un procédé de capacité et de volume équivalents, le flux de perméat par m^2 de membranes diminue, ce qui réduit le besoin en agitation de la boue à filtrer pour contrer les forces d'aspiration des particules vers la membrane.
- La surface de membranes soumise à l'agitation est supérieure par rapport au volume du fluide agité.

La configuration des procédés membranaires a suivi ce développement. Les configurations à membranes externes ont laissé la place à des membranes directement immergées dans le bassin d'aération, ou plus fréquemment dans des bassins séparés du bassin d'aération (pour éviter que les apports en air issus des systèmes d'aération grosses bulles ne viennent perturber des périodes d'anoxie dans les bassins d'aération séquentielle, et pour simplifier l'accès aux membranes pendant les lavages, voir figure I.1.3).

Pour la plupart les membranes sont fabriquées dans des matériaux organiques comme le PolyEtherSulfone (PES) ou le Polyfluorure de vinylidène (PVDF). Un des avantages de ces matériaux est qu'ils sont souples et solides à la fois, ce qui leur confère une bonne résistance mécanique. La souplesse des fibres creuses leur permet de se déplacer et de s'entrechoquer sous l'effet de l'agitation, ce qui participe à la réduction du colmatage. De plus ces matériaux sont moins chers que la céramique.

Un des points cruciaux pour estimer l'efficacité d'une membrane est la taille de ses pores. La figure I.1.4 présente les différents types de filtration (microfiltration, ultrafiltration, nanofiltration, osmose inverse) en

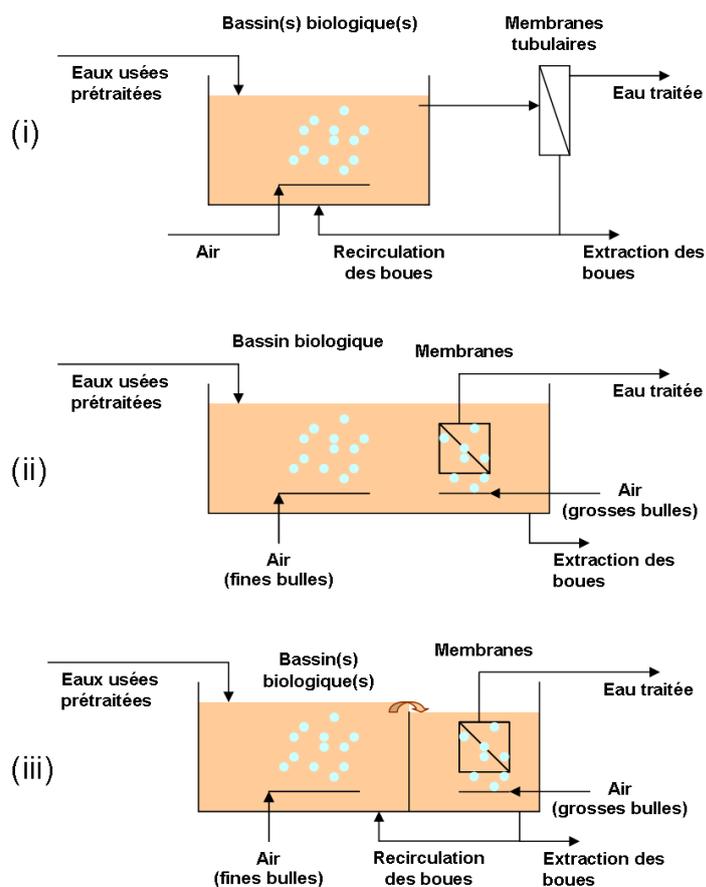


FIGURE I.1.3 – Différentes configurations : (i) membranes en boucle externe, (ii) membranes immergées dans un bassin biologique et (iii) membranes immergées dans un bassin séparé

fonction de la taille des pores. On peut aussi y lire le type de composés retenus par les membranes. Dans le cas des BRMs, la taille des pores varie le plus souvent entre 10 nm et $0.5\ \mu\text{m}$. Les membranes se situent donc dans la gamme de l'ultrafiltration. Les bactéries, et à fortiori les floccs, sont entièrement retenus, et les virus en partie. Pour ce qui est de la phase colloïdale, les macromolécules sont majoritairement retenues, mais la membrane est perméable aux petits composés solubles.

I.1.3 Avantages et inconvénients des BRMs

I.1.3.1 Avantages

Le rapide développement des BRMs pour le traitement d'eaux résiduaires urbaines est dû à plusieurs facteurs.

D'une part, les exigences en matière d'efficacité de traitement ne cessent d'augmenter. La directive européenne 2006/60/CE contraint les collectivités à s'équiper de procédés de traitement en adéquation avec des normes de plus en plus strictes (Parlement Européen, 2000). Cette directive prend en compte la sensibilité du

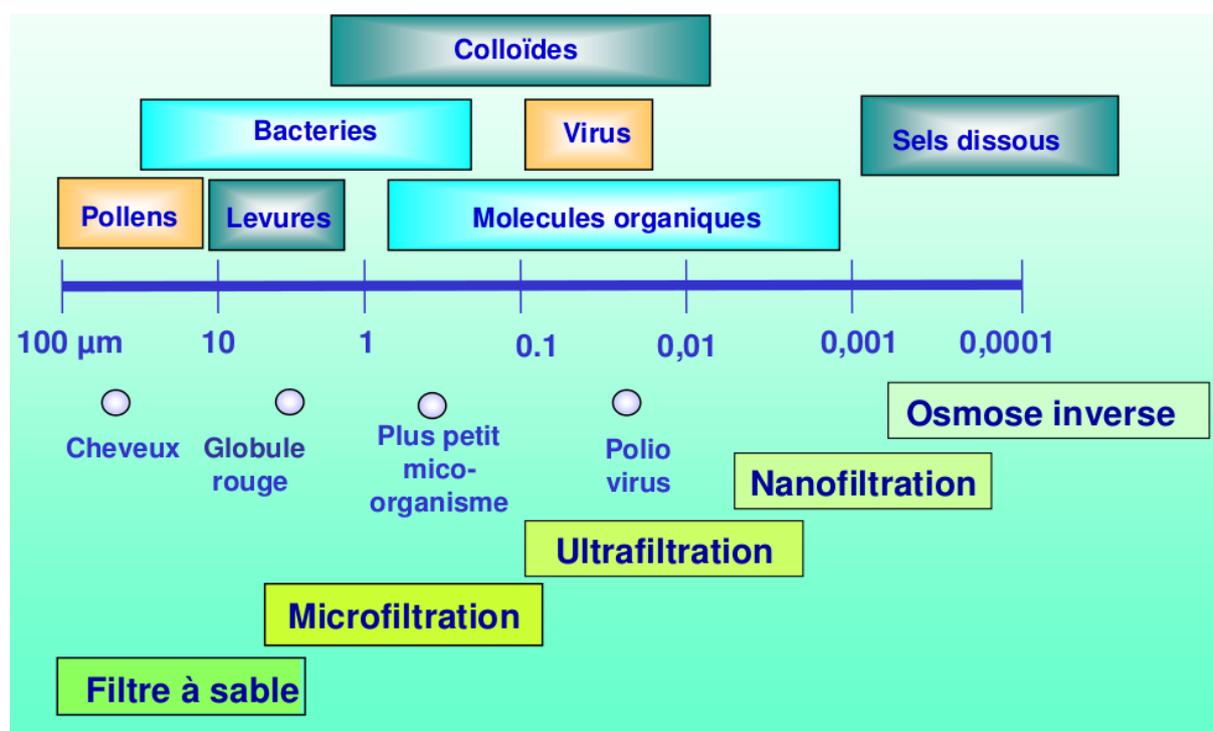


FIGURE I.1.4 – Types de filtration et espèces retenues (source : Office international de l'eau)

milieu naturel récepteur, et dans certains cas peu de procédés sont assez performants pour la respecter. Les BRMs font partie de ces procédés, de même que le traitement classique (BAC) suivi d'une étape de traitement dit *tertiaire*, mais souvent plus cher que les BRMs (Brepols et al., 2010).

La fiabilité du traitement par BRM est aussi à souligner, car sauf en cas de rupture d'une membrane (cas exceptionnel évoqué par Ayala et al. (2011), toujours suite à une mauvaise manipulation), une bonne qualité de traitement en ce qui concerne les matières en suspension et l'abattement en bactéries sera assurée, même si la biomasse impliquée est en difficulté (foisonnement de bactéries filamenteuses, surcharge organique ou hydraulique). Cette fiabilité n'est pas obtenue dans les procédés par décantation dans lesquels une perturbation de la biomasse peut empêcher une partie des particules de décanter correctement.

De plus, de récentes études tendent à montrer que les caractéristiques de fonctionnement des BRMs les rendent plus efficaces pour l'abattement de micro-polluants (cf 1.2.3).

Un autre avantage des BRMs est la diminution de la production de boues par rapport aux procédés classiques, du fait des longs âges de boues utilisés (Spérandio and Espinosa, 2008). Cet aspect réduit les coûts et la contrainte d'évacuation des boues imposée à l'exploitant.

La faible emprise au sol des BRMs due à la petite taille des bassins de filtration par rapport aux clarificateurs favorise son développement quand le prix ou la rareté du foncier en font un élément de décision important. Les BRMs sont aussi sensés supporter de fortes variations de charge entrante car ils ne présentent pas de risque de

lessivage, sous réserve de disposer d'une surface de membranes suffisante. Par exemple, une station balnéaire de bord de mer (où le foncier est cher) rejetant ses eaux dans une zone proche de baignades (les plages) et soumise à de fortes variations de charge (saisons touristiques) a besoin d'un procédé compact et performant, ce qui est le cas d'un BRM.

I.1.3.2 Inconvénients

Le prix peut toujours être considéré comme un inconvénient, quel qu'il soit. Que ce soit sur le prix d'investissement (coût élevé des membranes par rapport aux clarificateurs), ou sur le prix de fonctionnement (en particulier la consommation énergétique, cf I.2.1), à capacité de traitement équivalent, le BRM est en passe de devenir concurrentiel, mais ne l'est pas encore clairement. On peut aussi considérer que le prix ne sera plus un inconvénient quand le procédé sera concurrentiel avec des procédés moins performants comme les boues activées classiques. De plus, l'état actuel des recherches ([Barillon et al., 2013](#); [Verrecht et al., 2008](#); [Krzeminski et al., 2012](#); [Van Bentem et al., 2010](#)) permet d'envisager une réduction d'environ 20% de la consommation énergétique simplement par une meilleure gestion des installations existantes (gestion des méthodes de limitation du colmatage, compromis sur la concentration des boues entre les transferts d'oxygène et la qualité du traitement...).

Un autre frein qui apparaît maintenant est la complexité accrue des BRMs par rapport aux BAC, qui rend l'exploitation difficile dans des petites installations où il n'y a pas de personnel qualifié. En effet, le suivi et le contrôle du colmatage demandent des compétences et une expérience particulières.

Chapitre I.2

Enjeux de la recherche sur les BRMs

Ce chapitre et les deux suivants ont pour objectif de situer l'état de la recherche sur les BRMs pour introduire les objectifs de la présente thèse. Les particularités des BRMs leur confèrent des avantages que la recherche tente de comprendre et de mettre à profit tout en prenant en compte ses inconvénients, et en particulier la consommation énergétique. Ce chapitre se concentre sur différents aspects, de la recherche sur la consommation énergétique des BRMs et sa répartition, à la durée de vie des membranes, en passant par la réduction de la production de boues et le traitement des micro-polluants. Le chapitre suivant se concentre sur les mécanismes du colmatage des membranes et leur lien avec la biologie des boues. Enfin le chapitre d'après décrit les différents modèles proposés dans la littérature pour décrire le fonctionnement des BRMs d'un point de vue mécanistique.

I.2.1 Consommation énergétique

I.2.1.1 Consommation totale des BRMs grandeur réelle

Les facteurs prépondérants dans la consommation énergétique des BRMs sont :

- la taille de l'installation. En effet plus l'échelle est réduite, plus la consommation énergétique spécifique ($kWh.m^{-3}$ de perméat traité) augmente. C'est exacerbé sur la figure [I.2.1](#), un BRM pilote de $10m^3$ consomme plus que les autres (classés par taille). La plus grosse installation représentée consomme quant à elle un peu plus que d'autres, mais fonctionne à environ 30% de sa charge nominale ([Verrecht et al., 2010](#)).
- la configuration utilisée (boucle de filtration externe, bassins de filtration séparés, membranes immergées dans le bassin d'aération). En effet les bassins séparés, plus petits que les bassins d'aération, concentrent l'énergie d'agitation développée par l'aération grosses bulles dans un plus petit volume, ce qui a tendance à diminuer la consommation ([Krzeminski et al., 2012](#)).
- les membranes utilisées (fibres creuses, membranes planes). Les membranes planes, du fait que leur surface développée par m^3 occupé est plus faible, ont tendance à nécessiter plus d'apports d'aération

grosses bulles, ce qui est seulement en partie compensé par le fait que l'aération grosses bulles contribue aux apports d'oxygène.

- le taux de charge. L'appareillage des BRMs est choisi lors de la conception pour une consommation optimale à la charge nominale. Quand la charge est inférieure (ce qui est le cas de la plupart des installations récentes, notamment en France), la consommation spécifique est plus élevée.
- la conduite de l'installation. On voit par exemple que sur une même installation (Vasserveld sur la figure I.2.1), la consommation a baissé entre 2005 et 2009. Notamment une adaptation de l'aération grosses bulles en fonction de la température de la boue (Van Bentem et al., 2010).

Il résulte de ces différents facteurs influençant la consommation une grande disparité dans la consommation totale des BRMs (figure I.2.1). Les installations y sont classées de la plus petite à la plus grande.

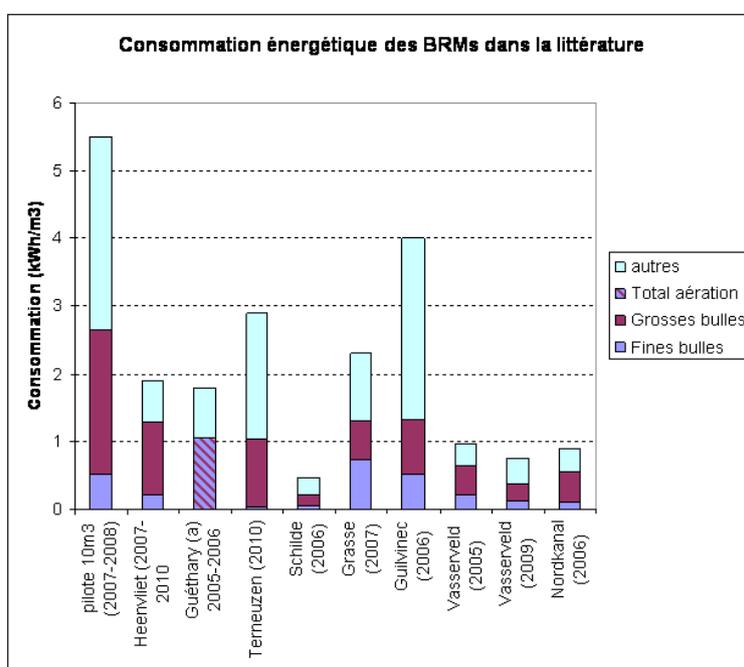


FIGURE I.2.1 – Consommation spécifique des BRMs dans la littérature (non exhaustif), et part de l'aération fines bulles et grosses bulles, rapportées au volume de perméat produit, (Gil et al., 2010; Delrue, 2008; Fenu et al., 2010; Van Bentem et al., 2010; Brepols et al., 2010)

I.2.1.2 Répartition de la consommation énergétique

Dans les installations grandeur réelle, une part importante de l'énergie consommée sert à l'aération fines bulles pour les apports d' O_2 et grosses bulles pour le décolmatage des membranes. La figure I.2.1 représente les données trouvées dans la littérature qui permettent de dégager les consommations spécifiques des principaux postes (Gil et al., 2010; Delrue, 2008; Fenu et al., 2010; Van Bentem et al., 2010; Brepols et al., 2010). Les technologies utilisées (fibres creuses, membranes planes, bassins de filtration séparés ou non) jouent aussi un

rôle dans la répartition de la consommation énergétique. L'aération grosses bulles des membranes planes a tendance à prendre plus d'importance, mais cela est compensé en partie par l'apport d'oxygène généré dans les cellules membranaires, ce qui entraîne une diminution de l'aération fines bulles.

On remarque cependant que dans toutes les installations représentées, l'aération grosses bulles représente de 20 à 50% de la consommation totale (avec une moyenne à 35%).

La partie qui suit décrit les deux principaux leviers déterminants dans la diminution de la consommation énergétique des BRMs.

I.2.1.3 Leviers pour la diminution de la consommation énergétique

I.2.1.3.1 Influence de la concentration en boue

La concentration en MES (matières en suspension) dans les bassins est un des points clés de la consommation énergétique des bioréacteurs à membranes. Elle agit de façon contradictoire sur différents facteurs de consommation.

D'une part, une forte concentration de boue fait diminuer l'efficacité du transfert d'oxygène entre les bulles d'air et la boue (Henkel et al., 2009; Gillot and Héduit, 2008; Gillot et al., 2005; Racault et al., 2011). Cela provoque un surcoût lié principalement à l'aération fines bulles du BRM. Un autre effet des MES sur le procédé est leur influence sur la viscosité μ_b des boues : plus la concentration en MES est forte, plus la viscosité est élevée. Une loi prédisant la viscosité à 20°C en fonction de la concentration des boues de type $\mu_b^{20} = aMES^c$ ($c > 1$) peut être raisonnablement adoptée (Ratkovich et al., 2013). Une augmentation de la concentration implique donc plus d'énergie dépensée pour l'agitation, les pompes de circulation des boues et l'efficacité de l'aération grosses bulles sur le colmatage. Cependant ce surcoût reste négligeable par rapport à celui lié au transfert d'oxygène. Même à concentration de boue élevé, les besoins énergétiques de l'agitation restent faibles (Brannock et al., 2010). Selon leur étude, avec comme seule source d'agitation celle provoquée par l'aération, on est très proche d'un réacteur parfaitement agité.

D'autre part, à volume de réacteur et charge organique constants, l'augmentation de la concentration des boues est corrélée à une augmentation de l'âge des boues. Dans une gamme encore difficile à cerner (qui se situerait entre 10 et 40 jours), cet allongement des âges de boues est favorable à une meilleure filtrabilité (voir l'étude bibliographique à ce sujet dans la partie III). De plus, l'augmentation de l'âge de boue entraîne une diminution de la production de boue, ce qui est aussi source d'économies (cf I.2.2)

I.2.1.3.2 Gestion de la filtration

La gestion de la filtration est caractérisée par différents paramètres :

- Le choix du flux de filtration (déterminé par la surface de membranes installée à la conception du BRM, par le débit global reçu par la station, et par les automatismes qui régulent ce flux)
- Le débit et le séquençage de l'aération grosses bulles

- La gestion des stratégies de lavage des membranes.

Gestion du flux Les flux de filtration maximal et moyen sont déterminés à la conception par la capacité hydraulique du BRM, et par la surface totale de membranes installées. Il est ensuite variable en fonction du débit d'entrée de la station réel. Le concepteur peut faire en sorte de garder des débits stables, ou déterminés presque exclusivement par le débit d'entrée dans la station. Par exemple, l'installation d'un bassin tampon en entrée de station peut servir à éviter les pics de flux membranaire. On verra dans la partie II que le BRM suivi pendant cette étude présente de fortes variations de flux dues à la conception hydraulique de l'installation. De manière plus générale, chaque BRM a son propre système de gestion du flux, ce qui implique de fortes disparités d'une installation à l'autre.

Gestion de l'aération grosses bulles Le débit et le séquençage de l'aération grosses bulles sont de toute première importance car c'est le principal poste de consommation énergétique à réduire. Plusieurs conclusions de la bibliographie et des méthodes mises en œuvre à l'échelle industrielle à ce sujet sont à prendre en compte. En général, le taux de colmatage court terme (défini différemment suivant les études) est une fonction décroissante du taux d'aération, jusqu'à un certain seuil (Verrecht et al., 2008). Ce seuil dépend du flux de filtration (Guglielmi et al., 2008). Pour chaque flux de filtration, il y aurait donc un optimum de débit d'air. Ce débit dépendrait aussi de l'état de colmatage de la membrane. Dans les installations grandeur réelle, une telle finesse des réglages n'est pas encore mise en œuvre. Cependant, pour ce qui est du colmatage long terme, certaines études (Delgado et al., 2008) montrent qu'un plus fort taux de cisaillement au voisinage de la membrane entraînerait un colmatage interne de la membrane plus rapide. Les principales hypothèses pour expliquer cela sont : des contraintes mécaniques fortes sur les floccs entraîneraient une érosion du flocc libérant des macromolécules (PMS) et participant au colmatage interne de la membrane ; la disparition du gâteau à forts taux de cisaillement supprimerait une "couche protectrice" pour la membrane (Le-Clech et al., 2006), favorisant le colmatage interne peu sensible aux lavages hydrauliques.

Dans certaines stations récentes, le débit global d'air est fixe mais l'aération des modules de filtration est séquencée en un roulement (10s d'aération d'un module/10s d'aération du module voisin). Selon l'expérience des constructeurs, cette méthode (économique en énergie) permet quand l'aération est en marche d'être suffisamment intense pour éviter le colmatage. Elle a même été améliorée récemment (Cote et al., 2012) en passant à un roulement sur quatre modules (10s avec aération/30s sans aération) pendant les périodes de faible flux membranaire.

Gestion des lavages de membranes Les lavages peuvent être catégorisés en quatre classes : la relaxation, qui par le relâchement des contraintes de flux, permet à la membrane de retrouver une partie de sa perméabilité ; les rétro-lavages (effectués seulement dans le cas des fibres creuses, car les membranes planes ne le

supporteraient pas mécaniquement) qui consistent à injecter du perméat à contre-courant dans la membrane pour repousser les colmatants; les lavages chimiques réguliers (ou lavages de maintenance), rétrolavages avec ajouts de faibles concentrations de produits chimiques (javel, acide citrique) effectués régulièrement pour éliminer les colmatants non lavables par rétrolavages; les lavages chimiques intenses (ou lavages de régénération), rétrolavages successifs avec des produits chimiques plus concentrés, puis trempage dans un bassin d'eau de javel, souvent accompagnés du retrait des membranes des bassins pour un lavage manuel des filasses et des agglomérats solides.

Les lavages chimiques sont effectués avec une base (en général de l'eau de Javel) pour attaquer les colmatants organiques issus de l'activité biologique des boues, puis un acide pour dissoudre les colmatants minéraux. Ceux-ci peuvent se former soit pendant le fonctionnement normal du procédé dans les cas de forte alcalinité de l'eau, soit pendant le lavage à la base en raison du déplacement d'équilibre chimiques de précipitation. Le tableau I.2.1 donne un aperçu des différents types de lavages et de leur effets.

TABLE I.2.1 – Différents types de lavages

	Description	Fréquence	Action
Relaxation	Arrêt de la filtration	De l'ordre de 10 minutes	Relachement des contraintes sur le gâteau, facilitation de son décollement
Rétrolavage	Injection de perméat à contre-courant dans la membrane	De l'ordre de 10 minutes	Expulsion du gâteau, action probable sur le colmatage interne
Lavage de maintenance	Plusieurs rétrolavages successifs, avec ajout de réactifs chimiques	Quelques jours	Effet chimique sur le colmatage interne, et sur le gâteau
Lavage de régénération	Idem que lavage de maintenance, suivi d'un bain dans le réactif, et éventuellement précédé d'un nettoyage manuel	1 an ou moins	En principe, récupération de la perméabilité initiale des membranes, moins l'effet du vieillissement

Les rétrolavages des membranes sont indirectement coûteux en énergie du fait qu'ils augmentent le volume de boue à filtrer (en effet tout le perméat utilisé pour les rétrolavages doit être traité une seconde fois). Les lavages de maintenance et de régénération, outre la quantité de boue supplémentaire à traiter, rendent indisponibles un bassin membranaire entier pendant toute leur durée (de l'ordre de 2h pour les lavages de maintenance et d'une journée pour les lavages de régénération). Cela conduit à l'augmentation du flux sur les

autres membranes, et peut conduire à un colmatage plus rapide.

Voies d'optimisation de la gestion de la filtration Dans les BRMs en service aujourd'hui, la gestion de la filtration est basée sur des consignes de temps, complétées par des seuils bas de perméabilité (ou seuils hauts de pression transmembranaire) à ne pas dépasser. C'est à dire que, sauf dysfonctionnement, les cycles de filtration et l'espacement dans le temps des lavages de maintenance et de régénération sont basés uniquement sur le temps écoulé depuis la dernière action de lavage, ou dans le meilleur des cas sur la quantité de perméat filtré dans chaque bassin. Cependant, suivant les conditions d'exploitation auxquelles a été soumise l'installation, les besoins en lavage, en temps de relaxation, en limitation de flux, en volume d'aération grosses bulles ne sont pas constants dans le temps. Une stratégie basée exclusivement sur le séquençage du temps n'est donc pas optimale. De nouvelles techniques de gestion de la filtration sont à l'étude ([Ferrero et al., 2012](#)) pour prendre en compte le comportement de la filtration dans les actions à adopter.

Dans ce sens, plusieurs équipes de recherche s'intéressent à une gestion automatisée des variables opératoires de la filtration qui s'adaptent en temps réel au comportement des membranes ([Busch and Marquardt, 2009](#); [Drews et al., 2009](#); [Comas et al., 2010](#); [Guglielmi and Andreottola, 2011](#); [Ludwig et al., 2012](#); [Ferrero et al., 2010, 2011](#)). Ces automates ont tous le même principe de fonctionnement. Un système d'acquisition mesure la pression transmembranaire et les flux de filtration. Il calcule la perméabilité ou la résistance hydraulique de la membrane, puis après analyse numérique du comportement du colmatage, en déduit une stratégie de filtration définie par l'opérateur. L'objectif est d'analyser les évolutions de la perméabilité pour déceler le type de colmatage en jeu (dépôt de particules à la surface de la membrane, adsorption de molécules solubles à l'intérieur des pores...). L'automate lancera alors le lavage adapté en cas de besoin (simple relaxation pour éloigner des particules peu collantes, rétrolavage pour chasser des particules bien collées ou des matières déposées à l'intérieur des pores, ou lavage chimique en cas de colmatage par des matières qui ont besoin d'être dissoutes chimiquement). Cependant, la connaissance des mécanismes du colmatage n'est pas encore suffisante pour que ces automates soient utilisés de façon très fiable. Ils sont souvent basés sur des hypothèses fortes et/ou sur des théories empiriques. Leur application est donc limitée pour l'instant à des installations pilotes pour la recherche.

Les enjeux de la recherche à ce sujet sont d'améliorer les systèmes qui permettent de réguler les apports en air et réduire leur débit quand cela est possible. Pour cela, il faudrait mieux comprendre les mécanismes du colmatage pour pouvoir intégrer dans l'automate une prédiction du colmatage. Pour l'instant, cette prédiction se base sur le comportement passé de la filtration. A terme, et c'est l'objet de cette thèse, cette prédiction peut utiliser les caractéristiques des boues pour adapter la gestion de la filtration. Ceci peut se faire en jouant sur le séquençage de la filtration et le flux, mais aussi dans le futur sur le débit d'aération grosses bulles.

I.2.2 Production de boues

La technologie des BRMs permet de fonctionner à une concentration en MES plus élevée qu'en boues activées classiques, pour lesquelles elle est limitée par la décantation. Or à volume de filière biologique égal, l'augmentation de la concentration de boue conduit à une augmentation de l'âge des boues. Il est admis dans la littérature qu'une augmentation de l'âge des boues conduit à une minéralisation plus avancée des boues (Ramdani et al., 2012a; Spérandio et al., 2013). Cela correspond à la métabolisation, et la transformation en H_2O , CO_2 et N_2 gazeux d'une plus grande partie de la matière organique d'origine, puis par voie de conséquence une diminution de la quantité de matières en suspension restantes.

Dans les cas, courants en France, où aucune solution de valorisation (méthanisation) des boues n'est en place, cet élément joue économiquement et techniquement en faveur du procédé BRM, car cela diminue les quantités de boues à extraire, traiter et/ou évacuer. Cependant, selon Lesjean et al. (2010), en opérant à des âges de boue similaires dans des boues activées classiques, la production de boue serait moindre (les colloïdes, retenus par la membrane, viendraient s'ajouter à la production de boue). Cela lui paraît évident, mais il ne prend pas en compte dans son raisonnement l'hydrolyse de X_S et X_I supplémentaire pour de longs âges de boue. Cette hydrolyse est par exemple testée par la modélisation par Lubello et al. (2009), ou considérée comme une dégradation lente dans le modèle proposé par Spérandio et al. (2013).

I.2.3 Traitement des micro-polluants

Les micro-polluants sont des substances polluantes à des concentrations très faibles (de l'ordre du $\mu g.L^{-1}$ ou inférieure). Les plus emblématiques sont des substances pharmaceutiques (hormones, antibiotiques...) ou des pesticides, ainsi que des métaux lourds. Depuis les années 1990, ils font l'objet d'études toxicologiques, écotoxicologiques, et de mise au point de méthodes analytiques. Ils font en 2015 l'objet de réglementations (directive cadre sur l'eau (Parlement Européen, 2000)) sur leur concentration dans les milieux récepteurs, car même à faible dose, leurs effets toxiques pour l'homme et l'environnement sont maintenant reconnus. Des comparaisons entre les différents procédés existants de traitement des eaux usées concluent que pour la plupart de ces substances, les BRMs ont une efficacité d'élimination supérieure à celle des boues activées classiques. Cette tendance se vérifie autant pour des études sur sites grandeur réelle (Choubert et al., 2011) que sur des installations pilotes facilement comparables. Ainsi, Bolzonella et al. (2010) qui ont suivi en parallèle deux BRMs et une boue activées classique en pilotes concluent sur des abattements supérieurs sur quasiment toutes les substances analysées.

Cette efficacité accrue fait l'objet de plusieurs hypothèses comme une plus forte concentration et la rétention totale des MES. En effet, une partie des micro-polluants se fixe par adsorption sur les MES. De plus, les longs âges de boues des BRMs favorisent la dégradation de ces substances. Cette influence de l'âge de boue a été confirmée par Schröder et al. (2012), qui ont comparé l'efficacité de deux BRMs pilotes sur 6 composés

d'origine pharmaceutique avec des âges de boues de 15 et 30 jours, traitant la même eau et avec la même concentration de boue. Avec un âge de boue de 30 jours, l'abattement est meilleur ou égal sur tous les micro-polluants étudiés. L'amélioration des méthodes d'analyse des micro-polluants dans la boue pourrait permettre une meilleure distinction entre dégradation et adsorption (donc présence de ces polluants dans les boues évacuées).

D'autres hypothèses sont plus difficiles à étayer, comme la rétention de ces polluants par les membranes quand il ne s'agit pas de nano-filtration ou d'osmose inverse, ou le taux d'aération supérieur dans les BRMs (Siegrist and Joss, 2012).

I.2.4 Durée de vie des membranes

La durée de vie des membranes est un facteur qui influence le choix du procédé BRM car il a un impact important sur le coût de maintenance dans les années qui suivent la construction d'une station. Ainsi, Brepols et al. (2010), en utilisant une analyse du cycle de vie d'un BRM fictif sur 30 ans et en la comparant avec celle d'une boue activée classique, estiment que le BRM a un coût global moindre si la durée de vie des membranes est supérieure à 7 ans (chiffre qui augmente en prenant en compte l'augmentation du prix de l'électricité).

La question qui se pose ensuite est de savoir si cette durée de vie est disponible avec la technologie actuelle, puis comment l'allonger. Pour cela, des équipes se sont penchées sur les causes de remplacement des membranes. On peut en distinguer deux catégories :

- La rupture mécanique des membranes ou d'autres éléments des modules de filtration.
- Le vieillissement des membranes qui conduit à leur perte progressive de perméabilité. Quand un niveau de PTM critique est atteint après lavage de régénération, on estime qu'il faut remplacer les membranes.

Les ruptures mécaniques semblent très rares et sont très souvent liées à des erreurs d'exploitation (Cote et al., 2012) dans le cas des fibres creuses. Dans le cas des membranes planes, les ruptures ou endommagement sont plus fréquents et sont la cause de la majorité des remplacements. Ici aussi, elles sont généralement dues à un manque de précautions pendant la manipulation des cassettes (Ayala et al., 2011).

À l'inverse, le vieillissement des membranes semble le facteur prépondérant quand à la durée de vie des fibres creuses, mais négligeable devant les ruptures mécaniques dans les installations à membranes planes.

Pour ce qui est du vieillissement des membranes, au vu du jeune âge de la technologie par rapport à la durée de vie pour l'instant constatée des membranes, il est encore difficile de produire des théories très étayées par l'expérience. En effet, l'application à grande échelle de la technologie BRM a commencé à la fin des années 1990, or la durée de vie des membranes est de l'ordre de dix ans. Pour anticiper, certaines équipes se sont penchées sur les causes du vieillissement des membranes.

Pour caractériser ce vieillissement, Fenu et al. (2012) proposent différents critères :

- Le déclin du flux de filtration. Cet indicateur, très facile à mettre en œuvre car le flux est disponible dans

toutes les installations et facile à interpréter, ne prend pas en compte le caractère réversible ou non du colmatage. Il peut être un signal d'alarme pour étudier le besoin de remplacer un module de filtration, mais pas un facteur déterminant. De plus, le flux sans information sur la PTM ne donne qu'une idée partielle de l'état de la membrane.

- Le déclin de perméabilité, et en particulier le déclin sur le long terme (plusieurs années) des maximums et minimums de la perméabilité entre deux lavages de régénération. Cet indicateur prend en compte le caractère réversible ou non du colmatage.
- Le temps de contact avec le chlore (exprimé en *ppm.h*). L'exposition au chlore dégrade des résines utilisées pour fixer les membranes au module, ce qui est un point faible des membranes Zenon. En effet, les fabricants des membranes Zenon proposent une exposition maximale de 500000 *ppm.h* (Cote et al., 2012). Cela correspondrait dans le cas particulier proposé par Fenu et al. (2012) à 15 ans.
- Le critère économique. Une membrane colmatée a tendance à consommer plus d'énergie et de produits de lavage qu'une membrane neuve en raison de l'augmentation de la fréquence des lavages de régénération. Le but de ce critère est de déterminer à quel moment il est préférable d'un point de vue financier de remplacer la membrane. Ce critère prend donc en compte le critère de perméabilité, le prix des membranes, le prix de l'énergie et des produits chimiques de lavage.

Fenu et al. (2012) qui ont mis au point et testé ces critères en se basant sur des données grandeur réelle concluent que les problèmes de perméabilité se posent avant celui de l'intérêt financier à changer la membrane, et avant le quota d'exposition au chlore fixé par le fournisseur. Une durée de vie de 8 à 10 ans est alors estimée.

Cependant, les premiers retours d'expérience sont encore rares. Il est encore difficile de chiffrer le vieillissement *normal* des membranes.

En des termes plus pragmatiques, un retour d'expérience est fourni (Cote et al., 2012) sur les membranes fibres creuses Zenon. Il nous indique que sur les 1,3 millions de m^2 de membranes de dernière génération (ZW500D) installées depuis 2003, 0,6% l'ont été par remplacement sous l'effet d'une garantie de 1 an (le plus souvent après rupture mécanique de l'attache des modules sur leur cassettes mais pas des membranes elles-mêmes), et 0.06% étaient des remplacements non couverts par la garantie et le plus souvent dues à des défauts dans la conduite des installations. Selon cette étude, la dégradation à long terme des capacités de filtration, et la dégradation des résines faisant le lien entre la membrane et le module sous l'effet du chlore seraient les principales causes du remplacement. La durée de vie moyenne des membranes en utilisation normale est alors estimée de 10 à 15 ans. Cependant cela reste à confirmer par l'expérience, et la nouveauté de cette technologie ne permet pas un retour d'expérience suffisant.

Chapitre I.3

Influence des conditions opératoires sur le colmatage des membranes dans la littérature

La compréhension des mécanismes du colmatage est un point clé de la recherche sur les bioréacteurs à membranes, car c'est un préalable nécessaire à un meilleur contrôle du procédé, qui aurait un impact positif sur :

- la réduction de la consommation énergétique du procédé (cf [I.2.1.3.2](#)),
- la durée de vie des membranes (cf [I.2.4](#)),
- la compréhension des performances d'abattement des micro-polluants (cf [I.2.3](#)),
- la gestion du procédé en raison de la diminution du nombre d'incidents de colmatage sévère des membranes par des actions préventives.

Le niveau de description atteint dans la littérature au sujet de l'influence des conditions hydrodynamiques et de la composition des boues des BRMs sur le colmatage est très poussé, et a engendré un grand nombre de recherches. Leurs thématiques ont attiré à la compréhension des interactions entre la composition des boues, l'hydrodynamique dans les bassins membranaires et le développement du colmatage.

En effet, les mécanismes du colmatage des membranes en BRM sont multiples du fait de la diversité des composés présents dans les boues, ainsi que des configurations des membranes et des méthodes de décolmatage. Le schéma [I.3.1](#) représente de façon simplifiée le fonctionnement de la filtration.

On présente à gauche une classification des composants des boues qui auraient un impact sur le colmatage. La taille de ces composants leur confère un comportement spécifique par rapport aux conditions hydrodynamiques. Leur composition chimique a une influence sur leurs propriétés de coalescence et d'adhésion à la membrane. Les conditions hydrodynamiques au voisinage des membranes imposées par l'aération grosses bulles influencent le comportement des particules (aptitude à adhérer ou à se décrocher de la membrane). On peut y distinguer deux composantes : un flux transversal ascendant, provoqué par l'élévation gravitationnelle

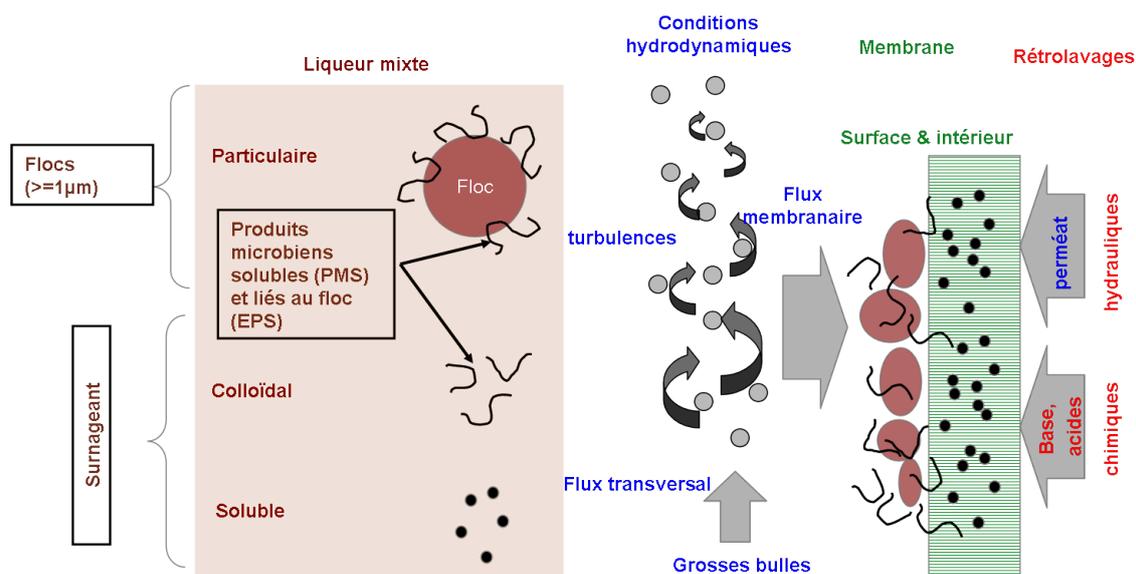


FIGURE I.3.1 – Schéma de la filtration en BRM

des bulles, et un effet d'agitation provoqué par le caractère turbulent de ce flux. À droite sur le schéma on présente les différents types d'interactions entre les fractions colmatantes des boues et la membrane. On y distingue surtout le dépôt des particules sur la surface de la membrane et l'adsorption des matières colloïdales et solubles à la surface et à l'intérieur de la membrane.

Ce chapitre, entièrement bibliographique, abordera dans un premier temps les relations observées dans la littérature entre le flux de filtration, qui détermine le régime (critique ou sous-critique) de la filtration, et le colmatage. Dans un second temps, les avancées de la recherche concernant l'influence des conditions de fonctionnement sur la composition et les propriétés physico-chimiques des boues seront abordées. Enfin, les liens entre le colmatage et ces caractéristiques des boues seront décrits.

I.3.1 Influence du flux sur le colmatage dans la littérature

Dans cette partie une différenciation est faite entre le colmatage à court terme interne à un palier ou un cycle de filtration (entre 5 min et 1h suivant les cas) et le colmatage long terme qui est une résultante sur un ou plusieurs jours de l'enchaînement des cycles de filtration et de lavages.

I.3.1.1 Colmatage court-terme : notion de flux critique

Aspect qualitatif Un constat courant dans l'étude à court terme de l'influence du flux sur le colmatage est la différenciation de deux cinétiques de colmatage. A partir d'un flux appelé le *flux critique*, la PTM (pression transmembranaire) n'est plus stable pendant le palier de flux, ce qui s'explique par un dépôt rapide de colmatants dans/sur la membrane. La figure I.3.2 montre la mise en évidence d'un flux critique par la

méthode des paliers de flux.

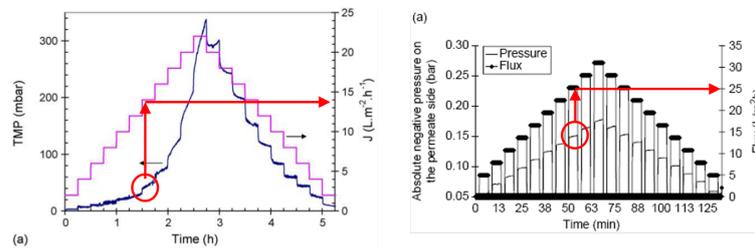


FIGURE I.3.2 – Exemple d’expériences de paliers de flux successifs pour la mise en évidence du flux critique. A gauche : [Le-Clech et al. \(2006\)](#) ; à droite : [De la Torre et al. \(2010\)](#)

L’apparition de ce flux critique peut être formalisée par l’équation I.3.1 qui décrit la tendance des particules à se déposer. La résultante des forces d’attraction/répulsion des particules vers la membrane (projection sur un axe perpendiculaire à la surface de la membrane) peut s’écrire :

$$F_{res} = F_{suc} - F_{rep} \tag{I.3.1}$$

Où

- F_{res} est la résultante des forces
- F_{suc} est la force d’attraction vers la membrane (suction)
- F_{rep} est la force de répulsion vers la boue

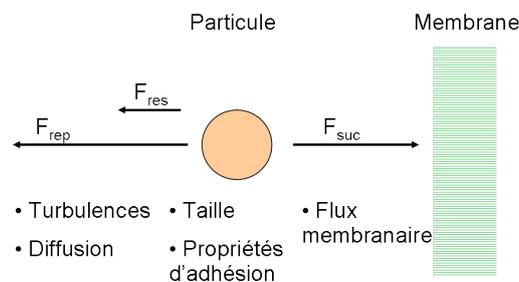


FIGURE I.3.3 – Facteurs influençant le flux critique

Si F_{res} est positive, alors les particules sont attirées vers la membrane et forment un gâteau, tandis que si F_{res} est négative, alors les particules sont repoussées vers la boue (figure I.3.3). F_{suc} dépend principalement du flux de filtration, mais une composante d’attachement (forces de frictions sur la membrane) est parfois évoquée ([Busch et al., 2007](#)). Par contre, F_{rep} dépend des turbulences, du flux transversal et de la diffusion, donc du débit d’aération grosses bulles et de la viscosité de la boue. La taille des particules et leurs propriétés de surface, en particulier présence d’EPS (exopolymères sécrétés par les bactéries) considérés comme collants, jouent aussi un rôle dans leur comportement par rapport à la membrane et aux lois de diffusion/convection.

Aspect quantitatif Le tableau I.3.1 montre les flux critiques relevés dans la littérature.

TABLE I.3.1 – Valeurs du flux critique reportées dans la littérature

Référence	Membrane utilisée	Débit d'air	Flux critique	Commentaire
Evenblij et al. (2005)	Tubulaire PVDF 0.03 μm	0	60-120 LMH	Flux transversal de 1 $m.s^{-1}$
Guglielmi et al. (2007)	Planes PES 0.038 μm	0.035 $Nm^3.m^{-2}.h^{-1}$	28 LMH	Paliers de flux de 15 min, flux critique quand $L_p < 90\%L_{p,init}$
Guglielmi et al. (2008)	Planes Kubota PES 0.4 μm	0.5-1 $Nm^3.m^{-2}.h^{-1}$	20 (SADM=0.5) à 30 (SADM=1) LMH	
Tiranuntakul et al. (2011)	Planes Kubota 0.4 μm	NC	9-16 LMH	Test de différentes méthodes de détermination
Wang et al. (2008)	Planes PVDF 0.2 μm	0.3 $m.s^{-1}$ 0.95 $m^3.m^{-2}.h^{-1}$	32-38 LMH	Méthodologie pour la mesure du J_{crit} non décrite
Fan et al. (2006)	HF PVDF 0.04 μm	NC	15-45 LMH	Aération 10/10, relaxation 60s toutes les 10 min, méthode de Ognier et al. (2002)
Farquharson and Zhou (2010)	HF PVDF 0.04 μm	0.5454 $m^3.m^{-2}.h^{-1}$	15 - 35 LMH	méthode de Ognier et al. (2002)
Navaratna and Jegatheesan (2011)	HF PE 0.4 μm	0.03 $m^3.m^{-2}.h^{-1}$	12-50 LMH	Le flux critique diminue à mesure que les MES augmentent (4-10g/L)
Wei et al. (2011)	HF PVDF 0.4 μm	0,48 - 0,69 $m^3.m^{-2}.h^{-1}$	30-35 LMH	Influence des lavages chimiques
Yigit et al. (2009)	HF PVDF 0.04 μm	0.141 $m.s^{-1}$ 2.83 $m^3.m^{-2}.h^{-1}$	25-35 LMH	Flux critique augmente avec la fréquence des rétrolavages

Un premier constat est que les membranes tubulaires qui présentent un fort flux transversal (Evenblij et al., 2005) ont un flux critique plus élevé. On constate aussi une tendance des flux critiques observés sur des membranes planes à être plus faibles que sur des fibres creuses, ce qui est confirmé par une expérience de Guglielmi et al. (2007). Ils ont comparé dans des conditions proches les flux critiques de différents types de

membranes et en tirent les résultats présentés sur la figure I.3.4. On peut expliquer les meilleures performances de fibres creuses par deux hypothèses : la plus grande densité volumique des membranes à fibres creuses conduit à un volume de boue à agiter plus faible à SAD_m équivalent, donc une meilleure utilisation de l'énergie d'agitation apportée par les grosses bulles pour éloigner les particules de la membrane ; la mobilité des fibres creuses et leurs entrechoquement peut aussi favoriser l'éloignement des particules de la membrane.

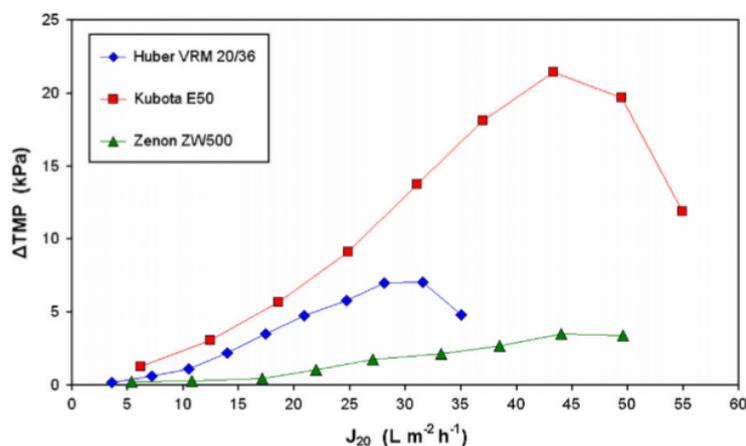


FIGURE I.3.4 – Différence dans le flux critique des différents types de membranes (Guglielmi et al., 2007)

Le débit d'air par mètre carré de membrane semble être un facteur déterminant dans le flux critique. Les valeurs contenues dans le tableau I.3.1, même si elles sont obtenues dans des conditions expérimentales différentes, en attestent. C'est en accord également avec les résultats d'une étude de Chang (2011) ou encore de Guglielmi et al. (2008). Cependant, au delà d'un certain seuil de débit d'aération grosses bulles, on ne constaterait plus d'augmentation du flux critique d'après Verrecht et al. (2008) (figure I.3.5). La concentration en *MES* des boues a aussi un impact négatif sur le flux critique (Navaratna and Jegatheesan, 2011).

I.3.1.2 Influence du flux sur le colmatage long-terme : notion de blocage des pores

Le colmatage long terme des membranes est plus souvent assimilé à un dépôt lent de particules ou d'espèces solubles sur ou dans la membrane. La variable qui a un impact significatif sur ce dépôt est en fait le temps d'exposition des pores multiplié par la concentration en produit colmatant du fluide filtré. Dans les études sur le long terme et en particulier en installations grandeurs réelles, les lavages (fréquence, nature) ont aussi une influence prépondérante sur les évolutions globales de la perméabilité. Alors que le flux joue un rôle dominant dans le colmatage court-terme car il détermine le régime de filtration, l'étude du colmatage long-terme passe avant tout par l'étude du potentiel colmatant des boues. Ce dernier dépend de sa composition d'autres variables opératoires, en lien avec la phase soluble, la capacité d'attachement des particules etc. La partie suivante s'attache donc à établir des relations de cause à effet entre les autres variables opératoires et

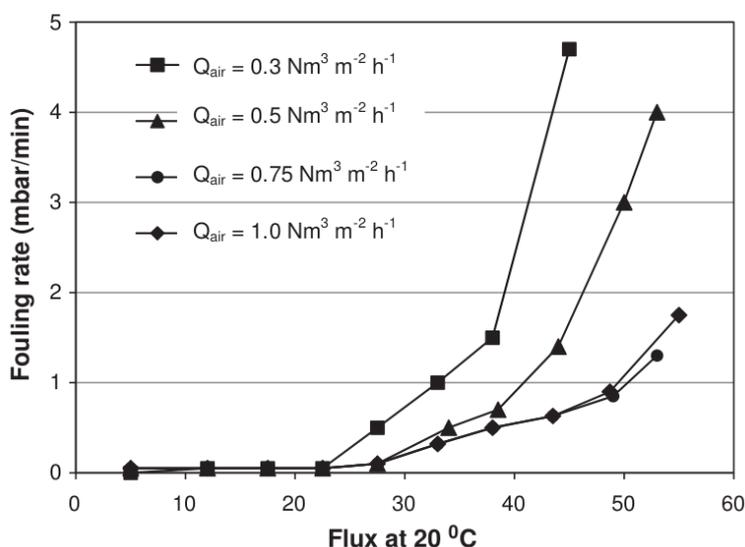


FIGURE I.3.5 – Influence de la vitesse transversale du fluide sur le flux critique selon (Verrecht et al., 2008)

la capacité colmatante des boues.

I.3.2 Influence des conditions opératoires sur le colmatage dans la littérature

La littérature visant à décrire les liens entre les conditions opératoires et le colmatage des membranes est très fournie. Outre le flux membranaire qui joue un rôle direct sur le colmatage, les intermédiaires étudiés qui ont attiré à la composition des boues et aux conditions hydrodynamiques sont nombreux. Cette partie est une revue de littérature à ce sujet. Les différents liens entre conditions opératoires et colmatage des membranes représentés sur la figure I.3.6 seront détaillés, ainsi que les hypothèses avancées dans la littérature pour en décrire les mécanismes.

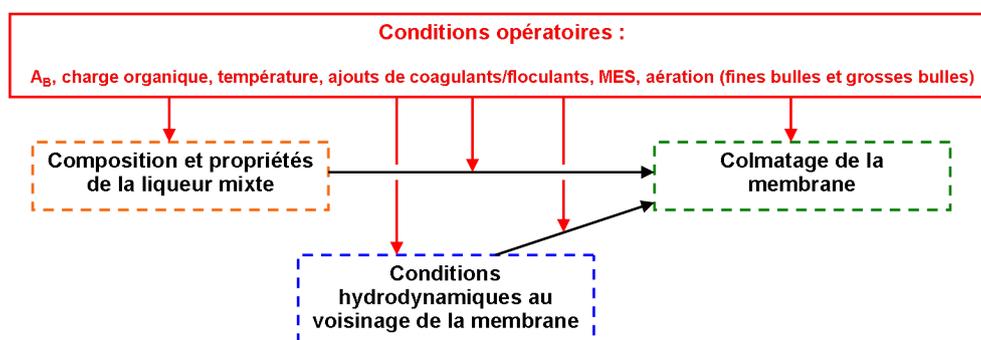


FIGURE I.3.6 – Schéma des interactions globales entre conditions opératoires et colmatage des membranes

Nous verrons dans cette partie que l'âge de boue a une importance primordiale dans un grand nom-

bre d'études sur le colmatage des membranes. Il faut garder à l'esprit que les matières en suspension et la charge massique sont souvent corrélées à cette grandeur. Il est donc en général difficile de dissocier l'influence spécifique de ces 3 variables dans l'étude de leur impact sur les autres variables des boues, hormis dans les rares cas de protocoles dédiés (Hernandez Rojas et al., 2005; Villain and Marrot, 2013). A_B représente en fait souvent une indication sur l'activité de la biomasse (pondération entre croissance et décès bactérien).

I.3.2.1 Influence des conditions opératoires sur les caractéristiques des boues

Les caractéristiques des boues à filtrer, que ce soit la phase soluble, la phase colloïdale ou la phase solide (particules) vont définir la quantité de colmatants potentiels qui vont être confrontés à la membrane. Dans le cadre de cette étude bibliographique, une attention particulière est portée sur la quantité et la qualité des espèces colloïdales, ainsi que sur les caractéristiques de surface des particules, car c'est là que réside le comportement des boues face à la membrane.

Cette partie s'attardera sur l'influence des conditions de fonctionnement sur ces caractéristiques. Dans un premier temps, on commentera l'influence des conditions opératoires sur les caractéristiques biologiques de la biomasse. Ensuite, les exopolymères secrétés par cette biomasse seront décrits sous plusieurs angles (figure I.3.7) :

- les moyens mis en œuvre pour les caractériser
- les concentrations et la nature des polymères attachés aux floccs (EPS)
- leur impact sur la solidité et la taille des floccs
- les exopolymères solubles ou produits microbiens solubles (PMS)

I.3.2.1.1 Biologie des boues

Dans l'étude des boues activées, les bactéries présentes sont souvent classées suivant leur rôle dans la dégradation des composants de l'eau d'entrée : bactéries hétérotrophes, bactéries nitrifiantes (autotrophes) et parfois bactéries déphosphatantes (cf I.1.1). Ce classement présente plusieurs avantages :

- Simplicité pour la modélisation
- On peut quantifier expérimentalement les populations de ces différentes classes, en particulier par des mesures respirométriques
- La connaissance quantifiée de ces différentes classes sert en modélisation pour évaluer les performances épuratoires du procédé

Ce classement ne représente cependant pas la diversité réelle des bactéries présentes, alors que cette diversité peut avoir un impact non négligeable sur les propriétés des boues en terme de dégradation des espèces solubles et colloïdales.

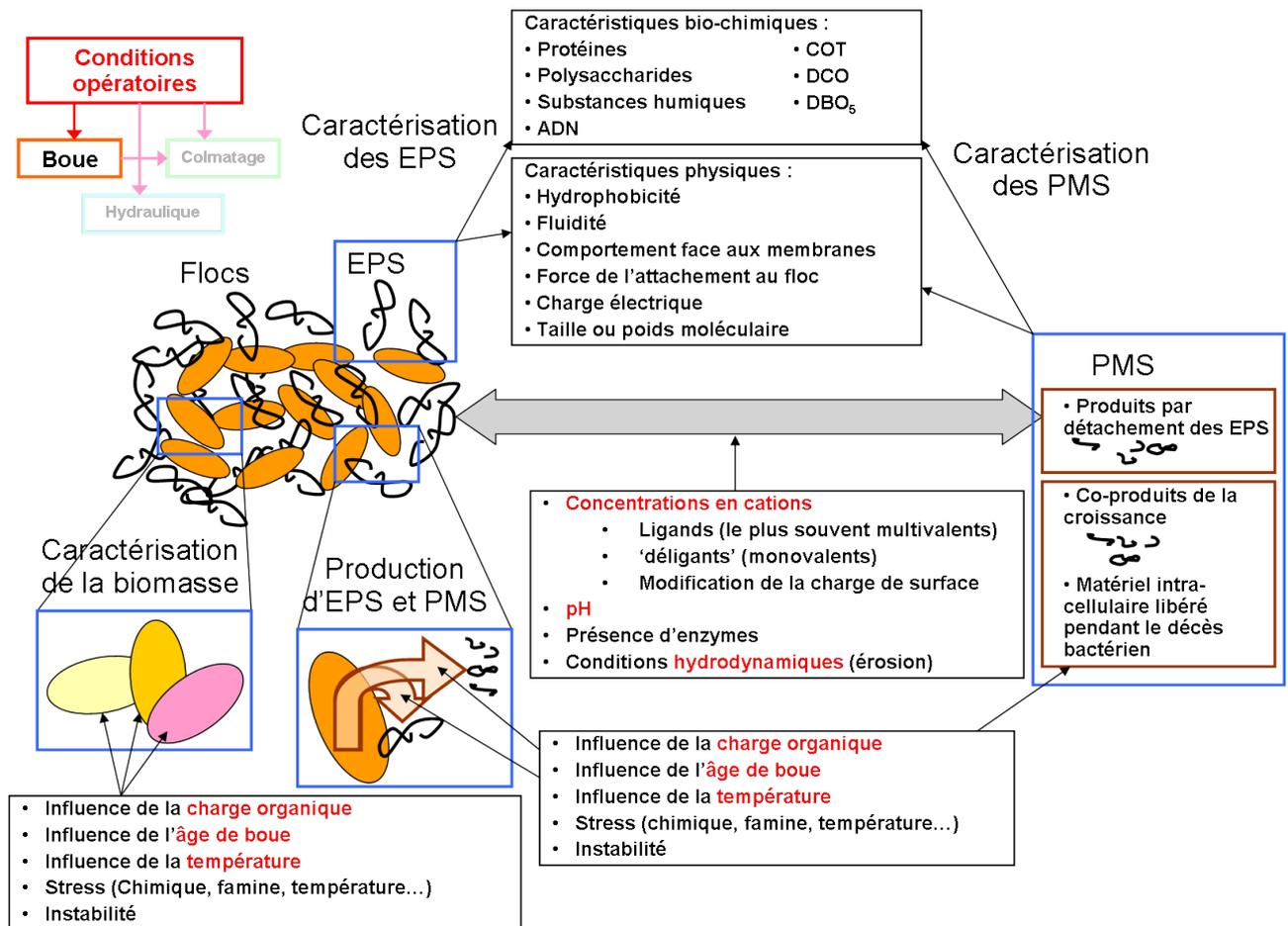


FIGURE I.3.7 – Représentation des différents thèmes abordés dans l'étude de l'influence des conditions opératoires sur les caractéristiques des boues

Influence des variables opératoires sur la diversité de la biomasse Déjà, dans l'étude des boues activées classiques, l'impact de la température, de l'apport en oxygène et de l'âge de boue sur l'équilibre entre différents types de populations (hétérotrophes, autotrophes et suraccumulatrices de phosphates, mais aussi sur les filamenteuses et la microfaune comme les protozoaires) était mis en évidence. En effet, le développement des nitrifiantes se fait dans des gammes spécifiques d'âge de boue et de température. De plus, le développement des déphosphatantes dépend de la fréquence et de la durée des phase d'anaérobiose. A ce sujet les fiches techniques du FNDAE ([Cemagref](#), [Cemagref](#)) donnent des recommandations techniques (en particulier la fiche technique n° 34).

Influence de la diversité de la biomasse sur son pouvoir dégradant Intuitivement, on peut concevoir que plus la diversité des bactéries dans la boue est élevée, plus la diversité des enzymes qu'elles produisent et des espèces chimiques qu'elles consomment est élevée. Plusieurs études appuient cette hypothèse, comme celle de [Malamis and Andreadakis \(2009\)](#), selon laquelle le panel des espèces organiques dégradées et en particulier des plus petits PMS par les bactéries s'accroît avec la diversité des bactéries présentes, alors que les plus gros PMS restent réfractaires. L'augmentation de la diversité bactérienne constatée par [Duan et al. \(2009\)](#) s'accompagne d'une diminution de tous les composants des PMS (protéines, polysaccharides, COT, ADN). [Jang et al. \(2007\)](#), qui ont testé en parallèle un réacteur avec une zone anoxie et sans, trouvent un contenu en DCO de la phase soluble de la boue moins chargé quand il y a dénitrification, donc développement de métabolismes supplémentaires. Pour [Ng and Hermanowicz \(2005\)](#), le développement de bactéries qui ne flocculent pas pourrait favoriser les performances épuratoires de la boue. Ce dernier point a probablement attiré à l'accessibilité des nutriments par les bactéries.

Filaments et protozoaires Outre les bactéries intéressantes pour l'étude de la performance du traitement, on trouve aussi les bactéries filamenteuses, dont l'apparition provoque l'accroissement de la taille et la diminution de la densité des floccs. Ce sont surtout des conditions peu propices pour la biomasse utile qui entraînent leur développement (chocs thermiques, températures basses, choc alcalin, famine...). Le développement de bactéries filamenteuses s'accompagne de l'accroissement de la quantité de PMS produits, sans affecter la concentration en EPS ([Pan et al., 2010](#)). Leur impact sur le colmatage est discuté dans la suite.

I.3.2.1.2 Exopolymères : caractérisation

On peut fractionner les composants de la fraction soluble/colloïdale de la boue suivant plusieurs critères :

- Leur nature, le plus souvent répartie entre une fraction de protéines et une fraction de polysaccharides, mais aussi parfois en substances humiques, ou en acides nucléiques, en DCO ou en COT
- Leur taille, donnée en unité de longueur ; ou leur poids, donné en Dalton (*Da*)
- Leurs caractéristiques physico-chimiques, principalement l'hydrophobicité [Maximous et al. \(2009\)](#)

– Leur mécanismes de synthèse/dégradation, pour la modélisation (UAP, BAP, cf partie I.4.2.3)

La figure I.3.8 synthétise les différentes façons d'obtenir les fractions solubles, attachées au floc et attachées à la membrane de ces exopolymères. Les méthodes de caractérisation de ces fractions y sont aussi représentées.

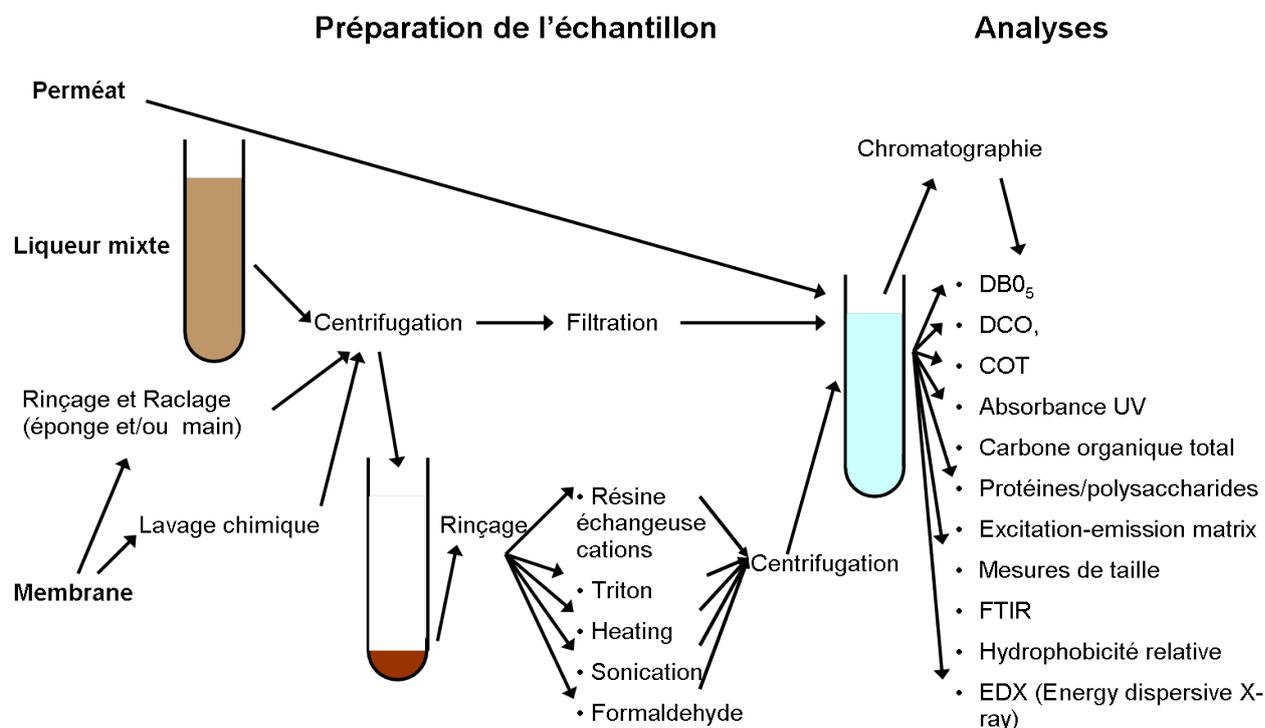


FIGURE I.3.8 – Différents moyens d'obtenir et de caractériser les fractions particulières et solubles des exopolymères

La caractérisation de ces exopolymères comprend trois points méthodologiques cruciaux.

Premièrement, les diverses méthodes de séparation entre la phase particulaire et les phases soluble et colloïdale ne permettent pas de déterminer si l'on compare la même fraction. Dans la grande majorité des cas, une centrifugation (ou quelquefois une décantation) est suivie d'une filtration. Les vitesses et temps de centrifugation, ainsi que les filtres utilisés varient d'une étude à l'autre.

Le perméat de cette filtration est utilisé pour mesurer les PMS. Le culot de la centrifugation est souvent rincé, *ie* re-dilué, mélangé à de l'eau distillée et re-centrifugé pour obtenir les bactéries recouvertes de leur couche d'EPS.

Les méthodes d'extraction consistent à détacher les polymères de la surface de la membrane. Elles peuvent être chimiques (formol, EDTA, résines échangeuses d'ions), avec risques de rupture des parois cellulaires et de création d'interférence avec les analyses (Sheng et al., 2010). Des méthodes thermiques et mécaniques existent aussi. Elles sont moins efficaces mais présentent moins de risques d'interférences Ramdani et al. (2012b). On peut aussi combiner les deux Ras et al. (2008).

Troisièmement, les méthodes d'analyse de la nature et des caractéristiques des colmatants sont assez variées. L'avantage de cela est le large panel d'informations obtenues sur ces polymères. Cependant, l'utilisation de différentes méthodes par les différentes équipes rend la comparaison entre les résultats difficile. On peut analyser seulement les polysaccharides et protéines (voir ci-dessous), mais aussi rechercher d'autres informations, moins quantitatives mais qui révèlent d'autres propriétés. Parmi ces dernières on peut évoquer l'hydrophobicité, les teneurs en différents groupes fonctionnels, les caractéristiques de fluorescence, les profils de taille...

Une attention particulière est portée sur les analyses de protéines et de polysaccharides, car ce sont les mesures les plus abondantes dans la littérature à propos des exopolymères. Pour les polysaccharides, la méthode de [Dubois et al. \(1956\)](#) ou ses dérivées est utilisée (en particulier Anthrone ([Ludwig and Goldberg, 1956](#))). Pour les protéines, la méthode de [Lowry et al. \(1951\)](#) est utilisée ainsi que ses dérivées, en particulier les méthodes de [Bradford \(1976\)](#) ou de [Frolund et al. \(1995\)](#) pour supprimer les interférences dues aux substances humiques. Des kits trouvés dans le commerce à base de BCA (acide bicinchoninique) font également leurs preuves. [Avella et al. \(2010\)](#) montrent que la méthode de Frolund fonctionne pour supprimer les interférences, mais que ses résultats sont fiables au dessus de 50mg/L (valeur élevée dans les échantillons de BRM). Ils préconisent l'usage de kits trouvés dans le commerce pour l'analyse des protéines en dessous de 25 mg/L, en raison de leur bonne sensibilité ainsi que de leur simplicité d'utilisation. Cette gamme est plus adaptée au suivi de la composition des eaux interstitielles des boues activées.

I.3.2.1.3 Surface des bactéries : les exopolymères liés (EPS)

Les EPS sont des substances polymériques synthétisés par les bactéries et qui sont attachées à leur surface. Cette partie détaille les résultats de la littérature concernant l'influence des variables opératoires sur leur concentration globale, puis sur leurs caractéristiques physico-chimiques.

Facteurs influençant la quantité d'EPS L'influence de A_B sur la concentration en EPS a fait l'objet de nombreuses études. La figure [I.3.9](#) regroupe les résultats de plusieurs études. Globalement, l'âge de boue semble avoir un effet négatif sur la concentration des boues en EPS (par exemple chez [Al-Halbouni et al. \(2008\)](#) ou [Cho et al. \(2005\)](#)). La gamme comprise entre 10 et 30 jours semble être celle où la corrélation est la plus forte, alors qu'au delà de 40 jours, la tendance est moins marquée, les valeurs étant plus faibles. Cependant, certaines études semblent déceler des tendances inverses ([Chen et al., 2012](#)).

[Patsios and Karabelas \(2011\)](#) observent une diminution plus forte de la fraction biodégradable (DBO_5) que celle de la concentration totale d'EPS (DCO) entre des A_B de 10 et 20j. La concentration de la DBO_5 continue de décroître jusqu'à un A_B de 40j, alors que la DCO remonte. Les EPS produits à un A_B élevé seraient donc moins dégradables, ou alors il ne resterait que les moins dégradables.

Le rôle de la température dans la concentration en EPS est complexe. Si l'on s'intéresse à l'impact "bi-

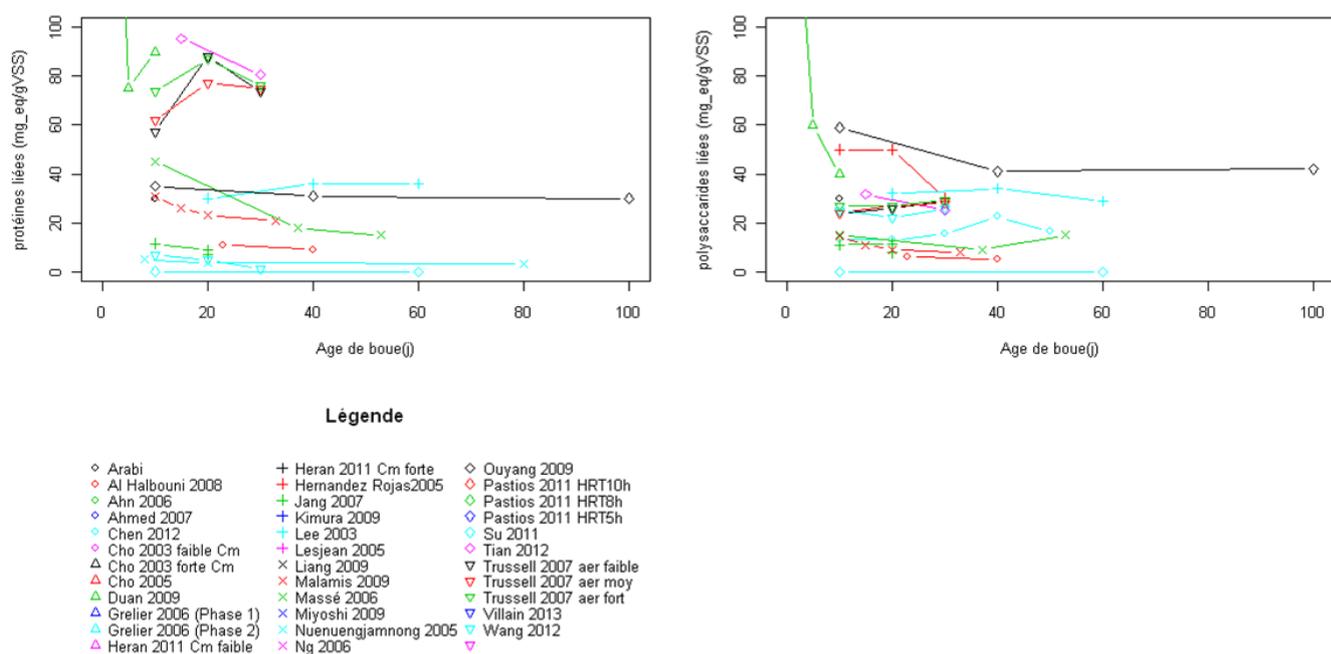


FIGURE I.3.9 – Influence de l'âge de boue sur les concentrations en EPS (protéines et polysaccharides)

ologique" de la température, on peut distinguer plusieurs effets de l'augmentation de la température : les cinétiques de croissance (et de production d'EPS associés à la croissance) augmentent ; les cinétiques de consommation d'EPS si on les considère comme directement biodégradables augmentent (Ramdani et al., 2012a) ; la population bactérienne se diversifie, favorisant ou non la production d'EPS.

On peut aussi appréhender le rôle d'une augmentation de la température d'un point de vue plus chimique : accélération des cinétiques d'hydrolyse (transfert des EPS vers la phase soluble sous l'effet d'enzymes), déplacement du taux de solubilité vers la phase soluble.

La stabilisation de la biomasse joue probablement un rôle important dans la production d'EPS. En effet, une biomasse bien adaptée (A_B élevés et longue stabilisation) semble avoir un impact négatif sur la concentration en EPS (Dvorák et al., 2011).

On peut aussi déceler l'influence des conditions hydrodynamiques sur la concentration en EPS. Selon Menniti et al. (2009), le taux de cisaillement a une influence à court-terme en faveur d'un relargage des EPS sous forme de PMS. Cette tendance s'inverse après acclimatation de la biomasse : les concentrations en EPS et en PMS diminuent avec le taux de cisaillement.

Une hypothèse originale est le développement de protozoaires qui entraîne une érosion plus forte des bactéries (Menniti and Morgenroth, 2010a). Ils suggèrent que la prédation des bactéries par ces protozoaires entraînerait le relargage d'une partie du contenu des cellules dans le surnageant.

Le développement de bactéries filamenteuses peut aussi favoriser une forte production de EPS/PMS. Les causes évoquées seraient l'augmentation de la surface d'échange entre les bactéries et le surnageant, ou l'augmentation de la surface de bactérie recouverte d'EPS qui y est reliée (Tian et al., 2011). Finalement, les filamenteuses se nourrissent plus de matière soluble facilement biodégradable, et non de PMS (Pan et al., 2010).

Facteurs influençant les propriétés physicochimiques des EPS Des éléments de compréhension de ces équilibres biologiques et physicochimiques résident dans la nature des EPS. La nature chimique des EPS produits (protéines/polysaccharides) semble influencée par le rapport DCO/N de l'affluent. En effet, Feng et al. (2012) optent en faveur d'une augmentation de la proportion de protéines quand la fourniture en azote est excédentaire. Les interactions qui en découlent entre EPS entre eux et entre les EPS et le floc sont complexes. Cependant, quelques éléments de la littérature permettent d'avoir une idée plus précise.

Selon Meng et al. (2009), les protéines sont plus propices à se déposer sur les floes et à être dégradées que les polysaccharides. L'auteur suggère que les bactéries, sous l'influence de famine consomment prioritairement les protéines. Ramesh et al. (2007), qui comparent la composition des fractions d'EPS faiblement liés (extraits par ultrasons) et fortement liés (extraits au formol + $NaOH$), observent une absence de protéines dans la fraction fortement attachée au floc.

Les expériences consistant à modifier artificiellement les propriétés de surface des floes par ajouts de cations

métalliques ou de flocculants organiques nous renseignent sur l'influence des charges de surface sur l'équilibre existant entre la fraction soluble (PMS) et la fraction attachées au floc (EPS) des macromolécules présentes dans la boue. Les résultats de [Ji et al. \(2010\)](#) montrent que l'ajout de charges positives oriente cet équilibre vers les EPS, et plus particulièrement dans le cas des ajouts de $FeCl_3$. L'effet de fixation des EPS par le Fer est aussi démontré par [Wang et al. \(2012\)](#), qui constatent une présence de fer beaucoup plus importante dans les EPS liés que dans les PMS solubles. D'autres cations comme des minéraux tels que le calcium ou le magnésium peuvent aussi jouer le rôle de ligands entre les floccs, ou entre floccs et EPS, mais dans des gammes de pH élevées ([Foley, 2006](#)).

I.3.2.1.4 Structure du floc

La floculation semble être un des paramètres importants dans le comportement des floccs face aux turbulences et avec la membrane. L'état de floculation peut être caractérisé par différents indicateurs de compacité et de solidité, mais plus souvent par la taille des floccs. La figure I.3.10 donne un aperçu de l'influence des variables opératoires sur la taille et la structure des floccs, avec comme intermédiaires les EPS. Cette partie présente une revue de littérature à ce sujet.

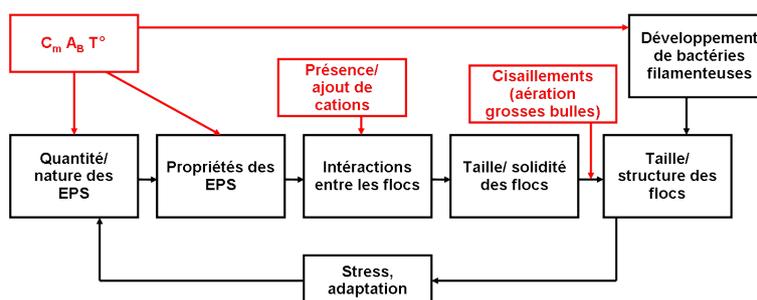


FIGURE I.3.10 – Influence des variables opératoires sur la taille et la structure des floccs

Compacité, solidité et taille des floccs Plusieurs méthodes ont été mises au point pour mesurer la taille et la compacité des floccs. Pour la taille, les appareils se basant sur la diffraction de rayons lasers sont les plus couramment utilisés. Pour évaluer la compacité des floccs, on peut relever des méthodes d'analyse d'images, qui sur la base de photos des floccs, permettent d'établir un rapport surface/volume ([Van den Broeck et al., 2012](#)), un facteur d'élongation ou de rondeur, ou encore un facteur associé aux bactéries filamenteuses ([Tian et al., 2011](#)). A cela s'ajoutent les indicateurs de floculation classique comme les indices de boue. On trouve aussi une méthode consistant à mesurer la quantité de particules primaires (de la taille d'une bactérie) détachées des floccs par des forts taux de cisaillement ([Tian and Su, 2012](#)), pour donner une indication de la solidité des floccs.

Une augmentation de A_B semble solidifier et compacter les floccs : selon [Tian and Su \(2012\)](#), la quantité de particules primaires contenue dans la boue soumise à un fort taux de cisaillement ($800s^{-1}$) pendant 5h

passé de $0.075g.L^{-1}$ pour un A_B de 30j à $0.135g.L^{-1}$ pour un SRT de 15j. Van den Broeck et al. (2012) constatent ainsi une diminution du rapport surface/volume des floccs avec l'augmentation de A_B entre 10 et 50j. Cependant, ce dernier constat n'est pas unanime : Masse et al. (2006) constatent une plus grande concentration en bactéries isolées à long âge de boue. L'effet de A_B sur la taille des floccs est plus controversé. Plusieurs études constatent une corrélation négative entre A_B et taille (Huyskens et al., 2011; Masse et al., 2006; Ouyang and Liu, 2009; Su et al., 2011). Une hypothèse souvent mise en avant est la diminution de la quantité d'EPS quand A_B augmente. Par exemple, Hasan et al. (2012) constatent un impact significatif de la concentration en PMS (en particulier des protéines) sur la taille des floccs. Cependant, on trouve dans d'autres études une relation inverse entre taille des particules et A_B (Lee et al., 2003; Wang et al., 2012; Huang et al., 2001; Ahmed et al., 2007). Cette influence de l'âge de boue est parfois liée à la propension des bactéries filamenteuses à se développer plus facilement quand l'âge de boue est faible.

Pour Van den Brink et al. (2011), une augmentation de la température serait liée à l'augmentation de la taille des floccs, mais cette corrélation ne serait valable qu'après une longue stabilisation à température constante. En effet des variations de température provoqueraient une diminution de la floculation. Il faut donc opérer dans des conditions de températures stabilisées pour pouvoir déterminer précisément l'impact de la température sur la taille des floccs. Van den Broeck et al. (2012) constatent également un effet positif de la température sur la floculation (en se basant sur le rapport surface/volume).

La taille et la solidité des floccs peut aussi être mise à l'épreuve par les forces de cisaillement (figure I.3.10), dont l'effet peut être catégorisé en deux phénomènes : un rapide, qui est le cassage des floccs par des contraintes exercées au niveau des liaisons faibles entre les bactéries, et un lent, qui serait l'érosion des floccs (Stricot et al., 2010).

Les concentrations en cations joueraient aussi un rôle important sur la taille des particules. La littérature est unanime sur le rôle des cations multivalents dans l'accroissement de la taille des floccs (p. ex Ca^{2+} et Mg^{2+} (Arabi and Nakhla, 2009; Pan et al., 2010), ou Fe^{3+} et Al^{3+} (Guo et al., 2010; Fan et al., 2006; Ji et al., 2010; Mishima and Nakajima, 2009; Song et al., 2008; Wang et al., 2012)). Ils participeraient à la neutralisation des charges de surface (potentiel ζ) (Ji et al., 2010) et favoriseraient ainsi le rapprochement des floccs. Ce phénomène est réversible à trop fortes doses. De plus, ils créeraient des ponts entre les molécules situées à la surface des bactéries, favorisant un accroissement de la taille des particules et une plus grande solidité et compacité. Cependant, les cations monovalents (p. ex Na^+) participeraient à sa diminution en prenant la place de ces ponts (Arabi and Nakhla, 2009).

I.3.2.1.5 Phase soluble et colloïdale (PMS)

Cette partie décrit les caractéristiques (concentration, nature, propriétés physico-chimiques) de la phase soluble et colloïdale. L'approche adoptée ici est orientée vers l'influence des conditions opératoires sur ces caractéristiques. Nous commencerons par des généralités concernant la provenance des PMS et leur devenir.

Nous aborderons ensuite les liens proposés dans la littérature entre cette provenance et la nature des PMS (protéines/ polysaccharides/ substances humiques). Nous tenterons d'ajouter à ces conclusions la taille et l'hydrophobicité des PMS, afin d'obtenir une cartographie des liens entre les modes de production et les propriétés des PMS qui rentreront en compte dans leur pouvoir colmatant (cf 1.3.2.5). Puis nous ferons un point des résultats de la modélisation à ce sujet.

Tout au long de cette partie, l'influence des conditions opératoires sera évoquée aux moments opportuns.

Mode de production des PMS : séparation en différentes classes Un inventaire des phénomènes supposés influents sur la production et de la dégradation des PMS nous permettra de tirer des conclusions concernant l'influence des variables opératoires sur les concentrations en PMS. On peut citer trois phénomènes couramment évoqués (cf figure 1.3.11) :

- La lyse des cellules lors de leur décès, au cours de laquelle une partie du matériel contenu à la surface et à l'intérieur des bactéries est solubilisé dans le surnageant. Ces PMS seront notés BAP_L (Biomass Associated Products from Lysis).
- La solubilisation d'EPS situés à la surface des bactéries, par hydrolyse, désorption et/ou érosion (Patsios and Karabelas, 2011; Meng et al., 2006). Ces PMS seront appelés BAP_E (Biomass Associated Products from EPS hydrolysis/dissolution).
- La production de PMS directement pendant la croissance (UAP, pour Utilization Associated Products). Ce mécanisme a été décrit à plusieurs reprises, et les études détaillées distinguent deux étapes : la production de blocs élémentaires (300-500Da) biodégradables facilement, puis la formation de biopolymères (souvent $>10kDa$) plus réfractaires et plus à même d'être retenus dans le surnageant des boues par les membranes (Jiang et al., 2010)

Les PMS issus des deux premiers mécanismes sont le plus souvent appelés BAP, sans être distingués. Cependant, certaines études exploratoires (Ramesh et al., 2007) et quelques modèles (Ni et al., 2009, 2010) prennent soin de les dissocier. Leur distinction d'un point de vue expérimental est cependant complexe, car une partie des produits de la lyse cellulaire provient de la surface de la membrane, et est donc composée d'EPS.

Ces mécanismes de production de PMS sont contrebalancés par les différents mécanismes qui régissent le devenir des PMS. Parmi eux, ceux qui sont représentés dans la littérature sont (cf figure 1.3.11) :

- Le passage à travers la membrane.
- Hydrolyse des PMS. Ce phénomène se traduit par un déplacement des profils de taille moléculaire vers les plus petites et moins réfractaire.
- Utilisation des PMS comme substrat de croissance de la biomasse, ou stockage par la biomasse. Ce phénomène serait valable uniquement pour les plus petits PMS.
- Attachement à la surface des membranes cellulaires, c'est-à dire transformation des PMS en EPS (donc en MES).

Les deux derniers mécanismes se traduisent par un accroissement de la concentration en MES, avec un accroissement de l'activité bactérienne dans le cas du troisième.

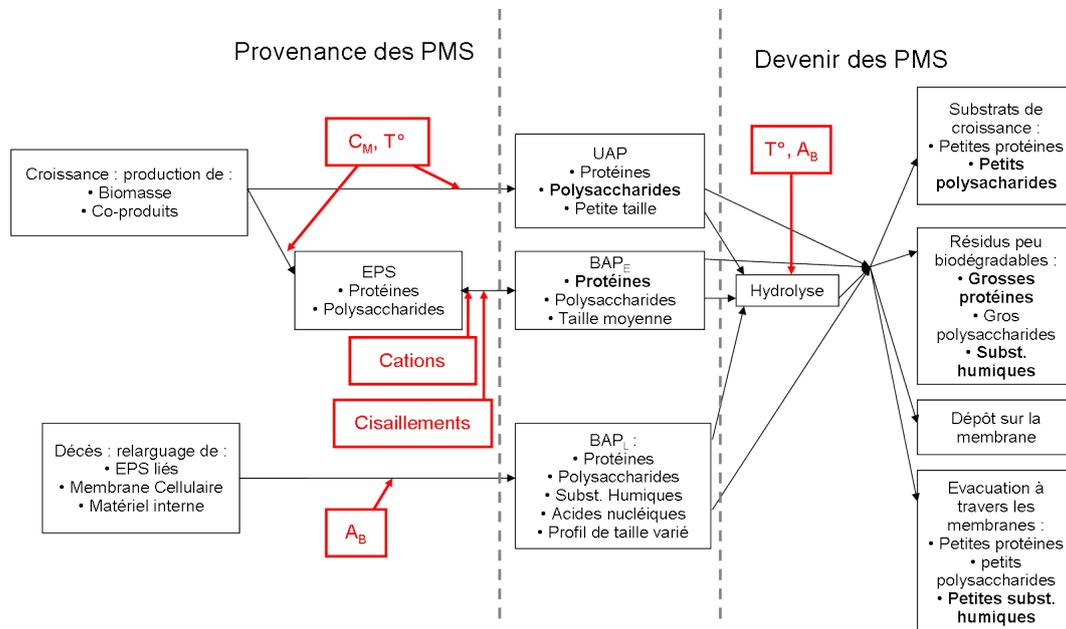


FIGURE I.3.11 – Provenance et devenir des PMS dans les boues, les mots en gras correspondent aux principales tendances identifiées

Concentration globale des PMS L'impact des conditions opératoires sur les concentrations en PMS est un sujet très discuté dans la littérature.

L'âge de boue a une influence sur les concentrations en PMS. La figure I.3.12 rassemble les résultats à ce sujet de plusieurs études. Certains de ces résultats sont extrapolés à partir de graphes d'évolution de concentration, ou recalculés dans les unités adéquates à partir d'autres données (MES , MVS ...). Ces données sont donc peu fiables, mais le message à retenir est la tendance visible sur chaque étude.

Deux des résultats qui contrastent avec la tendance à la baisse des concentrations en PMS consécutive à l'allongement de A_B proviennent des études de Villain and Marrot (2013) et de Hernandez Rojas et al. (2005). Ce sont les seules études au cours desquelles la charge massique C_M reste constant à A_B variable. La diminution de la concentration en PMS consécutive à l'augmentation de l'âge de boue serait donc plus liée à la diminution de C_M . Quand C_M diminue, la biomasse, pour minimiser la diminution de son taux de croissance, serait amenée à élargir la gamme de produits qu'elle consomme, ou augmenter l'efficacité de sa consommation en diminuant la quantité de co-produits.

De plus les PMS produits à longs âges de boues seraient moins biodégradables : Patsios and Karabelas (2011) constatent une chute du rapport DBO_5/DCO du surnageant quand A_B augmente.

Cependant, il est difficile d'étudier l'impact de A_B du fait des très longs temps de stabilisation de la

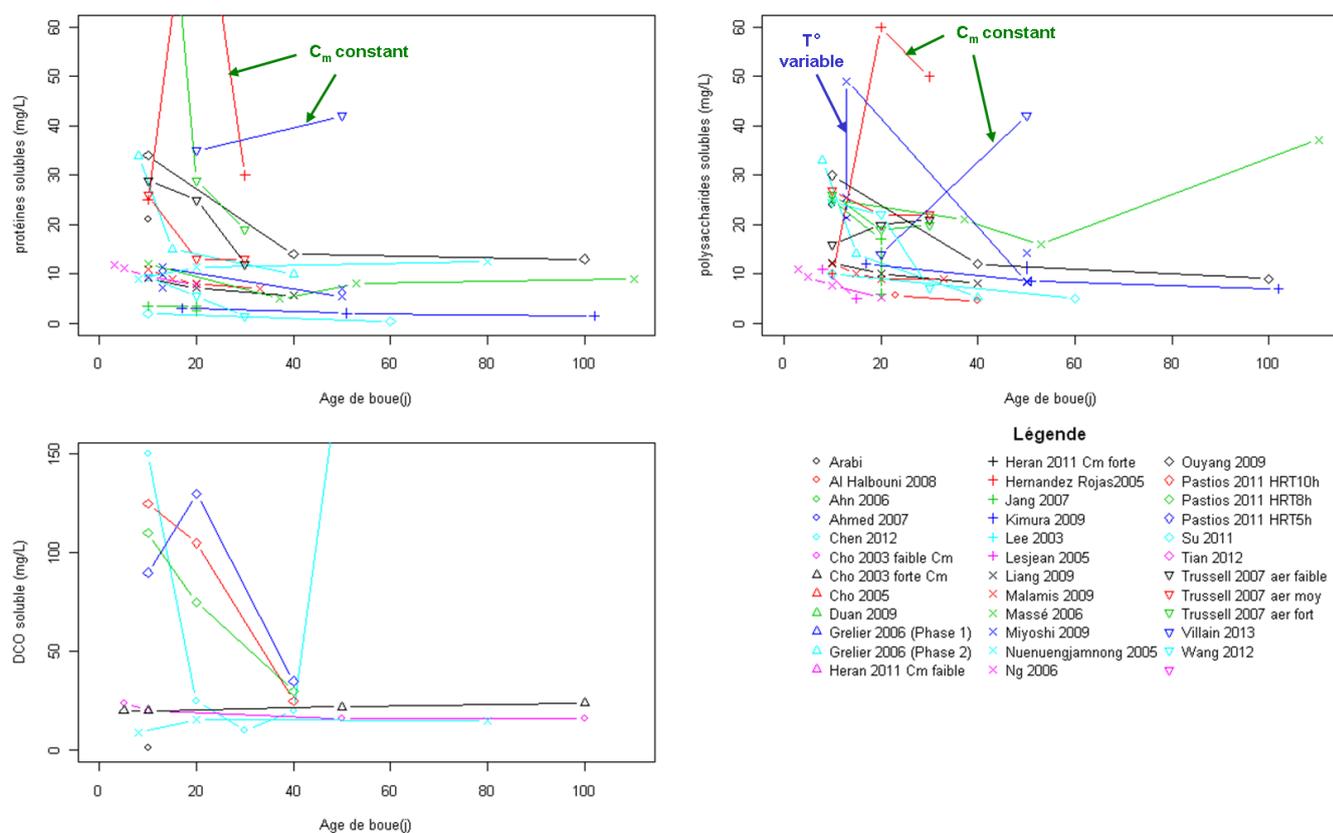


FIGURE I.3.12 – Influence de l'âge de boue sur les concentrations en PMS (protéines, polysaccharides, et DCO du surnageant)

biomasse, et de mise en place des mécanismes de dégradation, hydrolyse et adaptation aux cisaillements. Par exemple, [Shin and Kang \(2003\)](#) montrent une diminution progressive de la quantité de PMS dans la boue pendant une stabilisation (MES quasi-constant) de la biomasse pendant plus de 100j

Pour mieux appréhender les évolutions des concentrations en PMS, il est donc nécessaire de chercher plus profondément dans les causes de leur production/disparition et la composition et les propriétés des PMS qui en résultent. De plus, la concentration globale en PMS ne suffit pas à expliquer le pouvoir colmatant du surnageant des boues : en attestent de nombreux résultats expérimentaux (cf [I.3.2.5](#)). Les paragraphes suivants tentent une approche plus approfondie des caractéristiques des PMS.

Nature des PMS Les PMS sont souvent quantifiés en termes de protéines et de polysaccharides. A cela viennent parfois s'ajouter les substances humiques, et plus rarement, les acides nucléiques, les acides fulviques (surtout en ce qui concerne les BAP_L), et l'ADN ([Bin et al., 2008](#)). On retrouve aussi des quantifications plus globales, comme la mesure de DCO ou COT.

Les protéines et les polysaccharides sont souvent cités quand on parle d'UAP et d'EPS, puis par voie de conséquence de BAP_E . Les BAP_L semblent être plus un mélange de protéines et de substances humiques ([Tian et al., 2010](#)), bien que les polysaccharides soient présents, peut-être du fait de la présence des EPS liés aux bactéries décédées. L'érosion des floccs semble jouer un rôle important dans la concentration en protéines, alors que les polysaccharides sont peu influencés par les cisaillements ([Tang et al., 2010](#); [Menniti et al., 2009](#); [Stricot et al., 2010](#); [Ramesh et al., 2007](#)). Les liens qui lient les polysaccharides à la paroi cellulaire seraient donc plus difficiles à rompre que pour les protéines.

Les cinétiques de dégradation des PMS varieraient suivant leur nature. D'après [Drews et al. \(2007\)](#), les polysaccharides sont dégradés plus rapidement que les protéines, et en général, les PMS sont mieux dégradés quand la concentration en oxygène dissous est élevée. Cette différence de vitesse de dégradation peut être reliée à la disponibilité de l'oxygène : d'après [Ramdani et al. \(2012a\)](#), un régime d'aérobiose prolongée rendrait les polysaccharides plus réfractaires que les protéines, et inversement en régime d'aération intermittente.

La température semble avoir un impact négatif plus important sur la concentration en polysaccharides que sur la concentration en protéines ([Miyoshi et al., 2009](#)). Cela va dans le sens de la prédominance des polysaccharides dans les UAP et des protéines dans les BAP_E .

Ainsi, l'hypothèse selon laquelle les UAP (plus produits à fortes C_M) sont plus concentrés en polysaccharides et les BAP (plus produits à forts A_B) sont plus concentrés en protéines, expliquerait que la diminution des polysaccharides est plus fortement corrélée avec l'âge de boue que celle des protéines ([Malamis and Andreadakis, 2009](#)).

Taille des PMS Si l'on cherche à relier la taille des PMS avec leur provenance, un constat assez courant est la plus grande taille des BAP issus de la lyse cellulaire, suivis des BAP issus de l'hydrolyse des EPS puis

des UAP. Par exemple, Ni *et al.* (2010) montrent que la plupart des UAP ont une taille inférieure à 290kDa. La plupart des BAP produits par hydrolyse des EPS ont une taille autour de 1000kDa, et les BAP produits pendant le décès cellulaire font autour de 4500kDa. Même si ces tailles sont hors-normes par rapport à la majorité des autres études, leurs comparaisons entre elles montrent que l'on peut définir des caractéristiques propres à chaque classe.

Si l'on cherche à relier la taille des PMS avec leur nature, on constate une tendance dans la littérature : les protéines sont souvent représentées dans des gammes de tailles hautes (>10 ou 100kDa (Shen *et al.*, 2012)). Les polysaccharides présentent aussi une forte proportion dans des gammes de taille hautes, mais leur distribution a plusieurs fois été décrite comme bimodale (<1kDa et >100kDa) (Shen *et al.*, 2012; Malamis and Andreadakis, 2009; Arabi and Nakhla, 2010). Cette bimodalité pourrait provenir du fait que les petits polysaccharides seraient plutôt des UAP, et les plus gros seraient plutôt issus des EPS. Quand aux substances humiques, elles présentent un profil de taille plus faible (la proportion de SH dont la taille est <1 ou 5 kDa est souvent majoritaire) (Jiang *et al.*, 2007; Rosenberger *et al.*, 2005; Meng *et al.*, 2011). Cela correspond aux résultats de Dvorák *et al.* (2011), qui constatent que les PMS trouvés dans l'effluent sont surtout composés de substances humiques.

La figure I.3.13 montre quelques résultats trouvés dans la littérature au sujet de la taille des PMS.

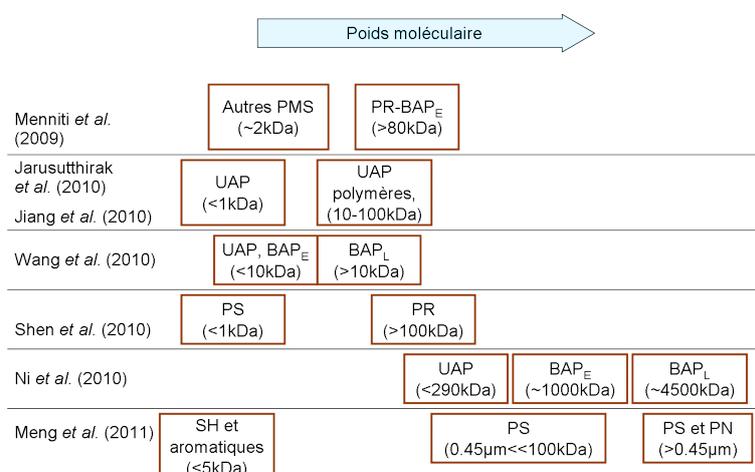


FIGURE I.3.13 – Taille de PMS dans quelques études. Ce schéma représente des tendances peu précises.

Une expérience en SBR intéressante montre que les petites molécules de l'affluent (<1kDa) disparaissent progressivement au profit de molécules plus grosses (entre 10 et 100kDa) (Jarusutthirak and Amy, 2006). D'après cette étude, pendant les deux premières heures d'opération, les molécules de l'affluent (glucose, 0.18kDa) sont transformées en intermédiaires (UAP) autour de 0.3kDa. Pendant les 9h qui suivent, cette fraction est progressivement remplacée par une fraction de larges composés organiques (entre 10 et 100kDa). On retrouve des résultats similaires dans l'étude de Jiang *et al.* (2010).

Peu de moyens existent pour relier les conditions opératoires à la taille des PMS. Cependant, on peut

émettre certaines hypothèses :

- L'effet d'une augmentation de A_B peut aller d'une part dans le sens d'une hydrolyse plus poussée des PMS, ce qui ferait diminuer leur profil de taille. D'autre part, l'augmentation de A_B peut faire augmenter la proportion de BAP_L , ce qui va dans le sens d'une augmentation des concentrations de gros PMS réfractaires, et de petits PMS réfractaires.
- L'augmentation de la disponibilité en oxygène peut favoriser l'hydrolyse des PMS, ce qui va dans le sens d'une diminution de leur taille.
- L'augmentation de C_M favorise la production d'UAP, qui sont probablement plus petits que les BAP.
- La concentration en BAP_E , de taille plutôt élevée, augmenterait quand les forces de cisaillement sont plus importantes.

Pour mieux comprendre l'influence des conditions opératoires sur les PMS, on peut aussi extrapoler les résultats d'études soumettant les boues à des stress. Wang and Zhang (2010), qui ont observé la concentration en PMS et leurs caractéristiques (taille, nature) quand les bactéries étaient soumises à différents types de stress, concluent que la famine conduit à une moins forte production de PMS, qui sont dans une petite gamme de tailles et surtout protéines. De plus, des conditions de stress thermique ($T^\circ = 55^\circ C$) conduisent à la production de petits acides humiques. A cette température, le décès des bactéries doit être prépondérant. Une forte concentration en sels conduit à une production de protéines hydrophobes, probablement pour renforcer la surface des membranes contre une forte pression osmotique.

Hydrophobicité des PMS Les propriétés d'interactions physicochimiques des PMS (hydrophobicité, acidité, charge) dépendraient de leur nature ainsi que de la présence (naturellement ou par ajouts) de cations.

En général, les études qui fractionnent les PMS suivant ces critères classent la plupart des polysaccharides dans la catégorie hydrophiles neutres, tandis que les protéines sont réparties plus équitablement dans des fractions hydrophiles/hydrophobes, chargées ou non (Shen et al., 2012; Tang et al., 2010). D'après cette dernière étude, les hydrophiles neutres présenteraient un profil de taille plus élevé (>10kDa) et seraient plus colmatants, alors que les composés hydrophiles chargés (substances humiques?) seraient des plus petites molécules.

En général, les potentiels ζ mesurés dans les boues de BRMs sont négatifs. L'introduction de cations positifs conduirait donc à la neutralisation des particules et colloïdes présents dans la boue. Kim and Jang (2006) montrent également que la concentration en calcium fait diminuer l'hydrophobicité des polysaccharides et des protéines. Cette neutralisation favoriserait le rapprochement de ces constituants. Cela correspond aux résultats de Katsoufidou et al. (2005), pour qui la concentration en ions Ca^{2+} fait augmenter la taille des PMS. Les molécules entre 30 et 100 kDa deviennent des >100kDa.

Des conditions de stress (température élevée, $CrCl_3$, famine), conduiraient à un relargage accru de composés hydrophiles (Wang and Zhang, 2010).

Positionnement des modèles de PMS Une étude de modélisation prenant en compte les cinétiques de production/dégradation des PMS, semble en accord avec une diminution de la concentration en PMS entre des A_B de 10 et 40j, puis une stabilisation voire un léger accroissement de la quantité globale au delà de 40j (Tian et al., 2010). Le même type de résultats est obtenu par Jiang et al. (2008) avec un modèle ASM2d+UAP+BAP. Cependant, les valeurs de A_B qui minimisent la concentration en PMS diffèrent suivant les études : alors que les premières études (Rittmann et al. 1987 ; Pribyl et al 1997) trouvent des valeurs optimales faibles (2 et 5-15j), Tian et al. (2010) trouvent respectivement 40j. Ce qui est encourageant car un A_B inférieur à 10j défavorise le développement des nitrifiantes. Une autre étude de modélisation prenant en compte la dépendance à l'âge de boue de la dégradation lente des produits endogènes (que l'on pourrait assimiler aux EPS ou BAP_L) confirme ces travaux (Spérandio et al., 2013).

D'après Mannina et al. (2011) (étude de modélisation), la dégradation (hydrolyse) des BAP est beaucoup plus lente que celle des UAP ($k_{hyd,BAP} = 0.0112$ et $k_{hyd,UAP} = 0.128$), de même pour Jiang et al. (2008) ($k_{hyd,BAP} = 7.4 \cdot 10^{-7}$ et $k_{hyd,UAP} = 0.0102$). Cela va dans le sens des constats effectués sur la taille et la dégradabilité des PMS.

Cependant, les modèles ne prédisent qu'une ou deux valeurs concernant les PMS : le contenu en DCO des PMS ou des UAP et BAP. Il n'y a que très peu de moyens d'en extrapoler des informations sur la nature, la taille, les propriétés hydrophiles. Cela diminue fortement leur intérêt pour la prédiction de leur pouvoir colmatant.

I.3.2.1.6 Grosses particules (>1mm) et filasses

On peut avoir une accumulation progressive et localisée de bouchons constitués de filasses et de particules. Cette accumulation se fait dans les zones mortes (où les mouvements des fluides sont faibles) (Heran et al., 2012), dont la localisation dépend de la configuration des membranes. La figure I.3.14 montre un exemple de filasses déposées. Ce type de colmatage peut entraver la bonne circulation des grosses bulles et de la boue, mais affecte seulement une partie réduite de la surface de la membrane.



FIGURE I.3.14 – Filasses accumulées en haut d'un module de filtration, prises en photo au début d'un lavage de régénération

Cependant, la réflexion sur ce sujet existe, et des études comme celles de Schier et al. (2009) proposent des solutions. Par exemple, le déplacement des tamis entre les bassins biologiques (où se forment des agglomérats de filasses à cause des turbulences) et les cellules membranaires. Les concentrations en grosses particules (supérieures à 4mm) semblent corrélées avec la dégradation de la filtrabilité long-terme en installations membranes planes tailles réelles (Stefanski et al., 2011), alors que la concentration en MES classiques l'est moins (voire pas du tout). Une technologie utilisée est le "découpage" des résidus de tamisage, puis leur réintroduction en tête de file (avant le tamisage). Cette méthode, bien que bénéfique pour diminuer la production globale de boues de la station, semble favoriser la formation de grosses particules, puis le colmatage à long-terme des membranes. Comme il est dépendant du prétraitement (essentiellement maillage et efficacité des tamis) ou de l'affluent (présence de grandes quantités de cellulose de papier ou de vêtements etc) on ne peut pas conclure de généralités à son sujet.

I.3.2.2 Influence des conditions opératoires sur les conditions hydrodynamiques au voisinage des membranes

En plus des filasses et grosses particules qui peuvent limiter la surface des membranes agitée par l'aération grosses bulles, l'efficacité des turbulences est affectée par la viscosité des boues. En plus de l'impact de la température (cf III.1.2.1.1) les MES entrent en compte dans le calcul de la viscosité des boues. Les relations trouvées de façon empirique sont généralement exponentielles (Delrue et al., 2011; Reid et al., 2008) (figure I.3.15). Au vu de la dispersion des résultats sur ces graphes, la concentration en MES ne suffit pas pour quantifier l'impact de la composition des boues sur la viscosité. D'après Tixier et al. (2003), la structure et la taille des floccs, ainsi que la composition du surnageant auraient aussi une importance.

Les gammes de MES en vigueur dans les installations à fibres creuses sont inférieures à 10g/L, ce qui limite les valeurs de viscosité pour lesquelles l'efficacité de l'aération grosses bulles est remise en cause.

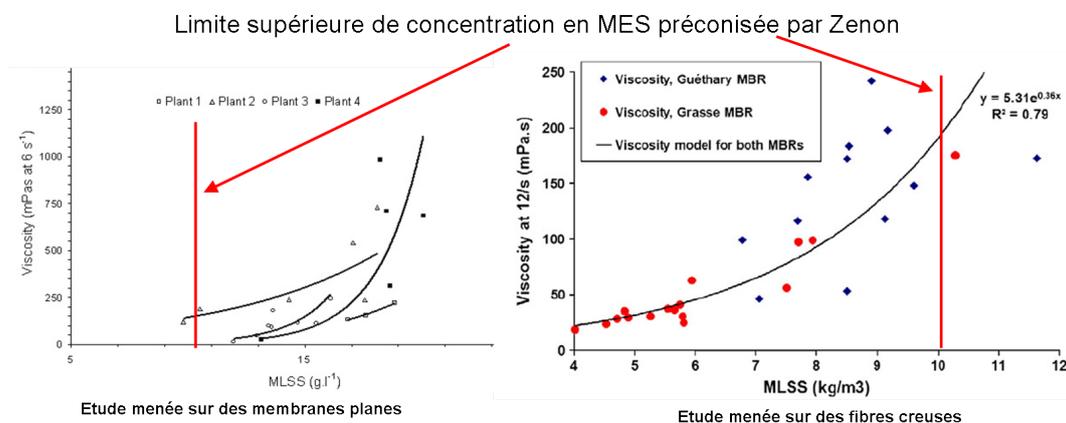


FIGURE I.3.15 – Résultats d'études de l'impact des MES sur la viscosité sur des installations grandeur réelle (Delrue et al., 2011; Reid et al., 2008)

Les forces de cisaillement au voisinage de la membrane peuvent être calculées par des formules empiriques prenant en compte le débit d'aération, la configuration du bassin, la densité de la boue et les *MES* (Delgado et al., 2008; Tian et al., 2011).

I.3.2.3 Caractérisation du colmatage

Les effets de chaque variable opératoire (J , A_B , C_M , T° ...) sur le colmatage sont multiples et parfois contradictoires. L'étude des interactions entre les caractéristiques des boues et la membrane aide donc à l'étude du colmatage. Dans cette partie, nous commencerons par faire un inventaire des différentes méthodes de caractérisation du colmatage (figure I.3.16), puis nous verrons dans les deux parties suivantes l'impact de la phase particulaire et de la phase soluble et colloïdale sur le colmatage.

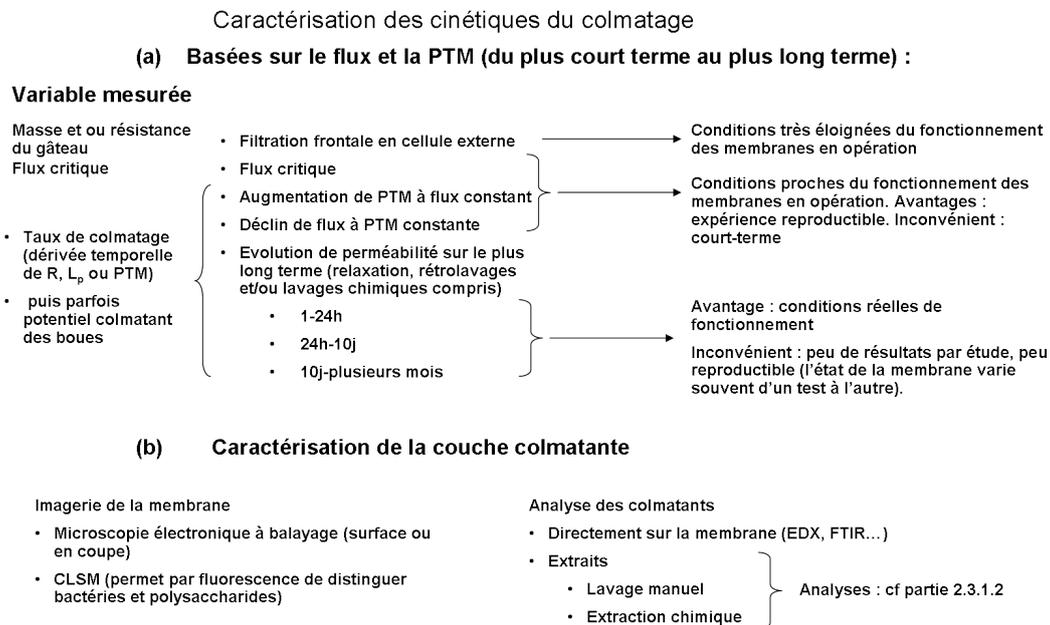


FIGURE I.3.16 – Différents moyens de caractériser le colmatage des membranes

Les caractéristiques des boues (autant de la phase particulaire que de la phase soluble) ont des influences distinctes sur les taux de colmatage court-terme (typiquement la quantité de gâteau déposée et sa résistance spécifique) et long terme (la résistance liée à l'accumulation sur/dans la membrane de molécules colmatantes). La figure I.3.17 résume l'influence des différentes caractéristiques des boues sur les différents types de colmatage.

I.3.2.3.1 Méthodes d'observation

Certains laboratoires ont développé et utilisé des méthodes d'observation directe de la couche colmatante (Meng et al., 2010, 2011; Hwang et al., 2012; Shen et al., 2010; Le-Clech et al., 2007; Bin et al., 2008; Yang et al., 2011). Les images de membranes colmatées comparées à la membrane vierge montrent la plupart

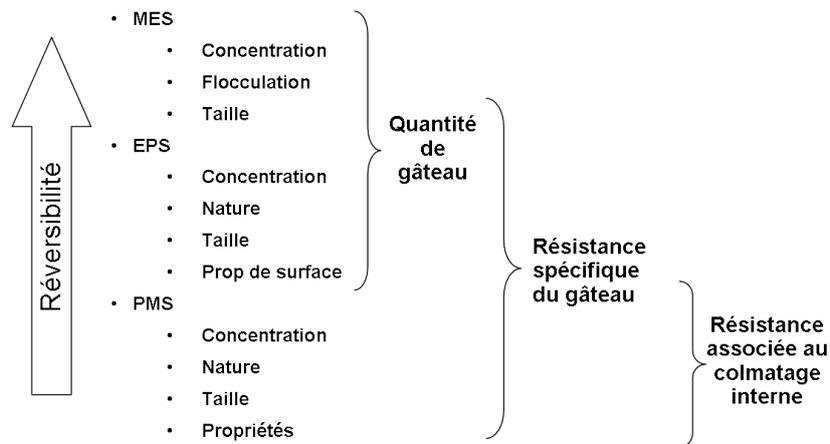


FIGURE I.3.17 – Influence des différentes phases sur les différents types de colmatage

du temps une couche compacte et relativement lisse, parsemée de bactéries plus ou moins isolées, et parfois fissurée (cf figure I.3.18). Les images CLSM permettent de distinguer les microorganismes des polysaccharides, mais ne permettent pas de visualiser les protéines.

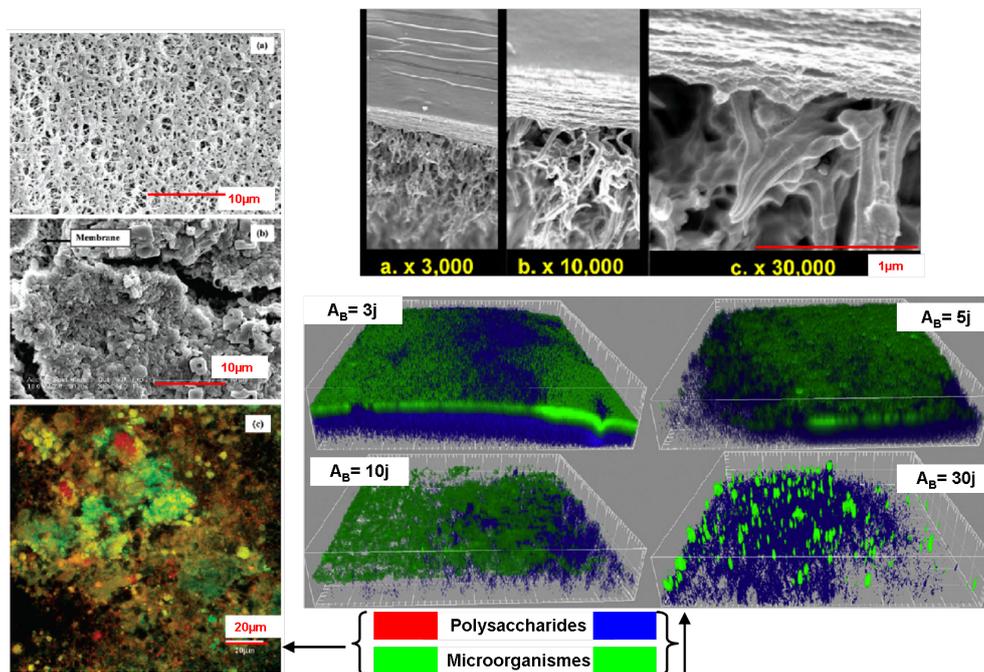


FIGURE I.3.18 – Exemples d’images de microscopie des membranes. En haut à droite (Le-Clech et al., 2007), des vues en coupe d’une membrane et sa couche colmatante de polysaccharides. En bas à droite quatre images CLSM 3D de membranes colmatées par des boues de différents âges (Sweity et al., 2011). A gauche Ng et al. (2006) mettent en évidence un biofilm fissuré ($A_B = 3j$).

Cette structure (matrice d’exopolymères parsemés de bactéries) est très courante (Yang et al., 2011). D’autres images CLSM 3D d’une membrane en cours de colmatage montrent que la couche la plus proche de

la membrane est de plus en plus riche en polysaccharides, alors que les bactéries ont une "préférence" pour la surface de la couche colmatante (Hwang et al., 2012). Le-Clech et al. (2007), montrent grâce à des images en coupe de membranes colmatées que des amas de polysaccharides se forment au début à l'intérieur de la membrane, puis que la couche colmatante s'étend au fur et à mesure par fines couches successives à la surface de la membrane.

Ces images sont un complément d'information important pour la compréhension des mécanismes de dépôt, car elles donnent un aperçu de la modification de sa rugosité, de son uniformité à petite échelle. L'information peut encore être accompagnée d'analyses in-situ ou externes de résidus de lavages des membranes.

I.3.2.3.2 Analyse des substances déposées sur la membrane

Certaines études prennent soin d'analyser les espèces chimiques déposées sur la membrane. Ces mesures prennent une tournure très intéressante quand elles apportent un regard nouveau sur un problème très controversé : la participation des protéines et des polysaccharides dans le colmatage des membranes.

Dans l'étude de Ng and Ng (2010), le colmatage observé est plus corrélé avec la quantité de polysaccharides du surnageant des boues qu'avec la quantité de protéines. Cependant, en analysant les taux de rejet de la membrane et la composition de la couche colmatante, on observe que les protéines sont mieux retenues que les polysaccharides, et que leur présence semble plus forte à la surface de la membrane colmatée.

Ce type de résultat est d'autant plus important que la grande majorité des études sur le colmatage concluent à partir de corrélations entre les concentrations dans la boue et le colmatage, sans passer par l'observation ou l'analyse des colmatants déposés.

Les parties suivantes retracent l'état de la littérature concernant l'influence de chacune des caractéristiques des boues sur le colmatage. Un dépôt de gâteau a une influence forte sur la résistance globale de la membrane. Cependant, suivant les conditions expérimentales (principalement l'intensité de l'aération grosses bulles, mais aussi les caractéristiques des particules), on peut éviter partiellement ou même totalement le dépôt des particules. Dans des conditions réelles d'exploitation, l'intensité de l'aération est souvent sur-dimensionnée, de façon à éviter le plus possible le dépôt du gâteau, ce qui rend faible l'impact du gâteau sur le colmatage.

I.3.2.4 Influence de la phase particulière des boues sur le colmatage

La figure I.3.19 donne un rapide aperçu des relations liant les variables opératoires au colmatage par les particules de la membrane. Les paragraphes suivants détaillent ces relations.

I.3.2.4.1 Occurrence du dépôt de gâteau

La phase particulière peut avoir une influence radicale sur la résistance de la membrane dans le cas où il y a dépôt de gâteau. Or c'est le cas seulement si le flux critique (cf I.3.1.1) est atteint (globalement ou localement). En réalité le flux critique n'est pas une valeur constante dans le temps et présente différentes

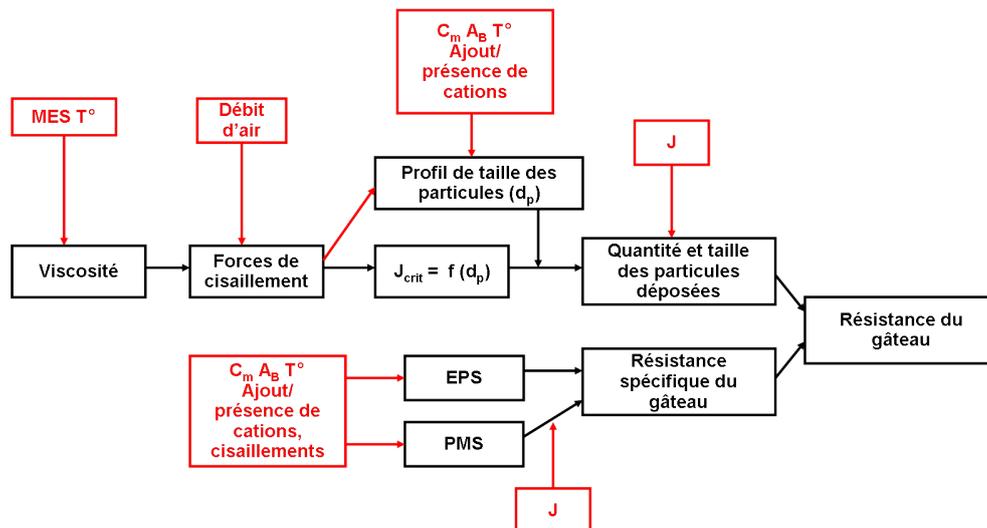


FIGURE I.3.19 – Influence des conditions opératoires sur le colmatage particulaire

valeurs pour chaque constituant de la boue. Ainsi, on pourrait décrire un flux critique pour chaque particule comme une fonction de ses propriétés de surface (quantité et propriétés des EPS) et de leurs interactions potentielles avec la membrane, et de sa taille, le tout pondéré par les forces hydrodynamiques auxquelles elle est soumise.

Il en résulte des résultats variés concernant l'influence de la concentration des boues sur le colmatage (tableau I.3.2)

Les raisons de la dispersion de ces résultats peut s'expliquer par les variations d'importance relative de différents phénomènes liés à l'augmentation de la concentration en MES :

- augmentation de la quantité de colmatants particulaires ;
- augmentation de la viscosité de la boue, ce qui peut diminuer les effets de l'aération grosses bulles sur les forces de cisaillement ;
- souvent, augmentation de A_B et/ou diminution de C_M , et donc probablement une meilleure floculation et une meilleure dégradation de la phase soluble (cf I.3.2.1), ce qui entraînerait une meilleure filtrabilité des boues ;
- l'augmentation de A_B peut aussi être lié à une diminution de la taille des floccs (cf I.3.2.1.4), ce qui pourrait les rendre plus colmatants (cf paragraphe suivant).

Comme la concentration n'est apparemment pas un facteur déterminant dans le colmatage des membranes, nous allons concentrer notre étude sur l'impact des autre propriétés de la phase particulaire sur le colmatage.

Taille des particules du gâteau L'influence des turbulences sur les particules dépend de leur taille et leur capacité d'attachement à la membrane :

TABLE I.3.2 – Influence des MES sur le colmatage dans la littérature

Réf	MES $g.L^{-1}$	Flux LMH	SAD_M $Nm^3.m^{-2}.h^{-1}$	Résultat	Commentaire
Meng et al. (2006)	3–25		na	positive	membranes horizontales
Delgado et al. (2008)	4–14	20–60	3.7	positive	
Farquharson and Zhou (2010)	5–12	36	5.4	pas de corrélation	
Hasan et al. (2012)	2.1–2.7		na	pas de corrélation	
Lousada-Ferreira et al. (2010)	9–18		na	pas de corrélation	échantillons issus de différents BRM taille réelle
Reid et al. (2008)	10–20		na	pas de corrélation	échantillons issus de différents BRM taille réelle
Rosenberger and Kraume (2002)	2–24		na	pas de corrélation	échantillons issus de différents BRM taille réelle
Rosenberger et al. (2006)	7–14		na	pas de corrélation	
Domínguez et al. (2012)	2–10		17.2	negative	l'article montre surtout l'influence de C_M
Trussell et al. (2006)	6–10	30	na ($G=630s^{-1}$)	negative	
Galinha et al. (2012)	6–9.6	10–25	na	negative	

- L'inertie des grosses particules les empêche d'adhérer aux membranes quand elles ont une vitesse transversale importante.
- On a un compromis entre les cinétiques de diffusion et les cinétiques de convection, qui se déplace vers la convection quand la taille des particules augmente.

Hasan et al. (2012), qui constatent une quasi absence de corrélation entre le colmatage et la concentration en MES, reportent en revanche une corrélation beaucoup plus significative avec la taille des particules. Selon l'étude de Kornboonraksa and Lee (2009), en plus de la concentration en MES qui a une influence non négligeable sur le colmatage, le profil de taille des particules déposées sur la membrane est décalé par rapport au profil de taille des particules dans la boue. Ce résultat est également confirmé par Tian and Su (2012), qui constatent que le profil de taille des particules déposées sur la membrane présente un pic entre 2 et 10 μm , taille très peu représentée dans les particules de la boue (plus grosses que 10 μm). Wang et al. (2008) constatent également que les particules déposées ont un diamètre inférieur à 2 μm alors que la majorité des particules de la boues font entre 5 et 50 μm .

Pour Jiang et al. (2007) (module tubulaire), c'est la vitesse transversale du fluide qui joue le rôle le plus important sur le dépôt des particules/colloïdes (une vitesse de 0.75 - 1 m/s pour J=40LMH est proposée). Cependant, elle ne résout pas le problème du dépôt des colloïdes inférieurs à 2000 kDa, qui semble être une part importante du colmatage.

Résistance spécifique du gâteau La résistance spécifique du gâteau dépend :

- de la taille des particules qui le constituent d'après les équations de Kozeny-Carman (Carman, 1937), en jouant sur la porosité, puis sur la vitesse locale du fluide à l'intérieur de la membrane ou de la couche colmatante,
- de la concentration en PMS (Mannina et al., 2011; Zarragoitia et al., 2008) et en EPS (Cho et al., 2005) qui viennent diminuer la porosité du gâteau,
- de la PTM qui compresse le gâteau (Bugge et al., 2012).

Ces points sont développés, avec les équations qui peuvent les décrire, dans la partie [I.4.1.2.1](#)

I.3.2.4.2 Rôle d'un dépôt de particules sur le colmatage ultérieur

Si le dépôt de gâteau a une influence négative sur la perméabilité, il peut aussi modifier le comportement de la membrane sur les dépôts ultérieurs.

Le dépôt de particules peut être influencé par les interactions entre les charges de surface des particules et de la membrane. Le potentiel ζ des boues représente de façon simplifiée la charge de surface des colloïdes et des particules. Dans le cas de boues, il semble être négatif (Lee et al., 2003; Meng et al., 2006). et il semble de plus en plus négatif quand la concentration d'EPS augmente.

Un dépôt de particules chargées négativement peut repousser les charges négatives (typiquement les

polysaccharides), ce qui aurait un rôle protecteur de la membrane contre un colmatage des pores. Cette idée est aussi développée par [Wu et al. \(2012\)](#), qui montrent qu'une membrane hydrophile (chargée négativement) légèrement colmatée avec des TEP (Transparent Exopolymer Particles) et EPS, qui la rendent encore plus chargée négativement, devient répulsive pour les espèces chargées négativement qui viendraient potentiellement s'y déposer.

I.3.2.5 Influence de la phase soluble et colloïdale sur le colmatage

Même si le consensus n'est pas général dans la littérature, les PMS (surtout donnés en tant que polysaccharides et protéines) sont souvent considérés comme ayant un rôle majeur dans le colmatage long-terme des membranes. La nature des PMS et de leurs interactions avec la membrane est complexe, et une analyse fine de la littérature permet de mieux comprendre certaines contradictions.

Pour aller plus loin dans le détail de ces interactions, des études observant finement la surface de la membrane et sa composition sont menées. Les caractéristiques des composants du surnageant (hydrophobicité, charge de surface des particules) et de la membrane sont aussi un moyen d'investigation assez répandu. Les deux paragraphes suivants tenteront d'utiliser ces résultats fins afin de clarifier l'impact de la phase soluble sur la membrane.

I.3.2.5.1 Influence de la taille des colloïdes sur le colmatage

Intuitivement, la taille des molécules doit jouer un rôle prépondérant dans leur capacité à être rejeté dans le surnageant, à pénétrer les pores des membranes et à s'y loger ou passer à travers.

La présence de PMS dans le perméat en quantité plus faible que dans le surnageant observée dans toutes les études permet de conclure que leur taille est de l'ordre de grandeur du seuil de coupure de la membrane (couche colmatante comprise). Un élément rend difficile la compréhension physique de l'influence de la taille des PMS sur le colmatage : la taille des pores des membranes est généralement donnée en μm , alors que la taille des molécules est donnée en Dalton, qui est une unité de masse.

Peu d'auteurs se sont risqués à établir un lien entre la taille des molécules et leur poids. La figure [I.3.20](#) donne un aperçu des résultats trouvés. On constate une grande disparité des résultats (les échelles sont logarithmiques), ce qui peut être expliqué par la diversité de la nature et du repliement des molécules. Une taille de pore de $0.1\mu\text{m}$ correspondrait donc à un seuil de coupure de 100kDa (à un ou deux ordres de grandeur près!). De plus, ces résultats sont hors-gamme quand on fait le parallèle avec le poids des bactéries (de l'ordre de 10^8kDa pour environ $1\mu\text{m}$, pour *Escherichia coli* sources Wikipedia), qui semblent beaucoup plus denses.

Les études qui étudient l'influence de la taille des colloïdes sur le colmatage concluent souvent à une plus grande propension à colmater des molécules de poids supérieur à 10kDa ([Zhang et al., 2008](#); [Arabi and Nakhla, 2010](#)), avec des membranes PVDF $0.2\mu\text{m}$ et PVDF $0.05\mu\text{m}$, ou 100kDa ([Rosenberger et al., 2006](#); [Te Poele et al., 2004](#)) avec des membranes $0.1\text{-}0.2\mu\text{m}$ et 50-80 kDa. Le pouvoir colmatant des molécules de poids

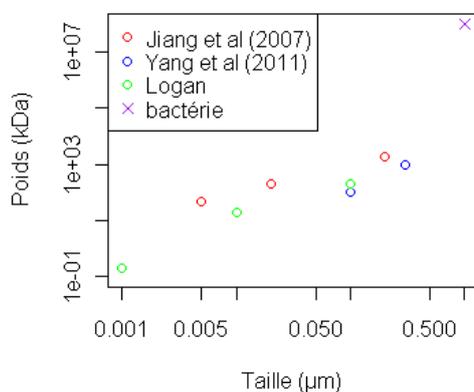


FIGURE I.3.20 – Estimations de correspondance entre poids et taille moléculaire. Les valeurs de Logan (2011) sont données pour des polysaccharides, les autres pour les contenus organiques en général

compris entre 1 et 10kDa ne fait pas consensus, et les molécules de poids <1kDa semblent passer à travers la membrane sans en affecter la perméabilité.

Les images de membranes colmatées comme celles présentées sur la figure I.3.18 (les pores d'une surface colmatée semblent avoir une taille de plusieurs ordres de grandeur inférieur à la membrane propre) laissent penser que l'influence de l'état de colmatage de la membrane est d'une importance primordiale sur l'influence de la taille des molécules sur le colmatage.

Les interactions pouvant avoir lieu entre les molécules entre elles et avec la membrane sont aussi à prendre en compte. Elles sont liées en partie à la nature. Par exemple, les mêmes auteurs (Arabi and Nakhla, 2010) qui constatent un pouvoir colmatant des polysaccharides de taille comprise entre 10 et 100kDa trouvent aussi un faible pouvoir colmatant des protéines de cette taille.

I.3.2.5.2 Influence de la nature des PMS sur le colmatage

Dans la majorité des études lues, les polysaccharides semblent jouer un rôle plus important que les protéines sur le colmatage. Cependant, dans certaines études les protéines sont identifiées comme les colmatants principaux. Les substances humiques sont rarement analysées, et dans ce cas elles ne sont pas pressenties comme participant au colmatage significativement, du fait de leur plus petite taille principalement. Les tableaux I.3.3 et I.3.4 font un inventaire des résultats de la littérature à ce sujet. Les colmatants principaux pressentis dans les différentes études y sont confrontés avec les conditions expérimentale.

TABLE I.3.3 – Influence de la nature des PMS sur le colmatage

Référence	Caractérisation du colmatage	Colmatant principal	Commentaire
Okamura et al. (2009)	Fibres PVDF $0.1\mu m$, ΔR sur 70 minutes de filtration dont sept rétrolavages	Polysaccharides	Parmi les polysaccharides, les acides uroniques semblent jouer un rôle essentiel
Pan et al. (2010)	Polypropylène hydrophile $0.4\mu m$, Evolutions de PTM sur 300h, et tests de filtration frontale des fractions particulaire, colloïdale et soluble	Polysaccharides	Les fortes concentrations en polysaccharides colmatants proviennent surtout de bactéries filamenteuses
Reid et al. (2008)	Pernéabilités moyennes d'installations grandeur réelles (membranes planes) et cellule de filtration frontale agitée	Polysaccharides	Les protéines sont en concentration plus élevée que les polysaccharides en général, mais elles sont moins corrélées au colmatage
Rosenberger and Kraume (2002)	Filtration de petites quantités de boues issues d'installations grandeur réelles dans une petite cellule ($0.0088m^2$) (max 40min)	Les deux sont corrélés, surtout les polysaccharides	La phase particulaire n'affecte pas l'index de filtration
Rosenberger et al. (2006)	Evolution de la résistance sur 10 à 30j, pilotes fibres creuses	Polysaccharides	Corrélation beaucoup plus claire pour un A_B de 8j que 15j
Stricot et al. (2010)	Filtration frontale agitée de $50cm^3$ de boue sur une membrane de polysulfone $0.1\mu m$	Protéines un peu plus que polysaccharides	Les PMS produits en conditions de stress mécanique (BAP_E ?) sont plus colmatants que les PMS produits sans stress mécaniques (UAP ?)
Tang et al. (2010)	Planes PVDF $0.2\mu m$, dérivés de PTM sur des durées de 10 à 60j	Protéines	Un fractionnement supplémentaire suivant l'hydrophobicité et la charge montre que les composés neutres hydrophiles sont les plus gros et les plus colmatants mais aussi les plus biodégradables, suivis des hydrophobes neutres puis des composés chargés
Yao et al. (2010)	PVDF et Polycarbonate $0.22\mu m$ filtration frontale agitée de 30 min, mesure de réversibilité par rétrolavages	Polysaccharides pour le PVDF et protéines pour le polycarbonate	La réversibilité est bonne, et en particulier pour la membrane en Polycarbonate
Zhang et al. (2008)	Pilote fibres PVDF $0.2\mu m$, dérive de PTM sur 10 à 20j, et tests de filtrabilité filtration frontale $350mL$	Fraction de la DCO $>10kDa$	Les ajouts de Fer rendent le colmatage plus réversible à l'eau, mais moins réversible à la soude.

TABLE I.3.4 – Influence de la nature de PMS sur le colmatage

Référence	Caractérisation du colmatage	Colmatant principal	Commentaire
Metzger et al. (2007)	Fibres PVDF hydrophiles 0.2 μm , filtration pendant 24h. Mesures de réversibilité par rinçage, rétrolavages et lavages chimiques	Protéines (plus attaché à la membrane), Polysaccharides (couches de colmatage intermédiaire)	Le colmatage par les polysaccharides est plus réversible par rétrolavages, et il faut procéder à des lavages chimiques pour enlever efficacement les protéines
Kimura et al. (2005)	Fibres polyéthylène 0.2 μm , dérive de la résistance sur 20 à 120 j	Polysaccharides (les protéines prennent de l'importance à fort C_M)	Le colmatage par les protéines est moins réversible que les polysaccharides
Kimura et al. (2009)	Fibre PVDF 0.4 μm , évolutions de la PTM sur 5 à 10 j	Protéines ($A_B=17j$), Polysaccharides ($A_B=51$ et 102j)	L'influence de A_B sur le ratio $\frac{Prot}{Polysacch}$ du surnageant est nulle, mais elle est visible sur les PMS déposés sur la membrane
Miyoshi et al. (2010)	Planes, Polypropylène (0.4 μm) et PVDF (0.1 μm) filtration frontale de solutions de différents polysaccharides	pas présenté clairement	Dépendance du pouvoir colmatant en fonction de la composition du polysaccharide
Meng et al. (2011)	Planes, PVDF 0.1 μm Analyses très détaillées des PMS et colmatants obtenus par lavage au Kärcher	Polysaccharides	Au sein des protéines les aromatiques hydrophobes sont les plus colmatantes (par rapport aux triptophanes. La prédominance des polysaccharides est peut-être lié au caractère non lavable des protéines (Kimura et al., 2005))
Trussell et al. (2006)	Fibres PVDF 0.035 μm dérive de perméabilité sur 40–100j	Polysaccharides	La corrélation entre PMS et colmatage est cependant assez faible
Arabi and Nakhla (2010)	Pilote fibres PVDF hydrophile 0.047 μm , mesure d'un pouvoir colmatant des boues ou de la phase soluble dans une module externe de filtration frontale 300mL (cellulose, seuil de coupure 300kDa)	Polysaccharides (entre 10 et 100kDa)	Les protéines de la même gamme de taille sont aussi corrélées avec le colmatage. Les effets sont mesurés sur le pouvoir colmatant des boues, lui-même corrélé à la dérive (journalière?) de perméabilité

Au delà de la recherche d'une corrélation entre la nature polysaccharide/protéines et le potentiel colmatant, beaucoup d'études cherchent un lien entre les propriétés hydrophiles/hydrophobes, et le rôle spécifique de chaque fraction dans le colmatage. Souvent, les dépôts de protéines sont décrits comme plus résistants aux lavages hydrauliques, mais moins propices à se déposer du fait d'une hydrophilicité moins marquée que pour les polysaccharides et du caractère souvent hydrophile des membranes.

Les résultats de [Sweity et al. \(2011\)](#) vont dans ce sens : en étudiant les propriétés mécaniques de PVDF sur lequel des PMS sont adsorbés, ils constatent que le rapport protéines/polysaccharides est positivement corrélé avec la rigidité du matériau. De plus, ils constatent que les protéines, moins propices à être adsorbées, sont aussi plus résistantes à la désorption.

En étudiant encore plus en détail les compositions des colmatants, un fractionnement des polysaccharides montre que certains monosaccharides semblent plus impliqués dans le colmatage que d'autres. Ainsi, [Miyoshi et al. \(2010\)](#) montrent que le fractionnement polysaccharides/protéines n'est pas adapté à l'étude du colmatage, mais que la composition des polysaccharides est plus à même d'expliquer le colmatage. Le même type de constat avec les protéines est effectué par [Meng et al. \(2011\)](#), qui concluent de leurs résultats que des protéines aromatiques ont un pouvoir colmatant plus élevé que les protéines tryptophanes, du fait notamment de leur hydrophobicité, qui conduirait à des interactions plus fortes.

1.3.2.5.3 Influence des cations et de l'hydrophobicité sur la couche colmatante

En préambule à ce paragraphe, il est à noter que l'hydrophobicité d'une membrane, rarement mesurée, est souvent modifiée à la fabrication par des traitements de surface qui ne sont pas mentionnés/connus par les chercheurs. On ne peut donc pas classer les membranes suivant leur hydrophobicité en se basant seulement sur le matériau utilisé, mais se baser uniquement sur les rares mesures effectuées par les auteurs. Avec le même matériau, des études trouvent ainsi des résultats opposés quant au rôle de l'hydrophobicité relative du surnageant sur le colmatage de la membrane : par exemple, [Van den Broeck et al. \(2011\)](#) et [Katsoufidou et al. \(2005\)](#) avec du PolyetherSulfone (PES). L'hydrophobicité peut aussi évoluer avec le temps : [Wang et al. \(2010\)](#) ont étudié l'influence des lavages chimiques sur la dégradation du PVDF. Ils déduisent une diminution de l'hydrophobicité de la membrane en fonction du temps d'exposition à la javel, qui s'accompagne d'une dégradation de la réversibilité du colmatage.

[Marel et al. \(2010\)](#) ont comparé plusieurs membranes en PVDF, dont une ayant subi un traitement à la chaleur pour augmenter son hydrophobicité. Celle-ci présente de loin les moins bonnes performances de filtration. Ce résultat est comparable à celui de [Maximous et al. \(2009\)](#), qui ont comparé deux membranes d'hydrophobicité différentes (une hydrophobe 66° en PES et une complètement hydrophile en cellulose), et qui constatent un colmatage des pores de la membrane hydrophobe légèrement plus important. Cependant, ils observent aussi une meilleure réversibilité du colmatage particulière.

L'impact de l'hydrophobicité des colloïdes sur le colmatage a été étudié par [Chang et al. \(2002\)](#). Des

membranes organiques (PE, PP, PVDF, PS), naturellement hydrophobes, ont été "hydrophilisées" avec des monomères hydrophiles. Le colmatage par du BSA en a été réduit, et le taux de rétention a été augmenté.

La présence ou l'addition de cations (Ca^{2+} , Fe^{3+} , Mg^{2+} , Al^{3+} ...) peut faire changer les propriétés de surface de la membrane et des molécules. Par exemple, les polymères qui se déposent à la surface des membranes sont faiblement liés entre eux par des cations (du type Ca^{2+}), et en cassant ces liens (par exemple en utilisant un ligand pour accaparer le calcium), on peut réduire la taille effective des molécules, et ainsi inhiber la formation d'un gel (Okamura et al., 2009). Même si ce type de procédure n'est pas envisageable à mettre en place à vraie grandeur, on peut en conclure que le calcium joue un rôle important dans la cohérence des polymères déposés sur la membrane (Katsoufidou et al., 2005).

La nature de l'action des cations (et des liaisons qu'ils forment avec les polymères organiques) n'est pas évidente. Yang et al. (2011) constatent une forte participation des ions Fe^{3+} issus de PFC (PolyFerric Chloride) à la couche colmatante, avec 30% de la masse du gâteau composée de fer. Cependant, une analyse FTIR montre que les liaisons chimiques dans les colmatants sont plus du ressort de liaisons organiques (typiques de protéines/polysaccharides) que de liaisons inorganiques. La présence de Fe^{3+} ne serait donc pas forcément par des liaisons chimiques, mais peut-être seulement par une modification des équilibres physico-chimiques.

I.3.2.6 Conclusion

L'impact de chacune des variables opératoires sur le colmatage est multiple et peut comporter de nombreux intermédiaires. L'objectif initial de cette étude bibliographique était de donner un aperçu de ces mécanismes, de façon à comprendre les relations observées dans notre étude entre variables opératoires et colmatage. Il apparaît qu'au delà du nombre de phénomènes physiques à intégrer, la complexité de chacun suscite un domaine de recherche à part entière, et est loin de faire le consensus dans la communauté scientifique.

Chapitre I.4

Modélisation intégrée des BRMs dans la littérature

Cette partie donne un aperçu des articulations existantes dans la littérature entre les différents types de modèles nécessaires à la modélisation de BRMs (modèles de boues activées, modèles de filtration et modèles de transferts d'oxygène). On commencera par décrire les modèles de filtration pour introduire les variables utilisées dans la modélisation du colmatage des membranes. Les modèles biologiques adaptés aux BRMs seront ensuite abordés, pour mettre en valeur leurs avantages et lacunes pour alimenter les modèles de filtration. Enfin, les modèles d'aération, indispensables pour pouvoir prédire les besoins énergétiques des BRMs seront introduits, ainsi que les conclusions sur l'état de la littérature sur la modélisation intégrée des BRMs.

La figure [I.4.1](#) représente les liens, qu'ils soient déjà décrits dans des modèles ou non, entre la composition des boues (en marron), la filtration (en vert) et l'aération et autres variables opératoires (en bleu).

Quelques modèles intégrés (regroupant plusieurs sous-types de modèles) existants seront présentés à la fin de cette partie, et recadrés dans leurs domaines d'application, pour définir les besoins de recherche sur le sujet de la modélisation des BRMs.

I.4.1 Aperçu des modèles de filtration et de leurs variables d'entrée

La filtration dans les BRMs fait l'objet d'un foisonnement de recherches depuis le début des années 2000 ([Santos et al., 2011](#)), période pendant laquelle le procédé commence une évolution rapide dans le marché du traitement des eaux usées. La plupart des études, expérimentales, ont pour but d'identifier les variables (concentrations et caractéristiques de différents composants des boues, variables hydrauliques de fonctionnement des BRMs) qui influencent le colmatage. Ces études participent à la compréhension du colmatage. Une autre partie des études a pour but de mettre en équation les mécanismes du colmatage, dans le but de quantifier, puis prédire la participation de différents mécanismes dans le colmatage des membranes. Dans certains cas, elles sont accompagnées d'un volet expérimental permettant l'estimation des paramètres de ces modèles et leur validation. Cette partie se concentrera sur ces études.

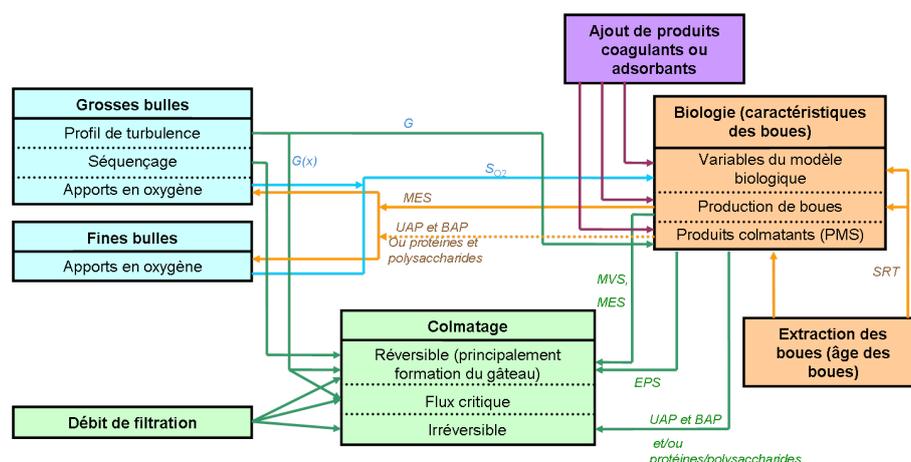


FIGURE I.4.1 – Sous parties du procédé et différents liens qui font l’objet de modèles dans la littérature

On introduira premièrement les lois générales de la filtration, utilisées dans la modélisation de la filtration en général, et plus particulièrement dans les BRMs. On se concentrera ensuite sur la description mathématique de chaque phénomène supposé participer au colmatage des membranes dans les BRMs. On fera ensuite un inventaire des variables d’entrée nécessaires à l’application des modèles de filtration, suivant le niveau de description escompté.

I.4.1.1 Généralités sur les modèles de filtration

La quantification du colmatage des membranes repose sur deux principaux indicateurs : la perméabilité ou la résistance hydraulique de la membrane. Ces deux variables sont interchangeables par le biais d’une équation simple faisant intervenir la viscosité du perméat (équation 1.4.2). Cette partie donne leur mode de calcul.

I.4.1.1.1 Loi de Darcy

Les lois de transport des fluides à travers les milieux poreux sont semblables à d’autres lois physiques : un gradient de potentiel (ici la pression hydraulique) entraîne un transfert (ici de matière : le perméat). Le milieu dans lequel a lieu le transfert (ici la membrane) et le perméat possèdent des caractéristiques qui vont définir la cinétique du transfert. Ainsi, les flux de liquide à travers une membrane se décrivent mathématiquement de façon similaire aux flux de chaleur à travers une barrière thermique, ou aux flux de charges dans une résistance électrique. Une des équations de base décrivant le passage d’un fluide dans un milieu poreux est la loi de Darcy, dont une formulation est donnée par l’équation 1.4.1.

$$J = \frac{PTM}{\mu R} \quad (I.4.1)$$

Où

- R est la *résistance (hydraulique)* de la membrane (m^{-1}).
- J est le flux transmembranaire ($m^3.m^{-2}.s^{-1}$, ou plus couramment $L.m^{-2}.h^{-1}$, noté *LMH*)
- μ est la viscosité du perméat ($Pa.s$)
- PTM est la pression transmembranaire (Pa ici, mais plus couramment *bar*)

Cette loi stipule que le flux membranaire et la pression transmembranaire sont proportionnels à viscosité du perméat et résistance hydraulique constante. μR est alors le coefficient de proportionnalité. Souvent, une autre grandeur que R est utilisée pour quantifier le colmatage des membranes : la perméabilité qui est le *rapport* entre le flux et la PTM (équation 1.4.2)

$$L_p = \frac{1}{\mu R} = \frac{J}{PTM} \quad (I.4.2)$$

I.4.1.1.2 Propriétés de la résistance et de la perméabilité

La résistance hydraulique (à l'instar des résistances thermique et électrique) présente l'avantage en modélisation d'être une propriété additive quand plusieurs membranes sont associées en série. Cette propriété se résume dans la relation 1.4.3, où R_{tot} est la résistance globale d'un montage en série de n membranes de résistances $R_1...R_n$.

$$R_{tot} = \sum R_i \quad (I.4.3)$$

Comme pour les résistances électrique et thermique, on peut aussi citer une loi d'association en parallèle des résistances (équation 1.4.4)

$$\frac{1}{R_{tot}} = \sum \frac{1}{R_i} \quad (I.4.4)$$

L'association de cette propriété et de l'équation 1.4.2 confère la propriété d'additivité des perméabilités montées en parallèle. Dans les bioréacteurs à membranes, ces propriétés sont utilisées pour décrire la résistance totale de la membrane, c'est à dire la résistance de la membrane propre, du gâteau de particules formé par les dépôts à la surface des membranes, et par extension, même si dans la réalité ce n'est pas une membrane supplémentaire en série avec la membrane, une résistance additionnelle issue des dépôts internes à la membrane. On verra dans la suite que d'autres résistances participent à ce bilan dans les différents modèles de la littérature (résistance du biofilm, résistance des dépôts inorganiques...).

Le colmatage peut être défini comme l'augmentation de résistance totale de la membrane, ou la diminution de sa perméabilité.

I.4.1.1.3 Les principales théories du colmatage des membranes

On peut distinguer deux principales théories extrêmes (et qui sont souvent associées) pour décrire le colmatage des membranes :

- augmentation uniforme de la résistance de la membrane (par addition à la résistance intrinsèque de la membrane d'une ou plusieurs résistances dues au colmatage)
- blocage complet des pores qui se traduit concrètement par une diminution de la surface utile de la membrane : cela décrit un colmatage non uniforme de la membrane

Une grande partie des modèles de la littérature est incluse dans la première catégorie, ou dans une combinaison des deux théories.

Augmentation uniforme de la résistance de la membrane : Une grande partie des modèles apparus dans la littérature se basent sur un colmatage uniforme de la membrane (par exemple [Delgado et al. \(2008\)](#); [Wintgens et al. \(2003\)](#); [Jang et al. \(2006\)](#); [Ludwig et al. \(2012\)](#); [Di Bella et al. \(2008\)](#)). Ces modèles incluent différents types de mécanismes présentés dans la partie [I.4.1.2](#) qui alimentent chacun l'évaluation d'un type de résistance, et qui sont associés par une loi de résistances en série. Un inventaire de ces modèles est donné à la fin de la partie [I.4.1](#) quand les différents mécanismes participant aux différents types de colmatage auront été décrits.

Modèle de colmatage non uniforme de la membrane D'autres modèles, généralement plus complexes, se basent sur un colmatage non uniforme de la membrane. Ces modèles sont souvent basés sur des concepts similaires à ceux utilisés pour le colmatage uniforme, mais en introduisant une dimension spatiale en plus de la dimension temporelle. La membrane est décomposée en éléments spatiaux, sur lesquels les mêmes lois de la filtration sont appliquées, mais avec des différences dans les variables d'entrée : taux de cisaillement non uniforme à l'extérieur de la membrane ([Li and Wang, 2006](#); [Zarragoitia et al., 2008](#)), voire PTM non uniforme due aux pertes de charges dans les fibres ([Busch et al., 2007](#)). Ce type de modèle repose donc sur un modèle hydrodynamique supplémentaire qui servira à alimenter une distribution spatiale des conditions hydrodynamiques autour de la membrane.

Pour simplifier cette approche, et s'affranchir d'un modèle hydrodynamique complexe supplémentaire, une autre vision consiste à faire diminuer progressivement la surface totale de filtration (théorie connue sous le nom de *blocage complet des pores*). Ainsi, dans le modèle développé par [Jiang \(2007\)](#), une loi de résistances en série est appliquée uniformément sur la membrane, mais l'aire effective de filtration varie dans le temps suivant l'équation [I.4.5](#).

$$\frac{dA_t}{dt} = -\sigma_{DCO} \cdot DCO(t)Q(t) \quad (I.4.5)$$

Où

- A_t est la surface effective de la membrane à l'instant t
- σ_{DCO} est un coefficient représentant le pouvoir colmatant de la DCO soluble
- Q est le débit de filtration
- DCO est la concentration en DCO soluble

On retrouve le même type de concept dans plusieurs autres modèles. Parmi eux le modèles de [Saroj et al. \(2008a\)](#), ou encore celui de [Ye et al. \(2006\)](#) qui est basé sur le nombre de pores accessibles. En plus de la diminution du nombre de pores, ce modèle décrit aussi une augmentation de la résistance de chaque pore. Cela est combiné avec un dépôt de gâteau.

Dans une version simplifiée pour la calibrer sur un module de filtration d'une installation pilote ($7.9m^3$) [Saroj et al. \(2008b\)](#) reprennent, de façon empirique, le concept de diminution de la surface effective de filtration. Cela aboutit à l'augmentation du flux local. Au delà d'un *temps critique*, les mécanismes de filtration *sous-critique* (diminution progressive de la surface de filtration) laissent la place à des mécanismes de colmatage beaucoup plus rapide (dépôt de gâteau) dûs aux forts flux locaux.

Une telle classification des modèles de filtration est représentée dans le tableau [I.4.1](#)

I.4.1.2 Les principaux mécanismes du colmatage

Cette partie présente les concepts utilisés pour alimenter les modèles de résistance en série, ainsi que leur formulation.

I.4.1.2.1 Résistance due au gâteau de particules

Presque tous les modèles trouvés dans la littérature ont une équation ou un système d'équations qui représente l'influence du dépôt de gâteau sur l'état de colmatage des membranes. Souvent, ce phénomène est décomposé en deux : la modélisation de la quantité de gâteau déposé à la surface de la membrane, et la modélisation de la résistance spécifique. La résistance globale du gâteau est ensuite donnée par l'équation [I.4.6](#) ou par l'équation [I.4.7](#) :

$$R_g = \alpha_g \cdot M_g \quad (\text{I.4.6})$$

$$R_g = r_g \cdot \delta_g \quad (\text{I.4.7})$$

où

- R_g est la résistance du gâteau (m^{-1})
- α_g est la résistance spécifique du gâteau par rapport à sa masse ($m^{-1}.kg^{-3}$)

TABLE I.4.1 – Principaux modèles de filtration de la littérature (R_M est la résistance intrinsèque de la membrane, R_g est la résistance du gâteau, R_{gD} est la résistance du gâteau réversible hydrauliquement, R_{gS} est la résistance du gâteau non réversible hydrauliquement, R_B est la résistance du biofilm, R_F est la résistance du colmatage interne, R_{irr} est le colmatage irréversible (vieillessement))

	Résistances en série	Diminution de la surface de filtration	Dimension spatiale supplémentaire
Wintgens et al. (2003)	$R_M + R_g + R_F$	Non	Non
Broeckmann et al. (2006)	$R_M + R_g + R_F + R_{irr}$	Non	Non
Busch et al. (2007)	$R_M + R_g + R_F + R_B$	Non	Oui : influence des pertes de charges dans la fibre sur la PTM
Li and Wang (2006)	$R_M + R_{gD} + R_{gS} + R_P$	Non	Oui : profil sinusoidal de cisaillement
Jiang (2007)	$R_M + R_g + R_{irr}$	Oui, pour déterminer R_{irr}	Non
Saroj et al. (2008b)	non	Oui, avec distinction d'une phase sous-critique et d'une phase critique	Non
Ye et al. (2006)	$R_M + R_g$	Oui, avec 2 cas : Diminution du nombre total de pores ou Diminution de la surface des pores	Non
Drews et al. (2009)	$R_M + R_g + R_{sta} + R_{com} + R_{int}$	Dans le cas où $R_{sta} > 0$	Non

- r_g est la résistance spécifique du gâteau par rapport à son épaisseur ($m^{-1}.m^{-1}$)
- M_g est la masse du gâteau (kg)
- δ_g est l'épaisseur du gâteau (m)

Modélisation de la quantité de gâteau Les modèles qui décrivent le dépôt de gâteau sont souvent issus d'un bilan matière entre les particules qui arrivent vers la membrane et les particules qui s'y déposent effectivement (équation I.4.8).

$$\frac{dM_g}{dt} = J * C_{MES} \cdot f_{dep} \tag{I.4.8}$$

où

- J est le flux de filtration (m^3)
- C_{MES} est la concentration en MES de la boue ($kg.m^{-3}$)
- f_{dep} est la proportion de particules qui s'attache à la membrane (sans unité). Sa valeur est comprise entre 0 (si aucune particule ne se dépose) et 1 quand toutes les particules se déposent sur la membrane (filtration frontale non agitée).

Ou encore, selon Bugge et al. (2012) ou (Kim and DiGiano, 2009), l'évolution de la quantité de gâteau est proportionnelle à la différence entre le flux et un flux critique. Cette valeur représente le flux pour lequel les forces de succion vers la membrane et les forces de diffusion (browniennes, turbulences, cisaillement) s'équilibrent. La masse de gâteau suit alors une loi que l'on peut représenter par l'équation I.4.9.

$$\frac{dM_g}{dt} = C_{MES} * (J - J_{r,stab}(1 - e^{-\frac{M_g}{M_{g,stab}}})) \tag{I.4.9}$$

Où

- $J_{r,stab}$ est le flux de *rétro-transport* à l'équilibre, c'est à dire le flux de MES qui est écarté de la membrane par l'effet combiné de la diffusion, des turbulences et du flux transversal.
- $M_{g,stab}$ est la masse de gâteau à l'équilibre

Il existe aussi des modèles plus déterministes se basant sur un équilibre des forces s'appliquant aux particules. C'est le cas du modèle de Li and Wang (2006). Une force d'attraction vers la membrane et une force de répulsion donnent une résultante qui déterminera si une particule s'attache ou non sur la membrane. Pour eux, la force d'attraction est donnée par une loi d'entraînement des particules par le fluide, et la force de détachement est donnée par l'influence des turbulences sur cette particule.

Broeckmann et al. (2006) vont plus loin dans la description physique du mouvement des particules. Les forces de Van-der-Waals (interactions électrostatiques principalement) influencent la force d'adhésion à la membrane. En plus des forces transversales, s'ajoutent des forces tangentielles de friction, proportionnelles à la résultante des forces transversales.

La sur-paramétrisation souvent caractéristique de ces modèles complexes rend leur utilisation difficile. Leur calage nécessite une simplification passant par une étude de sensibilité, ce qui leur fait perdre une partie de leur intérêt déterministe. Ceci est dû au fait qu'on a rarement accès à des données telles que la distribution de taille des particules, des paramètres sur les interactions physico-chimiques ayant lieu entre les particules et la membrane, ou une connaissance approfondie de l'hydrodynamique des fluides au voisinage de la membrane.

Modélisation de la résistance spécifique La modélisation de la résistance spécifique du gâteau est souvent plus complexe. L'équation de Kozeny-Carman, très générale, donne la résistance spécifique d'un matériau (équations 1.4.10 ou 1.4.11).

$$\alpha_g = \frac{K(1 - \epsilon)}{\epsilon^3 \rho_p d_p^2} \quad (\text{I.4.10})$$

$$r_g = \frac{K(1 - \epsilon)^2}{\epsilon^3 d_p^2} \quad (\text{I.4.11})$$

Où :

- α_g est la résistance spécifique du gâteau par rapport à sa masse ($m.kg^{-1}$)
- r_g est la résistance spécifique du gâteau par rapport à son épaisseur ($m.kg^{-1}$)
- K est la constante de Kozeny (sans unité). Elle dépend de la géométrie du milieu
- ϵ est la porosité du gâteau (rapport entre le volume vide et le volume total du gâteau, sans unité)
- d_p est une longueur représentant la taille des particules déposées. par exemple le diamètre des particules si elles sont sphériques (m)
- ρ_p est la densité des particules ($kg.m^{-3}$)

Cette équation est simple à utiliser dans le cas d'un lit de particules sphériques de diamètres uniformes et empilées de façon optimale. K vaut alors 180, et ϵ vaut 0.093. Cependant, dans le cas d'un gâteau de particules non sphériques et irrégulières, les différents paramètres à connaître pour alimenter cette équation sont difficiles à estimer. Les paramètres ρ_p , d_p , ϵ et K sont alors estimés sur des bases empiriques (Foley, 2006; Schraa et al., 2010).

Cependant, malgré sa complexité, l'équation de Kozeny-Carman ne décrit pas la compressibilité du gâteau, c'est à dire la variation de la porosité ϵ en fonction de la PTM. En effet ce phénomène, étudié par Bugge et al. (2012), ou encore Cho et al. (2005) aurait une influence significative sur la résistance spécifique.

Pour Bugge et al. (2012) la résistance spécifique α_g varie selon l'équation 1.4.12

$$\alpha_g = \alpha_{g,0} \left(1 + \frac{PTM}{PTM_a}\right) \quad (\text{I.4.12})$$

où

- $\alpha_{g,0}$ est la résistance spécifique du gâteau à PTM nulle
- PTM_a est la PTM nécessaire pour doubler α_g

Ces deux paramètres sont à estimer de façon empirique à l'aide d'un protocole faisant intervenir des paliers de flux successifs.

Certains considèrent que comme pour la membrane elle-même, le gâteau se colmate aussi. Ainsi, la résistance spécifique du gâteau peut dépendre de la quantité de PMS présents dans la boue filtrée, comme pour [Zarragoitia et al. \(2008\)](#). Pour [Cho et al. \(2005\)](#) une étude dimensionnelle de la dépendance de α_g à la PTM, la concentration en produits microbiens attachés au floc (EPS) et la concentration en MES aboutit sur l'équation [I.4.13](#) (déjà calée ici) pour l'estimation de α_g

$$\alpha_g = \frac{PTM}{\mu^2} (9.3 \cdot 10^{12} + 1.803 \cdot 10^4 (1 - e^{-115.2(\frac{EPS}{MES})})) \quad (I.4.13)$$

Ces modèles décrivant la résistance du gâteau contiennent un nombre important de paramètres, que ce soit pour la quantité de particules déposée ou pour la résistance du gâteau. Ils sont donc très difficiles à appliquer et à combiner avec des composantes biologiques. Les tentatives en ce sens sont rares.

Enfin, pour [Khan et al. \(2009\)](#) la résistance spécifique du gâteau est déterminée empiriquement sur la base du taux de cisaillement (équation [I.4.14](#))

$$\alpha_g = 2 * 10^{15} G^{-1.297} \quad (I.4.14)$$

Où G (s^{-1}) est le taux de cisaillements au voisinage de la membrane. Ce concept prend son sens en considérant que G détermine la taille et la géométrie (plus ou moins cassés) des floes constituant le gâteau.

I.4.1.2.2 Colmatage interne des membranes

L'estimation de la résistance due au colmatage interne des membranes est souvent plus empirique que celle du gâteau, car les mécanismes physiques associés et la composition des espèces chimiques impliquées sont moins bien connues et ne font pas consensus dans la littérature.

On peut trouver des équations simples reliant directement le colmatage interne avec le temps de filtration, c'est à dire la durée du contact entre le fluide à filtrer (et les colmatants qu'il contient) et la membrane, comme pour [Schraa et al. \(2010\)](#) (équation [I.4.15](#)).

$$R_f = R_{f,max} (1 - e^{-k_f t}) \quad (I.4.15)$$

Où

- $R_{f,max}$ est la résistance de colmatage interne maximale (m^{-1})

- k_f est un taux de colmatage constant (s^{-1})
- t est le temps (s)

Ces deux paramètres sont empiriques.

Pour [Li and Wang \(2006\)](#) la résistance interne n'est plus fonction du temps, mais de la quantité de perméat filtrée (équation [I.4.16](#))

$$R_f = r_f J \cdot \Delta t \quad (\text{I.4.16})$$

Pour prendre en compte les composants des boues responsables du colmatage dans cette équation, il faudrait avoir une notion précise de l'impact de la nature physico-chimique d'un composant sur sa capacité à participer au colmatage. Bien que de nombreuses études portent sur la nature physico-chimique (composition, taille des molécules, propriété hydrophile...) des espèces participant au colmatage, aucun consensus n'a été établi à ce sujet, même qualitativement. La prise en compte des caractéristiques de la phase colloïdale autres que sa concentration globale ne fait donc partie d'aucun modèle de filtration connu. On peut cependant citer une tentative de modéliser le colmatage interne de la membrane, effectuée par [Broeckmann et al. \(2006\)](#) et par [Busch et al. \(2007\)](#). Ils utilisent l'équation de Kozeny-Carman ([I.4.10](#)) pour calculer la résistance de la membrane. La porosité ϵ varie en fonction de la quantité de particules susceptibles de se loger dans la membrane :

$$\rho_p \frac{d\epsilon}{dt} = -4\eta_{f,p} J C_m^b \frac{d_{ext}}{d_{ext}^2 - d_{int}^2} \quad (\text{I.4.17})$$

où

- ρ_p est la densité des particules ($kg.m^{-3}$)
- $\eta_{f,p}$ est la fraction des particules qui rentrent dans la membrane et qui se déposent (sans unité)
- C_m^b est la concentration en particules ou colloïdes dont la taille permet de rentrer dans la membrane ($kg.m^{-3}$)
- d_{ext} est le diamètre extérieur des fibres creuses (m)
- d_{int} est le diamètre interne des fibres creuses (m)
- J est le flux transmembranaire ($m.s^{-1}$)

Sans rentrer dans le détail de ce modèle, on constate que pour l'utiliser, il est nécessaire de connaître la taille maximale des particules capables d'entrer dans la membrane, ainsi que la distribution de taille des particules contenues dans la boue, y compris les particules dont le diamètre est inférieur à une dizaine de nanomètres, ordre de grandeur de la taille des pores des membranes Zenon par exemple. Ces deux données sont généralement inaccessibles dans les expérimentations.

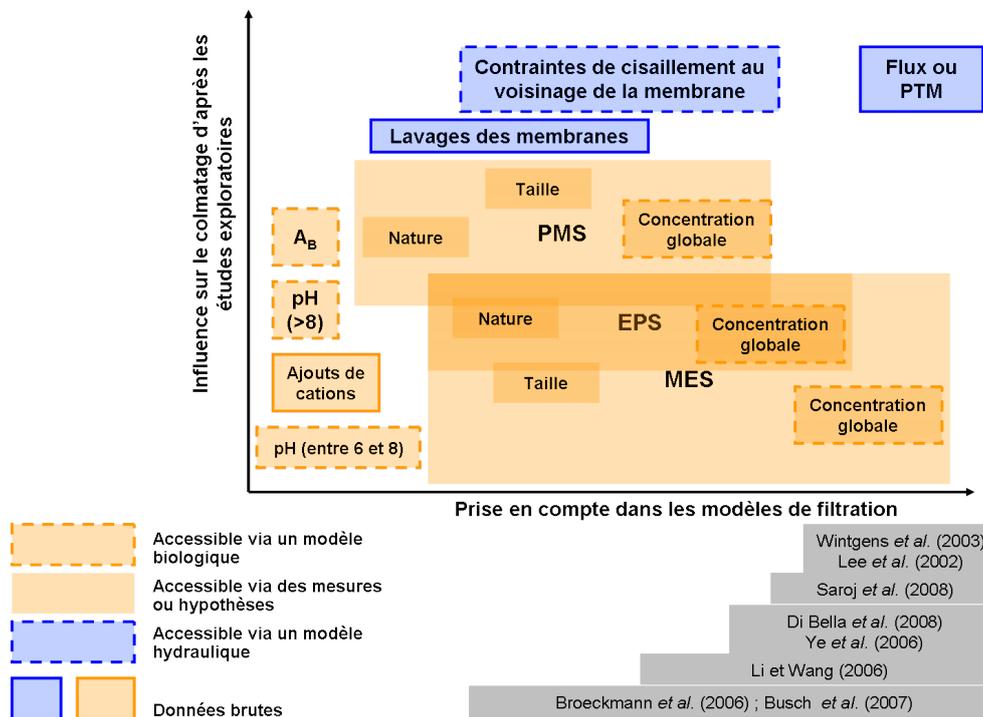


FIGURE I.4.2 – Graphe représentant la relative absence de corrélation entre l'influence des caractéristiques des boues sur le colmatage et leur prise en compte dans les modèles de filtration

Même avec un niveau de description tels que celui du modèle de Busch *et al.* (2007), on constate que la seule caractéristique des constituants des boues prise en compte est la taille des particules, alors que les études exploratoires sur la filtration soulignent l'effet des caractéristiques de surface, ou de la nature des colmatants sur le colmatage. On peut présager que même avec un tel niveau de description, ce modèle ne sera pas en mesure de différencier la capacité colmatante sur le long terme de deux boues dont les distributions de tailles de particules/colloïdes sont identiques.

On constate ici que plus le modèle décrit finement les mécanismes de la filtration, plus la connaissance fine des caractéristiques des boues et de la membrane est nécessaire à l'application des modèles. Cela rend les modèles les plus déterministes inapplicables en pratique, surtout sur des installations à grande échelle, dont les membranes ont subi des altérations au fil des années.

I.4.1.3 Variables d'entrée des modèles de filtration

La figure 1.4.2 est un aperçu des différentes variables prises en compte dans les modèles de filtration. De gauche à droite, les variables représentées sont de plus en plus prises en compte dans les modèles de filtration. De bas en haut, les variables représentées sont de plus en plus identifiées comme importantes dans leur participation au colmatage dans les études exploratoires sur la filtration.

On y constate l'absence de corrélation entre :

- Les variables issues des modèles biologiques et les variables prises en compte dans les modèles de filtration
- L'importance des variables dans leur participation au colmatage (axe vertical) et la fréquence de leur prise en compte dans les modèles de filtration

I.4.1.3.1 Composition des boues

La concentration en MES est une variable d'entrée pour quasiment tous les modèles de filtration, et intervient dans le dépôt de gâteau principalement. Nous verrons par la suite que dans une installation grandeur réelle comme celle qui est suivie dans notre étude, le dépôt de gâteau semble représenter une petite partie seulement du colmatage des membranes.

Les autres variables représentant la composition des boues et souvent présentes dans le colmatage des membranes sont des variables représentant la partie soluble de la boue. Certains modèles prennent la DCO soluble (Jiang, 2007), d'autres les PMS (Zarragoitia et al., 2008). D'autres, à défaut d'informations voire d'hypothèses, prennent le temps de filtration ou le volume filtré pour représenter le colmatage par la phase soluble (Wintgens et al., 2003).

La plupart du temps, la partie soluble et/ou colloïdale des boues, même si elle est pressentie comme un facteur influent, ne fait pas l'objet d'équations très déterministes sur les mécanismes de leur influence sur le colmatage.

I.4.1.3.2 Variables hydrauliques

Au delà du flux, omniprésent dans la modélisation de la filtration, la variable la plus couramment utilisée pour décrire les conditions hydrodynamiques au voisinage de la membrane est le taux de cisaillement au voisinage de la membrane G (s^{-1}). Il peut être considéré soit comme uniforme (par exemple Wintgens et al. (2003); Saroj et al. (2008b)), soit comme dépendant d'une dimension spatiale (par exemple Jiang (2007); Busch et al. (2007)).

Delgado et al. (2008) proposent une équation pour l'estimer :

$$G = \left(\frac{\rho_b g Q_a}{A \mu_b} \right)^{1/2} \quad (\text{I.4.18})$$

Où

- ρ_b est la densité de la boue ($kg.m^{-3}$)
- μ_b viscosité de la boue ($Pa.s$)
- g est la constante gravitationnelle ($m.s^{-2}$)
- Q_b est le débit d'air ($m^3.s^{-2}$)
- A est l'aire du système d'aération (m^2)

La viscosité du perméat (souvent assimilée à celle de l'eau, corrigée en température) est utilisée pour alimenter la loi de Darcy. La viscosité de la boue est quant à elle estimée à partir de la température et de la concentration en MES (Delgado et al., 2008). Puis elle est utilisée pour prédire le taux de cisaillement. Cependant la prise en compte de ce taux de cisaillement est rare et réservée aux modèles dont le niveau de déterminisme est élevé.

I.4.1.4 Conclusion sur les modèles de filtration

La diversité des modèles de filtration existants tient surtout aux concepts fondamentaux pris en compte, et ne tiennent pas beaucoup compte de la spécificité des boues, hormis les modèles très complexes qui s'attachent à modéliser finement le comportement des particules au voisinage des membranes suivant leur taille, comme le modèle de Busch et al. (2007).

Une des principales lacunes des modèles actuels de filtration est la prise en compte simpliste de la partie soluble des boues, ce qui entraîne une difficulté pour prédire le colmatage sur le long terme. La prise en compte détaillée des éléments solubles conduit à une sur-paramétrisation non adaptée à un calage sur de grandes installations. Les phénomènes décrits le sont souvent sur de courtes durées, et un calage sur le long terme est souvent manquant. Une autre lacune des modèles existants est la faible prise en compte des lavages des membranes.

En effet, la modélisation de l'impact des rétrolavages conduirait probablement à la surparamétrisation du modèle (paramètres liés à la durée, au débit du rétrolavage, ou encore à la réversibilité du dépôt, sa capacité d'adhésion...). Ces paramètres peuvent être difficiles à caler, et ils peuvent de plus varier de façon significatives avec le temps.

I.4.2 Aperçu des modèles biologiques

Les modèles biologiques décrivent l'évolution des concentrations des substrats des eaux usées, de la biomasse impliquée et des co-produits de dégradation. Ils intègrent des processus biologiques comme la croissance ou le décès des bactéries, ou chimiques comme l'hydrolyse. Depuis le milieu des années 60, une dizaine de modèles ont été développés et utilisés (Gujer, 2006). Les modèles les plus utilisés pour la description du fonctionnement des boues activées sont les modèles ASM (Activated Sludge Model).

Ces modèles, principalement utilisés initialement à des fins de recherche, sont maintenant implémentés dans des logiciels de modélisation des procédés de traitement d'eaux usées. Leur utilisation dans l'industrie est cependant restée rare (Hauduc et al., 2009) du fait de leur complexité et car le dimensionnement des stations d'épuration est généralement effectué sur la base de grilles de calculs plus simples.

Les adaptations de ces modèles pour la modélisation des BRMs sont principalement orientées vers l'ajout des PMS, supposés déterminants dans le colmatage des membranes, et l'adaptation à des âges de boue

élevés, qui rendent non négligeables des processus biologiques qui l'étaient à faibles âges de boue (respiration endogène, dégradation d'une plus grande partie de la DCO). La recherche en ce sens connaît un essor depuis le début des années 2000, et a conduit à la naissance de nouveaux concepts introduits dans les modèles *classiques*. Cette partie commencera par poser les bases des modèles classiques, pour ensuite analyser les adaptations proposées dans le cadre de la modélisation des BRMs.

I.4.2.1 Modèles de boues activées classiques

Les modèles biologiques les plus utilisés pour les boues activées sont les modèles ASM. Le modèle ASM1 (Henze et al., 1987) décrit les processus de croissance aérobie et anoxie sur la matière organique et les composés azotés. Il décrit la croissance directe des bactéries sur le substrat provenant des eaux usées. Le modèle ASM3 (Gujer et al., 1999) décrit les mêmes processus, mais le substrat organique, au lieu de servir directement à la croissance, est d'abord stocké sous forme particulaire (de façon schématique à l'intérieur des bactéries), puis consommé. Cette modification a été apportée car en cas d'épisodes de faible taux de charge organique le modèle ASM1 prédit difficilement la croissance observée des bactéries. Le modèle ASM2d (Gujer et al., 1995) reprend les concepts de l'ASM1, mais ajoute des processus anaérobies, anoxie et aérobies servant à la prédiction de la sur-accumulation biologique du phosphate.

Fractionnement et représentation synthétique des modèles de boues activées Le fractionnement des boues utilisé dans ces modèles est basé dans un premier temps sur la distinction entre les composés solides (notés X) et solubles (notés S). Depuis peu (Corominas et al., 2010; Hauduc, 2010), une fraction colloïdale (notés C ou XC) a été ajoutée. Elle reste très peu utilisée, mais pourrait être utile dans le cas des BRMs, pour leur rôle particulier dans le colmatage des membranes. Dans la nomenclature adoptée (Corominas et al., 2010) les lettres en indice informent sur la composition chimique, ou la biodégradabilité, ou encore l'activité biologique des fractions décrites. La figure I.4.3 (ligne du haut) résume les nouveaux standards de notation préconisés pour les notations relatives au fractionnement des boues activées.

Chacune des fractions utilisée par les modèles est appelée variable d'état. Les équations décrivant les processus biologiques intervenant dans leurs interactions sont usuellement regroupées dans un tableau, appelé *matrice de Gujer* (figure I.4.4). Chacune des lignes représente un processus biologique, chaque colonne représente une variable d'état, sauf la dernière colonne où figurent les équations cinétiques des processus. Les processus biologiques sont en général décrits d'un point de vue cinétique par des lois de Monod, dont les coefficients cinétiques (μ , $b...$) et constante de demi-saturation (K) se notent suivant le tableau I.4.3. Les paramètres stoechiométriques sont notés comme indiqués sur les 2^{nde} et 4^{eme} lignes de la figure I.4.3.

Calage des modèles Les coefficients stoechiométriques présents dans la partie centrale de la matrice sont pour la plupart fixes. Ils sont définis par des lois chimiques et par la continuité des éléments et charges, par

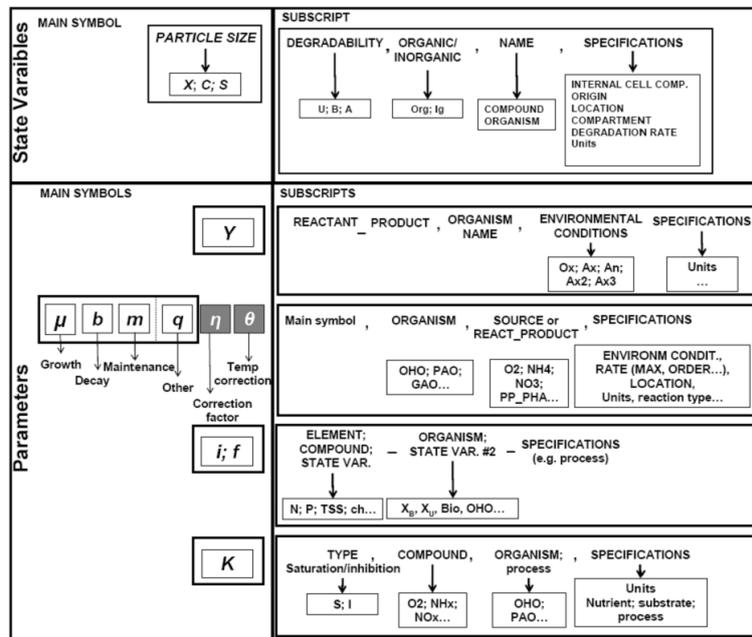


FIGURE I.4.3 – Notations harmonisées pour le fractionnement des boues activées selon Corominas et al. (2010)

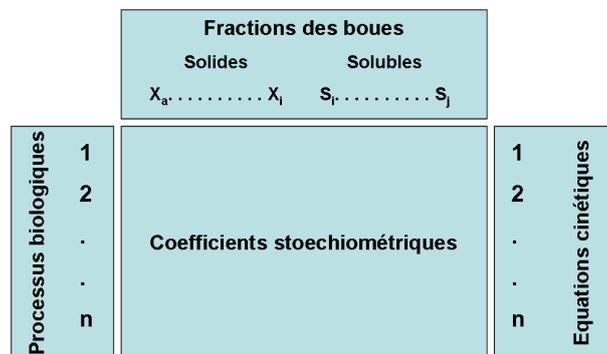


FIGURE I.4.4 – Schéma de la représentation matricielle de Gujer d'un modèle ASM

exemple des équivalences entre le kg de DCO (principale unité utilisée pour quantifier les variables d'état), l' O_2 , les différentes formes d'azote, et autres quantités utilisées. Certains ne nécessitent donc en principe aucun calage car ils sont connus *a priori* (coefficients de conversion entre DCO et degré d'oxydation de l'azote pour différents composants...). Certains, bien que souvent admis, sont moins robustes (fraction de matière biodégradable dans les résidus de décès bactériens, taux de croissance, constante de demi-saturation...). Ils dépendent souvent des caractéristiques de l'affluent.

Les paramètres qui requièrent un calage attentif à chaque utilisation sont ceux contenus dans les équations cinétiques (taux de croissance, de décès, constantes de demi-saturation...). Chaque calage effectué et relaté dans la littérature, aboutit sur un jeu de paramètres cinétiques propre. Des tentatives d'harmoniser ces jeux de paramètres n'ont aboutit qu'à des gammes relativement larges, sans qu'un outil analytique déterministe ne permette de les prédire *a priori* (Hauduc, 2010). En effet, la composition de l'affluent, les caractéristiques de la biomasse, les variables opératoires et la configuration de chaque station influencent le jeu de paramètres optimal pour décrire les processus (Choubert et al., 2009).

I.4.2.2 Modèles ASM adaptés aux BRMs sans variables d'état supplémentaire

L'âge des boues dans les BRMs est souvent plus élevé que pour les boues activées classiques. Lors du calage des modèles ASM, il en résulte l'obtention de jeux de paramètres différents. En particulier, A_B a un impact sur les cinétiques de nitrification (Baek et al., 2009; Delrue et al., 2010), et sur leur robustesse face à des baisses de température ou des variations de charge. De plus, les seuils de coupures des membranes entraînent un élargissement de la gamme des composés retenus dans la boue par rapport à la décantation. D'après Manser et al. (2005), le profil de taille des particules plus petites caractérisant les BRMs favoriserait l'activité des bactéries nitrifiantes, plus présentes à la surface des floes. Les longs âges de boue et l'élargissement de la gamme des composés retenus influencent aussi la phase colloïdale. Leur cinétique de dégradation est lente, et leur biodégradabilité, négligée dans les boues activées classique, devient plus importante dans les BRMs.

Certaines adaptations sont donc proposées dans la littérature pour ajouter des processus d'hydrolyse lente sans ajouter de variables d'état aux modèles. C'est le cas d'une adaptation des modèles ASM proposée par (Spérandio et al., 2013). Ils proposent, sur la base d'une revue bibliographique, d'intégrer une cinétique de dégradation des fractions précédemment inertes de l'affluent ($X_{U,inf}$) et non dégradables issues du décès bactérien ($X_{U,E}$), cela dans le but de prédire l'impact de A_B sur la production de boue. Mais ils ne proposent pas de réponse sur le devenir de ces fractions (transformation en composés solubles dégradables ou non). Dans la même veine, Lubello et al. (2009) proposent un modèle ASM1, également modifié avec deux cinétiques d'hydrolyse qui donnent deux fractions solubles dégradables et inertes (S_B et S_U). Ces cinétiques sont beaucoup plus lentes que l'hydrolyse de la fraction particulaire dégradables (XC_B).

Pour approfondir le cas des composés lentement biodégradables, d'autres auteurs pointent le besoin d'ajouter des variables d'état. Par exemple, Jimenez et al. (2010) parviennent à caler leur modèle ASM1 pour

un A_B de 15j, mais pas de 40j. Ils émettent l'hypothèse d'un besoin de prise en compte des PMS (composés supposés colloïdaux).

I.4.2.3 Modélisation de la production de PMS

Concepts Pour la modélisation biologique des boues, les exopolymères microbiens sont souvent répartis en deux ou trois des classes suivantes (figure I.4.5) :

- Les UAP (pour *Utilisation Associated Products*), composés solubles (ou colloïdaux) considérés comme des co-produits de la croissance des bactéries.
- Les BAP (pour *Biomass Associated Product*), composés solubles (ou colloïdaux) considérés comme issus du décès des bactéries ou de l'hydrolyse des EPS (*cf* ci-dessous).
- Les EPS sont également synthétisés pendant la croissance des bactéries, mais à l'inverse des UAP, ils restent attachés aux floccs, ils font alors partie de la phase particulaire des boues. Ils participent à la cohésion et à la densité des floccs.

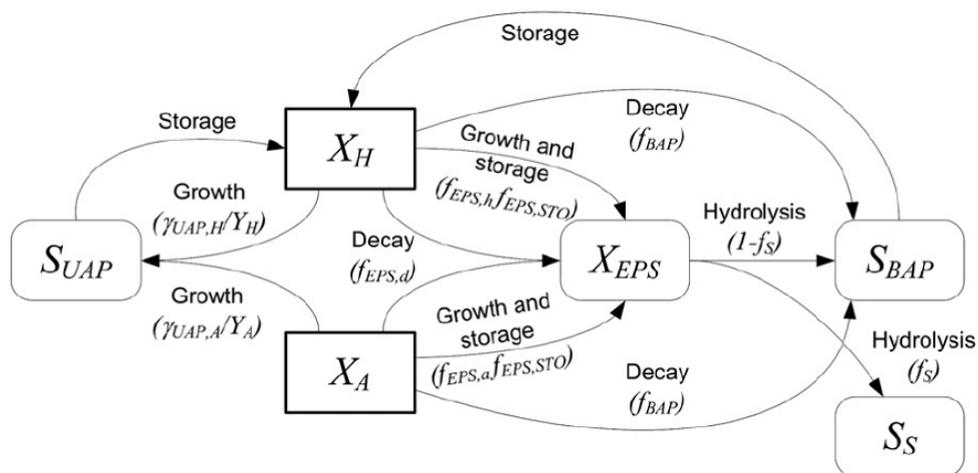


FIGURE I.4.5 – Exemple de schématisation des processus de formation et dégradation des exopolymères (Janus and Ulanicki, 2010). Cette représentation reprend presque tous les procédés utilisés dans les autres modèles pour décrire ces substances.

Dans les modèles étudiés, la production des UAP est systématiquement intégrée dans les processus de croissance des bactéries. La production des BAP fait moins consensus. Parfois elle est un co-produit de la lyse des bactéries (Lu et al. (2001) et ses descendants, Jiang et al. (2008), de Silva and Rittmann (2000)), parfois le produit de l'hydrolyse des EPS (Ahn et al., 2006; Aquino and Stuckey, 2008) et parfois les deux (Janus and Ulanicki, 2010). Une comparaison entre les différents moyens de modéliser la production de BAP montre que les deux mécanismes sont nécessaires à l'explication de résultats d'un pilote (Menniti and Morgenroth, 2010b).

La production des EPS est le plus souvent un co-produit de la croissance des bactéries, comme les UAP (Janus and Ulanicki, 2010; Lapidou and Rittmann, 2002; Ni et al., 2009). Dans ce cas le taux de croissance des bactéries est réduit, car une part de la biomasse produite est accaparée par la production des EPS. Parfois (Ahn et al., 2006), la production d'EPS est un processus à part. La première option évite d'avoir à caler un processus, donc des paramètres cinétiques supplémentaires, mais contraint à modifier le taux de croissance des bactéries, alors que la seconde nécessite de caler plusieurs paramètres, stœchiométriques et cinétiques.

La dégradation des PMS (UAP et BAP) est souvent modélisée par une étape d'hydrolyse (Jiang et al., 2008; Mannina et al., 2011), qui produit des composés solubles biodégradables et non biodégradables. Une alternative est de les considérer comme directement dégradables par la biomasse (Lu et al., 2001; Di Bella et al., 2008). Ces deux alternatives se traduisent par l'ajout de processus (soit un processus d'hydrolyse, soit un processus de croissance sur les PMS).

La figure I.4.6 montre les différentes tentatives effectuées pour intégrer les PMS dans la modélisation biologique des boues.

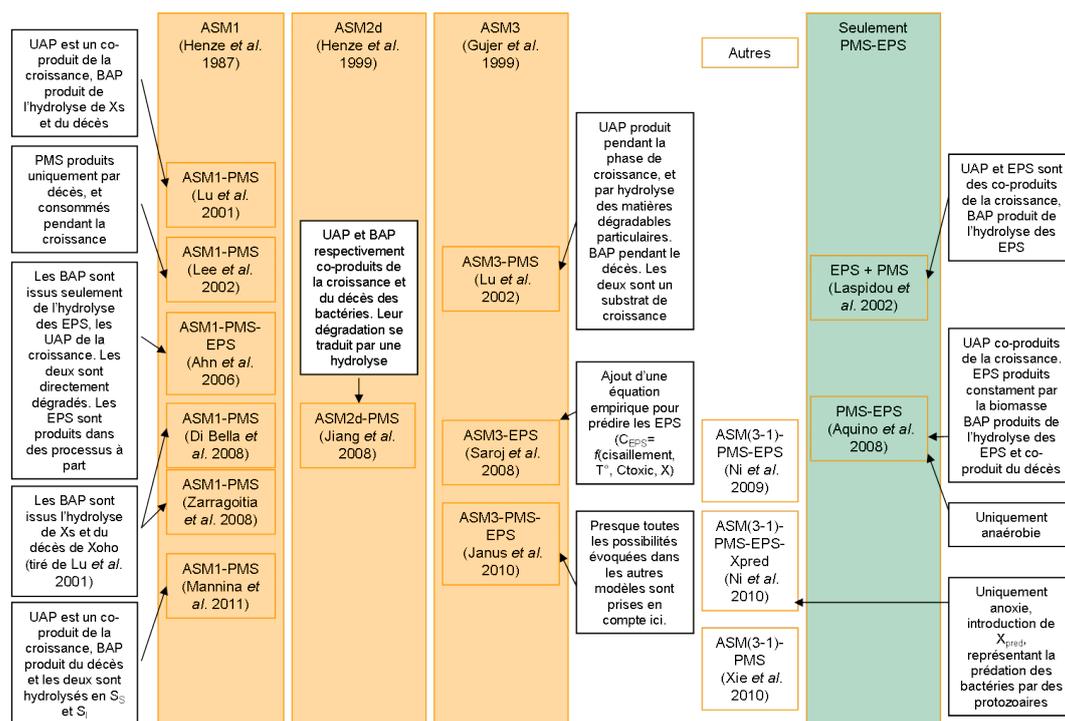


FIGURE I.4.6 – Évolutions des modèles biologiques intégrant les PMS depuis les années 2000

Suivant les concepts utilisés et leur conception, le nombre de paramètres à caler varie. Ainsi, certains auteurs ont privilégié l'exhaustivité des phénomènes décrits au détriment de la simplicité, voire de la faisabilité du calage (par exemple Janus and Ulanicki (2010)), alors que d'autres ont préféré limiter les nombre de paramètres nouveaux (Saroj et al., 2008a; Jiang et al., 2008).

Vérification de la cohérence des modèles Au delà de l'aspect conceptuel, les modèles publiés contiennent souvent des erreurs ou défauts, qui peuvent être de différentes natures. [Hauduc et al. \(2010\)](#) ont mené une étude systématique des articles décrivant les modèles ASM ainsi que d'autres modèles de boues activées classiques et ont conclu sur une méthodologie de détection et de correction (quand cela est possible) de ces erreurs.

Les plus fréquentes sont des erreurs de frappe. En étudiant en profondeur chaque modèle, elles sont visibles et la plupart du temps facilement corrigibles.

La méthode de vérification des bilans stœchiométriques proposée a été extrapolée à plusieurs modèles prenant en compte les PMS. En effet il est fréquent dans les modèles que le bilan DCO (ou azote) d'un processus soit non nul. C'est le cas pour le modèle de [Lu et al. \(2002\)](#) et ses descendants ([Zarragoitia et al., 2008](#); [Di Bella et al., 2008](#)), dans lesquels le bilan DCO du processus de croissance bactérienne est positif. En effet, la consommation d'un kg d'équivalent DCO de substrat ($O_2 + S_S$) produit un kg d'équivalent DCO de biomasse X_H plus des PMS (qui ont une valeur non nulle en DCO). Le tableau [I.4.2](#) résume les résultats de la vérification des bilans stœchiométriques de certains modèles incluant les PMS.

La multiplication des modèles ASM-PMS et la reprise d'un modèle à l'autre de concepts mal équilibrés souligne l'attention qui doit être apportée quand à la conception de nouveaux modèles. Ceci tient pour le choix des concepts utilisés, mais aussi pour la mise au point des processus décrits.

Calage et validation L'introduction des PMS/EPS dans les modèles conduit à une augmentation des paramètres à caler. Plus le degré de finesse et de différenciation entre différents types d'exopolymère est élevé, plus il sera difficile de différencier les processus en jeu lors de l'étape de calage. Ces difficultés sont d'autant plus grandes que les différences entre UAP et BAP d'un point de vue analytique ne sont pas identifiées. Le calage doit alors être effectué sur la base d'expérimentations pilote (expériences batch accompagnées de respirométrie) qui favorisent la production ou le déclin d'une des deux classes de PMS.

L'introduction des EPS en plus des PMS présente aussi le gros inconvénient de nécessiter une méthode expérimentale fiable capable de différencier la biomasse active des exopolymères fixés à celle-ci. Or même si ces méthodes existent, elles ne sont pas standardisées (cf partie [I.3.2.1.2](#)), ce qui diminue la reproductibilité d'un calage.

Cependant, une méthode existe pour éviter de rendre le modèle biologique moins fiable tout en prédisant la concentration en EPS. [Saroj et al. \(2008a\)](#) utilisent un modèle ASM3 *classique* et une équation indépendante pour prédire les EPS à utiliser dans le modèle de colmatage. Cette méthode semble d'autant plus pertinente que la concentration en EPS ou en PMS semble dépendre de variables non ou peu prises en compte dans les modèles biologique (cisaillements, ajouts de cations métalliques, sauts de température, sélectivité de la membrane,...). Elle est moins satisfaisante d'un point de vue scientifique, car à sens unique : l'influence de la concentration en EPS n'a pas d'influence sur le reste du modèle. Mais son calage peut être indépendant, ce

TABLE I.4.2 – Modèles ASM adaptés à la production et dégradation de PMS

Référence	Modèles de base	nb de processus supplémentaires	Variables d'état supplémentaires	Validation des bilans stoechiométriques
Lu et al. (2001)	ASM1	4 (formation et dégradation de BAP)	UAP et BAP	Déséquilibré car la production de PMS se fait en plus de la production de l'ASM1 à substrat équivalent
Laspidou and Rittmann (2002)	aucun	11	UAP, BAP, EPS, X_a , X_{res} , S	Semble satisfaisante, mais difficile à vérifier sans matrice
Jiang et al. (2008)	ASM2d	6 (hydrolyse)	UAP et BAP	Équilibré
Delrue (2008)	ASM1	2 (hydrolyse)	UAP et BAP dégradables + PMS non dégradables issus de l'hydrolyse des autres PMS	Équilibré
Zarragoitia et al. (2008)	ASM1 aérobie	2	UAP et BAP	Non équilibré (de même que pour Lu et al. (2001))
Ahn et al. (2006)	ASM1	5	UAP, BAP et EPS	Semble équilibré (difficile à vérifier en l'absence d'une matrice)
Di Bella et al. (2008)	ASM1	2	UAP et BAP	Non équilibré (de même que pour Lu et al. (2001))
Ni et al. (2010)	aucun	7	UAP, EBAP, GBAP, EPS (S_S , X_H et X_I)	Équilibré
Mannina et al. (2011)	ASM1	4 (hydrolyse)	UAP, BAP	Non équilibré, mais solvable en corrigeant des erreurs de signes dans la publication
Janus and Ulanicki (2010)	ASM3	6	UAP, BAP et EPS	Équilibré (DCO, azote, charge, solides) : certains paramètres ne sont pas données, mais leur valeur est supposée calculée pour satisfaire l'équilibre

qui évite le risque de perturbation d'un modèle biologique éprouvé, mais encore difficile à caler.

Utilité de ces modèles dans l'étude de la filtration Même s'il est plus difficile de caler un modèle contenant trois fractions d'exopolymères (UAP, BAP et EPS), il faut garder en tête un des objectifs de la modélisation des PMS : la prédiction du colmatage. Les EPS sont supposés avoir un impact différent des PMS sur le colmatage : ils agiraient plus sur le dépôt et la compacité du gâteau, alors que les PMS agiraient plus sur le colmatage long terme. Au sein des PMS, les UAP et les BAP semblent aussi avoir des propriétés physico-chimiques (taille, composition...) différentes, ce qui ne leur offrirait pas le même effet sur le colmatage. [Jiang \(2007\)](#) a comparé l'impact spécifique sur les colmatages réversibles ou non par rétrolavage des BAP (obtenus avec une biomasse en famine), des UAP (obtenus avec une biomasse nourrie d'acétate de sodium), d'un surnageant de boue activées de BRMs (chargé en PMS) et d'un surnageant de boue activées classiques (moins chargé en composés colloïdaux). Il conclue que les PMS participent au colmatage irréversible, et plus particulièrement les UAP, qui sont plus petits (donc plus aptes à colmater l'intérieur de la membrane). Le surnageant de boue activées classiques semble moins colmatant, du fait qu'il contient peu de PMS. Le surnageant de BRMs est colmatant, mais son effet est plus marqué sur le colmatage réversible, probablement par son effet sur le dépôt de gâteau, car son profil de taille est plus élevé. Le modèle associé à cette étude semble concluant dans ses résultats, mais est un cas isolé, et sa validation expérimentale porte sur une membrane tubulaire, donc des conditions hydrodynamiques différentes des plus couramment rencontrées dans l'industrie et la recherche. De plus il nécessite d'importants efforts de calage (production d'UAP et de BAP séparément). Dans d'autres modèles intégrés de la littérature ([Mannina et al., 2011](#); [Zarragoitia et al., 2008](#)), les PMS sont utilisés seulement de façon globale, et pour prédire la résistance du gâteau (et non la résistance interne de la membrane, sensée être plus long-terme).

L'engouement des équipes de recherches pour la modélisation des concentrations en PMS/EPS peut être critiqué, au vu de l'inadéquation de leur concentration totale et de leur fractionnement UAP/BAP dans la prédiction du colmatage (cf partie [1.3.2.5](#)). Si on ajoute à cela les difficultés liées au côté expérimental du calage de tels modèles, ainsi que la difficile reproductibilité de ce calage pour les modèles biologiques en général, les modèles *externes* comme celui proposé par [Saroj et al. \(2008a\)](#) semblent plus appropriés.

Le colmatage des membranes, outre la réduction de la perméabilité, a aussi un effet sur la sélectivité par rapport aux espèces solubles et colloïdales. Ainsi, le modèle de [Di Bella et al. \(2008\)](#) se concentre sur la prédiction de la DCO soluble en prenant en compte sa rétention variable dans le temps en fonction de l'état de colmatage de la membrane.

I.4.3 Modélisation des transferts d'oxygène, liens avec la consommation énergétique

Un bref rappel des principales équations de transfert d'oxygène entre des bulles et de l'eau claire sera effectué. Les modifications de ces lois dans le cas des boues activées seront présentées. Les caractéristiques propres aux transferts par fines bulles et par grosses bulles seront décrites. Cette section sera terminée par l'intégration de ces modèles dans la prédiction de la consommation énergétique des BRMs.

I.4.3.1 Transferts d'oxygène en eau claire

Le transfert d'oxygène de la phase gazeuse (bulles insufflées) vers la phase liquide se fait par diffusion moléculaire à l'interface gaz-liquide. Pour quantifier ce transfert, le coefficient $k_L a$ est couramment utilisé. Il fait le lien entre le gradient de concentration d'oxygène entre les bulles et la phase liquide, et le flux d'oxygène transféré (équation I.4.19).

$$OTR = k_L a \cdot (C^* - C) \quad (\text{I.4.19})$$

où :

- k_L est le coefficient de transfert ($m.s^{-1}$)
- a est la surface des bulles par unité de volume du liquide ($m^2.m^{-3}$, ou m^{-1}). Le produit $k_L a$ (s^{-1}) est souvent traité comme un seul paramètre.
- OTR (en anglais Oxygen Transfer Rate) est le taux de transfert d'oxygène d'une phase vers l'autre ($kg.s^{-1}.m^{-3}$)
- C^* est la concentration en oxygène du liquide quand l'équilibre est atteint ($kg.m^{-3}$)
- C est la concentration en O_2 dissous du liquide ($kg.m^{-3}$)

k_L dépend des caractéristiques de l'interface :

- épaisseur des couches limites, et plus spécifiquement de la couche limite côté liquide car c'est dans la phase liquide que les vitesses de diffusion sont limitantes. Cette épaisseur est fonction surtout de l'agitation ou de la vitesse ascensionnelle des bulles
- caractéristiques physico-chimiques des phases liquides et gazeuse (température, concentrations en tensioactifs)

a dépend de la quantité, de la forme et de la taille des bulles. Dans le cas de fines bulles, elles sont le plus souvent considérées comme sphériques. Leur taille dépend de la configuration des injecteurs, des cisaillements, de la pression, qui influencent aussi la coalescence ou la rupture des bulles.

On utilise en général le coefficient $k_L a$, mesuré expérimentalement, car son estimation sur la base des considérations ci-dessus est trop difficile. De plus, tous ces paramètres dépendent de la géométrie de l'installation

et de la nature des systèmes d'aération. La correction de $k_L a$ pour prendre en compte la température est faite suivant l'équation I.4.20 :

$$k_L a_{20} = k_L a \theta^{20-T} \quad (\text{I.4.20})$$

où

- $k_L a_{20}$ est le coefficient de transfert à 20 degrés (s^{-1})
- T est la température en degrés Celsius
- $k_L a$ est le coefficient de transfert à la température T (s^{-1})
- θ (sans unité) est un coefficient de correction (compris entre 1.01 et 1.05 selon [Capela \(1999\)](#))

Souvent la grandeur utilisée pour quantifier les transferts d'oxygènes est l'apport horaire (équation I.4.21) :

$$AH = 3600 k_L a C_S V \quad (\text{I.4.21})$$

où

- AH est l'apport horaire en oxygène ($kgO_2.h^{-1}$)
- V est le volume de boue aérée (m^{-3})

Ce modèle de transfert d'oxygène est communément utilisé pour prédire les transferts d'oxygène. La difficulté qu'il présente lors de l'utilisation réside dans la détermination de $k_L a$. En effet, ce coefficient dépend des caractéristiques de conception des bassins (volume, caractéristiques des systèmes d'aération) et du fluide aéré. Le paragraphe suivant présente les résultats de la littérature visant à prédire ce coefficient dans les boues activées.

I.4.3.2 Transferts d'oxygène en boue

L'estimation des transferts d'oxygène en boue se fait par correction du coefficient $k_L a$ en eau claire suivant l'équation I.4.22 :

$$k_L a_{boue} = k_L a_{20, \text{eau claire}} \alpha (\beta C_S - C) \theta^{20-T} \quad (\text{I.4.22})$$

où

- α est un nombre sans dimension compris entre 0 et 1 qui fait référence à l'impact de la composition des boues sur le coefficient de transfert
- β est le rapport entre la concentration à saturation en oxygène des boues et celle de l'eau claire. Il est compris entre 0.95 et 0.99 dans le cas des boues de station d'épuration d'eaux usées domestiques ([Capela, 1999](#)).

Les plages de variation de ces deux facteurs donnent une importance primordiale à l'estimation du facteur α dans la prédiction du transfert d'oxygène en boue. Le facteur β est souvent négligé, ce qui donne l'équation simplifiée à 20° la plus couramment utilisée :

$$\alpha = \frac{k_L a_{boue}}{k_L a_{eauclaire}} \quad (\text{I.4.23})$$

L'enjeu d'une grande partie des recherches sur les transferts d'oxygène est l'étude de l'influence de la composition des boues sur ce facteur α .

I.4.3.2.1 Fines bulles

Dans le cas des fines bulles, la caractéristique des boues qui semble être le plus représentée pour son influence sur le paramètre α est la concentration en MES (figures I.4.7).

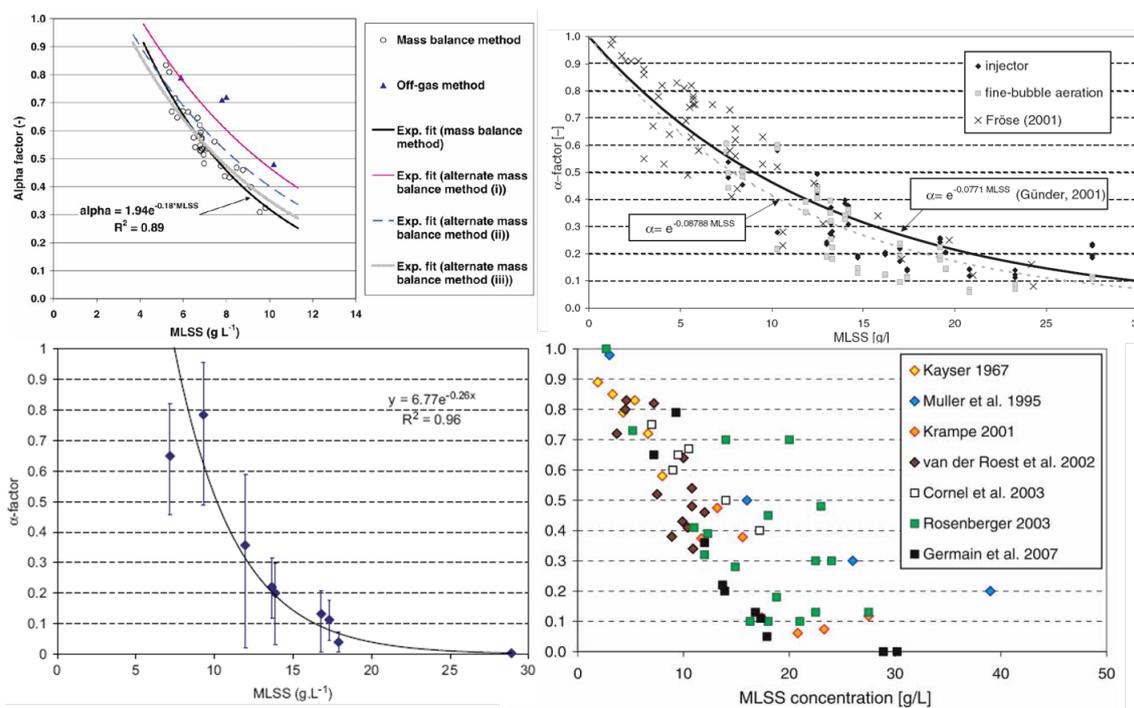


FIGURE I.4.7 – paramètre α en fonction des MES dans la littérature (Henkel et al., 2011; Krampe and Krauth, 2003; Racault et al., 2011; Germain et al., 2007)

La relation entre MES et α est systématiquement négative. On en conclue que pour améliorer l'efficacité énergétique de l'aération, il est préférable de maintenir la concentration de boues suffisamment faible. Souvent une relation exponentielle entre α et MES est utilisée. La dispersion des valeurs de α autour de la courbe de tendance est révélatrice de plusieurs biais.

D'une part, les méthodes de mesure employées peuvent conduire à des résultats contradictoires même issus de mesures sur la même installation (Racault et al., 2011) (en haut à gauche de la figure). De plus, le système

d'aération étudié semble influencer α (Krampe and Krauth, 2003) (en haut à droite de la figure).

D'autre part, la concentration en MES à elle seule ne permet pas de prédire précisément la valeur de α . D'autres caractéristiques des boues peuvent entrer en compte. La figure I.4.8 synthétise quelques résultats de la littérature concernant non plus l'influence des MES mais de leur composante volatile *MVS* et de A_B . La relation décrite par α en fonction de cette variable y semble beaucoup moins dispersée, et quasi-linéaire cette fois.

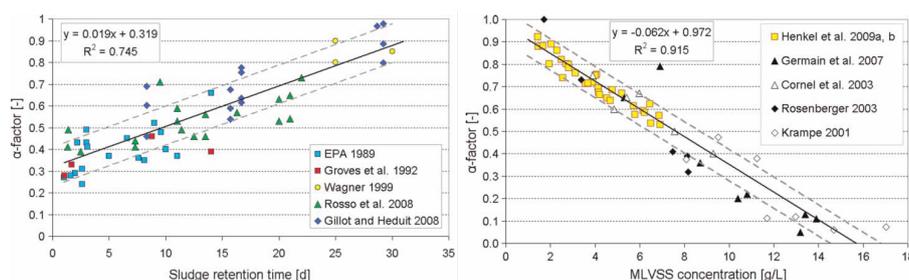


FIGURE I.4.8 – Paramètre α en fonction de A_B et des MVS (Henkel et al., 2011)

D'autres mécanismes sont invoqués par les auteurs de ces études :

- La concentration en EPS rendrait les floccs plus poreux, favorisant la diffusion en leur sein (Germain et al., 2007).
- Les PMS agirait comme des agents de surface, limitant le coefficient de transfert entre l'air et l'eau (Germain et al., 2007).
- La portion de la surface des bulles occupée par le contact direct avec le flocc serait à l'origine d'une diminution du coefficient de transfert (Henkel et al., 2011).
- La viscosité de la boue limiterait la dispersion de l' O_2 , probablement par une limitation des mouvements de convection (Krampe and Krauth, 2003) qui conduirait à l'augmentation de l'épaisseur de la couche limite à l'interface

Pour approfondir encore cette approche, Henkel et al. (2011) ont étudié l'impact de A_B , un autre indicateur de la composition des floccs. Cet indicateur a l'avantage d'être accessible via des modèles biologiques bien établis (à la différence des PMS, EPS et autres viscosité). Ils parviennent ainsi à affiner la fiabilité de leur prédiction du facteur α (équation I.4.24).

$$\alpha = 0.51 - 0.062MVS + 0.019A_B \quad (\text{I.4.24})$$

Il est cependant à noter que cette équation s'applique au traitement des eaux grises (eaux usées ne contenant pas les rejets des toilettes).

I.4.3.2.2 Grosses bulles

Plusieurs raisons entraînent une efficacité des transferts d'oxygène plus faible par les grosses bulles :

- La plus petite surface spécifique de contact entre les bulles et la boue (valeur du a de $k_L a$) à quantité d'air totale équivalente (Racault et al., 2011; Henkel et al., 2009)
- les bassins membranaires sont moins hauts que les bassins d'aération
- Le petit volume des bassins membranaires par rapport à la quantité d'air injecté conduit au maintiens d'une concentration d'oxygène élevée, proche de la saturation, ce qui diminue encore le transfert.
- Le faible temps de passage des boues dans les CM en raison des forts taux de recirculation et de leur petit volume réduit la part d'oxygène apporté par l'aération grosses bulles. Cet argument est important dans le cas des fibres creuses, et moins dans le cas de membranes planes (CM plus grandes)

Un autre argument semble moins évident : la concentration en *MES* dans les CM étant plus élevée, on peut s'attendre à un facteur α réduit par rapport aux bassins d'aération. Cependant, dans le cas de l'aération grosses bulles, la relation qui relie le facteur α à la concentration en *MES* semble différente. D'après Racault et al. (2011), α serait indépendant de la concentration en *MES* dans le cas de grosses bulles.

I.4.3.3 Modélisation de la consommation énergétique

La consommation énergétique de la filière biologique des BRMs (bassins biologiques et cellules membranaires) se décompose en quatre grands postes : pompage (perméat et recirculations), aération grosses bulles (GB), aération fines bulles (FB) et agitation des bassins biologiques (hélices immergées la plupart du temps). Les trois derniers postes de consommation cités interagissent (l'un contribue à la finalité de l'autre) suivant le schéma figure I.4.9.

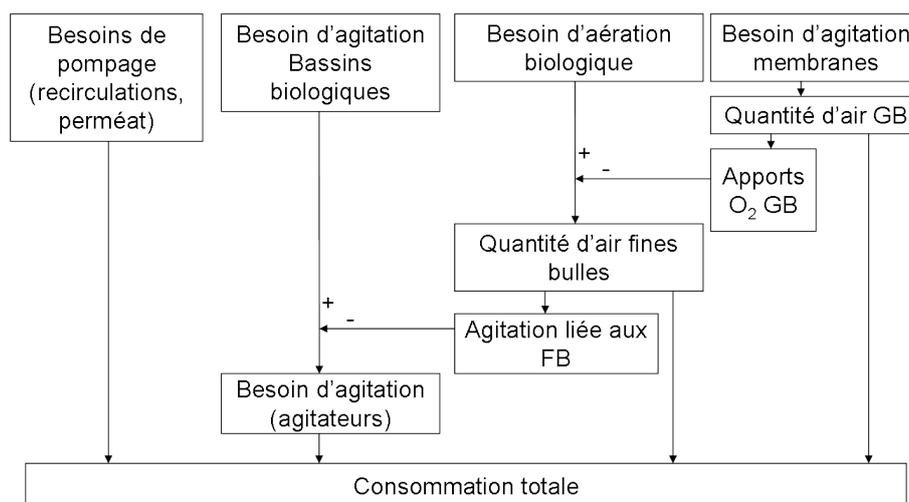


FIGURE I.4.9 – Principaux postes de consommation énergétique d'un BRM et leurs interactions

Une fois les besoins définis (par les modèles biologiques, modèles de filtration et modèles hydrauliques de

la station, mais le plus souvent par des données empiriques), on peut calculer la consommation énergétique par des formules reliant l'effet des appareils (débit d'air, débits de boue ou d'eau, énergie d'agitation fournie) à l'énergie effectivement consommée.

Pour ce qui est de l'énergie consommée pour l'aération, la publication de [Maere et al. \(2011\)](#) résume la façon de calculer l'énergie consommée en fonction de la configuration de la station et des besoins en agitation des membranes et en oxygène que l'on s'est fixé. Pour l'aération des membranes, les valeurs sont celles fixées par les fabricants sur la base de leur propres expérimentations.

La consommation énergétique de la filière biologique des BRMs grandeur réelle est principalement liée à l'aération, fines bulles et grosses bulles. Une étude récente portant sur deux BRMs membranes planes et quatre BRMs à fibres creuses ([Barillon et al., 2013](#)) confirme cette tendance.

I.4.4 Conclusion sur la compatibilité des modèles

Finalement, quand on compare l'avancée des recherches sur les différentes étapes du traitement dans les BRMs, on constate un fort décalage. La figure [I.4.10](#) résume ce décalage dans les différentes étapes. Les principaux thèmes de recherche y sont représentés en colonnes :

- les variables classiques, qui sont prises en compte dans la majorité des modèles.
- les PMS (quantité globale) dont la concentration est modélisée par certains modèles biologiques, et qui sont prises en compte en tant qu'entrée de certains modèles de filtration, sans pour autant faire l'unanimité ([Drews et al., 2008](#))
- et les modèles qui tentent de fractionner les PMS. A ce niveau, les caractérisations utilisées dans les modèles biologiques et dans les recherches sur la filtration ne sont pas les mêmes. En effet, et pour la commodité de la modélisation, les modèles biologiques distinguent différents types de PMS sur leur mécanismes de formation et de dégradation. Dans le cas des modèles de filtration, les différentes recherches sont plutôt orientées vers la différenciation des PMS selon leurs caractéristiques chimiques (protéines ou polysaccharides).

On voit que certains aspects de la filtration sont encore au stade exploratoire (on ne sait pas encore définir clairement leur impact sur le colmatage), mais sont déjà des sorties des modèles biologiques.

Le type d'interactions entre le colmatage et la biomasse décrit par la figure [I.4.11](#) ([Guglielmi et al., 2007](#)) est peu décrit pas les modèles biologiques, bien que les modèles comprenant les PMS tentent de combler cette lacune.

I.4.5 Modèles intégrés existants

Le tableau [I.4.3](#) donne un aperçu des modèles intégrés parus dans la littérature. On peut distinguer deux principaux objectifs aux modèles intégrés :

	Variables classiques	PMS	Caractérisation des PMS
Filtration	Modèles existants calés	Modèles existants calés mais soumis à controverses	Hypothèses (sur la composition, l'hydrophobicité, ou la taille)
Biologie	Modèles existants calés	Modèles existants calés mais soumis à controverses	Hypothèses et modèles sur la provenance (décès cellulaire, co-produits de la croissance)
Aération	Modèles existants calés	Hypothèses (pas de modèles)	Pas à l'étude

FIGURE I.4.10 – Avancées de la modélisation biologique, de la filtration et de l'aération

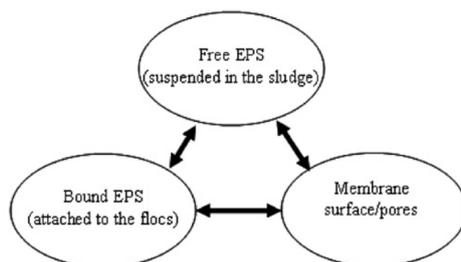


FIGURE I.4.11 – Influence des équilibres entre particules et colloïdes sur le colmatage (Guglielmi et al., 2007)

TABLE I.4.3 – Modèles intégrés de la littérature

Référence	Modèle de filtration	Modèle biologique	Modèle hydrodynamique	Modélisation de la consommation énergétique	Expérience
Lee et al. (2002)	Rés.en séries ($R_M + R_C$)	ASM1 + SMP	Non	Non	Non
Wintgens et al. (2003)	Rés.en séries ($R_M + R_C + R_F$)	ASM3	Non	Non	Installation grandeur réelle
Saroj et al. (2008a)	Ognier et al. (2004), basé sur la concentration en EPS	ASM3 + EPS	Non	Non	Non
Zarragoitia et al. (2008)	Basé sur Li and Wang (2006)	ASM1 + SMP	Profil de cisaillement sinusoïdal	Non	Réacteur de laboratoire 10.5L
Di Bella et al. (2008)	Basé sur Li and Wang (2006), mais prédiction de la $DCO_{permeat}$ et non de la perméabilité	ASM1 + SMP	Non	Non	Réacteur pilote
Jiang (2007)	Rés en série + diminution de la surface de filtration	ASM2d + SMP	Oui	Oui	Pilote, membranes tubulaires
Verrecht et al. (2008)	Non	ASM1	Oui	Oui, très fine	Non
Mannina et al. (2011)	Basé sur Li and Wang (2006)	ASM1 + SMP	Oui : variation spatiale du cisaillement	non	Pilote 190L
Tian et al. (2011)	Basé sur Li and Wang (2006) pour le gâteau, en plus complexe	ASM3 + SMP	Oui : prédiction du cisaillement avec le débit d'air, MES et T	Non, mais proche	Pilote 150L, bons résultats pour la biologie, mais épaisseur de gâteau prédite de 2cm!

- La compréhension des processus physiques et biologiques et de leurs interactions
- L'optimisation du procédé (en termes de coût et de qualité de traitement)

Les modèles les plus représentés dans la littérature font partie de la première catégorie, qui est en fait un préalable à la seconde. Le point le plus exploré dans ce domaine est la modélisation à la fois du colmatage des membranes et des aspects biologiques. Pour cela, une grande partie des composantes biologiques des modèles intégrés prédisent une concentration en produits microbiens, solubles et/ou liés, mais on remarque que la causalité entre les concentrations en PMS et le colmatage est assez peu représentée par la plupart des modèles. Cela est facilement visible dans le modèle de [Lee et al. \(2002\)](#), dans lequel bien que la composante biologique prédise les PMS, le modèle de filtration est basé uniquement sur le dépôt de gâteau. Dans les modèles basés sur le modèle de filtration de [Li and Wang \(2006\)](#) prenant en compte les PMS, le colmatage n'est pas prédit ([Di Bella et al., 2008](#)), ou alors les PMS n'ont d'influence que sur la résistance spécifique du gâteau ([Zarragoitia et al., 2008](#); [Mannina et al., 2011](#)), et non sur la résistance interne de la membrane. Le seul modèle confronté à des données issues d'une installation grandeur réelle ([Wintgens et al., 2003](#)), et dont les résultats de validation sont cohérents ne prend pas non plus en compte les PMS dans le colmatage long terme, mais le cumul de flux de perméat (ce qui est finalement quasi-équivalent si les concentrations en PMS ou autres composants du surnageant varient peu). Un autre type de modèle de filtration incluant les PMS ou autre composants supposée adhérent, donc ayant un impact sur le bouchage des pores, est la diminution de la surface effective de filtration. Ce concept, exprimé de façon différente dans chaque cas, a été ajouté à un modèle ASM2d+SPM par [Jiang \(2007\)](#) et à un modèle ASM3+EPS par [Saroj et al. \(2008a\)](#). Il permet de relier la concentration de la phase soluble (typiquement les PMS) avec le colmatage long-terme des membranes. Cependant, la validation de ces modèles a été effectuée sur une échelle de temps limitée (70h pour [Saroj et al. \(2008a\)](#)) ou sur un module de filtration tubulaire, peu représentatif des installation grandeur réelles en fonctionnement ([Jiang, 2007](#)).

On en conclue qu'à ce jour, aucun modèle performant pour la prédiction des processus biologiques (PMS inclus) et leur lien avec le colmatage (et en particulier sur le long terme) n'est au point et validé sur installation grandeur réelle.

La modélisation doit souvent faire un compromis entre la complexité des phénomènes décrits et l'applicabilité du modèle, c'est-à-dire la faisabilité du calage et de la validation du modèle. Plus le nombre de phénomènes pris en compte est élevé, plus le nombre de paramètres est élevé, et donc les sources d'erreurs (conceptuelles et expérimentales) importantes. En effet le risque d'attribuer à un mécanisme les conséquences d'un autre se voit augmenter, et il devient difficile de dissocier les effets spécifiques de chacun des phénomènes en jeu. Le calage est d'autant plus difficile à effectuer si le site expérimental est de grande échelle, ce qui multiplie les incertitudes liées aux éléments mal connus de la station.

I.4.6 Modélisation statistique du colmatage

Pour contourner certaines difficultés liées à la complexité des modèles déterministes, et à leur tendance à ne pas pouvoir prendre en compte tous les phénomènes liés au colmatage (soit parce qu'ils sont ignorés, soit parce qu'ils sont difficiles à quantifier), des approches statistiques empiriques ont été effectuées. Le but étant d'identifier voire de quantifier dans des relations le plus souvent multilinéaires les liens existants entre le colmatage et des caractéristiques de fonctionnement de l'installation étudiée, sans devoir distinguer quel mécanisme physique ou succession de mécanismes physiques sont en jeu.

Ici encore les variables d'entrée utilisées nécessitent souvent des moyens expérimentaux poussés. C'est le cas de l'étude de [Van den Broeck et al. \(2011\)](#). Les caractéristiques des boues qu'ils utilisent sont les concentrations en PMS et EPS, en MES, et des variables caractéristiques de la floculation comme l'hydrophobicité relative et plusieurs indices de compacité des floes obtenus grâce à de l'analyse d'images microscopiques. Le colmatage y est caractérisé sur le court-terme dans une petite cellule de filtration externe. Les boues de dix BRM grandeur réelle ont été testées, en hiver et en été. Les relations multilinéaires établies entre les caractéristiques des boues et de colmatage ont permis de retrouver l'indice de colmatage sur tous les points avec un coefficient de corrélation R^2 de 0.99, en effectuant une validation croisée. [Galinha et al. \(2011\)](#) ont procédé au même type d'analyse, avec comme variables d'entrée des composantes issues des spectres de fluorescence 2D du surnageant des boues et du perméat, et dans une installation pilote.

Ces deux précédentes études ont utilisé une régression sur moindres carrés partiels (PLS) pour aboutir finalement à des résultats prédictifs intéressants, sans toutefois s'intéresser aux évolutions sur le long terme du colmatage des membranes.

On trouve aussi dans la littérature une approche différente, qui cherche à prédire de façon statistique les évolutions sur le long terme du colmatage des membranes en se basant sur le comportement présent et passé des membranes. Plusieurs indicateurs court-terme du colmatage ont été définis par [Maere et al. \(2012\)](#) et comparés avec le comportement des membranes qu'ils entraînaient. Ces données, traitées par ACP et par une méthode statistique appelée *fuzzy clustering*, permettent de prédire le colmatage des membranes d'une installation pilote sur le moyen terme (plusieurs jours).

Toutes ces études ont en commun l'utilisation d'un traitement statistique des données historiques des installations pour prédire leur comportement futur.

Ces études font apparaître des résultats intéressants mais sont cependant difficiles à mettre en œuvre sur installations grandeur réelles (méthodes analytiques poussées) et donnent peu de résultats sur le colmatage long terme.

Chapitre I.5

Objectifs de la thèse

I.5.1 Objectifs à long terme

I.5.1.1 Diminution de la consommation énergétique des BRMs

Le procédé BRM est très performant en termes d'abatement des concentrations en polluants. Au début des années 2000, son coût d'investissement était prohibitif, principalement en raison du prix au m^2 des membranes. Ce frein économique a été levé du fait des évolutions des techniques et de l'augmentation du volume de production des membranes (Buer and Cumin, 2010). Le prix de fonctionnement du procédé, malgré une baisse pendant la dernière décennie, est toujours plus élevé que pour les procédés classiques. Ce surplus est essentiellement dû à sa consommation énergétique (Brepols et al., 2010). L'énergie consommée par les BRMs est principalement imputable à deux raisons :

- à la forte concentration de boue appliquée dans ce procédé (entre 5 et 10g/L, contre moins de 5 pour les BAC). Cette concentration conduit à de faibles coefficients de transferts d' O_2 (cf 1.4.3), puis une consommation d'énergie d'aération fines bulles accrue. Cependant cette concentration permet aussi la diminution de la taille des réacteurs à âge de boue constant ou les forts âges de boue à volume constant. Un grand âge de boue fait diminuer la production de boue et favorise le développement des populations bactériennes nitrifiantes. Même si l'augmentation de l'âge des boues semble faire diminuer le colmatage, ce point est encore discuté dans la littérature.
- à l'aération grosses bulles, utilisée pour freiner le colmatage des membranes. L'importance de ce poste de consommation est en partie liée à une mauvaise compréhension des mécanismes du colmatage. En effet, le colmatage des membranes n'est pas pris en compte dans le choix des variables opératoires comme l'âge ou la concentration des boues. De cela résulte une stratégie de décolmatage des membranes constante dans le temps, donc une consommation énergétique forte quand des baisses de potentiel colmatant des boues permettraient sa diminution.

La complexité des interactions entre les caractéristiques des boues, le colmatage, la configuration de la station et la consommation énergétique est telle que l'observation des effets d'une variable isolée sur le

comportement des autres ne permet pas l'optimisation globale du procédé. C'est la raison pour laquelle un modèle intégré est un outil important dans la diminution de la consommation énergétique des BRMs.

I.5.1.2 Modélisation intégrée

L'objectif du modèle intégré à développer est de pouvoir relier toutes les composantes du procédé (processus biologiques, colmatage des membranes, apports d'oxygène et consommation énergétique) dans un même système d'équations. Pour concevoir un tel modèle on peut se baser sur les travaux existants :

- La modélisation des processus biologiques en jeu dans les boues activées de BRM a déjà été couramment utilisée, cela même sur des installations grandeur réelles. L'objectif premier de ces modèles est la prédiction des performances épuratoires du procédé. Un des défis actuels est la prédiction des concentrations en substances colmatantes. Dans ce sens, de nombreux efforts ont été effectués pour intégrer à des modèles de type ASM les PMS, supposés déterminants dans le potentiel colmatant des boues.
- La modélisation du colmatage des membranes a fait l'objet de nombreuses études de laboratoires sur le court terme (moins de 10 jours). La recherche n'est cependant pas arrivée sur un consensus concernant la nature des produits influençant le colmatage long terme des membranes. La modélisation souffre de cette lacune.
- La modélisation des transferts d'oxygène est déjà bien établie, et relie en général la consommation de ce poste à la concentration en MES. Même si les modèles empiriques de l'influence de la concentration de boue sur les transferts d'oxygène sont robustes, les déterminismes sous-jacents demeurent peu consensuels. Sur la base de ces modèles la consommation énergétique liée à l'aération des membranes comme des bassins biologiques est prédite de façon fiable.

Les principales lacunes théoriques de la modélisation intégrée résident dans les liens entre la modélisation biologique et la modélisation de la filtration, et en particulier du colmatage sur le long terme des membranes. Les composants des boues responsables du colmatage sont encore mal identifiés dans les études exploratoires à ce sujet. Les matières solubles résident au cœur de ce problème. En tant que sorties des modèles biologiques, les propriétés qui les caractérisent sont principalement leur dégradabilité, puis leur provenance. Elles sont souvent quantifiées en deux fractions : les composés solubles non biodégradables et les biodégradables. Avec l'essor de la modélisation des PMS, deux fractions supplémentaires apparaissent : les UAP et les BAP. Cependant, les études portant sur le potentiel colmatant des matériaux solubles contenus dans les boues pointent la taille des molécules, leur hydrophobicité, ou encore leur composition (souvent une distinction est faite entre les protéines et les polysaccharides). Ces dernières caractéristiques sont absentes dans les sorties des modèles biologiques existants.

Dans la pratique, le calage d'un modèle intégré capable de prédire le colmatage des membranes sur la base des sorties d'un modèle biologique est très lourd d'un point de vue expérimental. De plus, sa mise en œuvre sur le long terme et sur une installation grandeur réelle reste un défi pour les années à venir. Or la validation

en grandeur réelle est un aspect fondamental pour l'utilisation future des modèles.

I.5.2 Objectifs court-terme

La difficulté à appliquer un tel modèle intégré déterministe en grandeur réelle repose en partie sur l'analyse de la phase soluble, et en particulier de la taille des molécules, des fractions protéines/polysaccharides, de l'hydrophobicité de ces substances. En plus des analyses spécifiques aux modèles biologiques, pour la plupart standardisées et fiables, s'ajoutent ces analyses supplémentaires dont les méthodes varient d'une étude à l'autre. Cette difficulté est croissante avec la taille du site expérimental étudié, et l'échelle de temps de l'étude (multiplication du nombre de bassins, d'analyses et d'incertitudes). L'étude présentée ici a pour objectif de modéliser le colmatage long-terme sur une installation grandeur réelle, mais par des moyens plus empiriques, basés sur un apprentissage en ligne du modèle sur la base de variables possibles à suivre dans des conditions d'exploitation.

I.5.2.1 Étude grandeur réelle

Le travail a été effectué avec comme site expérimental une installation grandeur réelle. Cet aspect constitue sa principale originalité et présente des intérêts importants.

En effet les études grandeurs réelles sont un complément indispensable aux études de laboratoire et sur pilotes, car elles permettent de vérifier que les résultats sont encore valables dans les conditions d'exploitation courantes. Elles confirment (ou infirment) la faisabilité du suivi de certains paramètres. C'est pour cela que le fait de travailler sur un BRM grandeur réelle n'est pas un moyen mais un objectif en soi. Outre la complexité du schéma hydraulique, l'étude grandeur réelle comprend d'autres difficultés :

- Certains détails de fonctionnement ne sont pas accessibles avec une précision égale à celle des installations de laboratoire ou pilote.
- Les plages de variations des variables étudiées sont limitées par l'assurance du bon rendement épuratoire et le respect des conditions des constructeurs pour garantir les différents éléments de la station.

Pour contourner le frein lié à la complexité des modèles et des analyses liées à leur calage, un des objectifs de l'étude est d'utiliser des variables opératoires accessibles en installation grandeur réelle. Une étude bibliographique permet de sélectionner des variables qui remplissent les deux conditions suivantes :

- Accessibles dans des installations grandeur réelle.
- Identifiées dans la littérature comme ayant un impact significatif (mais parfois indirect) sur le colmatage des membranes.

I.5.2.2 Modélisation statistique et prédiction du colmatage des membranes

Comme évoqué dans la partie [I.4.1](#), les modèles déterministes de filtration sont peu adaptés aux conditions grandeur réelle (peu de données sur l'impact des lavages, peu de modélisation du colmatage très long terme...),

et souvent très complexes. Ils prennent alors en variables et paramètres d'entrée des données difficiles à collecter (distribution de taille des particules voire leur forme, taille des pores des membranes...).

Dans la perspective d'une modélisation des bioréacteurs à membranes qui prenne en compte les évolutions de la perméabilité des membranes, mais sans rentrer dans les détails des mécanismes de la filtration ou de la composition fine de la boue, une approche statistique a été envisagée pour mettre en relation des variables facilement accessibles par l'exploitant avec différents indicateurs (court-terme et long-terme) du colmatage des membranes. Cette approche permet d'appliquer à des installations grandeur réelle une routine qui met en valeur des corrélations entre les variables de fonctionnement de la station d'épuration et les évolutions du colmatage, tout en limitant la complexité des mesures *in situ*. La compréhension des mécanismes de filtration se fait alors sur la base d'une analyse bibliographique et se traduit par la tentative de confirmation ou d'infirmerie des hypothèses sur les mécanismes de la filtration sur la base des résultats statistiques obtenus.

Dans un second temps, les résultats de cette analyse statistique ont été mis à l'épreuve pour une tentative de prédiction du colmatage à long terme des membranes, et en particulier les épisodes de colmatage sévères observés sur le BRM qui a fait l'objet de notre étude.

Deuxième partie

**Instrumentation et caractérisation
du fonctionnement d'un BRM
grandeur réelle**

Chapitre II.1

Présentation de la station

II.1.1 Choix de la station

Le BRM qui a fait l'objet de notre étude a été choisi en premier lieu pour une étude visant à évaluer les transferts d'oxygène dans les boues de bioréacteurs à membranes. L'étude s'est faite dans le cadre d'une collaboration avec un bureau de recherche et développement. Cette collaboration impliquait aussi les concepteurs et les exploitants de l'installation. Les principaux critères de sélection du BRM étudié ont été les suivants :

- la conduite de l'installation doit être réalisée par le groupe partenaire
- l'installation est équipée d'un bassin tampon, pour pouvoir opérer à charge constante lors de certains protocoles
- les bassins membranaires (au moins 2) sont séparés du bassin biologique, pour pouvoir étudier séparément les transferts d' O_2 par les grosses bulles (bassins membranaires) et les fines bulles (bassins d'aération)
- le taux de charge hydraulique est supérieur à 50% de la charge nominale
- absence de zone anaérobie pour ne pas avoir besoin de prendre en compte les processus de suraccumulation biologique des phosphates
- possibilité d'accéder à toutes les données de la supervision pour réaliser des bilans précis

Le BRM suivi respecte tous ces critères, à l'exception de la présence d'une zone dite anaérobie. Nous verrons par la suite que le faible volume de ce bassin limite le temps de passage, et empêche la mise en place de processus anaérobies.

II.1.2 Description du procédé

Ce BRM a été mise en service en 2008 et a une capacité nominale de 66700 EH. La figure [II.1.1](#) présente un schéma simplifié de son fonctionnement.

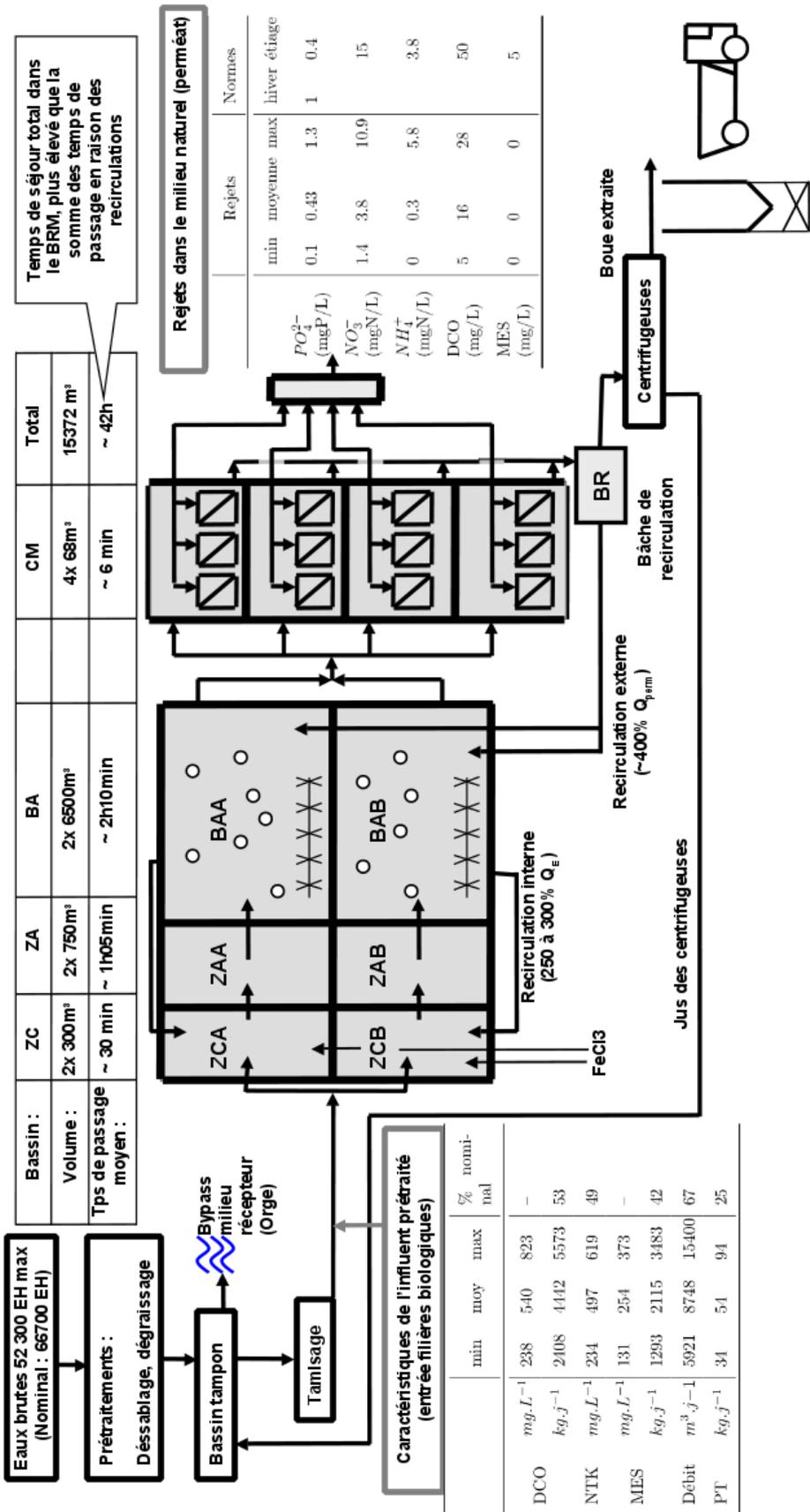


FIGURE II.1.1 – Schéma du BRM

Après un prétraitement (dégraissage, dessablage, tamisage à $0.8mm$) et un bassin tampon, l'eau brute est répartie sur deux filières biologiques. Chacune d'elles est composée d'une zone de contact (ZC) de $300 m^3$, d'un bassin d'anoxie (ZA) de $750 m^3$ et d'un chenal d'aération séquencée (BA) de $6500 m^3$. Une recirculation à débit fixe appelée recirculation interne (à chaque filière biologique), renvoie une partie des boues de BA dans les ZC ($500 m^3.h^{-1}$, soit entre 250% et 300% du débit d'entrée suivant sa valeur). Il en résulte des temps de passage dans les ZC et ZA respectivement de l'ordre de 30 min et 1h10. Ces temps de passages sont élevés par rapport à ceux prévus pour la charge hydraulique nominale, mais ils semblent toutefois insuffisants pour entraîner la mise en place des processus anaérobies de la déphosphatation biologique dans la ZA (voir annexe B). La boue est ensuite répartie sur quatre cellules membranaires (CM). Chaque CM, d'un volume de $68 m^3$, est équipée de trois modules de filtration fibres creuses Zenon Zeeweed500d[®] de $1500m^2$ chacun. Le perméat (eau filtrée) issu des quatre CM est regroupé dans une bêche de perméat. Une partie est réutilisée pour les rétrolavages des membranes, le reste est rejeté dans deux cours d'eau : l'Orge et la Remarde. Les boues des CM sont pompées vers un bassin de collecte puis réparties gravitairement vers les deux BA (recirculation externe). Une fraction des boues est envoyée vers deux centrifugeuses (extraction de boue) puis évacuée par camion afin de réguler la concentration en MES dans l'ensemble du procédé. La figure II.1.2 est une photo présentant l'ensemble de la station. On peut y distinguer les différents éléments de la filière de traitement.



FIGURE II.1.2 – Vue d'ensemble du BRM

Les valeurs moyennes des principales conditions de fonctionnement de la station de janvier à août 2011 sont regroupées dans le tableau II.1.1. L'asservissement de l'aération se fait sur la base du signal des capteurs de potentiel RedOx. L'aération se met en route si le potentiel RedOx descend en dessous de $-30mV$ (BAA) ou $-10mV$ (BAB), et s'arrête quand il atteint un seuil de $100mV$. Par sécurité en cas de dysfonctionnement ou encrassement des sondes RedOx, l'aération se met en route automatiquement après $90min$ d'arrêt, et s'arrête après $60min$ de marche. De plus, pour éviter que les mises en route des surpresseurs soient trop fréquentes

(ce qui nuirait à leur durée de vie), les surpresseurs ne peuvent pas se mettre en route moins de 20 *min* après leur arrêt.

TABLE II.1.1 – Principales caractéristiques de fonctionnement du BRM étudié. Les valeurs fournies sont des moyennes ou des plages de variations sur la période du suivi (janvier-août 2011)

	Capacité nominale	66700 EH
Généralités	Débit moyen d'entrée	8020 $m^3 \cdot j^{-1}$
	Volume des files biologiques (ZC + ZA + BA)	2 x 7550 m^3
	Volume des cellules membranaires	4 x 68 m^3
	Prétraitements	Dessablage, dégraissage et tamisage 0.8 <i>mm</i>
	Âge de boue	50 – 70 <i>j</i>
	Temps de séjour hydraulique	46 <i>h</i>
Membranes	Type de membranes	Fibres creuses ZEEWEED 500d (GE-Zenon)
	Taille des pores	0.04 μm
	Matériau	PVDF
	Surface totale	4 x 4550 m^2
	Flux de filtration	10 - 50 LMH
	SADm instantané	0.62 $Nm^3 \cdot m^{-2} \cdot h^{-1}$ (50% du temps)
	Surface de filtration par volume de cellule	65 $m^2 \cdot m^{-3}$
Boues activées	Charge organique moyenne	4200 $kg_{DCO} \cdot j^{-1}$
	Charge organique massique moyenne	0.052 $kg_{DCO} \cdot kg_{MVS}^{-1} \cdot j^{-1}$
	MES (bassins d'aération)	5 – 9 $g \cdot L^{-1}$
	MES (cellules membranaires)	6 – 10 $g \cdot L^{-1}$
	Température	10 – 21°C
	Injections de fer	90 $kg_{Fe} \cdot j^{-1}$ (hiver) : 8.8 $mg_{Fe} \cdot L^{-1}$ d'eau traitée 140 $kg_{Fe} \cdot j^{-1}$ (période d'étiage) 18 $mg_{Fe} \cdot L^{-1}$

La charge hydraulique réelle correspond en moyenne à 67% de la charge nominale, mais peut atteindre 100% dans certaines conditions météorologiques.

La charge organique moyenne correspond à 53% de la charge nominale (calculée en $kg_{DCO} \cdot j^{-1}$). Cette sous-charge s'explique par un dimensionnement basé sur l'accroissement de la population prévue à 30 ans. Il en résulte un fonctionnement non optimal du procédé, en particulier en ce qui concerne les performances de

l'aération fines bulles, car les débits d'air sont constants et calculés pour la charge future. Cela entraîne de fortes concentrations en O_2 dissous (souvent proches de la saturation), ce qui limite largement l'efficacité des transferts. La valeur de charge organique inférieure au taux de charge hydraulique montre que l'eau d'entrée est moins concentrée que la valeur prévue lors du dimensionnement de la station. Cela est dû à la présence d'eaux de pluie parasites dans le réseau, censé pourtant être séparatif.

II.1.3 Performances du traitement

La technologie BRM en général est très fiable sur l'abattement en MES et en DCO colloïdale en raison de la sélectivité des membranes. Les âges de boues souvent élevés associés à une gestion optimale de l'aération sont propices au bon développement des populations de bactéries autotrophes et hétérotrophes. Ils permettent de bonnes performances en termes d'abattement de l'ammonium, de la DCO soluble et des nitrates. Le BRM suivi rentre dans ce cadre. La zone de contact y devait être initialement une zone anaérobie pour favoriser le traitement biologique des phosphates. Cependant une expérience en batch menée sur site (cf méthodologie en annexe A et résultats en annexe B) montre que la déphosphatation biologique n'a pas (ou peu) lieu dans ce bioréacteur à membrane. Deux hypothèses peuvent expliquer ce résultat :

- Le chlorure ferrique est injecté dans la ZC, ce qui rendrait le phosphate indisponible dans le bassin d'aération pour la suraccumulation
- Les temps de séjours dans les ZA ne suffiraient pas pour avoir une période d'anaérobiose suffisamment longue pour produire les acides gras volatiles favorables au développement des bactéries déphosphatantes

TABLE II.1.2 – Flux de phosphore et quantités de fer ajoutées (année 2011 entière)

Grandeur	Unité	Hiver	Étiage
P entrante	$kgP.j^{-1}$	58	56
DBO ₅ entrant	$kg.j^{-1}$	1559	1418
P Assimilé	$kgP.j^{-1}$	20.3	18.4
P Sortie	$kgP.j^{-1}$	4.3	2.7
P Suraccumulé (hypothèse)	$kgP.j^{-1}$	0	0
P Restant	$kgP.j^{-1}$	33.6	34.9
Fe Ajouté	$kgFe.j^{-1}$	100	136
Fe Ajouté/P Entree	$kgFe.kgP^{-1}$	1.73	2.43
Fe Ajouté/P Restant	$kgFe.kgP^{-1}$	3.0	3.9
Fe Ajouté/P Entree	$molFe.molP^{-1}$	0.9	1.35
Fe Ajouté/P Restant	$molFe.molP^{-1}$	1.6	2.2

L'hypothèse selon laquelle il n'y aurait pas de déphosphatation biologique est confortée par les rapports entre quantité de fer injecté et quantité de phosphates précipités détaillés dans le tableau II.1.2. En effet les valeurs de rapports stoechiométriques obtenues (1.6 et 2.2 mol de fer injectées par mol de phosphate précipités) correspondent aux valeurs couramment observées dans les procédés à boue activées avec déphosphatation physico-chimique seule (?). Le traitement des phosphates est donc effectué très majoritairement par voie physico-chimique : des ajouts de chlorure ferrique précipitent les phosphates dans la fraction particulaire. Le tableau à droite de la figure II.1.1 montre que les performances épuratoires du BRM suivi sont bonnes sur les polluants dits *majeurs*. Même en période d'étiage (niveau d'eau faible dans le milieu récepteur) pendant lesquelles les normes de rejet sont plus sévères, les niveaux requis sont atteints.

Chapitre II.2

Mesures en ligne effectuées

Les résultats de deux catégories de capteurs ont été utilisés : ceux à demeure sur l'installation et ceux installés à titre provisoire dans le cadre de l'étude. Les capteurs permanents sur le BRM suivi (capteurs exploitant) et ceux installés par Irstea pendant notre suivi sont représentés sur la figure II.2.1 et détaillés dans le tableau II.2.1.

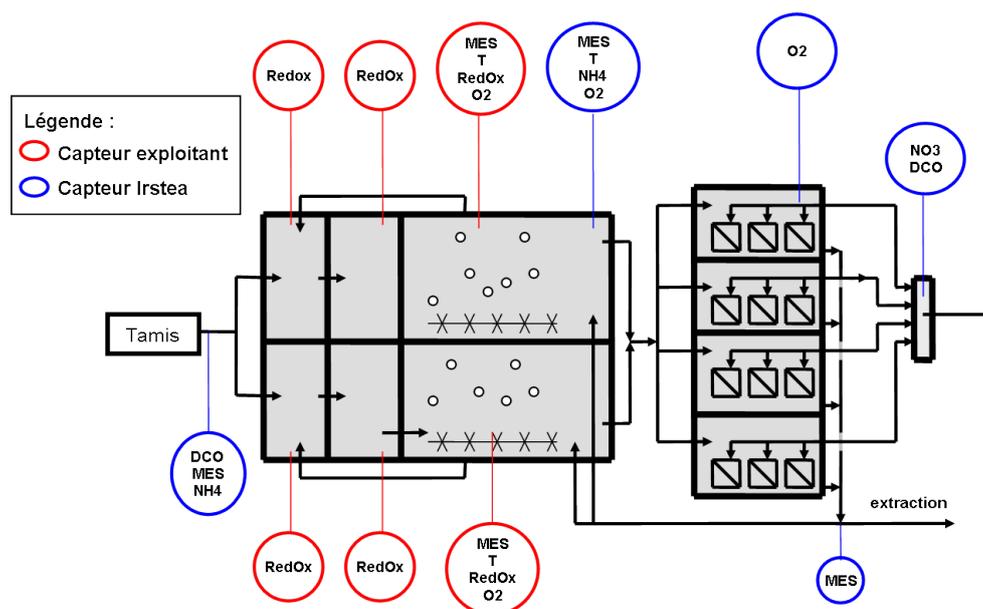


FIGURE II.2.1 – Emplacement des sondes de l'équipe d'Irstea et de l'exploitant

II.2.1 Débits et flux d'entrée/sortie

Le débit d'entrée est mesuré en amont des tamis par un débit-mètre électromagnétique de l'exploitant. Cette valeur, conservée en l'état dans le reste de l'étude, est donc celle du débit d'entrée STEP moins celle du débit bypassé vers l'Orge (2 jours en juillet, 2 jours en novembre, 1 jour en décembre 2011 et 3 jours en janvier 2012) à laquelle il faut rajouter le débit de retour en tête des jus de centrifugation.

TABLE II.2.1 – Sondes installées par l'Irstea sur le BRM

Point de mesure	Variable mesurée	Fabricant	Technologie
Entrée filières biologiques (Sortie Tamis)	DCO et MES	Spectrolyser S::CAN	Spectrophotométrie
	NH_4^+	S::CAN	Sonde ionique
Bassin d'aération A	O_2	Dc Lange	Sonde optique
	NH_4^+	Dc Lange	Sonde ionique
	pH	WTW	
	Température	PT100	
	MES	Royce	Infrarouge
Cellule membranaire	O_2	WTW	méthode ampérométrique
Bâche recirculation externe	MES	Royce	Infrarouge
Bâche perméat	DCO et NO_x	Spectrolyser S::CAN	Spectrophotométrie

Le débit de sortie est mesuré par un canal venturi. Dans la pratique, il s'avère que ce canal venturi n'est pas assez long, ce qui entraîne parfois l'apparition de vagues au niveau du capteur, et donc la non-validité du signal de débit. Cette valeur est donc recalculée à l'aide de différents bilans (cf II.3.3).

Les concentrations de l'eau d'entrée sont mesurées en ligne en aval des tamis par une sonde spectrophotométrique S::CAN (mesure de DCO et MES) et une sonde ionique S::CAN (mesure de NH_4^+).

Les mesures de concentration de l'eau de sortie sont effectuées dans la bâche de perméat. La concentration en MES n'y est pas mesurée car elle est nulle (inférieur à la limite de détection) du fait de l'ultrafiltration des boues. La DCO et les formes oxydées de l'azote (NO_2^- et NO_3^-) sont mesurées en ligne par un capteur spectrophotométrique S::CAN.

II.2.2 Mesures dans les BA et les CM

L'oxygène dissous est mesuré dans les deux bassins d'aération par des sondes de l'exploitant. Nous y avons ajouté une sonde optique Dr Lange dans le BAA (plus réactive et pour valider les valeurs de l'exploitant) et une sonde galvanique dans la CM2 à proximité des membranes pour permettre le calcul de l'apport en oxygène de l'aération grosses bulles. Le pas d'acquisition adopté est de 1 minute. Un pas de temps court est adopté ici car les variations de la concentration en O_2 sont rapides (de 0 à 10mg/L en quelques minutes, et inversement), et qu'une donnée précise de la quantité d'oxygène dissous conditionne toute la chaîne de calcul

des transferts d'oxygène, puis par voie de conséquence de l'activité biologique dans la station. Une sonde ionique pour mesurer le NH_4^+ a également été installée dans le BAA, pour suivre les phases de nitrification.

La température est mesurée dans les deux bassins d'aération par des capteurs de l'exploitant. Irstea a équipé le BAA d'un capteur de température supplémentaire pour valider la mesure de l'exploitant.

Les MES sont mesurées en temps réel (pas de temps de 1 minute également) dans la bache de recirculation externe et dans le BAA par deux sondes infrarouge.

II.2.3 Boues extraites

Le calcul de la quantité de boue extraite ($kgMES.j^{-1}$) se fait sur la base du débit extrait (mesuré en amont des centrifugeuses par un débitmètre électromagnétique de l'exploitant) et de la concentration des boues extraites des CM (mesurée dans la bache de recirculation externe).

Ce calcul est aussi effectué en multipliant le poids des bennes de boues évacuées par leur siccité mesurée par l'exploitant (MS et non MES) et les résultats confrontés à ceux du calcul précédent (cf II.3.3.3)

II.2.4 Quantité de Fer introduite

La mesure de la quantité de chlorure ferrique introduite dans la filière biologique est effectuée par des relevés du niveau des cuves de stockage du chlorure ferrique. Le capteur de niveau initialement prévu par Irstea pour mesurer précisément et en temps réel le niveau dans les cuves n'a pas pu être installé pour des raisons de sécurité imposées par l'exploitant.

Pour palier à cela, la solution envisagée dans un premier temps était de se fier au temps de fonctionnement des pompes (volumétriques) utilisées pour l'injection du $FeCl_3$, et à leur débit théorique recalé à partir des quantités livrées toutes les deux ou trois semaines. Cependant, il s'est avéré que ces pompes se désamorçaient régulièrement, sans que cela n'affecte le temps de fonctionnement enregistré par la supervision. Cette méthode a donc été abandonnée car les réamorçages des pompes, réalisés manuellement n'étaient pas documentés.

Finalement, les seules données utilisables sont les relevés visuels du niveau des cuves de réactifs effectués par l'exploitant pendant sa ronde quotidienne (hors week-end). Eux aussi sont calés avec les quantités livrées.

II.2.5 Données de la supervision

Toutes ces données sont complétées par la collecte des enregistrements des signaux de tous les capteurs (débit, variables physico-chimiques) et des temps de marche/arrêt des appareils collectées par le système de supervision de la station.

La communication orale avec les agents en charge de l'exploitation est aussi indispensable pour se renseigner sur les opérations de maintenance, les choix dans la conduite du procédé, les dysfonctionnements ou

événements particuliers. La disponibilité du personnel d'exploitation et son expérience du procédé ont permis la compréhension de nombreux phénomènes inexplicables à partir des seules données enregistrées.

II.2.6 Mesures de transferts d' O_2

La connaissance précise des concentrations en MES , O_2 , et NH_4^+ , ainsi que de la T° et des flux d'entrée a servi au calcul des transferts d'oxygène et à leur interprétation. Ces derniers constituaient l'objectif principal de la coopération entre Irstea et notre partenaire. L'objectif de cette coopération étant de relier les caractéristiques des boues (et en particulier leur concentration) aux coefficients de transfert d' O_2 , le protocole qui en résulte devait effectuer des point de mesure à différentes concentration, et de préférence après un temps de stabilisation de l'ordre de l'âge de boue, voir plus. Les valeurs issues des trois premières méthodes de mesure (bilans gazeux, désorption et réoxygénation) ont permis de fiabiliser les bilans de masse DCO-N- O_2 . Il en découle un moyen supplémentaire pour vérifier des variables comme la production de boues, la charge d'entrée puis la charge massique, ou encore l'âge des boues. Ces variables peuvent ensuite être utilisées dans l'étude statistique proposée dans la partie III.

Plusieurs méthodes ont été confrontées dans le but de les valider et d'en tester leur fiabilité :

Bilans gazeux : Une analyse des gaz collectés en surface par une cloche permet de déterminer la quantité d'oxygène perdu par les bulles au cours de leur ascension dans les boues. Couplée à un calcul théorique de la vitesse ascensionnelle des bulles, elle permet de déterminer la cinétique du transfert d'oxygène, puis le coefficient de transfert en boues (Capela et al., 2004). Ce protocole n'a été réalisé qu'une seule fois pour deux raisons. Premièrement, la différence de concentration en O_2 entre l'air ambiant et l'air qui émerge des bassins doit être significativement supérieure à la précision de sa mesure. Dans le cas du BRM suivi, les systèmes d'aération sont surdimensionnés par rapport à la charge organique réelle en entrée. La concentration d'oxygène dans les boues à l'équilibre est donc souvent proche de la saturation pendant les phases d'aération, et la quantité d'oxygène transférée pendant l'ascension des bulles est faible. La mesure est donc très sensible à l'imprécision des analyses d'oxygène. Deuxièmement, le protocole est lourd. En effet, cette méthode nécessite l'installation à la surface des boues de plusieurs cloches de $1.6m^2$ installée à l'aide d'une grue, d'un analyseur de gaz et de nombreuses sondes à oxygène.

Désorption : La méthode de désorption au peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) consiste à relever le profil de concentration en oxygène dissous au cours du temps après sursaturation des boues par introduction de H_2O_2 (Capela et al., 2004). La concentration en oxygène dans les bassins doit être maintenue constante, à l'équilibre. Pour que cette concentration soit stable, il est nécessaire d'imposer une période de respiration la plus constante possible, donc un flux de DCO d'entrée (ou au moins un débit d'entrée) constant, en utilisant le bassin tampon. Dans ces conditions stabilisées, on ajoute du peroxyde qui se dissocie en eau et en dioxygène

pour obtenir une sursaturation. La cinétique du passage de l'état de sursaturation à la concentration d'équilibre suit théoriquement les mêmes lois de transfert avec les mêmes paramètres que l'apport d'oxygène à la boue. La courbe de décroissance de la concentration en oxygène dissous est ensuite exploitée pour obtenir la valeur du coefficient de transfert. Ce procédé nécessite l'introduction de grandes quantités de peroxyde dans les bassins, ce qui peut perturber la biomasse (et en particulier la nitrification) et coûte cher. C'est pourquoi ce protocole ne doit et ne peut pas être mené trop fréquemment (3 essais en 6 mois dans notre cas).

Réoxygénation : Le suivi de l'augmentation de la concentration en O₂ dissous consécutive à une remise en route des surpresseurs après un abaissement de cette concentration entre 1 et 2 mg.L⁻¹ est effectué (Capela et al., 2004). Pour ce protocole, la respiration doit aussi être maintenue la plus constante possible. La pente obtenue est ajoutée à celle de la baisse de la concentration précédente (respiration de la biomasse), pour obtenir la quantité d'oxygène transférée durant les instants qui suivent la remise en route des surpresseurs. Cette méthode nécessite seulement une manipulation des marches/arrêts des surpresseurs, tout en maintenant un taux de charge (DCO, NH₄⁺) le plus stable possible. Il est donc envisageable de la mettre en oeuvre régulièrement (une fois par semaine dans notre cas, réalisée par l'exploitant en suivant le protocole Irstea). Cette méthode, avec celle des bilans de masse (paragraphe suivant) permet donc de suivre à un pas de temps restreint l'évolution de l'efficacité des transferts. Ainsi, au lieu de ne connaître qu'une seule valeur pour chaque valeur de concentration de boue, on peut suivre son évolution pendant la stabilisation de l'âge des boues au sein d'un même palier de concentration. Le fait d'avoir accès à un plus grand nombre de points de mesure permet de conforter les valeurs obtenues.

Bilans de masse DCO-N-O₂ : Le suivi de la composition de l'eau d'entrée et de sortie, du temps de marche des surpresseurs, du temps de présence d'oxygène et de la production de boues permet de faire un bilan global journalier des apports en oxygène utilisés par les bactéries (1kg de DCO dégradé = 1kg d'O₂ transféré). Cela permet aussi d'appliquer des bilans sur l'azote qui interviennent dans le bilan DCO (Racault et al., 2011). Cette mesure nécessite un suivi détaillé de la station de manière à pouvoir établir des bilans globaux journaliers. Mais elle ne nécessite pas de perturber le fonctionnement de la station (charge organique constante, ajouts de réactifs...). Un bilan a donc été établi chaque jour du suivi de façon à établir la quantité d'oxygène consommé, et donc transféré aux boues. En la confrontant au temps de présence d'oxygène, il est donc possible d'obtenir des coefficients de transfert moyens journaliers.

Chapitre II.3

Correction et validation des données issues des capteurs

II.3.1 Analyses

Les résultats d'analyse des différents composants des boues, de l'influent et de l'effluent de la station proviennent de quatre sources de données différentes :

- Les analyses du laboratoire d'Irstea de Cestas. Les échantillons (ponctuels et issus des préleveurs) sont expédiés en colis réfrigérés par l'exploitant ou par un stagiaire présent sur le site. Ces analyses sont effectuées selon les méthodes standardisées (normes AFNOR).
- Les analyses du laboratoire d'Irstea d'Antony. Certaines analyses ont été effectuées selon les mêmes méthodes mais au laboratoire du centre Irstea d'Antony, plus proche de l'installation suivie.
- Les analyses réalisées dans le cadre de l'autosurveillance. Ces données proviennent de l'exploitant, qui les sous-traite à un laboratoire spécialisé. Également réalisées suivant les normes AFNOR en vigueur, elles sont plus régulières (hebdomadaires, voir quotidiennes selon les paramètres suivis) que les analyses réalisées par le laboratoire d'Irstea, et permettent d'accéder aux données antérieures et postérieures à notre suivi.
- Les analyses réalisées *in situ*. Un spectrophotomètre de terrain est utilisé pour réaliser des analyses sur place (DCO , NH_4^+ , NO_3^- , NO_2^- , PO_4^{3-} , K^+). Ces analyses, rapides et simples à mettre en oeuvre, se sont révélées fiables car leurs résultats sont en accord avec ceux des analyses standardisées. Elles sont utilisées pour aider au calage des sondes et pour apporter des données supplémentaires utiles au suivi. De plus pour certaines analyses (et en particulier la DCO), la limite de quantification de ces méthodes est plus faible que pour les méthodes de laboratoire, apportant ainsi des informations complémentaires sur les caractéristiques de l'effluent traité.

II.3.2 Comparaisons entre les données issues des capteurs et des analyses

Des prélèvements ont été effectués à proximité de tous les capteurs : DCO, MES, NH_4^+ , NO_2^- et NO_3^- . Cela permet de suivre et de corriger la dérive des capteurs due à leur encrassement et aux changements de la matrice d'analyse. Quand la dérive devient trop importante, les capteurs sont été recalés pour éviter que le signal ne s'éloigne trop de la valeur laboratoire.

II.3.2.1 Calage des sondes SCAN DCO et NH_4^+ en entrée

La mesure de la DCO en entrée est délicate en raison de la complexité et de la variabilité de la matrice d'analyse. En effet, la composition et la concentration de l'influent varient selon une série de cycles (journalier, hebdomadaire, saisonnier) et selon la pluviométrie. Or la mesure optique de la DCO est peu robuste, et se base sur un étalonnage effectué pour une composition moyenne donnée. A cela viennent s'ajouter des difficultés provenant du mélange de l'eau brute avec les jus des centrifugeuses. Les problèmes rencontrés sont de deux ordres :

- d'importants retours en tête d'installation de MES liés à un mauvais réglage des centrifugeuses (retour jusqu'à 40% des MES de la boue extraite). Ce problème a eu lieu pendant un mois entre mars et avril 2011. Il était même flagrant à l'œil nu car l'eau de sortie des tamis prenait alors une couleur noire au lieu du gris habituel.
- pour améliorer l'efficacité de la centrifugation, une solution de polymères est ajoutée aux boues extraites avant leur centrifugation. Le produit utilisé initialement s'est révélé inadapté, particulièrement pendant les périodes de froid. Il en résulte des retours en tête de ce polymère, particulièrement visqueux et apte à encrasser rapidement les sondes, jusqu'à son remplacement par un produit plus adapté.

Un suivi rigoureux des signaux de DCO et de NH_4^+ a été effectué en temps réel (données télétransmises entre le BRM suivi et l'Irstea de Bordeaux). Le personnel sur place (stagiaire) était chargé de vérifier l'état d'encrassement des sondes, et de valider l'étalonnage à l'aide d'analyses de prélèvements ponctuels réalisées sur site et aux laboratoires d'Irstea. Les dérives suspectes ont ainsi pu être corrigées. La réalisation de bilans journaliers sur les flux de DCO et azote (cf II.3.3.2) a aussi permis de corriger les valeurs manifestement aberrantes.

Les valeurs de DCO calculées à partir des données des capteurs (moyennes 24h), mesurées sur des échantillons moyens 24h par Irstea et par le laboratoire réalisant les analyses pour l'exploitant (autosurveillance) sont représentées sur la figure II.3.1, ainsi que la concentration finalement retenue pour notre étude après corrections. Ces corrections sont effectuées sur la base des bilans DCO évoqués précédemment et sur la connaissance des capteurs.

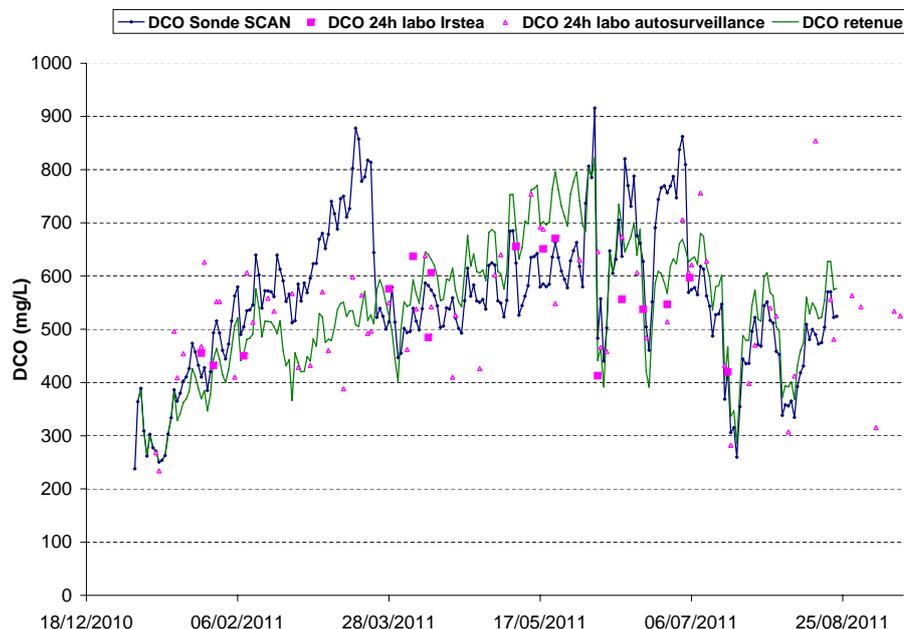


FIGURE II.3.1 – Données de DCO issues des analyses d'échantillons moyens 24h (analyses Irstea et autosurveillance) et de la sonde S::CAN (moyennes 24h). La valeur retenue est la courbe en vert.

La mesure de NH_4^+ par la sonde S::CAN en entrée subit une interférence avec le potassium. La sonde de potassium couplée à la sonde NH_4^+ est elle aussi sujette aux problèmes d'encrassement et de variation de la matrice d'analyse. Les valeurs retenues sont les valeurs corrigées a posteriori grâce aux analyses de potassium effectuées soit sur site avec le spectromètre de terrain, soit au laboratoire d'Irstea à Antony (figure II.3.2).

II.3.2.2 Calage des sondes DCO et NO_3^- dans le perméat

Les résultats issus de la sonde située dans la bache de perméat pour mesurer les concentrations en DCO et en nitrates de l'effluent sont sujets à une source d'erreur différente : la matrice de mesure (de l'eau claire) est idéale, mais la valeur de DCO et de nitrate est faible, voire à la limite basse de la gamme de mesure de la sonde, et inférieure à la gamme de mesure des méthodes standard. Les valeurs obtenues, vérifiables cependant grâce aux kits d'analyse de terrain, montrent que la qualité de l'effluent est bonne et stable pendant toute la durée du suivi.

II.3.2.3 Calage des sondes MES et O_2 dans les boues

La technologie des capteurs d'oxygène est bien éprouvée, ce qui rend la mesure fiable, sous réserve d'un calage régulier. De même pour la concentration en MES.

Il n'y a pas eu de difficulté notable pour le suivi des MES dans les bassins d'aération. Les MES de la bache de recirculation suivent une évolution similaire à celle des bassins d'aération, mais décalée d'environ

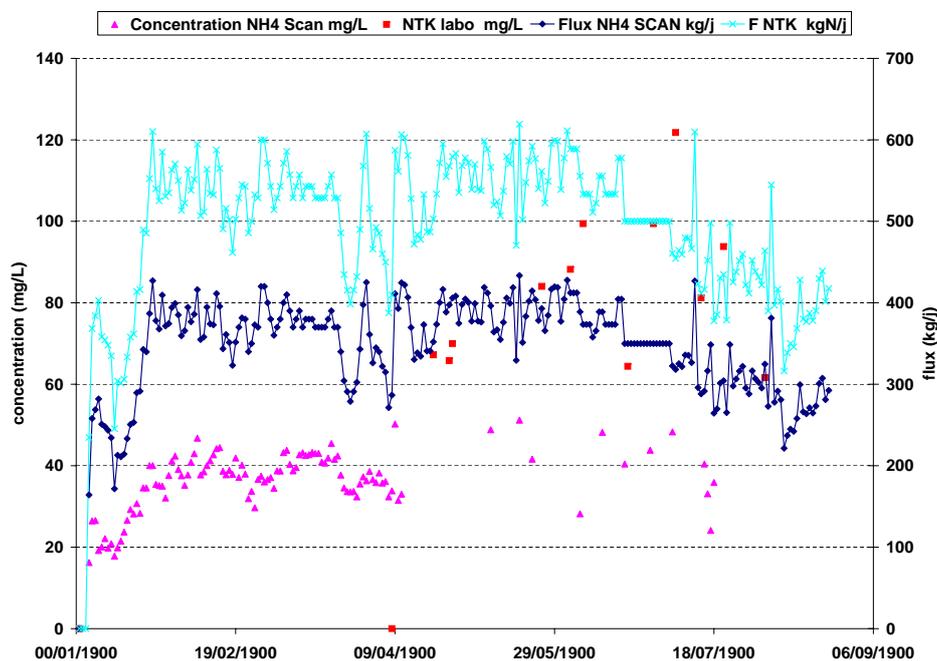


FIGURE II.3.2 – Données de concentration et flux journalier en NH4 et NTK. La valeur retenue est la courbe en bleu ciel.

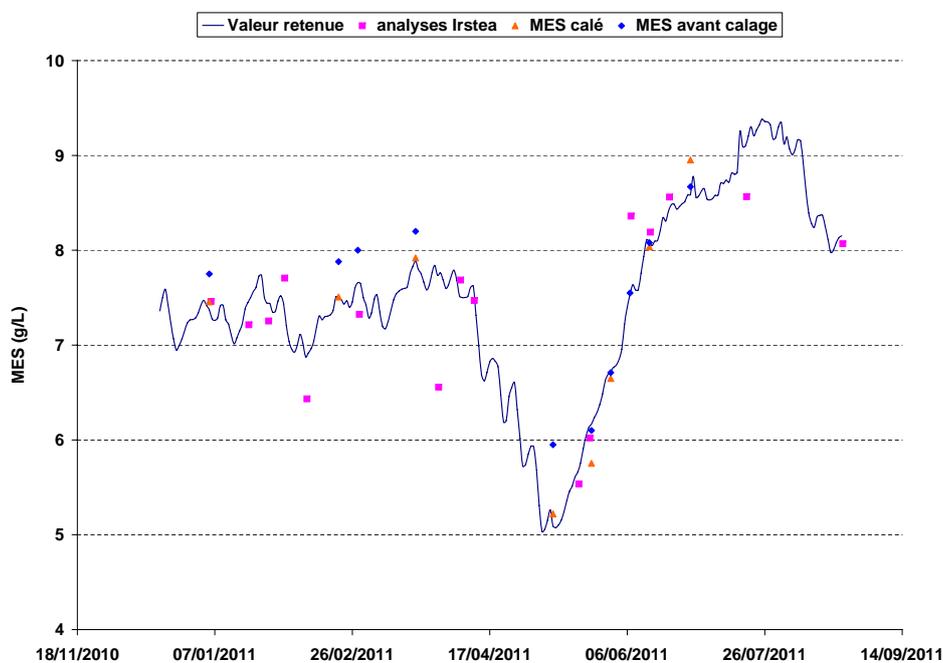


FIGURE II.3.3 – Données de concentration des MES, avec les valeurs avant et après calage

1g/L supplémentaire due à l'effet de concentration dans les cellules membranaires.

La portion volatile des MES (MVS) est mesurée environ toutes les deux semaines, et est inversement corrélée avec la concentration en MES, principalement parce que la portion non volatile des MES est essentiellement due aux ajouts de chlorure ferrique.

II.3.3 Bilans 24h

Autant pour l'interprétation des mesures de transferts d'oxygène que pour l'étude de la filtration menée dans cette thèse, la précision et la fiabilité des données (hydrauliques, caractéristiques des boues, de l'influent...) apporte une grande plus-value aux résultats obtenus. Or comme nous l'avons vu ci-dessus, les valeurs issues des analyses et des capteurs doivent en permanence être remises en question, corrigées, et validées. L'ampleur des erreurs potentielles est importante dans le suivi d'une installation grandeur réelle car des aléas divers sont fréquents et la taille des installations implique un certain degré de non-homogénéité. Des bilans effectués sur 24h permettent de confronter les différents moyens d'accéder à une donnée en s'affranchissant des cycles journaliers (charges entrantes, extraction de boue...), et en prenant en compte des données acquises à différents pas de temps.

II.3.3.1 Bilans hydrauliques

Les bilans hydrauliques conditionnent tous les autres bilans (DCO, Azote, MES). C'est pourquoi la première étape des calculs des bilans consiste à vérifier et corriger les bilans hydrauliques.

Dans notre cas deux principales corrections sont à réaliser :

- Le débit de sortie (Q_{Sor}) mesuré est non valide (vagues dans le canal venturi).
- La répartition du débit d'entrée entre les deux filières biologique n'est pas équitable, ce qui se traduit par des différences entre la respiration mesurée entre les deux files, mais les débits ne sont pas directement mesurés.

Calcul du débit de sortie Le débit de sortie est accessible au moyen de deux bilans : les équations [II.3.1](#) (bilan sur la bache de recirculation) et [II.3.2](#) (bilan global sur la STEP)

$$Q_{sor} = Q_{permeat} - Q_{BW} - Q_{EI} \quad (\text{II.3.1})$$

$$Q_{sor} = Q_{ent} - Q_{extrac} - Q_{EI} \quad (\text{II.3.2})$$

où :

- Q_{sor} est le débit de sortie

- $Q_{permeat}$ est la somme des débits de filtration des quatre CM
- Q_{BW} est la somme des débits de rétrolavage des quatre CM
- Q_{EI} est le débit d'eaux industrielles, prélevées dans la bêche de perméat et redistribuées dans différents postes de la station
- Q_{ent} est le débit d'entrée dans la station mesuré en amont des tamis (aval du bassin tampon où sont rejetés les jus de centrifugation)
- Q_{extrac} est le débit d'extraction de boue (aval des centrifugeuses)

Répartition entre les deux filières biologiques Plusieurs solutions ont été envisagées pour recalculer la répartition des débits entre les deux filières biologiques.

Premièrement, en faisant un bilan des MES en isolant chacune des files biologiques, on peut estimer quel doit être le débit de l'eau d'entrée (dont les MES sont mesurées) pour diluer la liqueur mixte provenant des membranes. Cependant, l'imprécision sur la mesure de MES est trop élevée pour accéder à une différenciation significative des deux filières, d'autant plus que la recirculation externe joue un rôle d'homogénéisation. De plus des erreurs dues à la transformation de DCO soluble en DCO particulaire, qui est connue mais dont la cinétique n'est pas accessible précisément, rend ce calcul invalide.

Deuxièmement, en passant par les bilans DCO, et en particulier en se basant sur les différences de respiration entre les deux filières. L'atteinte de concentrations élevées en oxygène dissous à l'issue des séquences d'aération permet de disposer d'un nombre de points de mesure suffisant pour calculer des respirations dans chaque file. Les pentes de diminution de l'oxygène dissous dans les deux bassins après arrêt des surpresseurs ont ainsi été comparées. Leur différence permet d'accéder à un ratio d'alimentation en DCO et NH_4^+ entre les deux files biologiques. On en déduit ensuite le ratio entre les débits d'entrée dans les files A et B.

Des bilans hydrauliques internes ont aussi été réalisés pour estimer le temps de passage des boues dans les bassins. Ces temps de passage sont essentiels aux calculs de transferts d' O_2 .

II.3.3.2 Validation des flux DCO et azote entrant

Le principe des bilans de masse (ici DCO et azote) est décrit dans la figure II.3.4.

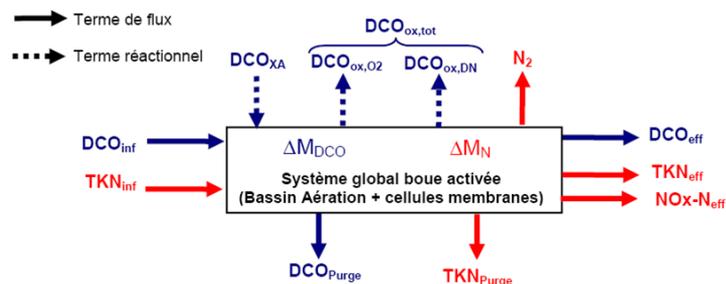


FIGURE II.3.4 – Principe du bilan de masse sur la DCO et l'azote (Racault et al., 2011)

L'équilibrage d'un tel bilan nécessite une connaissance complète des apports d'oxygène, de l'état de la biomasse, de l'influent et de l'effluent. Tant que cet équilibre n'est pas atteint, cela signifie que les données d'entrée sont erronées. Par contre une fois atteint, ce bilan permet d'accéder rapidement à un grand nombre de données manquantes, et de croiser les différentes sources de données pour les valider entre elles. Pour le calcul des charges organique et d'azote, le débit utilisé est celui de l'entrée des tamis. Il est considéré comme juste dans cette étude. Les valeurs de DCO sont issues du calage décrit dans le paragraphe [II.3.2.1](#).

II.3.3.3 Validation de la production de boues

Une donnée essentielle à l'étude de l'état de la biomasse (en particulier A_B) est la connaissance précise de la production de boue (quantité de MES générée par le procédé). Il y a plusieurs moyens de calculer cette production (figure [II.3.5](#)).

(1) : On peut calculer théoriquement la production de boue sur la base de l'apport en matière organique (quantifiée en DCO) et d'un coefficient Y_{prod} dépendant de l'âge de boue, rapport entre la DCO dégradée et la masse de biomasse produite par croissance. On ajoute à cela la quantité de MES "produite" par la précipitation du fer ajouté pour obtenir la production globale de boue.

(2) : Calcul de la masse de boue extraite : Un capteur de débit est situé en amont des centrifugeuses. Ce débit, multiplié par la concentration de boues dans la bêche de recirculation externe, donne la quantité de MES traitée par les centrifugeuses. C'est une sur-estimation de la quantité de boue réellement extraite dans la mesure où le jus des centrifugeuses peut contenir des particules ré-injectées dans le système (dont la quantité n'est pas mesurée). Pendant les périodes de bon fonctionnement des centrifugeuses, on peut négliger les MES des jus de centrifugeuses. Cependant, les centrifugeuses du BRM suivi ont connu des dysfonctionnements dûs à l'inadéquation du polymère épaississant utilisé initialement, et plus spécifiquement en période de faible température.

(3) : On peut se baser sur la pesée des bennes de boue évacuées de la station, couplée à une estimation de leur siccité. Cette mesure ne donne pas d'information en temps réel. Elle intègre les quantités de boues extraites entre l'évacuation de plusieurs bennes. De plus la siccité n'est pas mesurée régulièrement, ce qui rend l'utilisation de ces résultats peu fiable.

Sous réserve du bon fonctionnement des centrifugeuses, la méthode (2) est la plus fiable. Quand elle est valide, elle permet de caler le paramètre Y_{prod} , et de vérifier la validité, voire de corriger, la valeur de la siccité des boues évacuées. Sur la base de ces calages, les autres méthodes peuvent être utilisées de façon fiable pendant les périodes de dysfonctionnement des centrifugeuses.

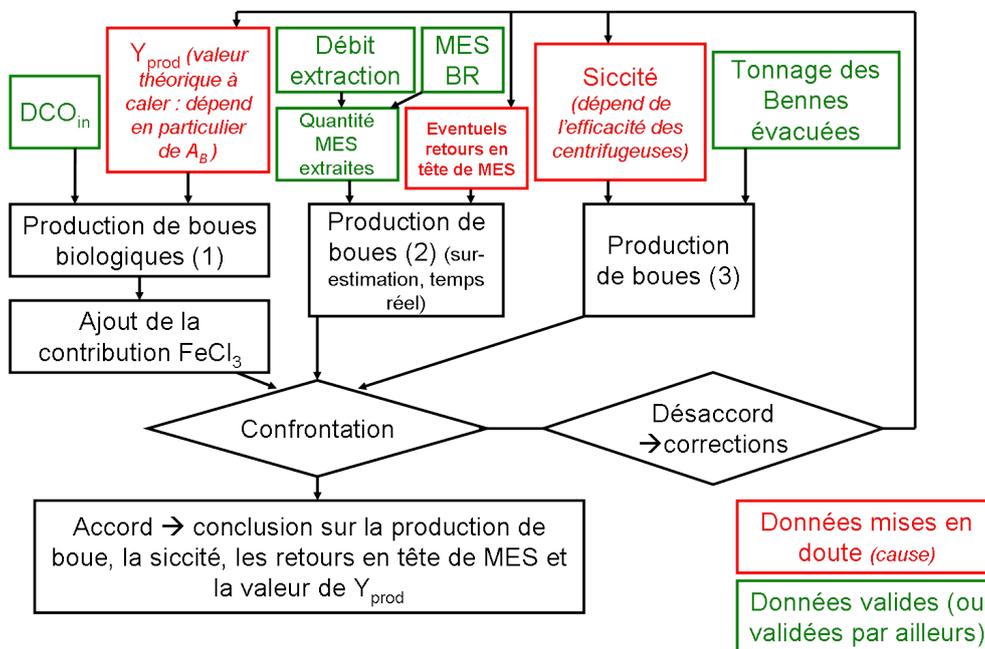


FIGURE II.3.5 – Différents moyens de calculer la production de boue, et corrections qui en découlent

Chapitre II.4

Calcul des variables de fonctionnement

Ce chapitre a pour but de décrire le calcul et les évolutions des variables opératoires utilisées dans la suite pour l'étude de la filtration. Ces variables opératoires sont : le flux (J) de perméat, la température de la boue, la concentration en MES (MES), la quantité d'ions ferriques ajoutée, la charge massique (C_M) et l'âge des boues (A_B).

Les quatre premières sont issues directement de la mesure. L'âge des boues et la charge massique sont calculées à partir des données recueillies sur le site. On verra dans les paragraphes suivants que ces variables peuvent être obtenues par différentes méthodes.

Cette partie donne leur méthode de calcul pendant et après le suivi détaillé du BRM suivi par Irstea. Leurs évolutions prévisionnelles au cours du suivi seront ensuite commentées.

II.4.1 Calcul de la charge massique et de l'âge de boue dynamique

L'âge de boue et la charge massique influent sur l'ensemble des paramètres des boues. Ils sont souvent considérés comme un élément déterminant dans le procédé BRM car ils ont tendance à influencer le colmatage (Trussell et al., 2006; Han et al., 2005), le développement des bactéries nitrifiantes (Liang et al., 2010; Teck et al., 2009), ou encore la taille des floccs (Masse et al., 2006).

II.4.1.1 Charge massique

La définition de la C_M ($kg_{DCO} \cdot kg_{MVS}^{-1} \cdot j^{-1}$) est donnée par l'équation II.4.1 :

$$C_M = \frac{Q_{DCO,ent}}{M_{MVStot}} \quad (\text{II.4.1})$$

Où :

- $Q_{DCO,ent}$ est le flux de DCO en entrée de filière biologique ($kg_{DCO} \cdot j^{-1}$)
- M_{MVStot} est la quantité globale de MVS contenue dans l'ensemble des boues activées du BRM (kg)

Les MVS sont calculées à partir des MES, en appliquant un ratio $\frac{MVS}{MES}$ calculé à partir de mesures laboratoires et des évolutions de l'âge des boues. En effet pendant la seconde partie du suivi les mesures de MVS n'étaient plus disponibles. Le ratio $\frac{MVS}{MES}$ a alors été pris égal au ratio trouvé pour une âge de boue équivalent au moment où il était mesuré. Le flux de DCO est donné par les capteurs d'entrée de DCO et de débit.

II.4.1.2 Âge de boue

L'âge de boue est le temps moyen de résidence des MES dans la filière biologique. En régime permanent, l'âge des boues $A_{B,perm}(j)$ peut se calculer à partir de la quantité totale des matières en suspension et de la quantité de MES extraite quotidiennement suivant l'équation II.4.2.

$$A_{B,perm} = \frac{M_{MEStot}}{Q_{extrac}} \quad (\text{II.4.2})$$

Dans le cas où MES est constant, donc que la quantité de boues produite est égale à la quantité de boues extraites, on peut aussi utiliser la production de boues (équation II.4.3) :

$$A_{B,perm} = \frac{M_{MEStot}}{Q_{prod}} \quad (\text{II.4.3})$$

Où

- M_{MEStot} est la quantité totale de MES contenue dans la boue activée (kg)
- Q_{extrac} est le débit de MES extraites ($kg \cdot j^{-1}$)
- Q_{prod} est la production de boue du système ($kg \cdot j^{-1}$)

En prenant des valeurs moyennes sur une semaine, on peut avoir une approximation correcte de l'âge des boues réel dans le cas où les conditions d'exploitation (en particulier les MES) varient peu.

Cependant, dans les cas où les volumes extraits et la quantité de boue présente varient, les conditions instantanées utilisées dans ce calcul ne sont généralement pas représentatives des échelles de temps requises, c'est à dire du même ordre que l'âge de boue. Par exemple, dans le cas extrême où très peu de MES sont extraites, $A_{b,perm}$ peut prendre des valeurs très élevées, non représentatives du temps de résidence réel des MES dans les réacteurs.

Pour palier à ce problème, une méthode de calcul plus appropriée est proposée par Takacs et al. (2008). Ils définissent un *âge de boue dynamique* ($A_{b,dyn}$), qui se calcule par une équation différentielle définissant la variation de l'âge des boues (équation II.4.4)

$$\frac{dA_{b,dyn}}{dt} = 1 - \frac{A_{b,dyn}Q_{prod}}{M_{MES_{tot}}} \quad (\text{II.4.4})$$

La principale difficulté réside cependant dans le calcul de la production de boues (cf II.3.3.3). C'est finalement cette méthode qui a été utilisée dans notre étude, car les fortes variations de MES au cours du suivi rendent inadapté un calcul basé sur un régime pseudo-permanent. Le paragraphe suivant illustre les différences que l'on peut obtenir sur l'âge de boue en utilisant les deux méthodes de calcul, en se basant sur le protocole initialement prévu pour le suivi du BRM.

II.4.2 Protocole initial

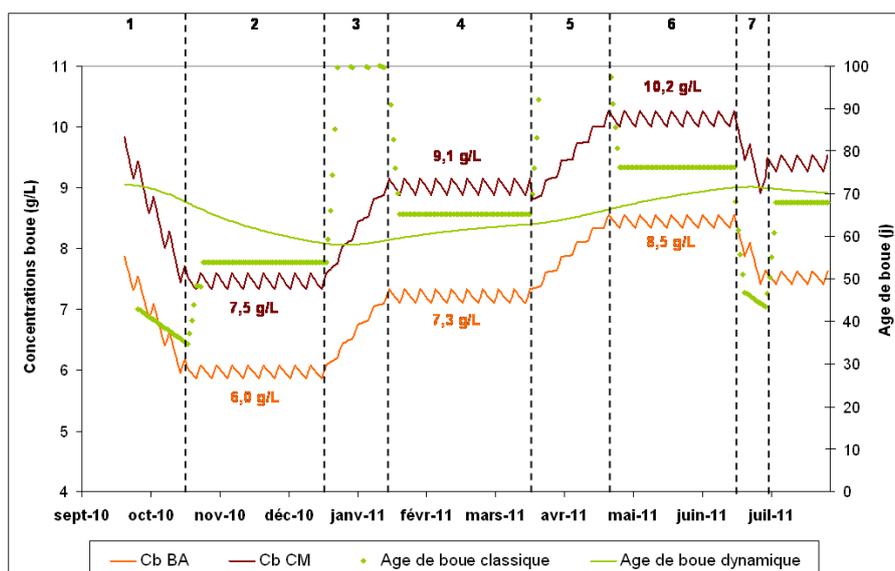


FIGURE II.4.1 – Protocole du suivi de la station d'épuration suivie initialement prévu.

La figure II.4.1 représente les variations de la concentration en MES et de l'âge des boues initialement prévus avant que le suivi ne commence. Trois paliers de 60 jours de stabilisation avaient été prévus (ce qui est peu au vu de la préconisation habituelle de stabilisation pendant au moins trois fois l'âge de boue). À chaque fois, au terme de ces deux mois, une campagne de mesure des transferts d'oxygène était prévue, avant de faire varier à nouveau la concentration des boues.

On peut voir clairement sur cette figure les différences théoriques entre l'âge de boue calculé sur des moyennes 1j et l'âge de boue dynamique. Elles sont exacerbées ici car pendant les périodes de transition, l'extraction est prévue pour être nulle.

II.4.3 Contraintes techniques, modification du plan d'expérience

Différentes contraintes administratives et techniques ont conduit à des modifications du plan d'expérience présenté sur la figure II.4.1. Dans un premier temps, la campagne d'acquisition n'a pas pu démarrer en septembre 2010 comme prévu car les différents acteurs engagés dans la gestion de la station d'épuration n'avaient pas tous donné leur aval formel. L'équipe s'est basé sur des accords de principe selon lesquels nous pouvions installer le matériel nécessaire au suivi en septembre 2010. La direction technique du syndicat de commune a cependant refusé jusqu'à l'examen plus détaillé de notre projet que nous installions nos capteurs et que nous utilisions les infrastructures de la station. Des raisons de sécurité des personnes et des rejets dans le milieu étaient formulées. Finalement c'est au milieu du mois de décembre 2010 que nous avons installés nos capteurs et commencé le suivi détaillé de la station.

De plus la concentration de boue dans les bassins d'aération au début du suivi n'était pas de 6.5 g.L^{-1} , mais déjà de plus de 7 g.L^{-1} . Nous avons donc décidé de commencer par le palier intermédiaire du protocole initial, puis de faire diminuer la concentration dans les BA jusqu'à 6 g.L^{-1} , et de terminer sur le palier à forte concentration.

Cependant, pour maîtriser convenablement la baisse de la concentration de boue, il est nécessaire de maîtriser la quantité de boue évacuée, et donc le bon fonctionnement des centrifugeuses. Le polymère utilisé pour épaissir les boues dans les centrifugeuses s'est révélé défectueux, ou inadapté à certaines périodes. Cela a entravé le fonctionnement des centrifugeuses, rendant difficile la maîtrise de la concentration des boues.

La diminution de la concentration de boue après la première campagne de mesures des transferts d'oxygène a donc été très lente, ce qui a perturbé les projets initiaux : les temps de stabilisation prévisionnels (déjà faibles) n'ont donc pas pu être respectés, et la campagne d'acquisition a pris du retard.

II.4.4 Conditions réelles de fonctionnement

La figure II.4.2 donne les évolutions de l'âge de boue et de la concentration de boues effective pendant le suivi.

Pendant la première période (suivi intensif du BRM par Irstea), on constate que deux plateaux de concentration en MES à 7 g.L^{-1} et 9 g.L^{-1} ont été imposés. Cependant, la valeur de 6.5 g.L^{-1} n'a été tenue que quelques jours, ce qui n'est pas suffisant pour avoir une boue stabilisée.

Lors de la première période, qui a fait l'objet du suivi intensif du BRM par Irstea, les résultats sont obtenus à partir des données issues de nos capteurs. La seconde période, pendant laquelle les données disponibles étaient uniquement celles issues de l'exploitant, doit être considérée avec plus de précautions. En effet, les MES ont été calculées sur la base des prélèvements ponctuels de l'exploitant, sur lesquels il a mesuré les matières sèches (MS). Les comparaisons entre ces mesures et les nôtres pendant le suivi intensif ont cependant permis d'avoir un regard éclairé sur la façon d'extrapoler des valeurs de MES à partir de ces données de matières sèches de

l'exploitant (utilisation d'un ratio MES/MS). Il en a été de même pour estimer les flux journaliers sur la DCO entrante.

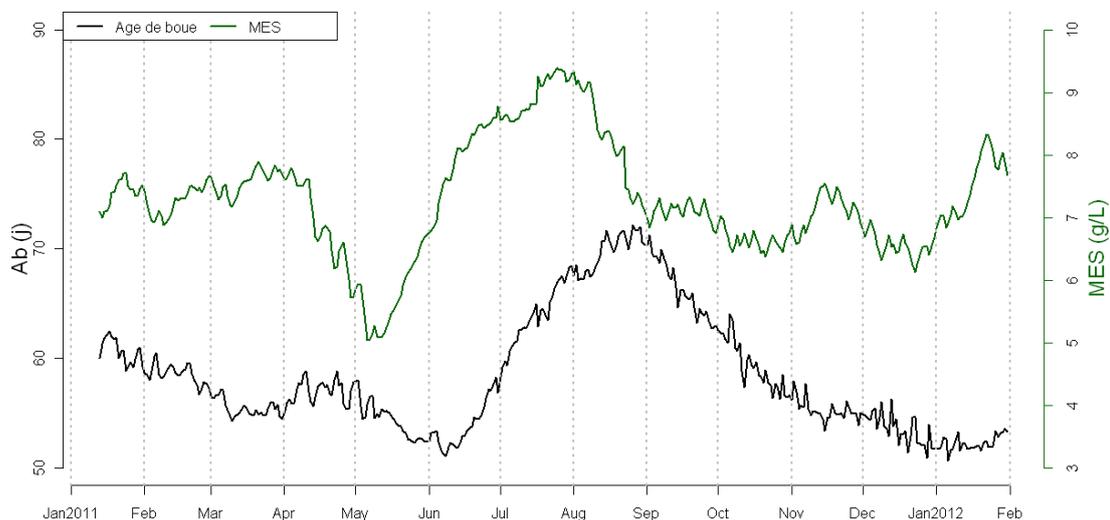


FIGURE II.4.2 – Evolution de l'âge de boue (dynamique) et des MES dans la station d'épuration.

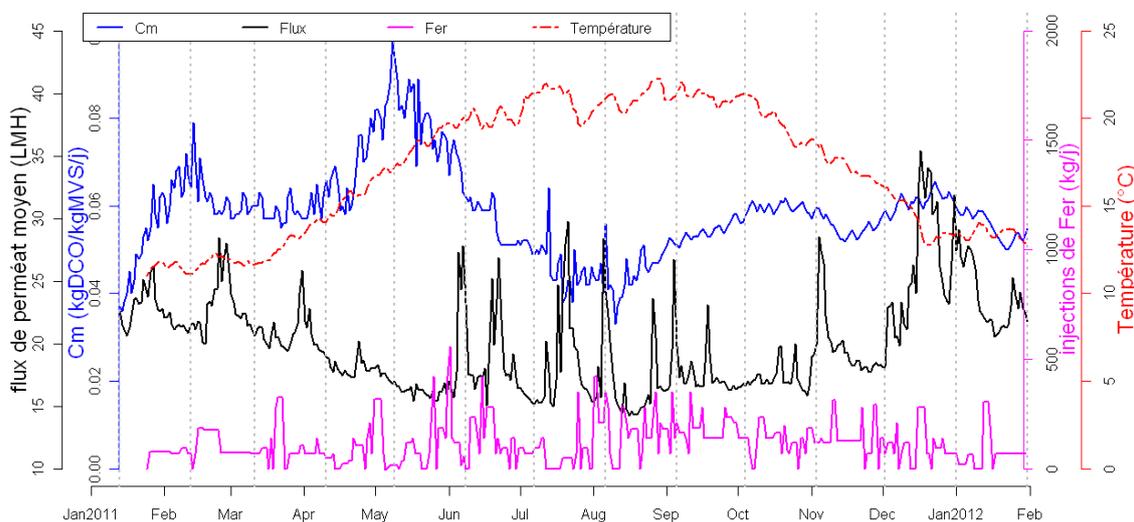


FIGURE II.4.3 – Protocole du suivi de la station d'épuration effectif.

De plus, la périodicité des mesures de MS et de DCO_{entree} de l'exploitant (hebdomadaire en fonctionnement normal) est insuffisante pour déceler des singularités dues au caractère ponctuel des prélèvements. Il faut alors procéder à des corrections arbitraires, ou à l'omission de certains échantillons.

La figure II.4.3 montre les évolutions des autres variables opératoires pendant le suivi.

La station étant située dans un zone résidentielle, on constate une légère diminution de la charge pendant l'été (vacances), ce qui est accentué par de plus fortes précipitations pendant l'hiver. Le flux membranaire moyen connaît la même tendance car il est représentatif de la charge hydraulique. La température de la boue varie entre 11°C début janvier 2011 et 22°C fin août 2011. Les injections de chlorure ferrique connaissent de fortes variations, car la pompe d'injection se désamorçait régulièrement. N'étant pas équipée d'un capteur de débit, l'arrivée de chlorure ferrique dans les ZC était donc difficile à estimer précisément dans le temps. Le calcul de ces injections est basé sur le relevé presque quotidien du niveau de la cuve contenant le réactif, ainsi que du suivi des livraisons.

Troisième partie

Caractérisation, analyse statistique et modélisation du colmatage dans le BRM suivi

Cette partie décrit le fonctionnement de la filtration sur le BRM suivi, ainsi que les données sur le colmatage qui en découlent. Le premier chapitre donne la méthodologie de calcul de quatre indicateurs du colmatage et de sa réversibilité. Toute la chaîne du traitement des données, des données brutes issues du BRM aux moyennes jour de tous les indicateurs est détaillée. La description de la base de données qui en résulte conclut ce chapitre.

Le second chapitre dresse dans un premier temps une cartographie des variables opératoires utilisées dans l'étude et dont le calcul est détaillé dans la partie II de ce manuscrit. Leurs corrélations sont analysées. Les résultats concernant les corrélations entre chaque variable et les indicateurs du colmatage sont présentés. Cependant, les biais dus aux corrélations entre les variables d'entrée peuvent entraîner des biais dans l'interprétation des résultats. Ce chapitre souligne donc le besoin d'une analyse multivariée, pour prendre en compte l'impact spécifique de chacune des variables dans l'interprétation des résultats. L

Chapitre III.1

Détermination et suivi des indicateurs du colmatage

Les caractéristiques de fonctionnement du BRM suivi ont nécessité un traitement spécifique des données de filtration, et la définition d'indicateurs de colmatage adaptés aux variations du flux membranaire. Ce chapitre décrit la méthode employée pour le calcul de ces indicateurs, et donne les ordres de grandeur de leurs valeurs. Leurs variations sont ensuite analysées, et confrontées aux variables opératoires, ainsi qu'à la littérature.

III.1.1 Fonctionnement de la filtration du BRM

Le débit de filtration dans le BRM est contrôlé par un automate indépendant dans chacune des cellules membranaires (CM). Cette partie décrit le principe de la régulation qui détermine le flux à filtrer, puis le flux de filtration qui en découle ainsi que ses variations caractéristiques. Les variations associées de la PTM seront décrites également.

III.1.1.1 Automate de gestion du flux

Le débit de perméat de chaque bassin membranaire est fixé par la consigne donnée aux pompes de filtration. Le calcul de ce débit par l'automate de gestion du flux de filtration est basé sur

- Le débit de sortie du bassin tampon
- Le niveau d'eau dans les bassins membranaires

L'automate calcule un flux de base à partir du débit d'entrée dans les filières biologiques, puis module sa consigne en se basant sur le signal de niveau dans les bassins membranaires. La figure III.1.1 schématise la chaîne de calcul entre ces débits et la consigne de flux. Le choix du taux de recirculation externe (ici 500% du débit de filtration) est fixé pour que la différence entre la concentration des boues dans les CM et les BA soit d'environ 1g/L en phase de filtration. Le coefficient k dépend de la position du niveau par rapport aux seuils. Quand le niveau atteint le seuil haut ou très haut, le flux de filtration (et le débit d'extraction) augmente pour éviter le débordement. Quand le niveau atteint les seuils bas ou très bas, le flux (et le débit d'extraction)

diminue pour éviter le dénoyage des membranes. Après 10 minutes de filtration, un rétrolavage est effectué.

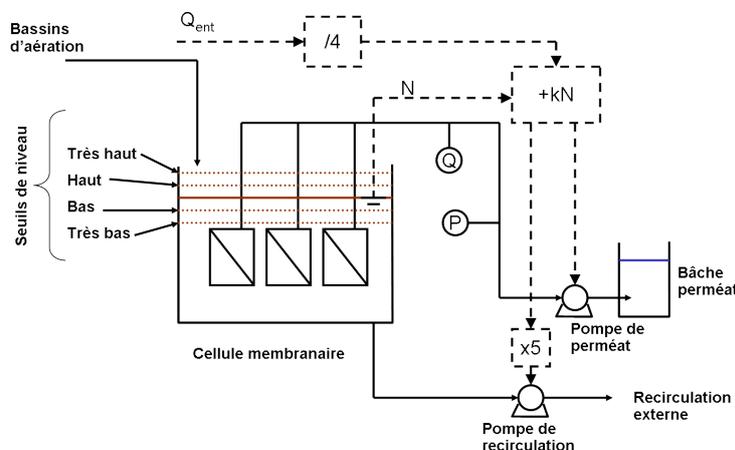


FIGURE III.1.1 – Automate de gestion du flux dans chaque bassin membranaire. Comme le volume de la filière est voulu constant, le calcul est basé sur le flux d'entrée, divisé par 4 car il est réparti sur les 4 CM, puis auquel on applique un facteur k pour réguler le niveau de boue, ce qui donne le débit de perméat. La même consigne est multipliée par 5 pour atteindre le taux de recirculation voulue.

III.1.1.2 Variations caractéristiques du flux et de la PTM

Flux Dans la pratique, les variations de flux sont rapides, essentiellement à cause de deux facteurs :

- Le volume des CM est faible comparé aux débits d'entrée et de sortie (recirculation + filtration), ce qui conduit à des variations de niveau rapides.
- Les rétrolavages conduisent à de brusques augmentations de niveau, ce qui induit de forts flux en début de cycle de filtration.

La figure III.1.2 présente en noir les évolutions caractéristiques du flux dans les cas où la charge hydraulique du BRM est forte (gauche) et faible (droite).

PTM Comme le prévoit la loi de Darcy, la PTM est corrélée avec le flux. La figure III.1.3 montre la PTM mesurée en fonction du flux pendant quatre cycles de filtration. On constate une forte corrélation pendant les paliers de filtration. La perméabilité est la pente de la relation qui relie flux et PTM. Pendant chaque palier de flux, on constate une stabilisation dans les 30s de la PTM, puis une PTM constante ou une légère dérive tant que le flux reste constant.

Le pas de temps d'enregistrement du flux et de la PTM, initialement réglé à une minute pour l'exploitation, a été réduit à 10s pendant notre suivi. Le nouveau pas de temps permet d'observer finement les évolutions du flux, d'identifier clairement les paliers de filtration, les rétrolavages et l'évolution de la PTM interne aux paliers.

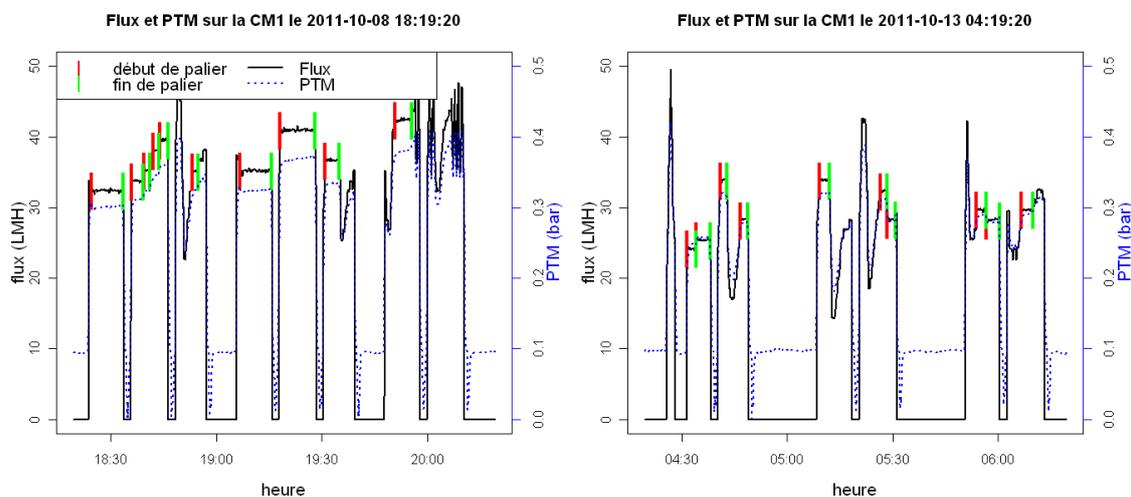


FIGURE III.1.2 – Variations caractéristiques du flux et de la PTM en période de forte (gauche) et faible (droite) charge hydraulique

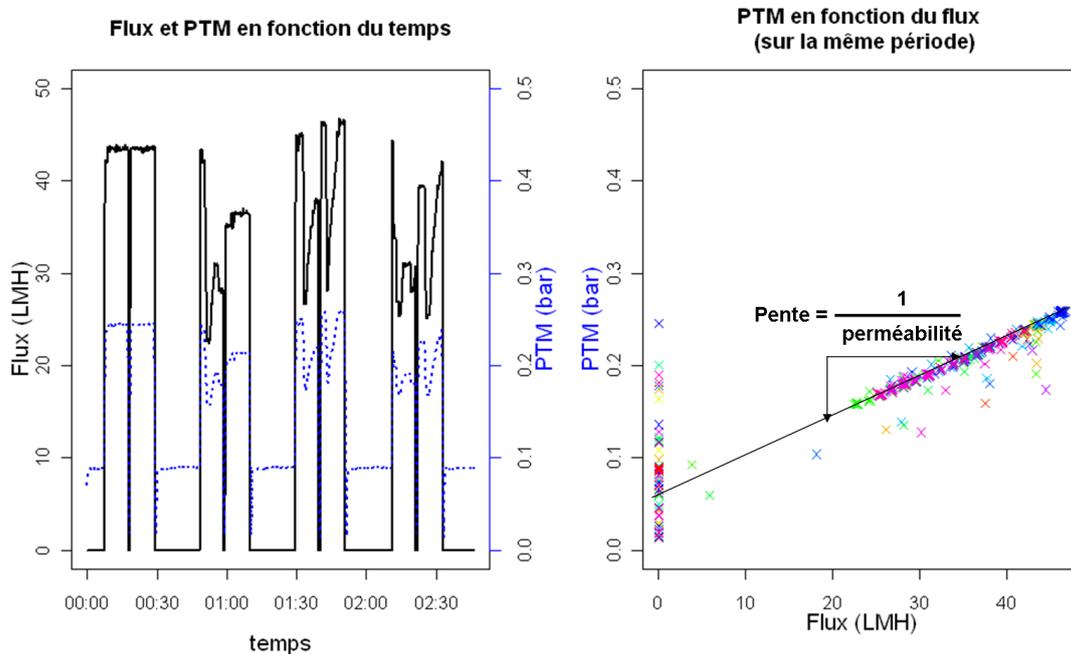


FIGURE III.1.3 – Corrélation entre le flux et la PTM. La PTM à l'origine de la droite de perméabilité est la PTM_0 (cf III.1.2.1.3)

III.1.1.3 Perméabilité calculée par l'exploitant

La perméabilité est la grandeur calculée par l'exploitant du BRM pour suivre le colmatage de ses membranes. L'équation III.1.1 est utilisée :

$$L_p = \frac{\mu_{perm}}{\mu_{perm}^{20}} \frac{J}{PTM_{mes}} \quad (III.1.1)$$

où

- J est le flux (LMH)
- PTM_{mes} est la pression transmembranaire calculée par la supervision à partir du capteur de pression et du niveau d'eau dans les CM (*bar*)
- μ_{perm} est la viscosité du perméat à sa température réelle (*Pa.s*)
- μ_{perm}^{20} est la viscosité du perméat à 20 degrés (valeur de référence) (*Pa.s*)

La correction en température (cf. III.1.2.1.1) est nécessaire pour pouvoir constater les évolutions réelles de la perméabilité sur le long terme (cycle annuel). Dans notre étude, deux autres corrections (pertes de charge dans les conduites de perméat, dérive du capteur de pression) sont effectuées.

III.1.2 Corrections de la perméabilité et automatisation du calcul

III.1.2.1 Corrections de la perméabilité

Trois types de corrections ont été effectués pour observer un signal de perméabilité représentatif de l'état de la membrane. La correction en température, similaire à celle de l'exploitant, sert à corriger le flux pour prendre en compte la modification de la viscosité avec la température. Deux corrections supplémentaires ont été apportées à la PTM : une correction pour pallier à une dérive de la ligne de base des capteurs de pression (décalage évoluant au fil des mois) ; et la prise en compte des pertes de charge hydrauliques dans la conduite de perméat entre la membrane et le capteur de pression.

III.1.2.1.1 Température

Une augmentation de température conduit à une diminution de la viscosité du perméat. La perméabilité apparente est donc plus élevée pour une même membrane lors de la filtration d'eau plus chaude.

On trouve différentes relations dans la littérature pour calculer la viscosité de l'eau. Le tableau III.1.1 et la figure III.1.4 montrent les différentes relations trouvées, ainsi que celle utilisée par le concepteur du BRM.

Les différentes relations sont proches sur le domaine usuel de température (5-25 degrés). La relation qui a été retenue pour notre étude est celle de Busch et al. (2007). C'est souvent le flux qui est corrigé en température : le flux corrigé permet aux concepteurs de prendre en compte les variations de température lors du choix de la surface des membranes.

TABLE III.1.1 – Différentes relations de la littérature pour décrire la dépendance de la viscosité de l'eau à la température

Référence	relation
Busch et al. (2007)	$\mu_T = \mu_{20} \cdot 1.78e^{(-0.041T^{0.875})}$
Psoch and Schiewer (2008)	$\mu_T = \frac{\mu_{20} \cdot 1.78}{1 + 0.0337 \cdot T + 0.000221 \cdot T^2}$
Rosenberger et al. (2006)	$\mu_T = \mu_{20} \cdot e^{-0.0239(T-20)}$
Degrémont	Si $T \leq 20\text{deg}$: $\mu_T = \mu_{20} \cdot 1.025^{(20-T)}$
Degrémont	Si $T \geq 20\text{deg}$: $\mu_T = \mu_{20} \cdot 1.033^{(20-T)}$

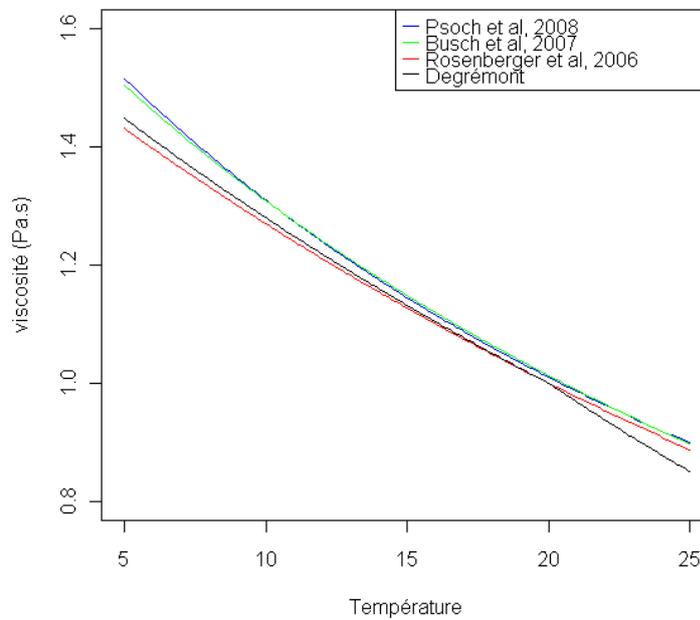


FIGURE III.1.4 – Variations de la viscosité en fonction de la température entre 0 et 25 degrés

III.1.2.1.2 Pertes de charge hydrauliques

Le calcul des pertes de charge a été mené sur la base de l'ouvrage de [Lencastre \(1960\)](#).

Les valeurs de chaque paramètre intermédiaire calculé sont une fonction du flux. Le tableau [III.1.2](#) donne les valeurs de chacun de ces paramètres à 10 et 50 LMH (les deux valeurs extrêmes observées).

TABLE III.1.2 – Paramètres intermédiaires du calcul des pertes de charge

Nom	Symbole	Unité	Valeur à 10LMH	Valeur à 50LMH
Débit	Q	$m^3.s^{-1}$	0.0126	0.0632
Vitesse moyenne du fluide	U	$m.s^{-1}$	0.402	2.011
Reynolds	Re	-	7×10^4	3.5×10^5
Lambda (diagramme de Moody, acier émaillé)	λ	-	0.016	0.017
Lambda (Formule de Darcy, fonte)	λ	-	0.022	0.022
Valeur de Lambda retenue	λ	-	0.02	0.02
Perte de charge linéaire	PdC_{lin}	$m.m^{-1}$	0.000825	0.0206
PdC_{lin} par unité de flux au carré	α_{PdC}	$s^2.m^{-2}$	1.0691×10^8	1.0691×10^8
PdC_{lin} par unité de flux au carré	α_{PdC}	$bar.m^{-1}.LMH^{-2}$	8.25×10^{-7}	8.25×10^{-7}

La première étape consiste à évaluer le nombre sans dimension de Reynolds (Re), qui nous renseigne sur la nature laminaire ($Re < 2000$), transitoire ($2000 < Re < \simeq 10^4$ suivant la géométrie de la conduite) ou turbulente de l'écoulement (équation [III.1.2](#)).

$$Re = \frac{QD}{S\nu} \quad (\text{III.1.2})$$

où

- Q est le débit de perméat ($m^3.s^{-1}$)
- D est le diamètre dans le cas des conduites circulaires (m)
- S est la section de la conduite (m^2)
- ν est la viscosité cinématique de l'eau ($m^2.s^{-1}$)

ν est égale au quotient de la viscosité dynamique par la masse volumique du fluide.

Dans notre cas, pour un flux membranaire de 10 et 50 LMH (valeurs extrêmes), et une conduite de perméat d'un diamètre de 200mm, le nombre de Reynolds vaut respectivement 7×10^4 et 3.5×10^5 . L'écoulement n'est donc pas laminaire.

La perte de charge dans une conduite est représentée par l'équation III.1.3

$$\Delta P = L_{equ} \cdot \Delta P_{lin} \quad (\text{III.1.3})$$

où

- ΔP est la perte de charge (*bar*)
- ΔP_{lin} est la perte de charge linéaire par m de conduite (*bar.m⁻¹*)
- L_{equ} est la longueur équivalente de conduite (*m*) : la somme des conduits droits et des équivalents en longueur des singularités

ΔP_{lin} se calcule suivant l'équation suivante :

$$\Delta P_{lin} = \lambda \frac{1}{D} \frac{U^2}{2g} \quad (\text{III.1.4})$$

où

- D est le diamètre dans le cas des conduites circulaires (*m*)
- U est la vitesse moyenne du fluide (*m.s⁻¹*)
- g est la constante gravitationnelle (*m².s⁻¹*)
- λ est un paramètre sans dimension

De multiples méthodes peuvent être utilisées pour déterminer la valeur de λ . Pour la robustesse des résultats, on comparera deux de ces méthodes ici.

D'après la méthode de Moody λ peut être déterminé à partir du diagramme expérimental de Moody, connaissant les valeurs de la rugosité, du nombre de Reynolds et du diamètre de la conduite.

Dans nos calculs, la rugosité est celle d'un acier inoxydable soudé : $\epsilon = 0.05mm$. La rugosité relative ($\frac{\epsilon}{D}$) est donc de $2 * 10^{-4}$

La lecture sur l'abaque de Moody donne des valeurs de λ égales à

- $\lambda = 0.016$ pour J=10LMH
- $\lambda = 0.017$ pour J=50LMH

D'après la méthode de Darcy on calcule λ par la formule :

$$\lambda = 8gb \quad (\text{III.1.5})$$

où

$$b = \frac{D^5 \pi^2}{64} \frac{11.6}{2} \quad (\text{III.1.6})$$

où la valeur de 11.6 est tirée de l'abaque de Darcy.

On prendra dans la suite $\lambda = 0.02$.

La perte de charge linéaire est alors de :

$$\Delta P_{lin} = \lambda \frac{1}{D} \frac{U^2}{2g} = \lambda \frac{8A^2}{g\pi^2 D^5} J^2 \quad (\text{III.1.7})$$

où

– A est la surface membranaire des trois modules d'un bassin (m^2)

– J est le flux membranaire (LMH)

On introduit une grandeur $\alpha_{\Delta P}$ telle que :

$$\Delta P = \alpha_{\Delta P} * J^2 * L_{equ} \quad (\text{III.1.8})$$

Les valeurs de $\alpha_{\Delta P}$ fournies dans le tableau III.1.2 pour les deux débits extrêmes suggèrent une dépendance négligeable au flux. On fixe donc une valeur de $\alpha_{\Delta P}$ qu'on utilisera dans la suite des calculs.

Le calcul de la longueur équivalente de conduite de perméat se fait par l'addition de la longueur réelle et d'une longueur fictive correspondant aux tronçons non linéaires de la conduite.

Certaines de ces singularités sont répertoriées dans l'ouvrage de [Lencastre \(1960\)](#), comme les coudes et les embranchements perpendiculaires. Cependant, les singularités telles que l'embranchement des membranes sur la conduite ne sont pas répertoriées. Une estimation est alors faite de façon arbitraire. Nous verrons par la suite que la relation de dépendance de la perméabilité au flux observée permet de confirmer les valeurs retenues.

III.1.2.1.3 Dérive de la PTM supervision

Pendant les paliers de flux nul, on constate que la PTM est différente de zéro (figure III.1.5). Or d'après la loi de Darcy, la PTM est proportionnelle au flux. Autrement dit, une valeur de PTM non nulle à flux nul signifie que la résistance de la membrane est infinie. La résistance étant une propriété intrinsèque de la membrane qui varie en fonction de sa configuration principalement, il semble aberrant qu'elle passe d'une valeur raisonnable à une valeur infinie en quelques secondes. Il apparaît donc que le zéro de la PTM doit être recalé avant son utilisation.

La PTM_0 (PTM à flux nul) est introduite et correspond à la valeur médiane de la PTM calculée sur chaque palier de flux nul d'une durée supérieure à 6 minutes. Cette valeur minimale a été choisie car le flux donné par

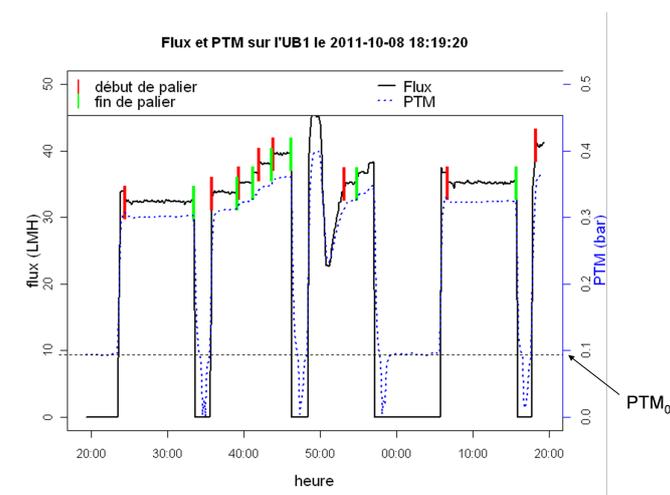
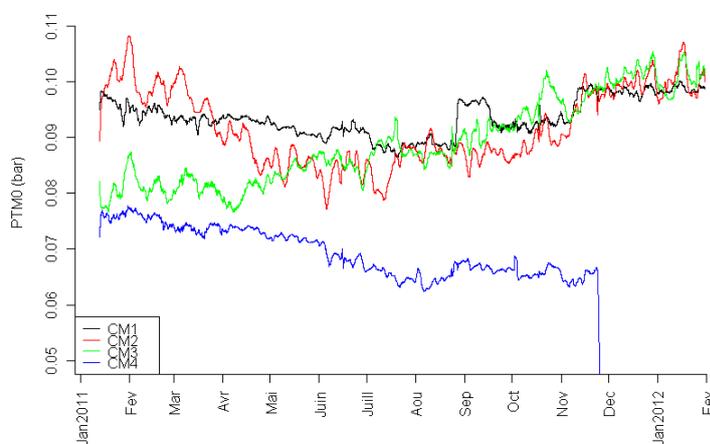


FIGURE III.1.5 – PTM non nulle à flux nul

la supervision de la station vaut zéro quand le flux réel est négatif. Or il arrive que le flux soit négatif durant des périodes d'une à deux minutes (pendant des opérations de lavage). Pour que la valeur médiane de la PTM représente réellement la PTM à flux nul, il faut que la durée minimale des paliers de flux nul soit supérieure à deux fois la durée des plus longs rétrolavages accompagnés de leur période de stabilisation. La valeur médiane plutôt que la moyenne a été adoptée pour que des valeurs de PTM ponctuelles et aberrantes ou les phases de transition n'affectent pas le résultat. Une moyenne glissante (pondérée par la durée de chacun des paliers) sur une durée de 5 jours est ensuite calculée pour lisser le signal. En effet, il fallait éviter des discontinuités dans la PTM0 provoquant des discontinuités aberrantes dans la perméabilité.

La figure III.1.6 présente les évolutions de la PTM_0 après lissage pendant toute l'année 2011 dans les quatre CM.

FIGURE III.1.6 – Evolutions de la PTM_0 pendant le suivi.

Les évolutions lentes de la PTM_0 proviennent soit d'une dérive lente des capteurs de pression, soit d'une anomalie dans le calcul de la PTM, lors de la prise en compte du niveau de boue dans les CM. Comme son évolution dans chaque bassin membranaire est différente, elle ne peut pas provenir d'une évolution de la viscosité du perméat (autre que par la température), car la liqueur mixte filtrée est identique dans les quatre CM.

Les valeurs de PTM calculées par la supervision présentent une autre particularité : la valeur enregistrée est la valeur absolue de la PTM calculée. Dans les cas (exceptionnels) où la PTM_0 devient négative, l'erreur obtenue après correction par la PTM_0 est égale à deux fois la PTM_0 (figure III.1.7). Les valeurs de perméabilité calculées deviennent alors aberrantes, ce qui permet de déterminer le signe de la PTM_0 à prendre en compte. Cette opération se fait manuellement, car le cas ne se présente pas souvent (sur 2 des quatre bassins membranaires, pendant les deux derniers mois du suivi), sauf à la fin du suivi sur la CM4, où la PTM_0 devient subitement très instable (périodes négatives et positives). Le calcul de la PTM_0 est alors impossible.

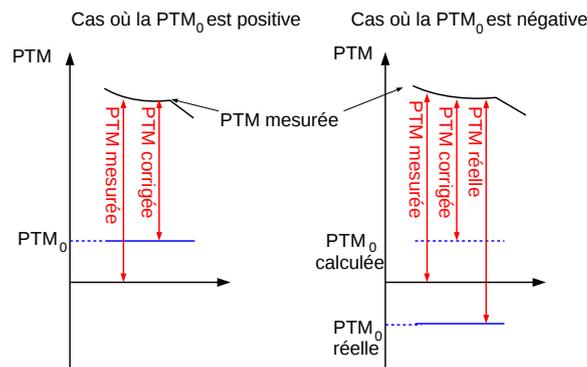


FIGURE III.1.7 – À gauche ($PTM_0 > 0$), la correction de la perméabilité donne le bon résultat, à droite ($PTM_0 < 0$) elle multiplie l'erreur par deux

La perméabilité obtenue à l'issue de ces trois corrections est donnée par l'équation III.1.9 :

$$L_p = \frac{\mu_{perm}}{\mu_{perm}^{20}} \frac{J}{PTM_{mes} - PTM_0 - \alpha_{\Delta P} J^2 L_{equ}} \quad (III.1.9)$$

III.1.2.2 Impact des corrections sur la perméabilité calculée

Les corrections effectuées sur la perméabilité ont un effet visible en particulier lorsqu'on trace la perméabilité en fonction du flux sur une courte période. La figure III.1.8 montre les impacts successifs des différentes corrections de la perméabilité. Les données représentées concernent tous les paliers de filtration détectés sur

la CM 2 pendant 2 journées.

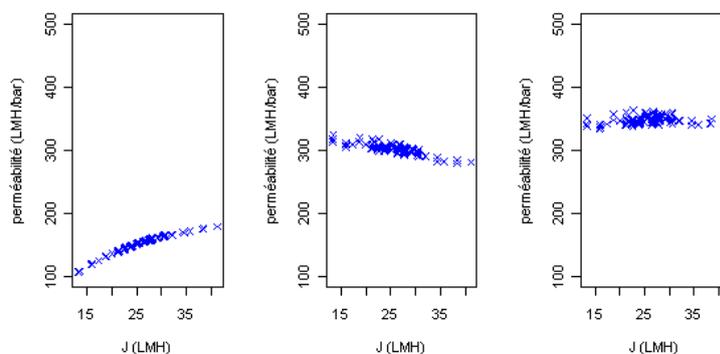


FIGURE III.1.8 – Perméabilité corrigée en température (gauche), avec correction de la PTM_0 (milieu), avec correction des pertes de charge (droite)

Le premier constat est l'augmentation de la valeur de perméabilité par les différentes corrections par rapport à celle calculée par le logiciel d'exploitation de la station, mais aussi par rapport à la plupart des études effectuées avec ce type de membranes (cf III.1.2.3).

Le second constat est la disparition de la relation entre la perméabilité et le flux à court terme. Cela indique que sur des temps courts, il ne semble pas y avoir de variations importantes de l'état de colmatage de la membrane (porosité, quantité de gâteau, structure du gâteau...) avec le flux. Cela permet de dire que la résistance à la filtration générée par les processus de colmatage n'est pas modifiée significativement par les variations de pression imposées, comme dans le cas de la polarisation de concentration (Busch et al., 2007), ou d'un dépôt compressible (Bugge et al., 2012). Ces hypothèses seront confirmées plus tard dans l'analyse de l'impact des rétrolavages sur le colmatage des membranes.

La figure III.1.9 montre la différence entre la perméabilité moyenne journalière obtenue avec notre méthode de calcul et avec le logiciel de l'exploitant. Les valeurs que nous obtenons sont plus élevées, avec des variations sur le long terme amplifiées et des variations sur le court terme réduites.

Bien qu'extrêmement dépendante du système d'acquisition de l'installation, de la qualité et du placement des capteurs, une étude similaire est parue sur les corrections de perméabilité. L'étude de Joss et al. (2009) présente le même type de résultats et propose les mêmes solutions pour calculer une perméabilité plus fiable.

III.1.2.3 Comparaison avec les valeurs de la littérature

Il apparaît que dans le reste de la littérature, les valeurs de perméabilité obtenues sur des installations équipées de membranes Zenon de la même génération sont en général plus faibles que dans notre cas (tableau III.1.3).

Plusieurs observations indépendantes expliquent le fait que la perméabilité calculée sur le BRM suivi soit

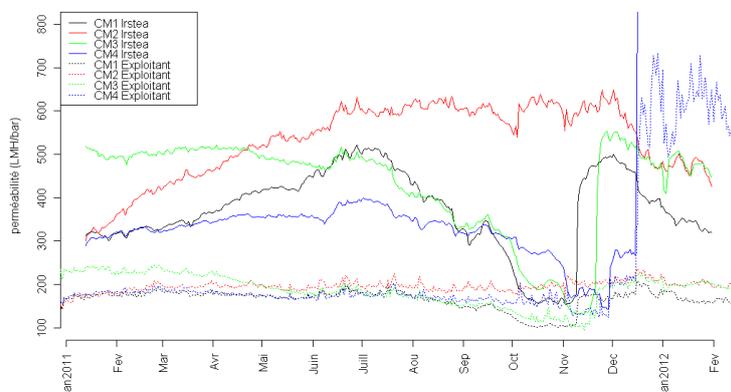


FIGURE III.1.9 – Perméabilité calculée par l’exploitant (pointillés) et perméabilité après les corrections supplémentaires (lignes pleines). Les valeurs obtenues à la fin du suivi pour la CM4, que ce soit par les calculs de l’exploitant ou les nôtres sont aberrantes en raison d’un dysfonctionnement du capteur de pression.

TABLE III.1.3 – Valeurs de perméabilité dans la littérature avec des membrane Zenon Zeeweed

Référence	Plage de variation de la perméabilité (LMH/bar)	Ville	Modèle de membranes
Lyko et al. (2008)	100 - 200	Nordkanal	Zeeweed 500c
Van Bentem et al. (2010)	200 - 240	Vasserveld	Zeeweed 500d
Brepols et al. (2010)	150 - 200	Rödingen Nordkanal Glessen	Zeeweed 500c Zeeweed 500c Zeeweed 500d
Garcés et al. (2007)	60 - 160	Schilde	Zeeweed 500c
Engelhardt (2006)	100 - 250	Nordkanal	Zeeweed 500c
Wintgens et al. (2003)	60 - 370	Rödingen	Zeeweed ??
Trussell et al. (2006)	50 - 130	Pilote (USA)	Zeeweed 500c
Présente thèse	150 - 700	Région parisienne	Zeeweed 500d

plus élevée que dans les autres études :

- Des test de filtrabilité menés par le Cirsee montrent une bonne filtrabilité des boues
- Les faibles concentrations en PMS mesurées au début de la campagne d'acquisition pourraient conduire à un colmatage irréversible faible. (VOIR L'ANNEXE SUR LES ANALYSES DE PMS)
- Le volume des CM est faible par rapport à la quantité d'air grosses bulles injectée
- Dans la très grande majorité des cas, la prise en compte des pertes de charge et de la PTM_0 n'est pas effectuée, ou du moins pas évoquée.

III.1.2.4 Détection des paliers de flux

La partie suivante donne la méthodologie utilisée pour exploiter les données présentées ci-dessus.

III.1.2.4.1 Prétraitement des données

A partir des données brutes de la supervision, on construit une matrice avec les colonnes suivantes à un pas de temps de 10s :

- le temps (sous un format numérique) (s)
- la PTM, donnée par la supervision (bar)
- le flux, donné par la supervision (LMH)
- une colonne lavages de maintenance, dont la valeur est 1 pendant les lavages de maintenance, et zéro sinon. Cette donnée est également issue de la supervision.

Un programme a été conçu avec le langage de programmation du logiciel R, spécialisé dans le traitement statistique de bases de données importantes. Le but est de tirer les informations voulues sur le colmatage de façon automatique. Le calcul comprend plusieurs étapes :

Dans un premier temps pour isoler les paliers de flux, une nouvelle colonne contenant un écart-type glissant sur le flux sur 10 points (110s) est construite. Le programme isole les débuts et les fins des phases stables (écart-type inférieur à 0.3 LMH). Une nouvelle table est alors créée, qui contient sur chaque ligne les informations sur un palier de filtration : instant initial, instant final, durée, flux moyen.

Cette table est séparée en deux : les paliers de flux nul (flux moyen inférieur à 0.5 LMH), et les paliers de filtration. La table des paliers de flux nul est utilisée pour calculer la PTM_0 (voir partie III.1.2.1.3). On ajoute à la table des paliers de filtration une colonne contenant la PTM_0 . Les phases transitoires au début de chaque palier de filtration sont retirées (retrait des 4 premiers points (30s) de chaque palier, correspondant à la phase transitoire de stabilisation de la PTM après les changements brusques du flux).

III.1.2.4.2 Calcul des données sur les paliers

Le programme rajoute ensuite plusieurs colonnes à la table des paliers de filtration :

- la température de la boue issue d'un capteur d'Irstea placé dans un bassin d'aération

- l'écart-type de la PTM sur le palier, qui permet d'écarter des paliers contenant des points aberrants
- l'écart-type du flux sur le palier, qui donne une indication sur la stabilité du palier
- la valeur moyenne de la PTM sur chaque palier
- la perméabilité moyenne, calculée avec les moyennes de PTM corrigée et de flux moyen
- la valeur du coefficient de régression linéaire temporelle sur la perméabilité instantanée pendant chaque palier (cf III.1.3.1)
- l'écart-type des résidus de cette régression linéaire
- une colonne contenant le temps écoulé depuis le dernier lavage de maintenance

Les colonnes relatives à la régression linéaire de la perméabilité sur chaque palier donnent de l'information sur les vitesses de colmatage instantanées. Les résultats concernant cette variable sont détaillés dans la partie III.1.3.1.

Le tableau III.1.4 donne un aperçu quantitatif des caractéristiques des bases de données sur les paliers.

TABLE III.1.4 – Caractéristiques de la base de données obtenue sur les paliers de filtration

	nb paliers		flux (LMH)	PTM (mbar)	L_p ($LMH.bar^{-1}$)	durée (s)
CM1	44416	Moyenne	31.8	100	374	191
		Ecart-type	7.56	39	84.5	102
		Max	49.4	295	582	940
		Min	9.10	24	47.9	100
CM2	45329	Moyenne	31.2	67	532	188
		Ecart-type	7.30	22	87.6	92.6
		Max	47.4	295	1857	900
		Min	12.0	16	46.0	100
CM3	49639	Moyenne	33.0	100	388	193
		Ecart-type	7.41	37	96.9	106
		Max	49.2	278	606	830
		Min	14.0	25	104	100
CM4	36569	Moyenne	27.9	88	329	180
		Ecart-type	7.50	40	66.6	89.2
		Max	48.2	318	749	660
		Min	13.5	16	90.5	100

III.1.2.5 Cycles journaliers de perméabilité

On constate la présence de cycles journaliers de perméabilité (figure III.1.10). Leur mise en évidence et leur comparaison avec les cycles journaliers de flux montrent qu'ils ne sont pas dus à une dépendance résiduelle aux cycles de flux. La dépendance à la température est écartée par le fait que les cycles sont différents sur les quatre CM alors que la température de la boue y est la même.

La cause de ce cycle journalier n'a pas été déterminée à ce jour. Cependant, ce cycle représente un faible pourcentage de variations par rapport à la valeur de perméabilité (entre environ 0.5 et 2% suivant la CM et la période considérée).

III.1.3 Calcul des indicateurs du colmatage

Les évolutions de la perméabilité nous donnent une information de plusieurs natures sur le colmatage. Les cinétiques associées peuvent être liées à différents mécanismes physiques. Quatre grandeurs calculées ont pour vocation de différencier les différentes échelles de temps du colmatage et de déceler les mécanismes physicochimiques du colmatage. La perméabilité brute sert à calculer, deux indicateurs de colmatage et deux indicateurs de réversibilité, pour des cinétiques longues (de l'ordre du jour et courtes (de l'ordre du cycle de filtration : 10 minutes) :

- les évolutions internes à un palier (coefficient de la régression linéaire sur la perméabilité dans chaque palier)
- les évolutions journalières (différences entre les moyennes journalières)
- l'efficacité des rétrolavages
- l'efficacité des lavages de maintenance

Ces indicateurs et leur valeur temporelle ont été choisis car ils sont en principe aptes à caractériser le colmatage, mais aussi pour valoriser l'information apportée par le large panel de paliers de flux.

III.1.3.1 Vitesse de colmatage instantanée (iPE)

La vitesse de colmatage instantanée *iPE* (pour instantaneous Permeability Evolution) est calculée directement sur les données brutes, pour chaque palier de flux. C'est l'opposé coefficient directeur de la régression linéaire temporelle effectuée sur la perméabilité corrigée pendant le palier.

La figure III.1.11 montre les évolutions de la vitesse de colmatage instantanée pendant toute la période du suivi. Chaque boîte à moustache représente une semaine de donnée.

Les boîtes à moustaches nous donnent un aperçu de la grande variabilité des valeurs obtenues. Cette variabilité vient des faibles pentes observées par rapport à la précision des données de flux et de PTM. Le grand nombre de données contenues permet cependant de déceler des tendances. Par exemple, sur CM1, pendant la période de baisse de la perméabilité (août-novembre), la vitesse de colmatage instantanée semble

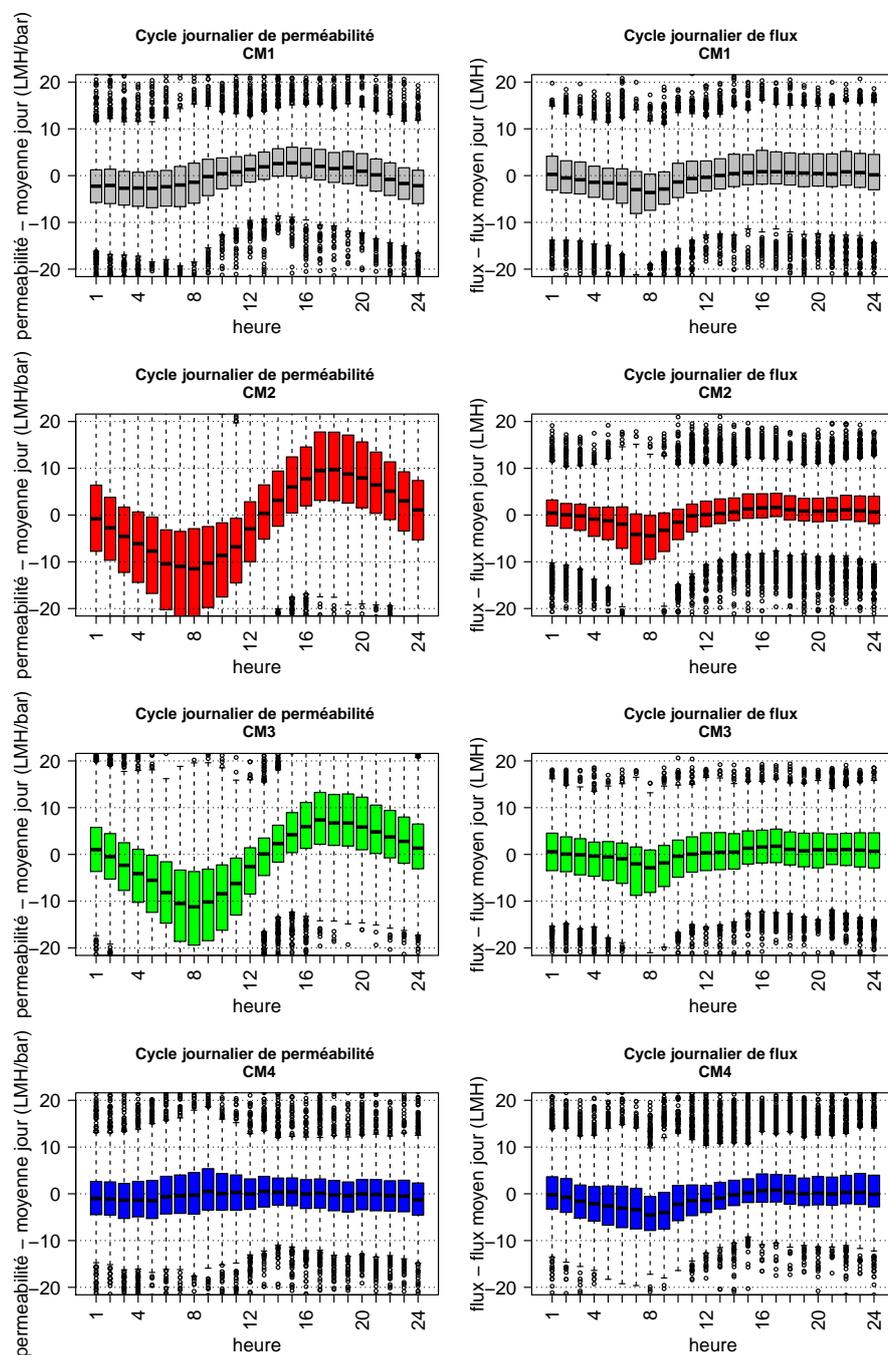


FIGURE III.1.10 – Observation des cycles journaliers de perméabilité et comparaison avec les cycles journaliers de flux. Les boîtes à moustaches sont obtenues à partir des données collectées sur chaque palier de filtration. L'abscisse est donnée en heure depuis minuit.

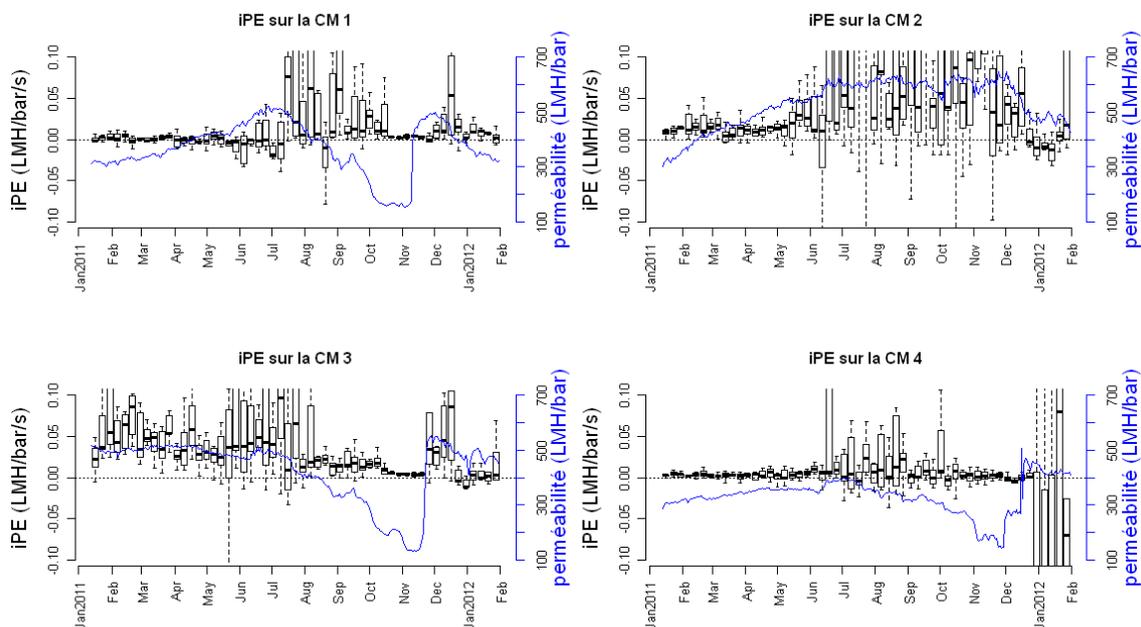


FIGURE III.1.11 – Evolutions de la vitesse de colmatage instantanée (boîtes à moustaches) et de la perméabilité (ligne) sur les quatre bassins membranaires

plus élevée (on constate le contraire sur la CM3 cependant). Pendant les longues périodes d'augmentation de la perméabilité, les vitesses de colmatage instantanées semblent faibles.

III.1.3.2 Dérive journalière de perméabilité (dPE)

Les vitesses de colmatage journalière (dPE pour daily Permeability Evolution) représentent la dérivée temporelle long terme (pas de temps=1jour) de la perméabilité (équation III.1.10). Ses évolutions sont représentées sur la figure III.1.12

$$dPE = L_{p,d+1} - L_{p,d} \quad (\text{III.1.10})$$

Bien que les variations de dPE soient dispersées de façon erratique autour de zéro on peut déceler des tendances (négative quand la tendance de la perméabilité est à la baisse et inversement).

III.1.3.3 Indicateur de l'impact des rétrolavages (iBW)

Le second indicateur d'évolution du colmatage sur le court terme est l'impact des rétrolavages sur la perméabilité (iBW pour *impact of BackWashes*).

Chaque rétrolavage est détecté quand la PTM devient négative. Le programme développé avec R cherche tous ceux dont l'impact peut être calculé. La condition pour qu'un rétrolavage soit éligible est qu'il soit précédé

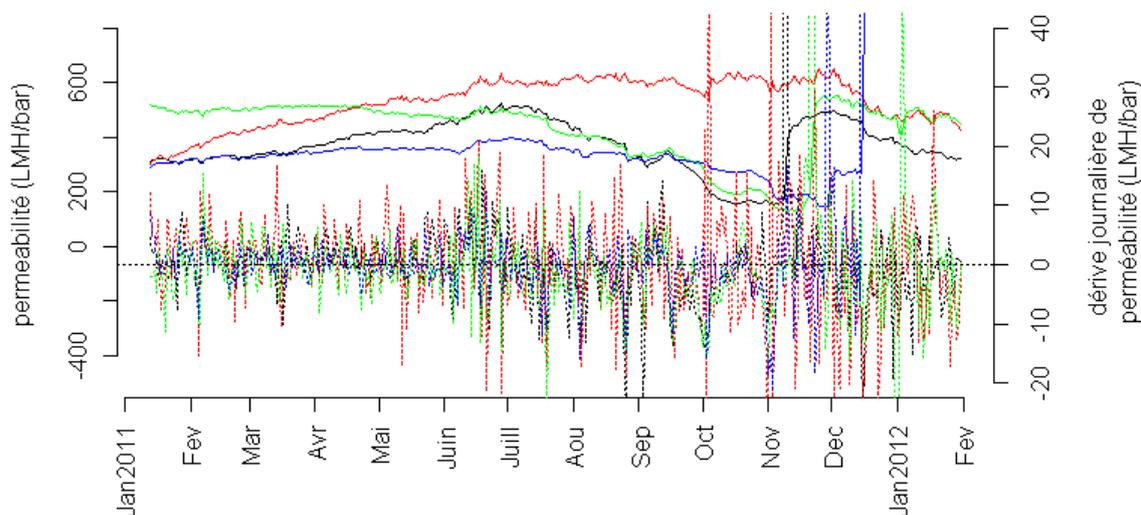


FIGURE III.1.12 – Vitesse de colmatage journalière (dPE) pendant le suivi (pointillés), confrontés aux valeurs de perméabilité (lignes pleines) dans les quatre CMs

(moins de 2 minutes avant) par la fin d'un palier de flux ET suivi (moins de 2 minutes) par le début d'un autre. L'indicateur d'efficacité des rétrolavages (iBW) est la différence entre la perméabilité calculée à la fin (5 derniers points) du palier précédant le rétrolavage et celle calculée au début (5 premiers points après une stabilisation de 30s) du palier suivant.

Cette méthode de sélection des rétrolavages éligibles pour le calcul est issu d'un compromis entre : d'une part la quantité des rétrolavages éligibles, pour avoir suffisamment de points et extraire des moyennes journalières sur au moins 10 rétrolavages; et d'autre part la précision du calcul, basée sur le nombre de points utilisés pour calculer la perméabilité avant et après le rétrolavage (ici 5) et le temps écoulé entre le rétrolavage et les paliers utilisés pour le calcul des perméabilités (ici 2 minutes).

La figure III.1.13 montre, comme pour les vitesses de colmatage instantané, les évolutions au cours de l'année de l'indicateur de réversibilité par rétrolavages.

Cette figure montre que de nombreuses valeurs de l'indice iBW sont négatives. cela est dû à plusieurs raisons :

- Pour avoir accès à un nombre suffisant de données sur les rétrolavages, aucune condition n'a été émise sur la différence de flux entre les paliers utilisés pour calculer la perméabilité avant et après le rétrolavage. Si ce biais est en partie supprimé par les corrections effectuées sur la perméabilité (cf partie III.1.2.1), il est encore existant.
- La précision des calculs est limitée par la faible quantité de points utilisés pour le calcul de la perméabilité

avant/après les rétrolavages (5 points, soit 50s de données). Cette quantité ne peut être trop étendue par ailleurs pour cibler précisément le rétrolavage, sans qu'un colmatage rapide ne vienne fausser le calcul. Les valeurs négatives sont d'ailleurs probablement liées à un colmatage rapide ayant lieu entre la fin du rétrolavage et le calcul de la perméabilité post-rétrolavage.

Comme pour l'indicateur de colmatage instantané iPE, l'indicateur d'efficacité des rétrolavages *iBW* présente des valeurs dispersées. La tendance est la grande majorité du temps positive, ce qui indique un impact positif des rétrolavages sur la perméabilité, comme on pouvait s'y attendre. Toutefois, on observe aussi des valeurs relativement dispersées, et même parfois négatives (surtout sur CM4), ce qui indiquerait que le rétrolavage soit parfois contre-productif, ce qui est théoriquement très improbable. Plusieurs hypothèses peuvent expliquer ce constat :

- Le compromis évoqué ci-dessus conduit parfois au calcul de valeurs peu pertinentes. Par exemple si le rétrolavage est suivi immédiatement d'un court pic de flux (colmatant), et que la perméabilité est calculée immédiatement après ce pic, la valeur peut être faussée.
- La précision du calcul de perméabilité, dépendant de la précision des capteurs de flux et PTM, ainsi que de sources d'imprécisions liées à la taille de l'installation, est parfois insuffisante, et particulièrement quand les variations de flux sont élevées.
- L'impact des rétrolavages peut théoriquement être faible ou nul dans certaines conditions (pas ou peu de colmatage hydrauliquement réversible), l'impact calculé par le programme donne alors seulement la baisse de perméabilité entre les deux périodes de calcul pré et post rétrolavage.

Ce compromis a été choisi car il permet toutefois de mettre en évidence certaines tendances : plus la perméabilité est élevée, plus l'impact des rétrolavages semble important sur les CM 1, 2 et 3. Sur CM4, dont la perméabilité est relativement faible tout au long du suivi, les valeurs de *iBW* sont particulièrement faibles et dispersées autour de zéro. Cela indique qu'une membrane colmatée durablement présenterait un colmatage hydrauliquement réversible moins important.

III.1.3.4 Indicateur de l'impact des lavages de maintenance

L'impact des lavages de maintenance est calculé sur des moyennes journalières de la perméabilité : à chaque lavage de maintenance (tous les 3-4 jours), la perméabilité moyenne des 24h suivantes est soustraite à la perméabilité moyenne des 24h précédentes. Une moyenne sur une période de 24h est utilisée ici afin que les cycles journaliers de perméabilité inexplicables ne faussent pas le résultat (cf III.1.2.5). *iLM* est donc la différence entre la perméabilité moyenne des 24h suivant un lavage de maintenance et la perméabilité moyenne des 24h le précédant.

On constate que l'efficacité des lavages de maintenance paraît plus élevée pendant les périodes d'augmentation de la perméabilité. Cela est à interpréter prudemment. En effet, l'augmentation de la perméabilité peut être due à une meilleure efficacité des lavages, mais une augmentation résultant d'autres phénomènes que les

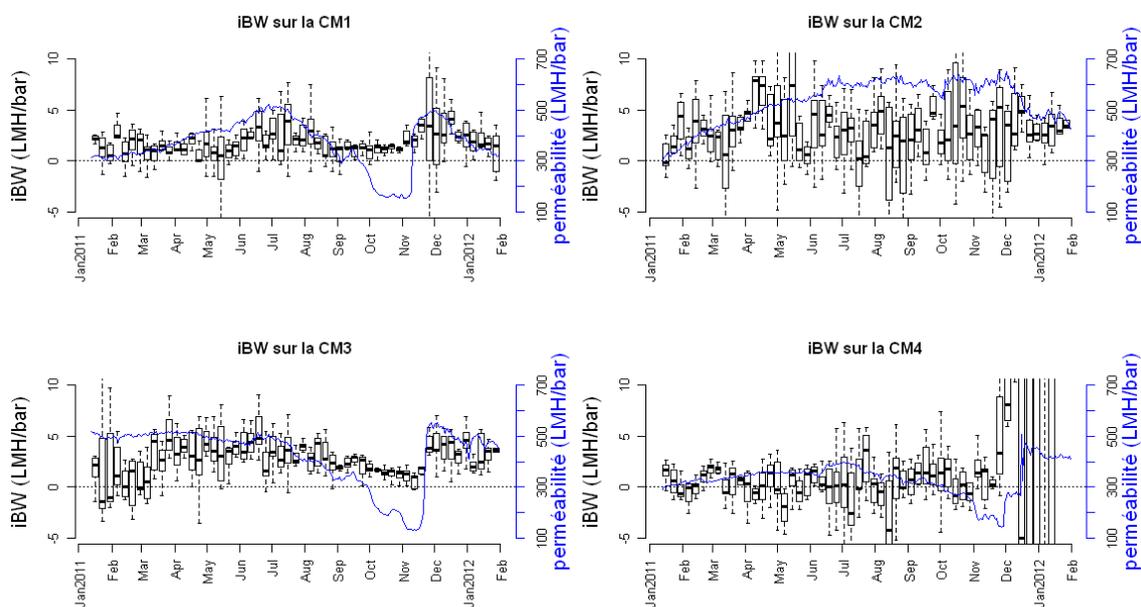


FIGURE III.1.13 – Évolutions de l'indicateur de réversibilité par rétrolavages (boîtes à moustaches) et de la perméabilité (ligne) sur les quatre cellules membranaires

lavages de maintenance peut aussi conduire à un résultat positif sur le calcul de l'efficacité du lavage. On constate également que l'efficacité calculée peut être négative. Ces résultats proviennent probablement du fait que parfois le lavage de maintenance ne compense pas le colmatage qui a lieu pendant les deux jours du calcul. Cela ne signifie donc pas forcément que le lavage a eu un impact négatif. Dans ces situations, il est probable que le lavage ait un effet minime.

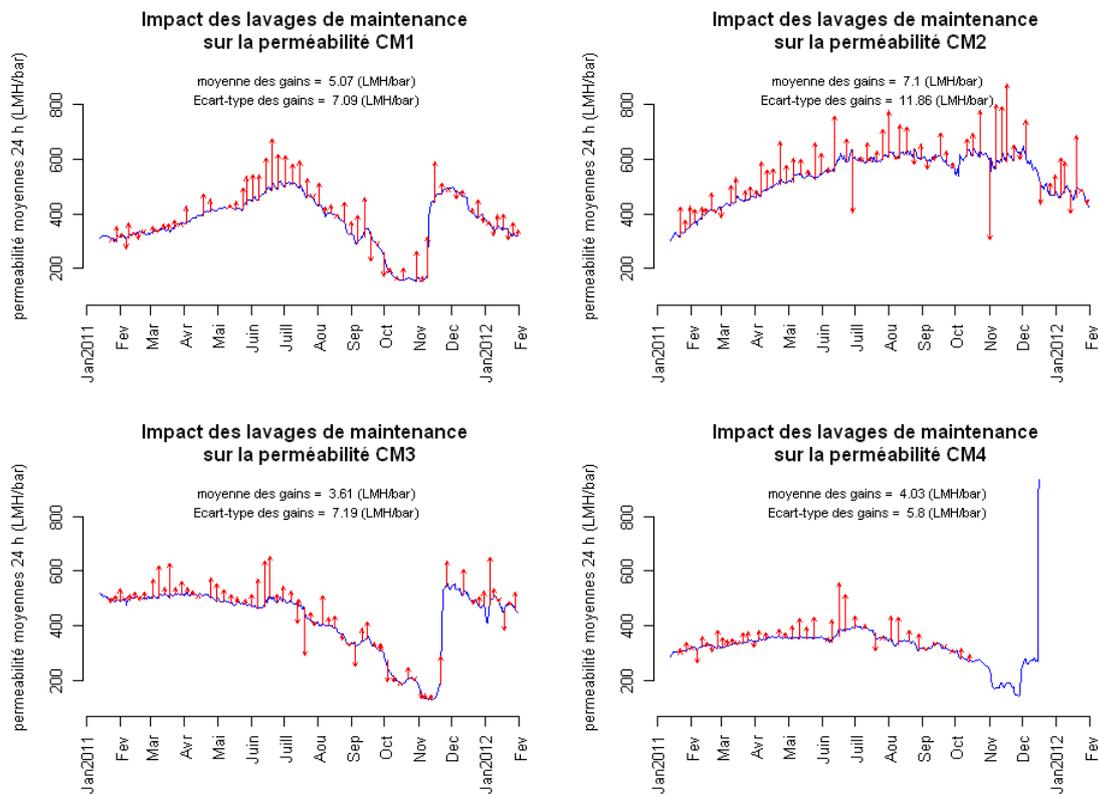


FIGURE III.1.14 – Impact des lavages de maintenance. Chaque flèche représente un lavage de maintenance, et sa longueur équivaut à 8 fois la différence entre la perméabilité moyenne des 24h après et avant le lavage.

Chapitre III.2

Approches statistiques et outils utilisés

La revue bibliographique effectuée (cf partie I) montre le faible nombre d'études statistiques ou mécanistiques basées sur l'analyse de résultats obtenus avec des installations grandeur réelle. Les mécanismes décrits par les modèles de filtration ont été peu confrontés à des données issues d'installation grandeur réelle. Les variables d'entrée des modèles déterministes, et en particulier les concentrations et les propriétés de composants des boues dont les PMS et EPS, qui ont montré un impact sur le colmatage en laboratoire, sont inadaptées aux procédés réels, en particulier ceux fonctionnant à très faible charge.

En effet, les gammes de variations des concentrations en PMS étudiées lors de la mise en évidence de l'impact sur le colmatage en laboratoire ne correspondent pas à celles observées en grandeur réelle (en particulier les concentrations en PMS : jusqu'à 100mg.L^{-1} dans la littérature contre moins de 20 dans le BRM suivi).

D'autre part, le suivi de ces variables repose sur des protocoles qui ne sont pas toujours applicables lors de l'exploitation courante des BRMs, typiquement pour des raisons techniques mais aussi économiques (par exemple : tests de filtrabilité adaptés, analyses de PMS et d'EPS, mesures hydrodynamiques, mesure des tailles de floccs et de colloïdes...).

L'objectif ici est de prendre en compte d'autres aspects que le flux et la concentration en MES dans un modèle de filtration, tout en se limitant à des variables possibles à mesurer ou à calculer sur des installations grandeur réelle. Il a donc été choisi de déceler des tendances empiriques entre des variables *simples* et le colmatage. Cette solution est appuyée par les larges jeux de données que génèrent le suivi d'installations grandeur réelle sur le long terme. Ils permettent d'effectuer un traitement statistique fiable pour dégager les principales tendances.

Les analyses de corrélations simples (coefficients de corrélation de Pearson ou de Spearman) entre une variable et le colmatage font souvent apparaître des liens qui peuvent être biaisés dans le cas où les variables d'entrée étudiées sont corrélées entre elles. Par exemple, la concentration en MES, la charge massique et l'âge de boues sont mécaniquement liés. On peut aussi évoquer l'influence des saisons sur plusieurs variables qui

pourraient être indépendantes. Ainsi, une analyse basée sur des corrélations univariées sera confrontée à une approche multivariée qui vise à identifier l'impact propre de chaque variable.

Dans un souci d'application de la méthode statistique, une méthode de calage d'un modèle empirique et sa validation sont proposées. Les méthodes de gestion de la filtration actuellement utilisées dans l'industrie (limitation des flux maximaux, planification des lavages de maintenance et de régénération, mais aussi séquençage de l'aération) sont essentiellement basées sur des décomptes de volume filtré, mais ne prennent pas en compte les aspects inhérents à la filtrabilité des boues, donc aux aspects biologiques. Le modèle présenté dans cette thèse prendra en compte aussi bien les données de flux que des données sur les caractéristiques des boues.

Ce chapitre présente la méthodologie utilisée pour mettre en lumière les corrélations entre variables opératoires et colmatage des membranes, et pour prédire les évolutions sur le long terme de la perméabilité. On introduira dans un premier temps les différentes approches mises en œuvre puis les outils statistiques utilisés.

III.2.1 Différentes approches statistiques

Le schéma III.2.1 présente les différentes approches statistiques utilisées pour répondre aux objectifs décrits ci-dessus.

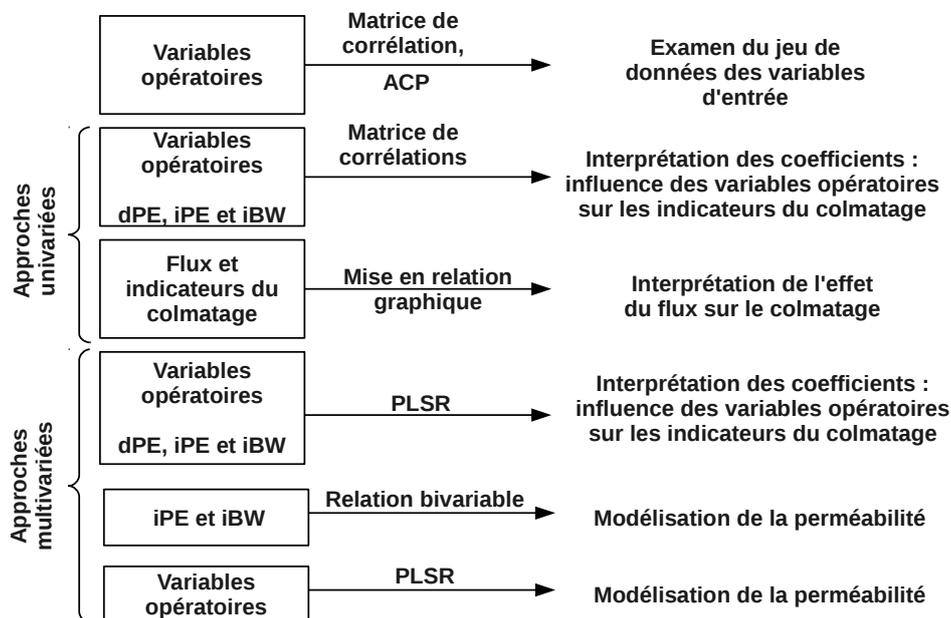


FIGURE III.2.1 – Schéma des différentes approches statistiques utilisées

Dans un premier temps, le jeu de données regroupant les variables d'entrée est décrit par une matrice de corrélation et une analyse par composantes principales (cf III.2.2). L'objectif est d'identifier les principales

sources de variabilité au sein des variables d'entrée pour pouvoir ensuite interpréter de façon adéquate les résultats des approches statistiques.

Une approche univariée, basée sur des coefficients de corrélations de Spearman entre variables opératoires entre elles, mais aussi avec les indicateurs du colmatage est présentée dans le but de comparer les résultats de cette approche avec ceux de l'approche multivariée qui sont présentés dans la suite.

Le flux est la variable qui semble avoir le plus d'influence sur le colmatage, que ce soit dans la littérature ou dans nos propres résultats. Son impact sur les indicateurs du colmatage dans le BRM est analysé plus finement à titre d'exemple, à l'aide de plusieurs représentations graphiques (boîtes à moustaches). Les résultats (en terme de flux critique et de colmatage long terme) sont confrontés à ceux de la littérature, et leur validité est discutée.

Le même type d'analyse, mais se basant sur une méthode multivariée appelée PLS pour *Partial Least Square* (cf III.2.3) est effectuée, et ses résultats sont confrontés à ceux issus de l'approche univariée.

Les liens entre les évolutions court terme de la perméabilité, représentées par les deux indicateurs iPE et iBW (respectivement indicateur de colmatage instantané et impact des rétrolavages), et l'indicateur dPE (évolution journalière de la perméabilité) seront analysés. La méthode utilisée est une régression bivariée. L'objectif est de mettre en valeur la dépendance du colmatage long terme aux évolutions court terme, et en particulier de discuter l'hypothèse selon laquelle les évolutions long terme seraient une résultante des évolutions court terme successives.

Enfin l'utilisation des coefficients issus de la PLS, calibrés sur des périodes de durée variable à des fins de prédiction des évolutions long terme de la perméabilité, sera présentée. La période de suivi est divisée en plusieurs parties, pour le calage des coefficients et pour leur validation. La durée nécessaire à l'obtention de coefficients utilisables (durée du calage) sera déterminée et discutée, ainsi que la durée sur laquelle la perméabilité peut être prédite (durée de validation). L'objectif est de proposer une méthode utilisable dans l'exploitation des installations réelle.

III.2.2 ACP : Analyse en Composantes Principales

Soient p variables quantitatives mesurées sur un ensemble de n individus. Ces variables peuvent être représentées sous forme d'une matrice X à n lignes et p colonnes :

$$\begin{bmatrix} X_{1,1} & \cdots & X_{1,p} \\ \vdots & X_{i,j} & \vdots \\ X_{n,1} & \cdots & X_{n,p} \end{bmatrix}$$

Les n individus de l'ensemble des variables X sont donc projetés sur la base des variables observés. Le but de l'analyse en composantes principales est de trouver une base de taille égale ou inférieure à p éléments

(appelés composantes principales) qui vérifie les conditions suivantes :

- Chaque élément de cette base est une combinaison linéaire des variables initiales
- Cette base est orthogonale
- Le maximum de variance de l'ensemble des données contenues dans X doit être représenté dans les premiers vecteurs de cette base

Le calcul de cette base est effectué par une fonction du logiciel R : `princomp`. Une fois le calcul effectué, on peut tracer les variables d'origine sur un plan défini par deux des composantes principales. Les deux composantes choisies sont généralement les deux premières, car elles contiennent la plus grande partie de l'information contenue dans le jeu de données. Cela permet de visualiser les principales sources de variabilité présentes dans le jeu de données, et d'y associer les variables qui en sont responsables.

III.2.3 Régression multivariée et PLSR

Le principe de base de la régression multivariée (linéaire) appliquée à nos données est le suivant : trouver un vecteur $B = [\beta_1, \dots, \beta_n]$ pour minimiser l'erreur ϵ dans l'équation :

$$Y_M = (X)B + \epsilon \quad (\text{III.2.1})$$

Où, pour chaque cellule membranaire, la matrice des variables d'entrée, est notée X (où $X_{i,j}$ est la valeur de la variable j le jour i) et le vecteur de sortie mesuré, Y_M , où $Y_{M,i}$ est la variable de sortie (un des indicateurs du colmatage) au jour i .

Pour la détermination des valeurs de B , le choix de la méthode repose sur deux facteurs. D'une part, la minimisation du vecteur ϵ peut se faire suivant plusieurs critères, et d'autre part, il faut choisir l'algorithme utilisé pour l'obtention de B .

La méthode choisie dans la thèse est la régression des moindres carrés partiels : les moindres carrés du vecteur ϵ sont minimisés, en utilisant un algorithme dit *PLS* (pour Partial Least Square). Elle a un intérêt particulier dans le cas où le nombre d'échantillons (durée du calage) est faible par rapport au nombre de variables considérées. Dans notre cas, cela présente un intérêt pour tester le modèle avec des périodes de calage courtes.

Les coefficients obtenus (β_i) sont alors utilisés à deux fins : ils représentent l'impact spécifique de chaque variable d'entrée sur la variable de sortie ; et dans le cas d'un modèle prédictif, ils sont utilisés pour calculer la variable de sortie prédite.

III.2.4 Préparation des données

Retrait des valeurs aberrantes Dans un premier temps la matrice X des variables d'entrée est épurée de ses valeurs considérées comme aberrantes. Pour cela une méthode générique est utilisée : les points qui ne sont pas contenus dans l'intervalle suivant sont écartés de la base de données.

$$[Q_1 - k(Q_3 - Q_1); Q_3 + (k(Q_3 - Q_1))] \quad (\text{III.2.2})$$

Où Q_1 et Q_3 sont le premier et le troisième quartiles de chaque vecteur de variables d'entrées, et k un paramètre positif. La valeur de k (habituellement inférieur à 3 ou 4) a été fixée à 5, dans un souci de garder les points extrêmes mais pas aberrants. En effet ces points jouent un rôle important dans le calage du modèle (par effet de levier). Après avoir testé différentes valeurs de k , la valeur retenue semble mener aux meilleurs résultats en terme de modélisation.

Cette méthode est conçue pour les cas où la distribution de la variable à filtrer est normale. C'est notre cas pour les indicateurs du colmatage, qui sont les principales variables à filtrer.

Normalisation Pour s'affranchir des effets dûs aux différences entre les gammes de variation des variables d'entrée, une mise à l'échelle préalable est effectuée. Chaque variable est centrée sur sa valeur moyenne, et normée (divisée par son écart-type).

III.2.5 Modélisation des évolutions long terme du colmatage

Dans le cas de la prédiction de l'évolution long terme de la perméabilité, la variable prédite est dPE (dérive journalière de perméabilité).

Pour avoir accès à la perméabilité, cette dérive est intégrée sur la période donnée suivant l'équation :

$$L_{p,j+1} = L_{p,j} + dPE_{j+1} \quad (\text{III.2.3})$$

Une initialisation est effectuée au début de la période considérée sur la base de la valeur mesurée. Après chaque lavage de régénération, la perméabilité est réinitialisée sur la base de la valeur mesurée, car le modèle ne permet pas de prédire l'efficacité du lavage de régénération.

Chapitre III.3

Analyse statistique des corrélations entre indicateurs du colmatage et variables opératoires

L'objectif de ce chapitre est de cartographier les corrélations entre les variables opératoires, puis entre variables opératoires et indicateurs du colmatage. Cette analyse est effectuée dans un premier temps par une méthode univariée (cf III.3.2), avec une attention particulière portée sur l'impact du flux sur le colmatage. Elle est ensuite effectuée par une analyse multivariée (cf III.3.3). L'étude des différences que l'on peut obtenir en analysant l'impact de chaque variable opératoire prise de façon isolée sur le colmatage, ou en effectuant une analyse multivariée capable de dissocier les effets de chaque variable conclura ce chapitre.

Le calcul des variables opératoires utilisées dans cette étude est décrit dans la partie II. Ce sont le flux J (LMH), la concentration de boue MES ($g.L^{-1}$), l'âge des boues dynamique A_{Bd} (j), la charge massique C_M ($kg_{DCO}.kg_{MVS}^{-1}.j^{-1}$), la température T de la boue ($^{\circ}C$) et la quantité de chlorure ferrique ajoutée Fe ($kg_{Fe}.j^{-1}$).

III.3.1 Corrélations entre les variables opératoires : matrice de corrélation et ACP

La figure III.3.1 donne les variations de chacune des 6 variables.

Les plages de variations de chacune des variables sont les suivantes :

- Les flux moyens journaliers varient entre 15 et 35 LMH, suivant un cycle saisonnier ponctué de pics dûs aux épisodes pluvieux. Il est à noter que cette plage de variations est restreinte par rapport à celle du flux instantané (10-50 LMH). Le flux filtré par la CM4 est inférieur de 20 à 50% aux autres sur la grande majorité du suivi, à cause d'un obstacle dans la conduite d'entrée dans la CM4.
- La température de la boue (T) suit un cycle annuel. Ses variations sont très lentes et régulières entre 11 et 22°C

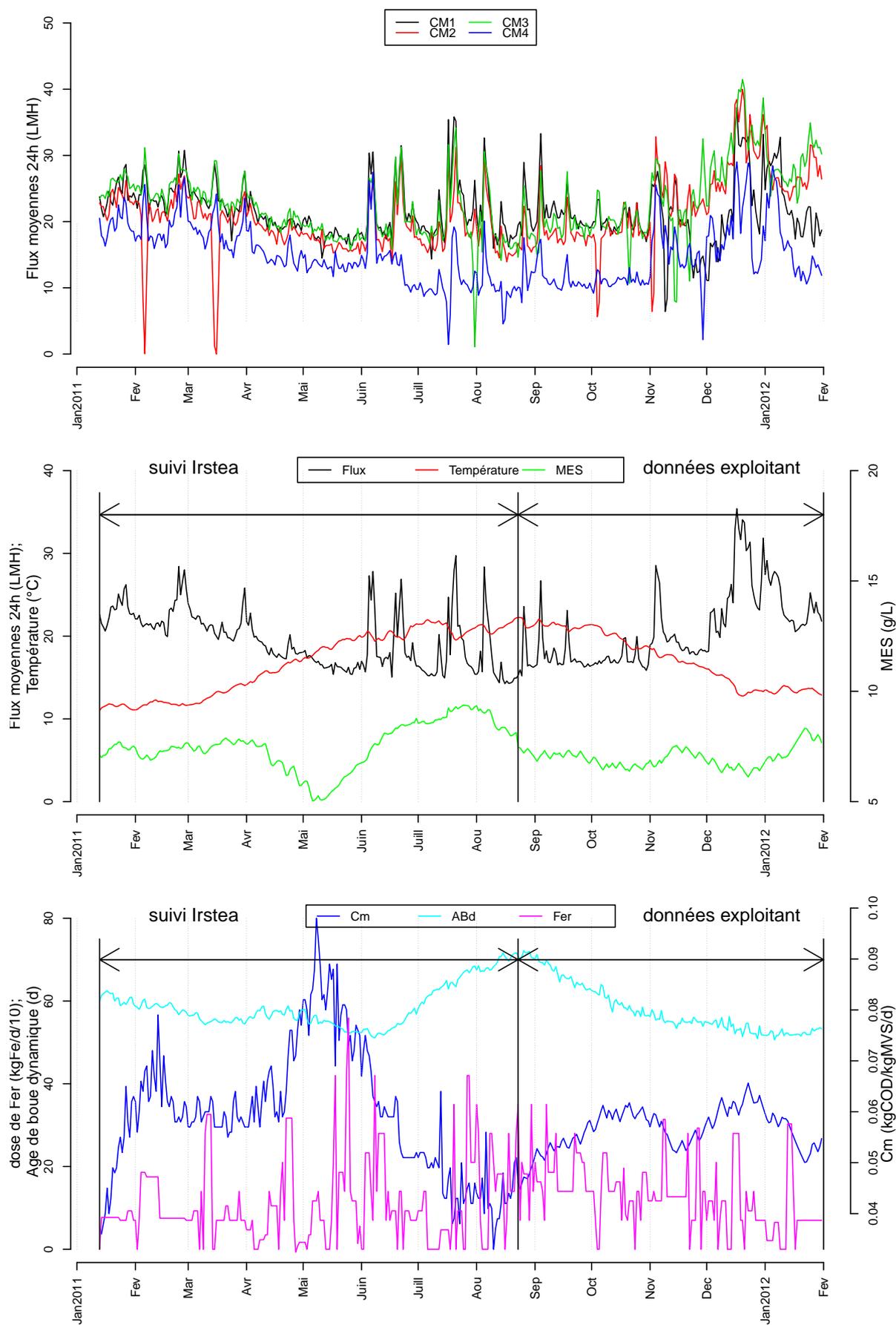


FIGURE III.3.1 – Variations des variables opératoires pendant le suivi du BRM. Les deux arrêts de la filtration sur la CM2 sont dus à des pannes du surpresseur d’aération grosses bulles de la CM2.

- L'âge de boues dynamique (A_{Bd}) présente des évolutions lentes (tendances sur plusieurs mois) entre 50 et 72j. Il s'agit de valeurs élevées avec une plage de variations limitée par rapport au reste de la littérature (où les valeurs sont typiquement comprises entre 10 et 50 jours)
- La charge massique (C_M) varie entre 0.033 et 0.096 $kgDCO.kgMVS^{-1}.j^{-1}$, les cinétiques de variations sont rapides (cycles hebdomadaires), et pondérées par un cycle saisonnier plus lent
- La concentration en MES présente des variations lentes (tendances sur plusieurs mois) entre 5.3 et 9.3 $g.L^{-1}$. Ces variations ont été provoquées en modulant l'extraction de boue suivant un protocole défini pour l'étude des transferts d' O_2 (cf partie II).
- La quantité de $FeCl_3$ injectée présente des variations rapides pendant tout le suivi (entre 0 et 50 $kgFe.j^{-1}$). Ces instabilités sont en majorité dues aux désamorçages/réamorçages réguliers des pompes d'injection. A cela vient s'ajouter un cycle saisonnier, à la définition de niveaux de rejets de phosphates plus sévères en période d'étiage (niveau des cours d'eau récepteurs bas).

Le pH, qui variait pendant le suivi entre 7.0 et 7.7, avec une valeur moyenne de 7.3 et un écart-type de 0.13, ne sera pas pris en compte dans le reste de l'étude, sa plage de variations étant jugée trop faible.

Les coefficients de corrélation de Spearman entre chaque variable opératoire prise deux à deux sont donnés dans le tableau III.3.1. Certaines corrélations sont dues à des liens directs de cause à effet entre les variables (MES , A_B et C_M). D'autres sont dues à des cycles saisonniers simultanés (J et T°) ou fortuites (A_B et T°). Cela indique que l'interprétation des corrélations entre une de ces variables et les indicateurs du colmatage sera biaisé par l'effet des autres. La quantité de Fer injectée semble quand à elle indépendante de toutes les autres, alors que l'âge des boues est lié statistiquement à toutes les autres variables.

TABLE III.3.1 – Matrice des corrélations de Spearman entre les variables opératoires

	Flux	Température	MES	C_M	A_{Bd}	Fer
Température	-0.71	1				
MES	-0.033	0.15	1			
C_M	0.10	-0.34	-0.68	1		
A_{Bd}	-0.37	0.45	0.28	-0.49	1	
Fer	-0.23	0.22	-0.12	-0.036	0.18	1

En complément de ces données, une ACP réalisée sur ces variables fait ressortir deux sources de variabilité principales (figure III.3.2) : une comprenant MES et charge massique et dans une moindre mesure l'âge de boue, et une dirigée par le cycle saisonnier (principalement flux, fer et température). Cette représentation souligne le fait que l'âge de boue calculé de façon dynamique (cf partie II) apporte une information différente et en partie décorrélée des MES et de la charge massique.

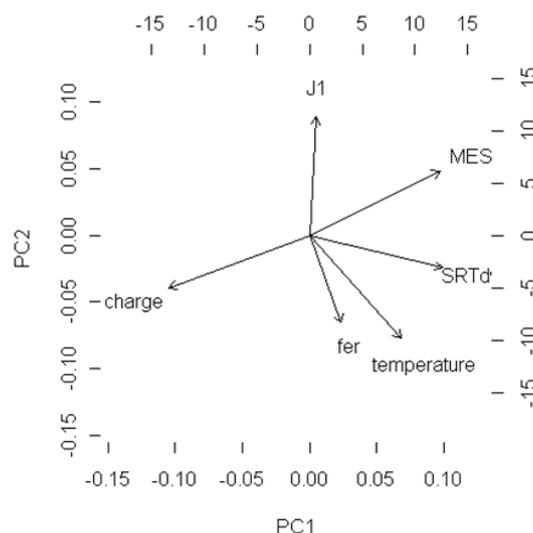


FIGURE III.3.2 – Projection des variables d'entrée sur les deux premières composantes de l'ACP (CM1). 64% de la variance globale sont représentés par les deux premières composantes.

III.3.2 Analyse univariée

Nous analyserons ici les coefficients de Spearman entre les indicateurs du colmatage et les variables opératoires.

III.3.2.1 Relations entre variables opératoires et indicateurs du colmatage

Chaque graphe de la figure III.3.3 représente les coefficients de corrélation de Spearman entre dPE, iPE, iBW et iLM et les autres variables (indicateurs du colmatage et variables opératoires). Ils ont été calculés sur les moyennes journalières de toutes ces variables sur les 384 jours du suivi, sauf pour la CM4 où seuls les 337 premiers jours ont été pris en compte, le calcul de perméabilité n'étant pas valide après.

On peut émettre deux remarques générales concernant ces coefficients de corrélation :

- La grande majorité des coefficients n'atteint pas 0.3 en valeur absolue,
- Les coefficients de corrélation entre un indicateur du colmatage et n'importe quelle variable diffèrent suivant la CM considérée.

Ce dernier constat est surprenant car les caractéristiques des boues d'entrée, l'appareillage ainsi que la configuration des CM sont identiques. Les différences entre les membranes de chaque CM résident dans leur historique (lavages de régénération, incidents...), les détails des variations de flux, de probables légères différences dans le taux d'aération (même si les surpresseurs ainsi que leur consommation électrique sont les mêmes).

Cela indique que dans des conditions très proches, le colmatage peut avoir des cinétiques et des causes différentes.

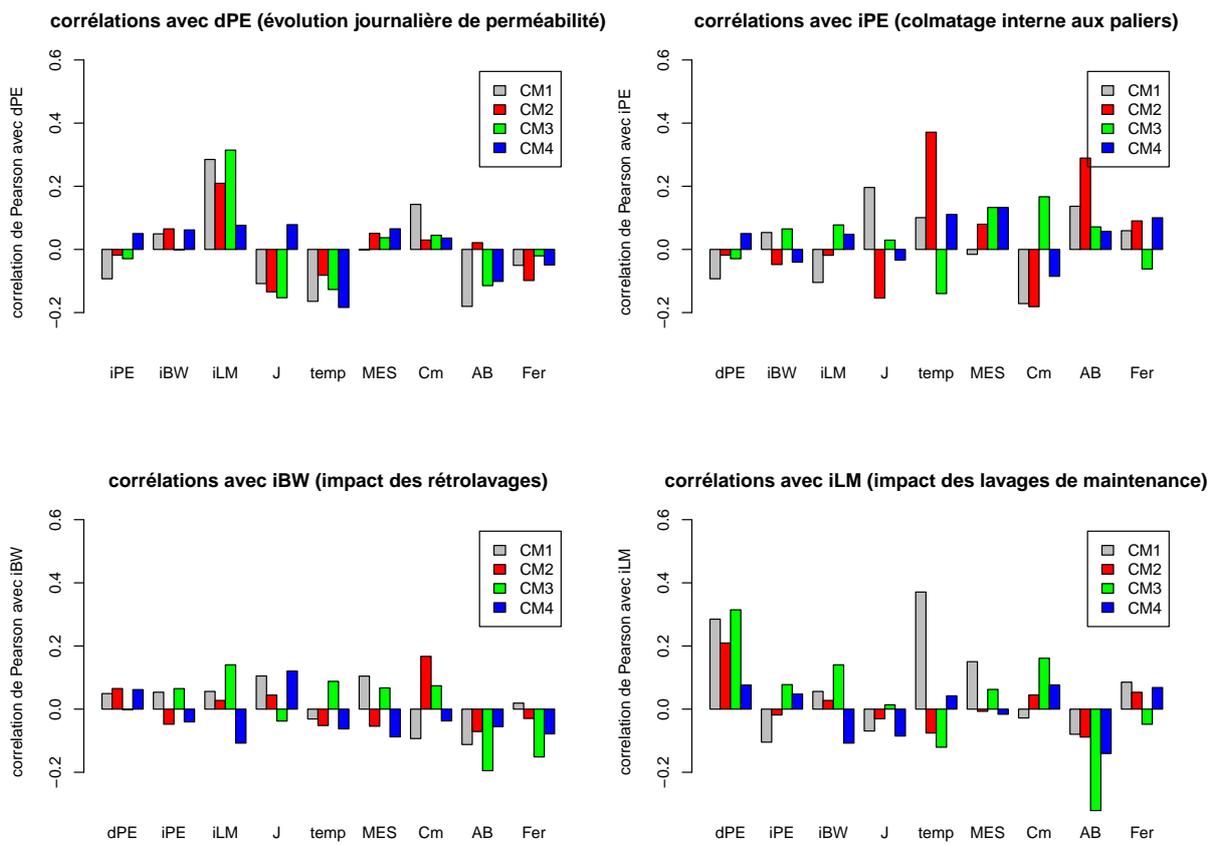


FIGURE III.3.3 – Coefficients de corrélation de Spearman entre dPE (en haut à gauche), iPE (en haut à droite), iBW (en bas à gauche) et iLM (en bas à droite) et les autres variables (indicateurs du colmatage et variables opératoires)

Evolution long terme de la perméabilité (dPE) : La variable qui semble la plus corrélée avec dPE est la température, suivie de près par le flux. Cette corrélation avec le flux dans la CM4 est opposée aux autres CM. Or la CM4 présente des flux moyens journaliers inférieur de 5 à 10 LMH aux autres CM. Ce résultat suggère que l'impact du flux sur le colmatage n'est pas uniforme, mais présente un seuil (autour de 20LMH) au delà duquel le flux aggrave le colmatage (cf III.3.2.2).

Vient ensuite A_{Bd} . L'âge de boues et la température sont connus pour influencer les communautés microbiennes, la fraction active de la boue, la teneur en exopolymères des floccs, la taille de floccs, la teneur et la nature des PMS. Cependant, le sens dans lequel il agit n'est pas clair, et dépend des études. C_M , la dose de fer injectée et la concentration en MES sont moins corrélés avec dPE .

Colmatage court terme (iPE) : La corrélation entre le flux moyen jour et iPE est positive dans CM1 très faible dans CM3 et 4, et négative dans CM2. Ce résultat, assez différent de ce que suggèrent les théories, provient probablement d'un couplage limité entre les flux instantanés avec les flux moyens journaliers, ou alors il montre que le flux dit critique n'est pas (ou peu) atteint, en particulier dans les CM2, 3 et 4.

Par contre, iPE semble plus corrélé avec MES , et avec A_B , C_M et T° hormis dans la CM3. Ces corrélations suggèrent que le colmatage court terme dépend principalement de la concentration mais aussi de l'état de la biomasse, donc que ce colmatage est bien relié à la phase particulaire des boues. Cependant, il faut garder en tête la forte corrélation inverse entre C_m et MES , ce qui peut fausser ce raisonnement.

Réversibilité par rétrolavage (iBW) : La figure III.3.3 (en bas à gauche) montre que les corrélations entre iBW et les variables opératoires sont en général plus faibles, et très dispersées suivant la CM considérée (hormis pour A_{Bd}). Cela peut susciter plusieurs hypothèses :

Soit le calcul de iBW est inadapté à la réelle réversibilité du colmatage court terme, soit les valeurs de cette efficacité sont trop faibles par rapport à la précision de sa mesure (cf partie III.1.3.3), soit les variables opératoires choisies ne sont pas pertinentes.

Réversibilité par lavages de maintenance iLM : La seule variable qui semble avoir un effet clair sur l'effet des lavages de maintenance est A_{Bd} . Cela indique qu'à des âges de boues en haut de notre gamme de variation (70j), le colmatage est moins réversible chimiquement. La dispersion des coefficients concernant les autres variables opératoires, comme pour iBW , montre que la méthode adoptée n'est probablement pas adaptée pour décrire la réversibilité du colmatage long terme.

Corrélations entre le colmatage court terme et le colmatage long terme : Les trois colonnes de gauche de chacun des graphes de la figure III.3.3 montrent les corrélations entre les indicateurs de colmatage. iLM est mécaniquement corrélé avec dPE car $iLM = dPE$ chaque jour où il y a lavage de maintenance.

Les autres corrélations entre indicateurs du colmatage sont moins visibles. Une étude plus approfondie des relations entre les mécanismes court terme et long terme est effectuée dans la partie [III.4.2](#)

III.3.2.2 Influence du flux sur le colmatage

III.3.2.2.1 Tentative de mise en évidence du flux critique

L'utilisation des données issues directement du fonctionnement normal du BRM permet d'étudier de façon détournée (sans protocole de paliers de flux successifs) la présence d'un flux critique. On comparera d'abord les méthodes utilisées dans la littérature avec les données disponibles en fonctionnement normal du BRM, puis on présentera les résultats pour discuter de leur validité.

Méthodologie L'observation de nombreux paliers de flux, représentatifs de la gamme 10-50 LMH, permet de comparer le comportement de la filtration en fonction du flux. Dans cette partie l'indice *iPE* représenté en fonction du flux n'est pas sa moyenne jour, contrairement au reste du manuscrit. Nous prendrons en considération les pentes calculées sur chacun des paliers, pour avoir accès aux paliers de flux extrêmes (à partir de 10 LMH et jusqu'à 50LMH). Les paliers dont la durée est inférieure à 5 min et dont l'écart-type des résidus de la régression linéaire sur la perméabilité est supérieur à 3LMH/bar sont toutefois écartés.

Notre méthode présente l'avantage de reposer sur une grande quantité de paliers disponibles et présente des différences avec les méthodes de la littérature qu'il faut préciser :

- Dans la plupart des études menées avec des expériences de paliers de flux, la durée des paliers est fixe et supérieure à 10 minutes, alors que dans notre cas la durée des paliers exploitables est comprise entre 5 et 10 minutes.
- La hauteur des paliers (différence de flux entre un palier et le suivant) est fixe dans la littérature (entre 3 et 8 LMH), alors que dans notre cas, elle est aléatoire (entre 0 et 40 LMH)
- Les paliers successifs sont soit séparés par des relaxations, des rétrolavages, soit non séparés dans la littérature. Dans notre cas, les vitesses de colmatage sur tous les paliers d'une période donnée sont comparées, sans qu'ils se succèdent forcément.

Résultats Les valeurs de *iPE* sont faibles et très dispersées autour de zéro (le coefficient de variation $\frac{\text{moyenne}}{\text{écart-type}}$ est de l'ordre de 1000%). Pour obtenir une représentation graphique interprétable, des boîtes à moustaches sont utilisées. La figure [III.3.4](#) montre les valeurs de l'indicateur *iPE* en fonction du flux. Les boîtes à moustaches permettent de visualiser la répartition des données tandis que les courbes pleines représentent les moyennes pour chaque intervalle de flux. Une première tentative est réalisée en prenant en compte toute l'année 2011. Une sélection des paliers est effectuée au préalable avec comme critères une durée supérieure à 5 minutes, et un écart-type des résidus de la régression linéaire sur la perméabilité inférieur à 3 LMH/bar.

On constate que sur les CM 1, 3 et 4, la relation entre *iPE* et le flux est difficile à déceler. On en conclut

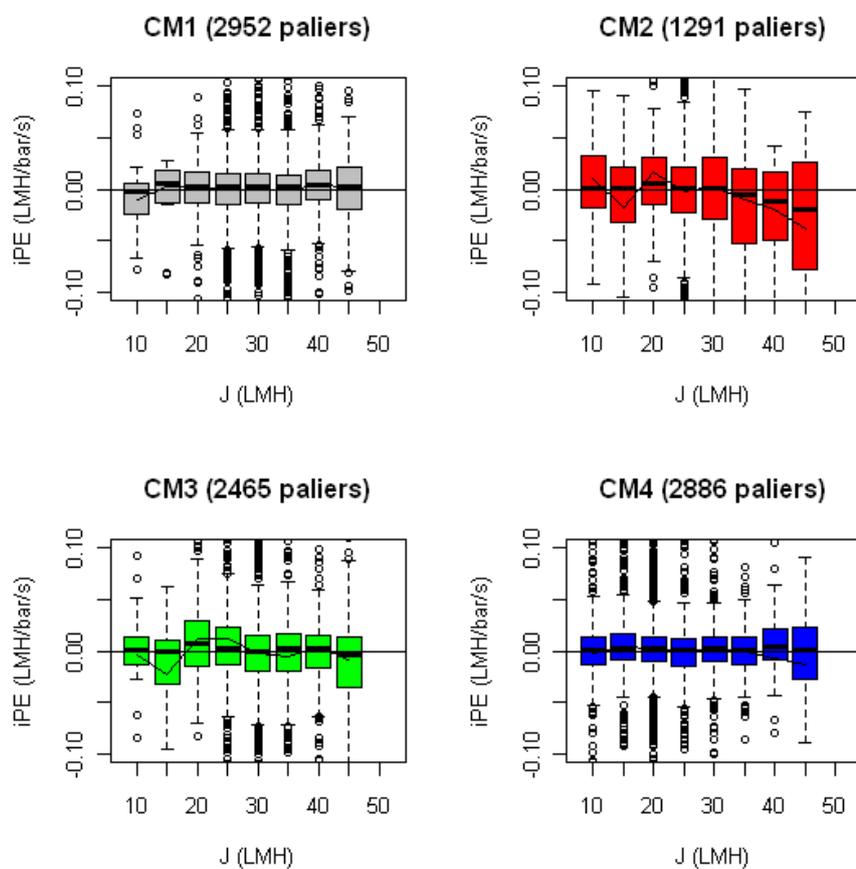


FIGURE III.3.4 – Vitesse de colmatage instantanée en fonction du flux sur tous les paliers éligibles

que sur ces trois cellules membranaires, le flux critique est supérieur à 50 LMH. Dans la CM2, le colmatage semble même négatif au delà de 30 LMH, ce qui contredit les résultats de la littérature à ce sujet.

En considérant que le flux critique varie en fonction du temps et de l'état de colmatage des membranes, on peut tenter de déceler des flux critiques en isolant des périodes de hausse, de baisse, ou de stabilité de la perméabilité sur le long terme. Cependant, si l'on compare les résultats obtenus sur ces deux types de tendances long terme, on peut difficilement distinguer des comportements particuliers à chaque cellule membranaire : On n'observe pas de comportement particulier, comme l'apparition d'un flux critique en période de colmatage. Chaque cellule membranaire a un comportement particulier, difficile à part cas exceptionnel à relier avec des mécanismes connus dans la littérature.

De plus, le grand nombre de données acquises ne permet pas de s'affranchir de l'imprécision des mesures et des calculs de perméabilité.

Le flux critique, s'il existe, est donc en général supérieur à 50 LMH. Ce résultat peut être rapporté aux forts débits d'aération grosses bulles par rapport au volume des CM, qui est plus élevé que les valeurs trouvées dans la littérature (cf tableau I.3.1).

Discussion D'après [Tiranuntakul et al. \(2011\)](#) qui ont testé l'impact de différents types d'expériences de paliers de flux sur le flux critique, la durée des paliers n'a pas d'influence significative sur le flux critique observé. La diversité des durées des paliers observés sur le BRM suivi ne devrait donc pas affecter la détermination du flux critique. Cependant, d'après la même étude, la hauteur des paliers a une influence négative sur le flux critique déterminé. D'après ce résultat, nos flux critiques devraient être sous-estimés car souvent des paliers de flux très différents se succèdent.

Un autre argument en faveur d'une sous-estimation du flux critique par notre méthode provient de l'étude de [Yigit et al. \(2009\)](#) sur l'influence des rétrolavages sur la filtration. Un des résultats est l'augmentation du flux critique quand des rétrolavages sont effectués. Le flux critique est stable quand le temps entre chaque rétrolavages augmente de 5 à 10 min, puis il diminue entre 10 et 60 min. Un temps entre deux rétrolavages de 10 min, comme celui pratiqué sur l'installation suivie serait donc satisfaisant pour éviter d'abaisser la valeur du flux critique. Cependant, l'accompagnement de ces rétrolavages par de nombreuses périodes de relaxation laisse penser que le flux critique déterminé sera sous-estimé.

La méthode proposée semble donc moins performante que les tests de paliers de flux effectués dans la littérature, mais le grand nombre de données peut contrebalancer cette lacune. On peut également s'attendre à ce que la valeur trouvée de 50 LMH soit une sous-estimation du flux critique, ce qui l'éloigne encore plus des résultats de la littérature.

III.3.2.2.2 Influence du flux sur les évolutions long-terme de la perméabilité (dPE)

Les coefficients de corrélation de Spearman entre le flux moyen journalier et la dérive journalière de perméabilité pour les CM 1, 2, 3 et 4 sont respectivement de -0,11, -0,13, -0,15 et -0,10. Les p -values associées sont respectivement 0,03, 0,008, 0,002 et 0,04 : toutes inférieures à 0,05. Ces corrélations (surtout pour CM1 et 4) ont donc au moins 95% de chances d'être significatives.

Si on trace, toujours à l'aide de boîtes à moustaches, la dérive journalière de perméabilité (dPE) en fonction du flux moyen jour, on observe une tendance claire sur les quatre cellules membranaires (figure III.3.5).

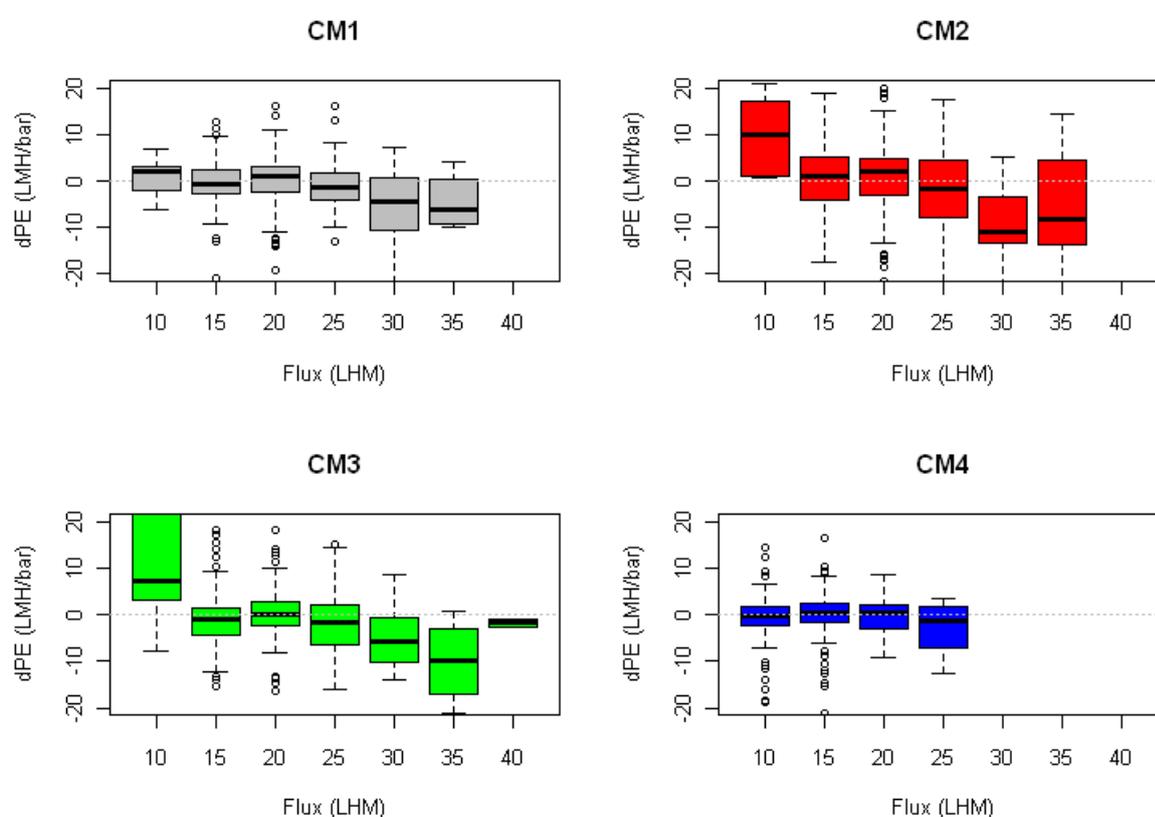


FIGURE III.3.5 – Dérive journalière de perméabilité en fonction du flux moyen journalier.

La valeur médiane de dPE est systématiquement négative pour une valeur de flux moyen jour supérieure à 25 LMH. Au contraire, elles sont toujours nulles ou positives pour des valeurs de flux inférieures à 20 LMH.

Le seuil de 25 LMH n'est pas exactement le flux critique puisque toutes les valeurs confrontées sont des moyennes journalières, mais on observe tout de même un infléchissement vers le bas autour de 25 LMH. On peut donc en déduire que la perméabilité peut être stable en dessous de 25 LMH dans les conditions actuelles d'exploitation. Au delà de 25 LMH, une baisse de la perméabilité doit être compensée par un lavage de maintenance, ou encore par des lavages de régénération.

La faible corrélation pour CM4 est due en partie à la plus faible plage de variation du flux moyen jour (toujours inférieur à 30 LMH) et de la perméabilité. La seule période pendant laquelle le flux moyen jour excède 25 LMH est décembre 2011-janvier 2012, période pendant laquelle la perméabilité n'a pas pu être calculée de façon fiable.

Cependant, les coefficients de corrélation sont faibles, ce qui laisse un poids déterminant aux autres variables que le flux. La partie suivante analyse par une approche multivariée l'influence des variables opératoires sur le colmatage.

III.3.3 Analyse multivariée

III.3.3.1 Relations entre conditions opératoires et indicateur long terme

Les coefficients de régression obtenus par la PLS entre les variables opératoires et dPE nous donnent une information sensiblement différente de celle obtenue par approche univariée. Ces coefficients sont représentés sur la figure III.3.6.

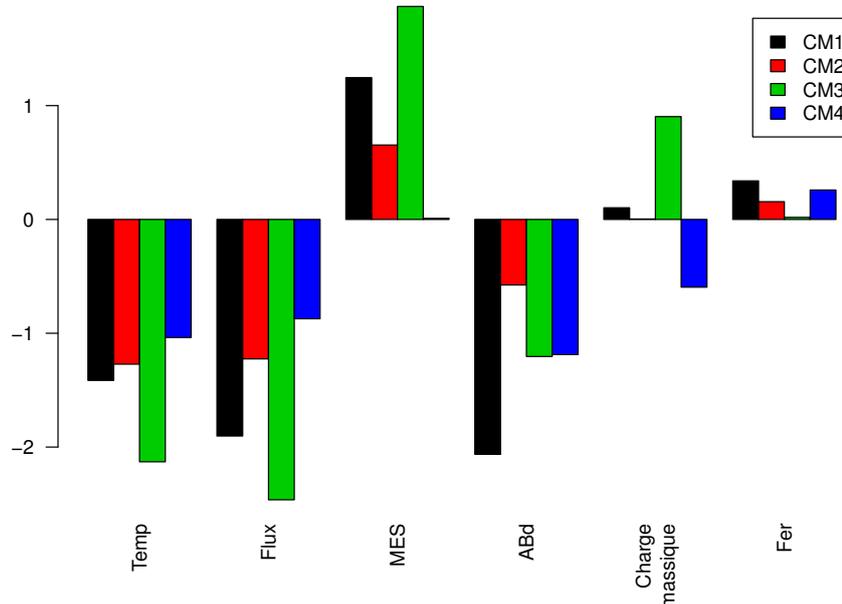


FIGURE III.3.6 – Coefficients de la régression multivariée entre les variables opératoires normalisées et centrées et dPE . Pour chaque variable, les quatre barres représentent les coefficients des modèles liés aux quatre CM.

Dans les quatre CM, les tendances les plus marquées (Flux, température) semblent unanimes qualitative-ment. Les tendances les moins fortes dépendent cependant de la CM considérée.

- Une augmentation de flux est corrélée à une diminution de perméabilité

- Une augmentation de la température est corrélée à une diminution de perméabilité
- Dans une moindre mesure (et avec des disparités selon la CM), les valeurs les plus élevées de A_B les moins élevées de la concentration en MES ont un impact négatif sur la perméabilité.
- Les corrélations entre la dérive de perméabilité et la charge massique semblent très faibles ici.
- De fortes quantités de fer injectées semblent avoir un effet positif bien que très faible sur la perméabilité, ce qui correspond à la littérature pour le fer. Pour ce qui est des MES, il n'y a pas de consensus dans la littérature.

III.3.3.2 Relations entre conditions opératoires et indicateurs court terme

Les mêmes régressions ont été effectuées sur les indicateurs du colmatage court terme. Les figures III.3.7 et III.3.8 présentent les paramètres obtenus par régression des indicateurs iBW et iPE sur les variables opératoires.

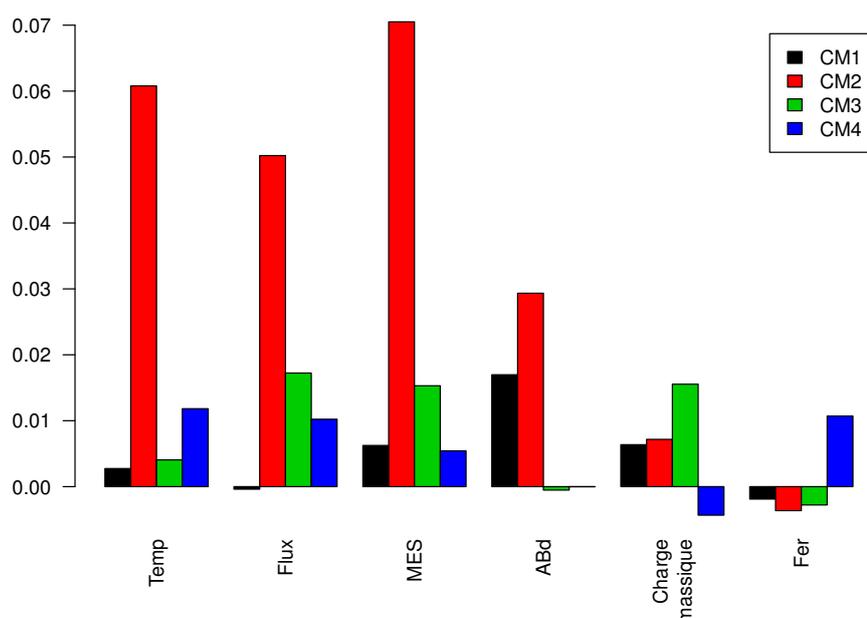


FIGURE III.3.7 – Coefficients de la régression multivariée entre les variables opératoires normalisées et centrées et iPE (indicateur de colmatage instantané)

Comme pour les tendances long terme mais avec des résultats qui semblent moins robustes, une augmentation du colmatage instantané est corrélée avec une augmentation du flux et de la température, et dans une moindre mesure de l'âge de boue. Comme pour les tendances long-terme, la dose de fer injectée et la charge massique semblent de moindre importance. Par contre concernant la concentration des boues, la tendance est inverse : de fortes concentrations de boue sont corrélées avec le colmatage instantané.

Concernant les corrélations avec l'indicateur d'efficacité des rétrolavages, l'hétérogénéité des résultats rend

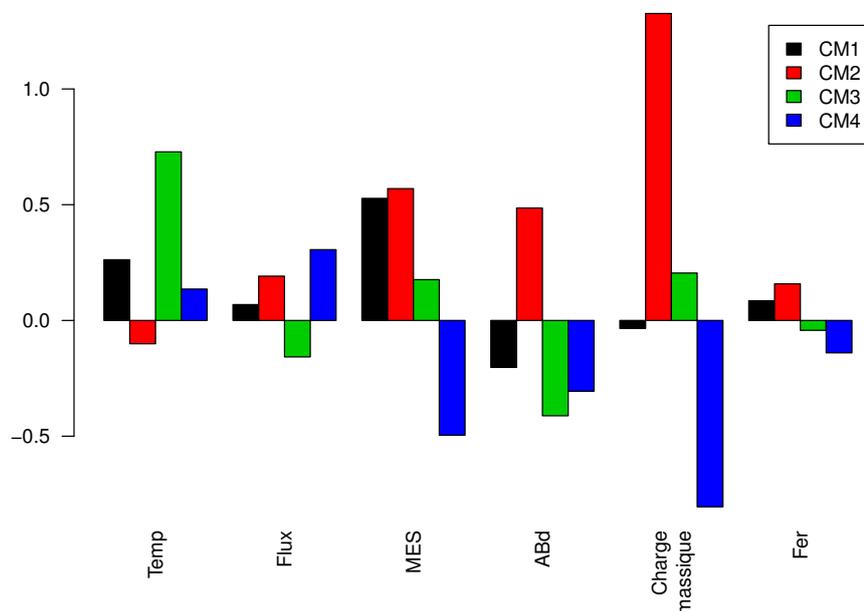


FIGURE III.3.8 – Coefficients normalisés de la régression multivariée entre les variables opératoires et iBW (indicateur d'efficacité des rétrolavages)

difficile toute conclusion. La disparité des résultats entre les différentes CM est plus importante que pour le colmatage long terme, aucune des variables n'agit dans le même sens pour les deux indicateurs et dans les quatre CMs. Des mécanismes locaux (prise en masse de faisceaux de fibres, répartition des grosses bulles...), qui perturbent la filtration sont probablement à l'origine de la dispersion des données, mais ils semblent avoir moins d'importance sur le colmatage à long terme.

III.3.4 Conclusions et discussion

III.3.4.1 Apports de la méthode multivariée par rapport à l'étude univariée

En comparant les résultats de la méthode multivariée avec ceux de la corrélation univariée entre dPE et les variables opératoires, on s'aperçoit d'abord que les différences sont importantes, ce qui confirme un apport de l'étude multivariée par rapport à l'étude des corrélations univariées. Même si l'impact négatif du flux et de la température sur la perméabilité est visible par les deux approches, mais leur pondération est différente. En effet, l'étude multivariée fait ressortir le flux comme légèrement plus déterminant que la température sur l'indicateur de colmatage long-terme dPE, à l'inverse de l'étude univariée. Ce constat est probablement lié à la corrélation entre flux et température, dont le biais est limité par l'étude multivariée.

L'utilisation d'une approche multivariée apporte un regard nouveau sur les liens entre variables opératoires et colmatage. Son intérêt est d'autant plus grand que les plages de fluctuation des variables sont faibles

comparées à celles des études pilotes. Il est donc important de limiter les biais issus de corrélations entre variables d'entrée dans l'exploitation des données.

III.3.4.2 Conclusion sur les effets des variables opératoires sur le colmatage

Cette partie synthétise les principales tendances relevées dans l'analyse multivariée concernant l'impact de chaque variable opératoire sur le colmatage. Une confrontation avec les hypothèses de la littérature est effectuée. Pour faciliter la démarche, le raisonnement fait souvent appel à l'hypothèse selon laquelle le colmatage court terme serait plutôt d'origine particulière, et le colmatage long terme d'origine plutôt soluble, sans pour autant pouvoir être catégorique.

Effet du flux : Sans surprise, et en conformité avec les hypothèses et les modèles de la littérature (voir détails parties [I.3.1.1](#) et [I.4.1.1.3](#)), les flux élevés favorisent une diminution de la dérive journalière de perméabilité et le colmatage long terme : dans l'étude univariée, on constate que les flux moyens journaliers supérieurs à 25 LMH favorisent le colmatage, et inversement. Dans notre cas, les faibles charges organiques et les gammes de variations relativement restreintes des autres variables (A_B en particulier) augmentent le poids des variations de flux sur le colmatage. Cela s'explique par l'augmentation conjointe du flux de matières colmatantes qui sont retenues par la membrane.

En s'intéressant aux mécanismes court terme, le flux a aussi une influence positive sur le colmatage instantané, et sur sa réversibilité. La pondération de ces deux phénomènes dépend de la cellule membranaire étudiée. La CM 4 est celle où le rapport entre les mécanismes court terme semble se rapprocher le plus en faveur de la réversibilité. C'est aussi celle où les plus forts flux semblent moins favoriser le colmatage long terme. Ce constat, rassurant, est cependant difficile à observer sur les autres CM. Même si le flux a un impact incontestable sur le colmatage des membranes, les phénomènes en jeu ne sont pas totalement compris. Pour l'étude de son impact sur le court terme, la modélisation déterministe a fait ses preuves (cf partie [I.4.1](#)). Elle permettrait de distinguer quel effet, entre le blocage des pores par des particules ou leur obstruction progressive par des substances solubles est le plus à même de décrire fidèlement le colmatage. Pour ce qui est du colmatage long terme, qui est la résultante d'une succession de colmatages court terme et d'augmentations de perméabilité dues aux lavages et aux relaxations, les modèles déterministes semblent plus difficiles à adapter, et en particulier car les colmatants ne sont pas clairement identifiés.

Cependant, dans notre étude, le fait d'avoir une corrélation positive entre le flux et le colmatage ne nous permet pas de conclure sur la(es) nature(s) du colmatage que le flux entraîne.

Effet de la température : D'après l'étude bibliographique effectuée (cf [I.3.2](#)), la température peut avoir des impacts variés sur l'état de la biomasse et sur son pouvoir colmatant. En effet, des températures élevées ont tendance à accélérer les réactions biologiques. Cette accélération porte sur la dégradation et l'hydrolyse de

substances potentiellement colmatantes, mais aussi sur leur production (PMS). De plus, la température agit sur d'autres aspects de la biomasse, comme sa composition, et sur la rhéologie des boues. La pondération de chacune de ces composantes semble difficile à déterminer, sans une étude approfondie de l'activité et de la composition des boues.

Dans notre cas, les indicateurs de colmatage court terme indiquent que les plus hautes températures favorisent le colmatage court terme, mais aussi sa réversibilité. En théorie, une augmentation de la température fait diminuer la viscosité des boues, donc pourrait plutôt rendre les rétrolavages plus efficaces (dispersion des particules colmatantes plus aisée), mais aussi limiter le colmatage des membranes (pour la même raison). L'effet observé de la température dans le BRM ne résulte donc probablement pas uniquement de son impact sur la viscosité. D'autres raisons qui ont attiré à la modification de la composition des boues en raison des variations de température doivent favoriser le dépôt de particules (taille, composition de la surface...). L'effet sur le long terme est quant à lui négatif. Cela indiquerait que la concentration en substances colmatantes est plus élevée à fortes températures. Ici aussi, on peut supposer que la température a un effet sur le colmatage qui passe par l'intermédiaire de variables liées à la composition des boues.

Il faut cependant rappeler que la température et le flux sont deux variables corrélées, ce qui introduit un biais dans ces interprétations.

Effet de la concentration en MES : La concentration en MES (qui varie entre 5 et 9 $g.L^{-1}$) semble positivement corrélée à l'évolution de la perméabilité journalière. Alors qu'une augmentation de MES conduit à un colmatage instantané plus rapide. Ce résultat, loin d'être intuitif, peut cependant s'expliquer sur une base bibliographique par plusieurs hypothèses : les fortes concentrations en biomasse peuvent avoir un effet positif sur la dégradation du surnageant, et donc la sur réelle cause du colmatage long terme que seraient les produits solubles. L'effet sur le colmatage court-terme signifierait que le flux de particule confronté à la membrane provoque un colmatage d'autant plus fort que MES est élevé. Un tel dépôt de gâteau, sans influencer directement le colmatage long terme car réversible par rétrolavages, pourrait au contraire protéger la membrane du colmatage long terme.

Dans la littérature, les études mettant en valeur une corrélation (parfois très claire) entre MES et colmatage ont aussi des gammes de variation de la concentration de boue plus étendues (jusqu'à 15 ou 20 $g.L^{-1}$ parfois).

Effet de l'âge des boues : La gamme de variation de l'âge de boue dans notre étude (entre 50 et 70 jours) est différente de celle de la majorité des études (souvent entre 10 et 30, et rarement au delà de 50 jours). Dans la littérature, la tendance est que des âges de boue augmentant entre 10 et 30 jours provoquent une diminution du colmatage, souvent assimilée à une diminution de la production de PMS. Pour des âges de boue plus élevés, cet effet est moins marqué, voire inversé. Dans notre cas, il n'est donc pas surprenant de constater une influence positive de l'augmentation de l'âge de boue sur le colmatage.

Cela va dans le sens des hypothèses selon lesquelles dans cette gamme d'âge de boues, les floccs seraient plus petits, et l'augmentation de la production de BAP issus du décès des bactéries prendrait un poids plus important que la diminution de la concentration des UAP. En ce qui concerne les effets sur les mécanismes court terme, l'âge de boue est la seule variable qui a tendance à augmenter le colmatage tout en diminuant sa réversibilité. Cela va dans le sens d'une augmentation de la propension des floccs à coller à la paroi, de par leur taille et la nature des EPS qui les recouvrent.

Effets de la charge massique Les différentes cellules de filtration n'ont pas le même comportement face aux variations de C_M . Dans les CM 4 et a minima dans la CM 1, les plus fortes valeurs de la charge massique limitent la réversibilité du colmatage court terme sans en augmenter le dépôt, alors que sur la CM 2 et 3, une augmentation du colmatage court terme et de sa réversibilité est observée. En considérant la forte corrélation négative existante entre C_m et MES , on pourrait penser que ces deux variables agissent dans un sens opposé et que leur impact se compense. Mais ce n'est pas le cas, et le fait de tirer cette conclusion d'une étude multivariée rend normalement ce biais minime. Dans la bibliographie, l'augmentation de la charge massique semblait induire une diminution du colmatage (plutôt caractérisé par des expériences court terme) sur des installations pilotes. Ici l'effet de la charge massique sur le colmatage long terme est très faible (à part sur CM3).

Effets de la quantité de fer ajoutée Alors qu'elle est souvent pointée dans la littérature pour sa capacité à limiter le colmatage, dans notre étude sur le BRM suivi, Il n'a pas été observé de corrélation pour les débits de fer injectés. Pourtant les concentrations appliquées sont comparables à celles utilisées dans les études qui mettent en avant une amélioration de la filtrabilité des boues après injection de fer.

Chapitre III.4

Modélisation par PLS des évolutions long terme de la perméabilité

III.4.1 Introduction

La prédiction du colmatage des membranes est un enjeu déterminant dans l'optimisation de la conduite du procédé. En effet elle permettrait de planifier les besoins en lavages de régénération, et de connaître les tendances (hausse, stabilité, baisse) d'évolution de la perméabilité par des tests numériques de scénarios sur les différentes variables opératoires (ici A_B , C_M , Température, Flux, MES , et injection de fer). Dans le cas où l'opérateur peut agir sur une de ces variables, il pourrait alors favoriser le maintien d'une perméabilité optimale.

Dans la littérature scientifique, les modèles déterministes, souvent complexes, deviennent de plus en plus difficiles (voire impossible en l'état actuel des connaissances) à caler lorsque la taille des installations et l'échelle de temps considérée augmentent. D'un point de vue plus appliqué, la gestion actuelle des procédés passe par des stratégies (déclenchement des lavages des membranes...) de limitation du colmatage en se basant essentiellement sur le volume filtré, ou le temps de fonctionnement, sans prendre en considération les caractéristiques et le pouvoir colmatant des boues. Le point de vue intermédiaire, qui prendrait en compte également les caractéristiques des boues, mais en restant assez simple pour être applicable à de larges installations et sur de longues échelles de temps, est très peu représenté dans la littérature.

Ce chapitre présente les résultats de deux méthodes de modélisation différentes conçues dans cette optique (deuxième et troisième ligne de la figure [III.4.1](#)).

Les deux premières approches présentées sur la figure [III.4.1](#) ont comme intermédiaire entre les variables opératoires et le colmatage long terme les indicateurs court terme du colmatage. L'objectif est d'évaluer l'hypothèse selon laquelle les évolutions long terme peuvent être prédites comme une résultante des dérivées court terme. La question sous-jacente concerne la validité de modèles conçus pour le court terme quand il s'agit de prévoir des évolutions sur le long terme. Nous avons vu dans la partie [III.3.3.2](#) que les coefficients d'une régression entre les variables opératoires et les indicateurs court terme du colmatage sont dispersés.

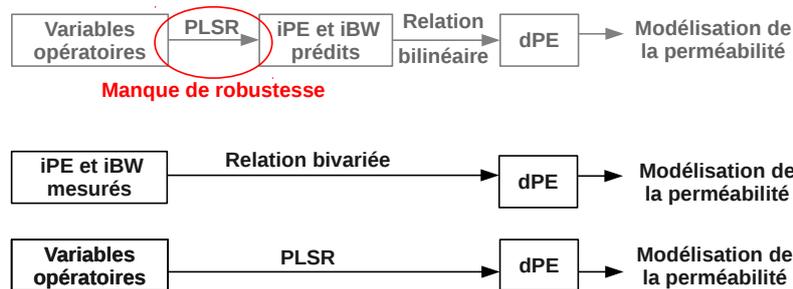


FIGURE III.4.1 – Les trois approches envisagées pour modéliser la perméabilité. Seules la deuxième et la troisième sont présentées dans ce manuscrit.

Des tentatives de modélisation des indicateurs court terme du colmatage en fonction des variables opératoires ont été effectuées mais ne sont pas présentées dans ce manuscrit, car les variables de sortie (iPE et iBW) mesurées et modélisées sont très dispersées. De plus la corrélation entre ces variables (iPE et iBW) modélisées et mesurées sont très faibles, ce qui a conduit à l'abandon de ce type de modélisation. Uniquement les résultats de la deuxième approche seront présentés ici, méthode qui fait directement le lien entre les deux indicateurs mesurés du colmatage court terme et le colmatage long terme.

La troisième approche présentée sur la figure III.4.1 utilise les coefficients issus de la même analyse multivariée que dans le chapitre précédent mais obtenus sur des périodes de calage restreintes (différentes durées sont testées). Ces coefficients sont utilisés pour prédire la perméabilité sur des périodes de validation de l'ordre d'un ou deux mois directement à partir des mesures des variables opératoires.

Le chapitre se conclut sur la discussion des conditions favorisant la validité de ce type de modèle, et sur des perspectives d'applications et d'améliorations de la méthode.

III.4.2 Prédiction du colmatage long terme grâce aux indicateurs court terme

Dans le cas d'une approche déterministe, on pourrait faire l'hypothèse selon laquelle la dérive journalière de la perméabilité serait égale à l'accumulation des dérives court-terme sur chaque palier de filtration, ajoutée à la somme des impacts de rétrolavages. Cela se traduirait (en prenant en compte les changements d'unité) par l'équation III.4.1.

$$dPE = n_{BW} * iBW - t_{filt} * iPE \quad (III.4.1)$$

où

– n_{BW} est le nombre de rétrolavages par jour (proche de $6 * 24 = 144$)

– t_{filtr} est le temps de filtration (s), de l'ordre de $3600 * 20 = 7400$

Cependant, la régression bivariée entre les indicateurs court terme du colmatage et l'indicateur d'évolution long terme aboutit sur les coefficients présentés dans le tableau III.4.1.

TABLE III.4.1 – Paramètres de la régression bivariée entre dPE et (iPE,iBW)

CM	ordonnée à l'origine	iPE	iBW
1	0.061	-18.3	0.11
2	-0.035	1.45	0.074
3	0.48	-16.6	-0.0075
4	-0.38	-0.113	0.37

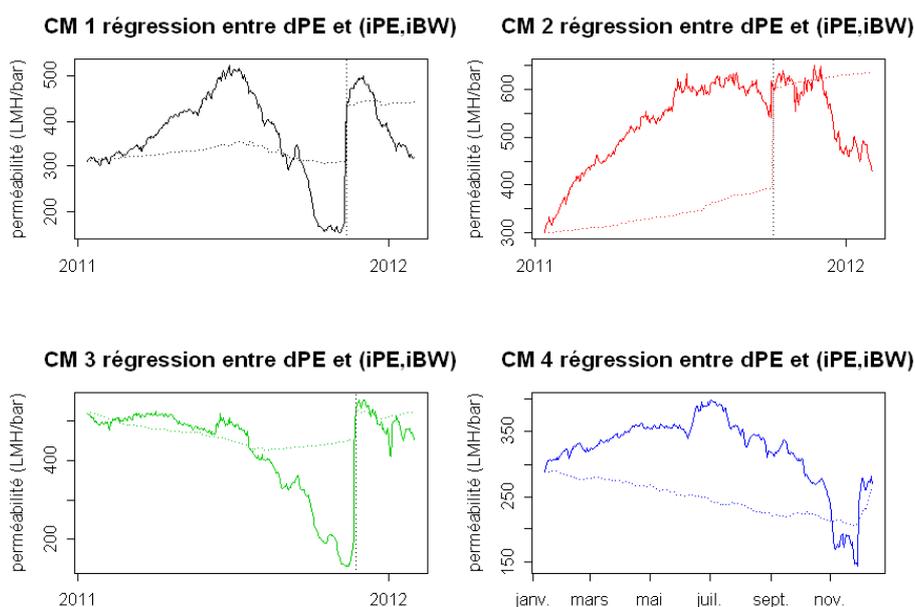


FIGURE III.4.2 – Perméabilité prédite par régression bivariée entre le couple (iBW , iPE) et dPE . Les pointillés verticaux représentent la réinitialisation du modèle le jour des lavages de régénération

Dans un premier temps, la corrélation entre le colmatage instantané et dPE a toutefois tendance à être négative, et l'indicateur de réversibilité a tendance à être corrélé positivement à dPE, ce qui est cohérent. On remarque cependant que les valeurs de ces coefficients valeurs sont très différentes des valeurs attendues de l'équation III.4.1. On remarque aussi une grande disparité dans les signes et dans les valeurs des paramètres suivant la CM considérée. On peut relier cela à la dispersion des valeurs de ces deux indicateurs, et aux différences de comportement des colmatages court terme et long terme suivant la CM considérée.

Une tentative de prédiction des évolutions long terme de la perméabilité sur cette base (iPE, iBW) nous montre qu'ils sont inadaptés (figure III.4.2). En effet, les tendances observées ne sont pas du tout reproduites par les modèles.

La principale conclusion que l'on peut tirer de ce résultat est que les évolutions long terme du colmatage ne sont probablement pas une résultante des évolutions sur le court terme, mais doivent être liés à d'autres mécanismes. Par extrapolation, on peut penser que les modèles déterministes, souvent calés sur de courtes périodes et décrivant principalement des phénomènes de dépôt de gâteau, sans rentrer dans les détails du colmatage long terme, ne seraient pas appropriés pour décrire les évolutions long terme.

III.4.3 Prédiction de l'indicateur long terme grâce aux variables opératoires

La PLS est utilisée pour obtenir les coefficients d'une régression multivariée entre les six variables opératoires et dPE . La méthode de prédiction a été testée en calant le modèle sur une période qui commence au début du suivi (janvier 2011), et dont la durée varie entre 130 et 230j. La perméabilité prédite sur une période de validation équivalent à toute le reste de la durée du suivi est alors calculée. Les résultats obtenus pour les différentes durées de la période de calage sont représentés sur la figure III.4.3.

Les erreurs obtenues entre la perméabilité prédite et la perméabilité mesurée à la fin de la période de validation sont représentées sur la figure III.4.4 en fonction de la durée du calage. Les données représentées ici sont obtenues avec une période de calage d'une durée variable, et qui se termine toujours le même jour (1 septembre 2011).

III.4.3.1 Influence de la durée du calage

On constate sur la figure III.4.4 que l'erreur obtenue diminue lorsque la durée du calage augmente, ce qui montre que l'apprentissage du modèle renforce sa capacité prédictive. La stabilisation de l'erreur en fonction de cette durée de calage a lieu vers 100 jours, mais pour obtenir le résultat le plus fiable possible, on peut recommander une durée de calage de plus de 150 jours.

Quand la période de calage est inférieure à la durée de stabilisation de l'erreur, il arrive qu'une augmentation de la durée du calage conduise à une détérioration de la qualité de la prédiction (figure III.4.3 : CM2 fin du calage entre juin et juillet, ou CM4, fin du calage entre juillet et août). Ce comportement peut être expliqué par la prise en compte dans un calage plus long d'événements particuliers ponctuels qui auraient un effet de levier préjudiciable. Ce type d'effet pourrait être corrigé en intégrant des éléments de non-linéarité dans le modèle ou en limitant la prise en compte des points extrêmes. Il apparaît que l'effet de ce type d'instabilité s'amenuise quand les durées de calage sont longues ($>200j$), ce qui limiterait l'importance des effets de leviers.

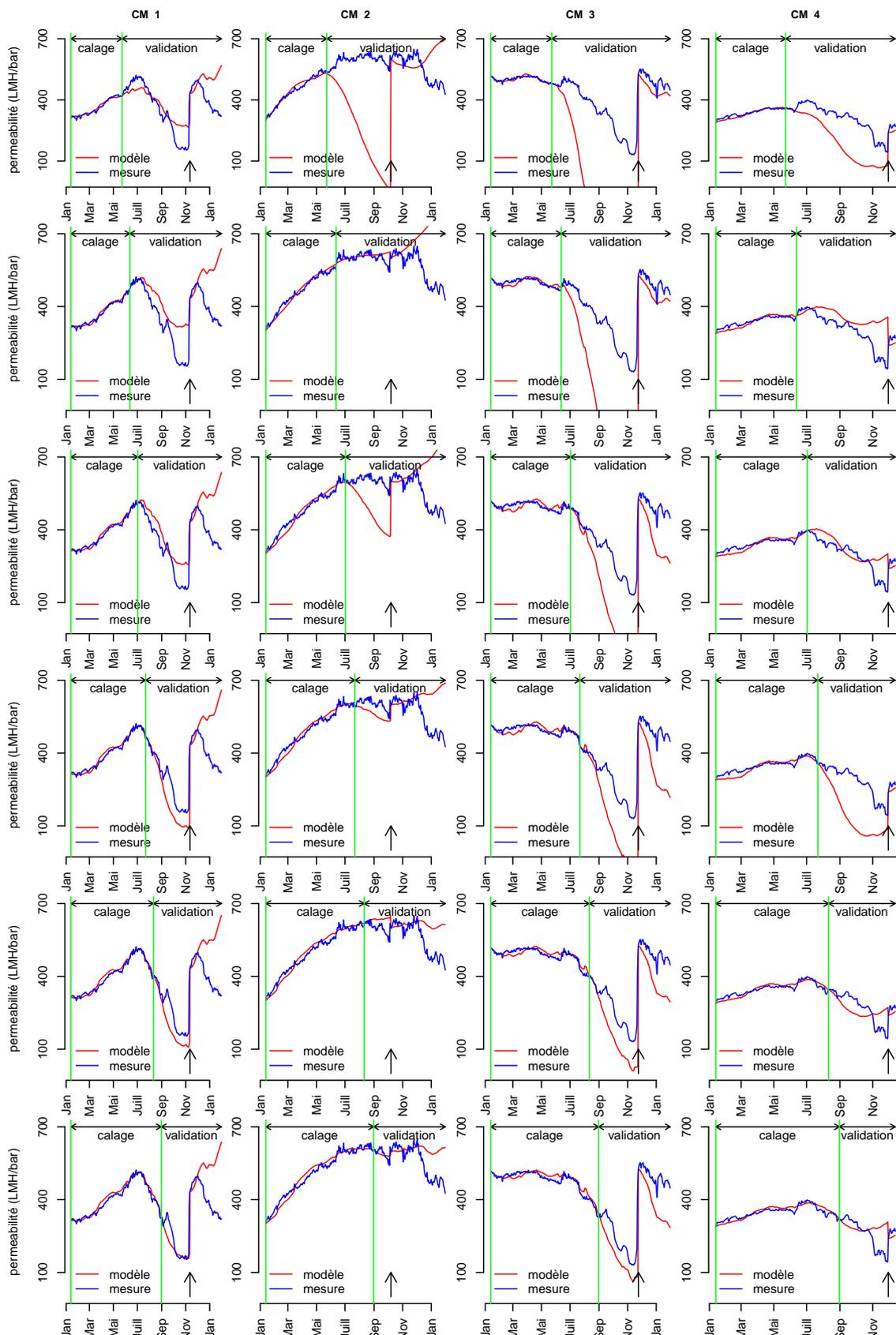


FIGURE III.4.3 – Perméabilité donnée par le modèle et perméabilité mesurée. La durée de la période de calage utilisée est comprise entre 130 et 230 jours. Chaque colonne de la figure représente une cellule membranaire.

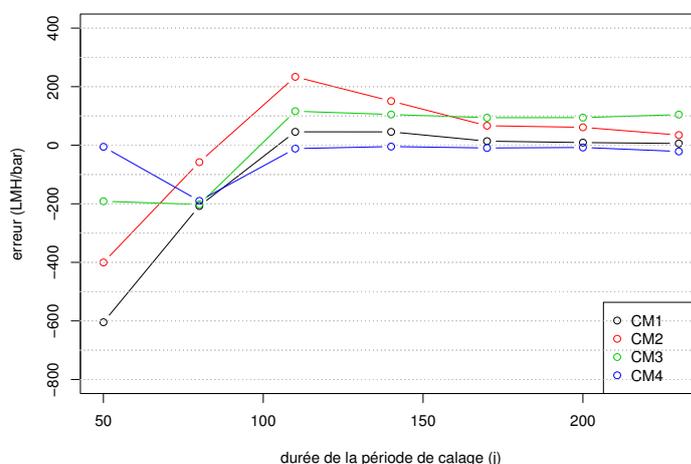


FIGURE III.4.4 – Erreur sur la perméabilité prédite au terme d’une validation de 60 jours à partir du 1^{er} septembre en fonction de la durée de la période de calage du modèle.

III.4.3.2 Prédiction avant le lavage de régénération avec une durée de calage supérieure à 200 jours

Avec une longue durée de calage (>200 jours), la perméabilité prédite jusqu’au prochain lavage de régénération est fidèle à la valeur réelle dans le cas des CM 1 et 2. Dans le cas de la CM3, le modèle surestime la chute de perméabilité. Ce résultat est tout de même encourageant car même si la perméabilité pendant la période de calage baisse peu, on constate que la baisse de perméabilité pendant la période de validation est tout de même prédite. Il nous confirme qu’une telle approche permet d’anticiper un colmatage sévère des membranes.

Pendant dans la CM4, la chute de la perméabilité (faible car la perméabilité est déjà basse en août) n’est pas prédite. La très faible variabilité de dPE pendant la période de calage est probablement une des causes de ce résultat. De plus, comme le flux est faible sur la CM4 et que c’est une des principales causes de variations de la perméabilité dans les autres CM (cf partie III.3.3), on peut relier le manque de pertinence du modèle pour la CM4 au fait que le flux soit moins important dans cette CM.

III.4.3.3 Prédiction après le lavage de régénération

Les tendances prédites après lavages de régénération (représentés par des flèches noires verticales sur la figure III.4.3) et à un horizon supérieur à 40j sont moins bonnes. En effet, un lavage de régénération modifie en profondeur l’état de la membrane et donc la valeur des paramètres du modèle. Par conséquent, on constate que ces tendances s’éloignent de la tendance mesurée, hormis dans la CM3.

Dans le cas de la CM1 (dont la période de calage est située six mois après le lavage de régénération

précédent) la tendance prédite est éloignée de la perméabilité observée. Dans la CM2, le lavage de régénération n'a pas eu d'effet important car la perméabilité était déjà haute quand il a été effectué. Il n'a donc probablement pas modifié significativement l'état de la membrane. Dans la CM3, la tendance à la baisse de la perméabilité est prédite, mais surestimée par le modèle. Un lavage de régénération avait été effectué deux mois avant le début de la période de calage, donc le modèle était calé sur une membrane récemment lavée. Cela explique peut-être pourquoi la prédiction est meilleure sur cette cellule membranaire. Dans la CM4, la période de validation est courte (15j) à cause de l'interruption du calcul de la perméabilité le 15 décembre. Il est donc difficile de tirer une conclusion, car les perméabilités mesurées et prédites sont stables toutes les deux (mais l'étaient aussi pendant la période de calage).

De manière tout à fait logique, ces observations montrent que le modèle est valable quand il a été calé dans des situations proches de celle où il est validé. Ainsi, pour prédire la tendance après un lavage de régénération, on pourrait se baser sur un calage effectué après le précédent lavage. Cela reste à confirmer, car cela n'a pu être validé que sur une seule des quatre CM (la 3).

III.4.4 Discussion

III.4.4.1 Prédiction de la perméabilité

En connaissant des variables opératoires couramment suivies (ou en mesure de l'être) sur des installations grandeur réelle, on peut sur la base d'un calage d'environ six mois prévoir le comportement à long terme (de l'ordre de deux mois) de la perméabilité.

Ce type d'approche ne repose pas sur des hypothèses difficiles à vérifier sur les mécanismes du colmatage. Cependant, un lavage de régénération demande un nouveau calage du modèle, ou nécessite de se référer, dans le cas où il est disponible, à un calage effectué après un lavage de régénération précédent. L'historique des modes opératoires de la filtration (lavages...) doit donc être connu et pris en compte le cas échéant.

Une telle étude ne peut cependant prendre en compte que les variables opératoires dont les variations sont significatives pendant la période de calage. Par exemple, dans le cas du BRM suivi, le taux d'aération spécifique grosses bulles est fixe. Dans de telles conditions, l'impact de cette variable sur le colmatage, présenté dans la littérature comme important, n'a pas été pris en compte dans le modèle. Cependant, dans le cas de l'utilisation de cette méthode sur une installation où le débit d'aération grosses bulles est variable, cette variable doit y être intégrée.

Cette remarque peut être une réelle limite à l'utilisation de ce modèle statistique. En effet, certaines variables utilisées ici n'ont pas vocation à décrire de larges plages de variation en fonctionnement normal (en particulier MES , A_B). De plus, si la perméabilité est maîtrisée, ses variations seront faibles, donc le modèle ne prédira pas une chute le cas échéant.

Par contre, il est possible d'utiliser d'autres jeux de variables opératoires, suivant leur disponibilité et les

hypothèses que l'on peut émettre concernant leur participation au colmatage (débit d'aération grosses bulles quand il est variable, pH...).

Les mauvais résultats obtenus lors de la tentative de relier le couple (iPE,iBW) à dPE et d'en déduire les évolutions long terme de la perméabilité appuient le constat selon lequel une méthode statistique est complémentaire d'une approche déterministe. En effet, les modèles déterministes se basent souvent sur des mécanismes décrits sur le court terme. Or nous avons montré que dans notre cas il est difficile de relier les mécanismes court terme aux évolutions long terme. Des mécanismes court terme, et en particulier ceux qui ont attrait au dépôt de particules, sont bien décrits par des modèles déterministes. Cependant ils ne permettraient pas de calculer une résultante fiable sur le long terme, soit par manque de précision, mais aussi parce qu'ils ne prendraient pas en compte des mécanismes qui influencent le long terme mais ne sont pas détectables à court terme car noyés dans le bruit. Ces mécanismes, et en particulier ceux qui concernent l'effet de la phase soluble/colloïdale sur le colmatage, sont encore mal compris et leur représentation dans les modèles déterministes semble encore peu pertinente.

Par conséquent, les études de modélisation déterministe du colmatage des membranes (cf tableau 1.4.1) sont quasiment toutes basées sur des expérimentations sur le court terme (quelques jours voire quelques semaines au maximum) à l'exception de celle de [Wintgens et al. \(2003\)](#) qui parvient à modéliser les évolutions long-terme (2 ans) de la perméabilité grâce à un modèle déterministe, mais apparemment sans période de validation.

L'approche statistique proposée dans cette thèse se base sur des régressions effectuées sur des moyennes journalières de données acquises pendant plus d'un an, et permet de mettre en évidence de façon empirique l'impact de variables opératoires, ou de groupes de variables opératoires sur les évolutions long terme (plusieurs mois) de la perméabilité, sans les décrire comme la résultante de mécanismes court terme opposés (colmatage court-terme / rétrolavages / lavages de maintenance).

Les résultats de ce modèle peuvent aussi servir la modélisation déterministe dans le sens où ils permettent de discuter des mécanismes proposés dans les modèles déterministes. Par exemple, l'hypothèse d'une protection de la membrane par le gâteau ([Lee et al., 2003](#); [Meng et al., 2006](#); [Wu et al., 2012](#)) contre un colmatage long terme est confortée dans notre étude par le fait que les fortes concentration en MES semblent ralentir le colmatage. Les interprétations concernant les autres variables opératoires sont discutées dans la partie III.3.4.2.

III.4.4.2 Perspectives d'utilisation d'une telle méthode statistique

Une telle méthode statistique peut être reproduite sur d'autres installations, et en ayant recours éventuellement à d'autres variables. Cela permettrait de vérifier si les tendances observées ici sont généralisables, et dans le cas contraire, d'étudier les facteurs (configuration de la station, des membranes...) qui influencent l'impact de telle ou telle variable sur le colmatage. L'étape la plus longue à mettre en place est le calcul d'un jeu de variables opératoires (moyennes journalières) fiable et sur une durée suffisante, ainsi que le calcul des indicateurs du

colmatage. L'étude statistique est ensuite simple et rapide à mener.

On peut dégager deux bénéfices potentiels de cette méthode statistique en vue de son utilisation à l'échelle industrielle :

- Sur la base de quelques pré-requis (moyennes journalières de variables opératoires), on peut effectuer ce type d'analyse statistique pour préconiser des réglages au niveau de la concentration en boues, de gammes de charge massiques, de gammes de flux, de la dose de fer. Bien que la plupart de ces variables soit souvent imposée à l'exploitant, cela permettrait d'intégrer la problématique du colmatage dans le peu de libertés dont il dispose pour la gestion, ou d'encourager à plus de libertés (en particulier la concentration des boues, qui agit aussi sur la charge massique et l'âge des boues, le flux,...).
- Quand les conditions opératoires sont fixées, un exploitant pourrait se servir de ce type d'analyse pour planifier les lavages de régénération, voire adapter ses stratégies de décolmatage (rétrolavage, aération...) dans le cas où le potentiel colmatant des boues semble faible.

Conclusion

Le procédé bioréacteur à membranes présente de hautes performances épuratoires, mais en contrepartie, sa consommation énergétique est élevée et sa gestion est plus complexe que pour les procédés classiques. Ces deux inconvénients majeurs sont liés au colmatage des membranes utilisées pour la filtration de la liqueur mixte. Les techniques utilisées pour limiter le colmatage des membranes, énergivores, sont parfois inadaptées, ce qui provoque une surconsommation énergétique, et parfois un colmatage sévère des membranes. La recherche à ce sujet, très prolifique sur de petites installations de laboratoires, peine à trouver des consensus, et les modèles proposés ne sont pas toujours extrapolable sur installations grandeur réelle, alors que le procédé est déjà utilisé par de nombreuses collectivités. Les interventions pour la maintenance et le nettoyage des membranes sont des opérations coûteuses en temps et en personnel. Pour les opérateurs une meilleure capacité d'anticipation et d'analyse des paramètres permettant de minimiser ces interventions constituent des besoins importants. Cette thèse, après un état des lieux approfondi de la littérature a débouché sur la conception d'une approche adaptée aux conditions grandeur réelles pour l'étude et la prédiction du colmatage long terme des membranes.

Contexte bibliographique et positionnement de la thèse

Etudes exploratoires Une large partie des études sur le colmatage des membranes porte sur le potentiel colmatant des boues, et en particulier des produits microbiens solubles (PMS) et les facteurs influençant leur présence, composition et potentiel colmatant. Ces substances colloïdales soulèvent un intérêt particulier, car contrairement aux matières en suspension, dont le dépôt à la surface des membranes commence à être maintenant maîtrisé, elles participeraient au colmatage interne et moins réversible des membranes. Ce type de colmatage, long terme, est un des points qui ne fait encore pas consensus dans la littérature. La concentration globale en PMS ne semble pas suffire à prédire le colmatage long terme sans rentrer plus dans les détails. L'impact de différentes caractéristiques des PMS sur le colmatage, que ce soit leur nature chimique (protéines, polysaccharides, substances humiques), leur provenance (UAP, BAP...), leur taille etc... a été abondamment étudié. Cependant, peu (ou pas) de consensus ont été atteints : à la lumière de la littérature, il est encore impossible de connaître le potentiel colmatant des PMS suivant leur taille ou leur nature, ni les lois physico-chimiques sous-jacentes.

Pour éviter de devoir étudier précisément les liens entre la composition de la boue et le colmatage des

membranes, certaines études portent sur le pouvoir colmatant des boues en fonction de variables opératoires comme l'âge de boue, la charge organique ou massique, le pH... Ces liens sont pour la plupart indirects, issus de mécanismes multiples, et peu consensuels. Il est donc difficile de tirer des conclusions générales et surtout quantitatives sur les liens entre le colmatage et ces variables opératoires. On peut cependant déceler quelques tendances. Par exemple, l'âge des boues semble inversement corrélée avec le potentiel colmatant des boues, dans une gamme comprise entre 10 et 30 jour; la température semble aussi inversement corrélée avec le colmatage des membranes, même si ce constat est souvent contredit.

Modélisation La modélisation a pour but d'intégrer un ensemble de lois physiques, biologiques et chimiques dans une approche globale. La littérature fournit désormais pour les BRMs des modèles biologiques, des modèles de filtration et des modèles de transferts d'oxygène. On trouve aussi des modèles intégrés, qui tentent de regrouper dans la même approche les différentes étapes du traitement. Cependant, la compatibilité entre les modèles de filtration et les modèles biologiques est complexe à obtenir. Même si de plus en plus de modèles biologiques permettent de prédire la concentration en PMS, la prise en compte des caractéristiques des PMS dans les modèles de filtration reste très rare. Dans la modélisation du potentiel colmatant de PMS ou de la production/dégradation des PMS, les modèles sont quasiment toujours centrés sur leur concentration globale, et n'ont que très rarement trait à une différenciation des PMS suivant leur nature, leur taille ou autre propriété.

Ainsi, les modèles intégrés parus ces dernières années dans la littérature peinent à faire ressortir le potentiel colmatant des PMS. Cela nuit à la prédiction sur le long terme de la perméabilité.

Applications grandeur réelle Les approches théoriques (étude du colmatage et modélisation) évoquées ci-dessus s'appuient la grande majorité du temps sur des expérimentations à petite échelle (réacteurs de l'ordre du L ou du m^3 , avec 1 à 10 m^2 de membranes, contre des milliers de m^3 et de m^2 de membranes en grandeur réelle), et sur des courtes échelles de temps (de l'ordre de l'heure, et rarement plus d'une semaine) par rapport aux conditions grandeur réelles (plusieurs mois de fonctionnement entre deux lavages chimiques de régénération, environ 10 ans de fonctionnement avant de remplacer les membranes). Les conditions imposées par les contraintes d'exploitation sont de plus souvent défavorables à la génération de résultats solides. En effet les plages de variation des variables opératoires sont restreintes et la mise en place d'un plan expérimental adapté rendue difficile, en raisons des diverses contraintes d'exploitation. Le calage de modèles en est d'autant plus difficile. L'étroitesse de ces plages de variation peut cependant être compensée par la taille des jeux de données disponibles (suivi d'un an ou plus), et par une méthodologie statistique de traitement des données. De plus, les moyens expérimentaux nécessaires au calage de modèles intégrés prenant en compte les PMS nécessitent des moyens expérimentaux importants pour leur calage, ce qui devient prohibitif lors du suivi d'installations grandeur réelles.

On constate aussi fréquemment dans des études menées sur installations grandeur réelles la présence de

périodes de colmatage, mais aussi de périodes de décolmatage progressif des membranes. Ce constat est en général difficilement compatible avec les modèles fournis par la littérature. Cela s'explique en particulier par le manque de modèles décrivant les phases de lavage des membranes (relaxation, rétrolavages, lavages chimiques).

Cette étude bibliographique met en exergue les difficultés expérimentales et théoriques à l'utilisation d'un modèle déterministe, et en particulier pour des sites réels. Cependant, le colmatage des membranes peut aussi être relié à des variables opératoires dont le suivi est faisable en installations grandeur réelle (âge des boues, flux, pH, température, ajouts de chlorure ferrique, concentration des boues, charge massique...), et qui semblent avoir directement ou indirectement un impact sur le colmatage des membranes.

Nous avons donc choisi dans cette thèse d'analyser statistiquement ces relations et de proposer un modèle de prédiction de la perméabilité basé sur des relations statistiques entre les variables opératoires et le colmatage. Une approche multivariée a été choisie pour éviter les biais dus aux corrélations entre les variables d'entrée du modèle.

Méthodologie de suivi du colmatage

Le site expérimental choisi pour cette étude est un bioréacteur à membranes à fibres creuses pour le traitement d'eaux résiduaires urbaines d'une capacité nominale de 66000 E.H. Il a fait l'objet d'un suivi intensif en parallèle d'une étude des transferts d'oxygène en boue. Un suivi en ligne de la DCO, de différentes formes d'azote et de phosphore, des matières en suspension et des débits a été effectué pendant 8 mois. Ce suivi en ligne a été accompagné d'analyses et de mesures ponctuelles pour le compléter et le fiabiliser. Les données issues des mesures de l'exploitant ont continué à être collectées après le suivi intensif pour obtenir finalement un jeu de données de 13 mois. Ainsi, sur une période de 13 mois consécutifs, les variables opératoires comme l'âge de boue, la charge massique, la quantité de chlorure ferrique ajoutée, le pH, la température ou encore la quantité de chlorure ferrique ajoutée ont pu être suivies de façon fiable, et avec des moyens de recouper les informations à l'aide de bilans.

Sur la base des données recueillies sur le système de supervision du BRM étudié, une méthodologie de caractérisation du colmatage court terme et long terme des membranes a été conçue. Premièrement, les corrections à apporter aux signaux bruts issus des capteurs de pression ont été identifiées et effectuées (pertes de charge dans les conduites de perméat et dérive du capteur). Il s'est avéré que la perméabilité ainsi corrigée était significativement différente de celle disponible sur le système de supervision en place sur la station, et que la plus-value apportée par les corrections était importante. En effet le signal corrigé est moins bruité par les variations de flux, et la perméabilité après correction est une à trois fois plus élevée qu'avant corrections.

Deuxièmement, un calcul automatisé des moyennes journalières de cette perméabilité corrigée et de plusieurs indicateurs de colmatage qui en découlent a été effectué. Ces indicateurs ont été conçus pour

représenter le colmatage court terme (interne aux paliers de filtration), sa réversibilité hydraulique (effet des rétrolavages), le colmatage long terme (dérive journalière de la perméabilité) et la réversibilité par lavage de maintenance. L'automatisation du calcul a permis de disposer de ces indicateurs sur un large jeu de données (quatre bassins membranaires pendant plus d'un an, avec un pas de temps d'acquisition de la PTM et du flux de 10s).

La grande taille du jeu de données a permis avec l'aide d'outils statistiques de tirer des conclusions sur les indicateurs du colmatage.

Résultats : relations entre variables opératoires et colmatage

Globalement la perméabilité des quatre unités membranaires dans le BRM étudié décrit une tendance saisonnière : une augmentation de janvier à juin, puis une diminution de août à novembre (avant les lavages de régénérations). Cependant on observe une disparité dans le comportement de la perméabilité des différentes unités de filtration (CM). L'analyse statistique nous permet de montrer des relations entre certaines variables opératoires et les indicateurs du colmatage.

Les valeurs obtenues sur les indicateurs court terme du colmatage iPE et iBW (colmatage interne aux paliers de filtration et réversibilité par rétrolavages) sont distribuées autour de zéro et relativement dispersées, car les pentes sont souvent calculées sur un petit nombre de points. De plus les vitesses de variation court terme de la perméabilité (colmatage et réversibilité) sont faibles. Pour autant l'analyse de leur valeur médiane montre des tendances logiques avec les évolutions de perméabilité (positives ou négatives).

L'analyse de la relation entre la dérive court-terme et les flux instantanés ne met pas en évidence de seuil de flux instantané critique. Les faibles vitesses de colmatage instantanées suggèrent que l'aération grosses bulles joue un rôle efficace dans la prévention du colmatage particulaire à court terme, et que les rétrolavages jouent éventuellement un rôle préventif plus que curatif sur le colmatage. L'absence de variation des débits d'aération grosses bulles des membranes pendant la période de suivi ne permet pas de statuer quantitativement sur l'impact de ce facteur sur le colmatage. Il est possible qu'une baisse de l'intensité de l'aération ne modifie pas significativement les évolutions de la perméabilité, du moins pendant certaines périodes. On trouve même dans la littérature des argument qui tendent à montrer qu'un léger dépôt à la surface de la membrane pourrait jouer un rôle protecteur face à un colmatage moins réversible (cf partie I.3.2.4.2). Dans d'éventuels futurs travaux, il serait intéressant de diminuer cette intensité pour évaluer la pertinence d'un débit aussi élevé. Dans le cas où un débit plus faible ne modifie pas le comportement du colmatage, les économies d'énergies associées à une diminution de l'aération grosses bulles pourraient être significatives. Cependant, de telles actions nécessiteraient des précautions supplémentaires pour éviter que cela ne porte préjudice à la perméabilité sur le long terme.

Une étude multivariée a été effectuée pour mettre en relation les indicateurs du colmatage avec les variables opératoires choisies (âge des boues, flux, température, ajouts de chlorure ferrique, concentration des boues,

charge massique...). Les résultats montrent une relation entre l'indicateur de colmatage court-terme et le flux et la température, qui sont tous deux corrélés de par les variations saisonnières. Les corrélations entre l'âge de boue et la charge massique, ou la quantité de fer apportée au système sont moins évidentes, probablement parce que les variations enregistrées pour ces variables sur la période de l'étude sont relativement faibles.

L'un des résultats les plus intéressants concerne la relation entre la dérive de perméabilité journalière et les moyennes journalières du flux. On retrouve en effet une tendance similaire sur toutes les unités : la dérive de perméabilité est positive quand le flux est inférieur à environ 20 LMH, et négative (colmatage) quand le flux est supérieur à 25 LMH. Cela indique que les opérateurs peuvent s'appuyer dans un premier temps sur cette corrélation pour prédire une dérive de flux sur le long terme.

Une autre observation importante concerne la concentration en MES. L'augmentation des MES est associée à une augmentation du colmatage court terme, mais les MES sont corrélés positivement à l'évolution de la perméabilité à long terme. Cette observation va dans le sens de l'hypothèse selon laquelle la formation de gâteau sur la membrane (colmatage court terme) protégerait celle-ci du colmatage long terme.

L'ensemble de ces résultats suggère que les dérives à long terme ne dépendent pas directement des indices du colmatage à court terme. En d'autres termes, que les mécanismes court-terme (probablement associé à un dépôt de particules) sont distincts du colmatage long-terme (probablement lié à un flux de matières solubles colmatantes à travers la membrane).

Ces observations sont cohérentes avec les résultats suivants obtenus par différentes approches de modélisation.

Résultats : modélisation

La régression multivariée a été utilisée pour concevoir un modèle statistique pour prédire les évolutions journalières et à long terme de la perméabilité. Les coefficients issus de cette régression donnent un modèle prédictif de ces évolutions. Les résultats de cette modélisation permettent de prédire, après un calage des paramètres sur plusieurs mois, les tendances à long terme (2 mois) des évolutions de la perméabilité constatées pendant l'automne 2010. La durée de calage nécessaire a été évaluée à plus de 100 jours, et dépend de la cellule membranaire observée. L'erreur sur la perméabilité prédite au bout de 2 mois de validation est inférieure à 100 LMH/bar dans 3 des 4 cellules membranaires avec un calage de 5 mois. Dans l'ensemble, les tendances générales (baisse, stabilité) sont prédites par le modèle.

Assez logiquement, il apparaît qu'après un lavage de régénération (qu'on peut assimiler à un changement brusque de l'état de la membrane), le modèle perd sa validité. Cependant la période qui suit un lavage de régénération est en général peu problématique car les perméabilités alors observées sont souvent encore hautes, et le besoin de prédiction moins fort. On pourrait donc utiliser l'outil prédictif seulement après une période de calage de plusieurs mois qui suivent le lavage.

Si l'on souhaite tout de même modéliser la perméabilité pendant une période qui suit un lavage de

régénération, on peut se baser sur un calage des paramètres obtenu après un lavage de régénération précédent, d'une durée minimum de 150 ou 200 jours dans notre cas . Les résultats obtenus à ce sujet sur la cellule membranaire 3 semblent le confirmer.

On peut distinguer plusieurs avantages majeurs à l'utilisation de ce type de modèle par rapport aux approches déterministes. Premièrement, cette approche effectue son apprentissage sur chaque cellule membranaire, et s'appuie sur une méthode automatique pour son calage. Cela permet de prédire des comportements différents sur deux cellules membranaires même si les mesures de la plupart des variables sont similaires, en se basant sur le comportement antérieur de ces cellules. Deuxièmement, et contrairement aux approches plus déterministes trouvées dans la littérature, on peut prévoir une augmentation progressive de la perméabilité à long terme durant des périodes fonctionnant à faible flux. Enfin, les variables d'entrée du modèle utilisées ne nécessitent pas de moyens d'analyse spécifique, du moment que le suivi de l'installation a été effectué de façon rigoureuse et précise, avec un maximum de recoupement des données, et en particulier en effectuant des bilans journaliers de DCO et MES.

Perspectives

Application de la méthode : Les méthodologies développées dans cette thèse présentent un caractère générique et transposable à d'autres procédés dans d'autres sites.

Dans un premier temps, les méthodes rigoureuses et précises de calcul de la perméabilité peuvent être appliquées systématiquement : la prise en compte des pertes de charges dans les conduites de perméat, et la surveillance et la prise en compte des dérives des capteurs de pression, en se basant sur la pression mesurée quand le flux est nul.

Dans un second temps, l'étude multivariée entre les variables opératoires et l'indicateur du colmatage long terme peut être utilisée pour établir des liens propres à chaque installation. Elle nécessite un calcul rigoureux des variables opératoires, mais ces dernières peuvent être choisies suivant leur accessibilité, leurs gammes de variations... Cette étude multivariée est à préférer au calcul de l'influence de chaque variable opératoire sur le colmatage indépendamment les unes des autres, pour éviter une interprétation erronée due aux corrélations entre variables opératoires. Il est préférable que le choix des variables opératoires utilisées prenne en compte la richesse de l'information représentée par ces variables. Ainsi, plusieurs catégories de variables ont intérêt à être représentées : des variables concernant l'hydrodynamique (SAD_m , flux), des variables concernant la biologie des boues (A_B , C_m , T), des variables concernant la rhéologie (MES , T), et des variables concernant la chimie (pH , alcalinité, Fe).

Les liens décelés peuvent ensuite servir à comprendre et prédire sur le long terme les évolutions du colmatage, ou du moins ses principales tendances.

Une étude similaire a été effectuée avec des données provenant d'un autre BRM muni de membranes

planes. Les résultats sont présentés dans l'annexe C. Dans ce cas des variables opératoires différentes ont été utilisées, et en particulier le débit d'aération grosses bulles légèrement variable durant le suivi, et le pH, dont la gamme de variation était large. On constate que les résultats de modélisation sur la base de relations entre les variables opératoires et le colmatage long terme des membranes sont encourageants.

Les résultats concernant les indicateurs à court terme confirment, comme sur le premier site, que le calcul de ces indicateurs n'apporte pas d'information supplémentaire alors qu'il nécessite de traiter des jeux de données excessivement lourds (flux et PTM avec un pas de temps permettant d'avoir plusieurs points par paliers de flux). Ces variables ne sont donc pas nécessaires pour prédire les évolutions long terme de la perméabilité.

Amélioration de la méthode On peut envisager plusieurs voies d'amélioration de la méthode de modélisation. Par exemple, l'introduction de la non-linéarité des relations existantes entre les variables opératoires et le colmatage permettrait probablement une meilleure prédiction, et en particulier lorsque les variables opératoires présentent de larges plages de variation.

D'autres indicateurs court terme du colmatage peuvent être définis pour chaque installation étudiée. En effet, suivant la durée des paliers, le type de stratégie de limitation du colmatage adopté (rétrolavage, relaxation), les indicateurs définis dans la présente thèse peuvent être plus ou moins pertinents. La définition de ce type d'indicateurs du colmatage peut se diriger vers un lissage du signal adéquat (utilisation de filtres de Kalman par exemple, en projet avec l'équipe du CEIT, San Sebastian, Espagne). Cela permettrait d'explorer plus en profondeur les mécanismes sous-jacents du colmatage et l'influence des différentes variables opératoires sur eux.

Bibliographie

- Ahmed, Z., J. Cho, B.-R. Lim, K.-G. Song, and K.-H. Ahn (2007). Effects of sludge retention time on membrane fouling and microbial community structure in a membrane bioreactor. *Journal of Membrane Science* 287(2), 211–218.
- Ahn, Y., Y. Choi, H. Jeong, S. Chae, and H. Shin (2006). Modeling of extracellular polymeric substances and soluble microbial products production in a submerged membrane bioreactor at various srt. *Water Science and Technology* 53 (7), 209–216.
- Al-Halbouni, D., J. Traber, S. Lyko, T. Wintgens, T. Melin, D. Tacke, A. Janot, W. Dott, and J. Hollender (2008). Correlation of eps content in activated sludge at different sludge retention times with membrane fouling phenomena. *Water Research* 42(6-7), 1475–1488.
- Aquino, S. F. and D. C. Stuckey (2008). Integrated model of the production of soluble microbial products (smp) and extracellular polymeric substances (eps) in anaerobic chemostats during transient conditions. *Biochemical Engineering Journal* 38(2), 138–146.
- Arabi, S. and G. Nakhla (2009). Impact of cation concentrations on fouling in membrane bioreactors. *Journal of Membrane Science* 343(1-2), 110–118.
- Arabi, S. and G. Nakhla (2010). Impact of molecular weight distribution of soluble microbial products on fouling in membrane bioreactors. *Separation and Purification Technology* 73(3), 391–396.
- Avella, A., T. Görner, and P. de Donato (2010). The pitfalls of protein quantification in wastewater treatment studies. *Science of The Total Environment* 408(20), 4906–4909.
- Ayala, D., V. Ferre, and S. Judd (2011). Membrane life estimation in full-scale immersed membrane bioreactors. *Journal of Membrane Science* 378(1-2), 95–100.
- Baek, S. H., S. K. Jeon, and K. Pagilla (2009). Mathematical modeling of aerobic membrane bioreactor (MBR) using Activated Sludge Model no. 1 (ASM1). *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* 15, 835–840.
- Barillon, B., S. Ruel, C. Langlais, and V. Lazarova (2013). Energy efficiency in membrane bioreactors. *Water Science and Technology* 67(12), 2685–2691.
- Bin, Z., S. Baosheng, J. Min, G. Taishi, and G. Zhenghong (2008). Extraction and analysis of extracellular polymeric substances in membrane fouling in submerged mbr. *Desalination* 227(1-3), 286–294. Issue 1 First Oxford and Nottingham Water and Membranes Research Event 2-4 July 2006, Oxford, UK.

- Bolzonella, D., F. Fatone, S. di Fabio, and F. Cecchi (2010). Application of membrane bioreactor technology for wastewater treatment and reuse in the mediterranean region : Focusing on removal efficiency of non-conventional pollutants. *Journal of Environmental Management* 91(12), 2424–2431.
- Bradford, M. M. (1976). A rapid and sensitive method for the quantitation of microgram quantities of protein utilizing the principle of protein-dye binding. *Analytical Biochemistry* 72(1), 248–254.
- Brannock, M., Y. Wang, and G. Leslie (2010). Mixing characterisation of full-scale membrane bioreactors : Cfd modelling with experimental validation. *Water Research* 44(10), 3181–3191.
- Brepols, C., H. Schafer, and N. Engelhardt (2010). Considerations on the design and financial feasibility of full-scale membrane bioreactors for municipal applications. *Water Science and Technology* 61, 2461–2468.
- Broeckmann, A., J. Busch, T. Wintgens, and W. Marquardt (2006). Modeling of pore blocking and cake layer formation in membrane filtration for wastewater treatment. *Desalination* 189(1-3), 97–109. Selected paper from the 10th Aachen Membrane Colloquium.
- Buer, T. and J. Cumin (2010). Mbr module design and operation. *Desalination* 250(3), 1073–1077.
- Bugge, T. V., M. K. Jørgensen, M. L. Christensen, and K. Keiding (2012). Modeling cake buildup under TMP-step filtration in a membrane bioreactor : Cake compressibility is significant. *Water Research* 46(14), 4330–4338.
- Busch, J., A. Cruse, and W. Marquardt (2007). Modeling submerged hollow-fiber membrane filtration for wastewater treatment. *Journal of Membrane Science* 288(1-2), 94–111.
- Busch, J. and W. Marquardt (2009). Model-based control of mf/uf filtration processes : Pilot plant implementation and results. *Water Science and Technology* 59(9), 1713–1720.
- Capela, S. (1999). *Influence des facteurs de conception et des conditions de fonctionnement des stations d'épuration en boues activées sur le transfert d'oxygène*. Ph. D. thesis, Université de Paris XII.
- Capela, S., S. Gillot, and A. Héduit (2004). Comparison of oxygen-transfer measurement methods under process conditions. *Water Environment Research* 76(2), 183–188.
- Carman, P. C. (1937). Fluid flow through granular beds. *Transactions - Institution of Chemical Engineers* 15, 150–166.
- Cemagref. Site internet du FNDAE (Fond National pour le Développement des Adductions d'Eau). <http://www.fndae.fr/>.
- Chang, I.-S., P. Le Clech, B. Jefferson, and S. Judd (2002). Membrane fouling in membrane bioreactors for wastewater treatment. *Journal of Environmental Engineering* 128(11), 1018–1029.
- Chang, S. (2011). Application of submerged hollow fiber membrane in membrane bioreactors : Filtration principles, operation, and membrane fouling. *Desalination* 283(0), 31–39.
- Chen, W., J. Liu, and F. Xie (2012). Identification of the moderate SRT for reliable operation in MBR. *Desalination* 286(0), 263–267.
- Cho, J., K.-G. Song, and K.-H. Ahn (2005). The activated sludge and microbial substances influences on membrane fouling in submerged membrane bioreactor : Unstirred batch cell test. *Desalination* 183(1-3), 425–429.

- Cho, J., K. G. Song, H. Yun, K. H. Ahn, J. Y. Kim, and T. H. Chung (2005). Quantitative analysis of biological effect on membrane fouling in submerged membrane bioreactor. *Water Science and Technology* 51 (6-7), 9–18.
- Choubert, J., S. Martin Ruel, M. Esperanza, H. Budzinski, C. Miège, C. Lagarrigue, and M. Coquery (2011). Limiting the emissions of micro-pollutants : What efficiency can we expect from wastewater treatment plants? *Water Science and Technology* 63(1), 57–65.
- Choubert, J.-M., A.-E. Stricker, A. Marquot, Y. Racault, S. Gillot, and A. Heduit (September 2009). Updated activated sludge model n1 parameter values for improved prediction of nitrogen removal in activated sludge processes : Validation at 13 full-scale plants. *Water Environment Research* 81, 858–865(8).
- Comas, J., E. Meabe, L. Sancho, G. Ferrero, J. Sipma, H. Monclus, and I. Rodriguez-Roda (2010). Knowledge-based system for automatic MBR control. *Water Science and Technology* 62(12), 2829–2836.
- Corominas, L., L. Rieger, I. Takacs, G. Ekama, H. Hauduc, P. A. Vanrolleghem, A. Oehmen, K. Gernaey, M. C. M. van Loosdrecht, and Y. Comeau (2010). New framework for standardized notation in wastewater treatment modelling. *Water Science and Technology* 61.4, 841–857.
- Cote, P., Z. Alam, and J. Penny (2012). Hollow fiber membrane life in membrane bioreactors (MBR). *Desalination* 288(0), 145–151.
- De la Torre, T., M. Mottschall, B. Lesjean, A. Drews, A. Iheanaetu, and M. Kraume (2010). Filterability assessment in membrane bioreactor using an in-situ filtration test cell. *Water Science and Technology* 61, 2809–2816.
- de Silva, D. V. and B. E. Rittmann (2000). Nonsteady-state modeling of multispecies activated-sludge processes. *Water Environment Research* 72(5), 554–565.
- Delgado, S., R. Villarroel, and E. Gonzalez (2008). Effect of the shear intensity on fouling in submerged membrane bioreactor for wastewater treatment. *Journal of Membrane Science* 311(1-2), 173–181.
- Delrue, F. (2008). *Modelisation du procédé bioreacteur a membranes immergees : Calage et validation du modele ASM1 sur un site reel - Etude des interactions boues activees, conditions operatoires et membranes*. Ph. D. thesis, Universite Bordeaux 2, Ecole doctorale : science de la vie et de la sante.
- Delrue, F., A. Stricker, M. Mietton-Peuchot, and Y. Racault (2011). Relationships between mixed liquor properties, operating conditions and fouling on two full-scale MBR plants. *Desalination In Press, Corrected Proof*, –.
- Delrue, F. d., J. Choubert, A. Stricker, M. Spérandio, M. Mietton-Peuchot, and Y. Racault (2010). Modelling a full scale membrane bioreactor using Activated Sludge Model no.1 : Challenges and solutions. *Water Science and Technology* 62(10), 2205–2217.
- Di Bella, G., G. Mannina, and G. Viviani (2008). An integrated model for physical-biological wastewater organic removal in a submerged membrane bioreactor : Model development and parameter estimation. *Journal of Membrane Science* 322(1), 1–12.
- Domínguez, L., V. Cases, C. Birek, M. Rodríguez, and D. Prats (2012). Influence of organic loading rate on the performance of ultrafiltration and microfiltration membrane bioreactors at high sludge retention time. *Chemical Engineering Journal* 181–182(0), 132–143.

- Drews, A., H. Arellano-Garcia, J. Schöneberger, J. Schaller, G. Wozny, and M. Kraume (2009). Model-based recognition of fouling mechanisms in membrane bioreactors. *Desalination* 236(1-3), 224–233. International Membrane Science and Technology Conference 2007, International Membrane Science and Technology Conference 2007.
- Drews, A., J. Mante, V. Iversen, M. Vocks, B. Lesjean, and M. Kraume (2007). Impact of ambient conditions on smp elimination and rejection in mbrs. *Water Research* 41(17), 3850–3858.
- Drews, A., M. Vocks, U. Bracklow, V. Iversen, and M. Kraume (2008). Does fouling in MBRs depend on SMP? *Desalination* 231(1-3), 141–149.
- Duan, L., I. Moreno-Andrade, C.-L. Huang, S. Xia, and S. W. Hermanowicz (2009). Effects of short solid retention time on microbial community in a membrane bioreactor. *Bioresource Technology* 100, 3489–3496.
- Dubois, M., K. A. Gilles, J. K. Hamilton, P. Rebers, and F. Smith (1956). Colorimetric method for determination of sugars and related substances. *Analytical Chemistry* 28(3), 350–356.
- Dvorák, L., M. Gómez, M. Dvoráková, I. Ruzicková, and J. Wanner (2011). The impact of different operating conditions on membrane fouling and eps production. *Bioresource Technology* 102(13), 6870–6875.
- Engelhardt, N. & Lindner, W. (2006). Experiences with the world's largest municipal waste water treatment plant using membrane technology. *Water Practice & Technology* 1(4).
- Evenblij, H., S. Geilvoet, J. van der Graaf, and H. van der Roest (2005). Filtration characterisation for assessing mbr performance : three cases compared. *Desalination* 178(1–3), 115–124.
- Fan, F., H. Zhou, and H. Husain (2006). Identification of wastewater sludge characteristics to predict critical flux for membrane bioreactor processes. *Water Research* 40, 205–212.
- Farquharson, A. and H. Zhou (2010). Relationships of activated sludge characteristics to fouling rate and critical flux in membrane bioreactors for wastewater treatment. *Chemosphere* 79(2), 149–155.
- Feng, S., N. Zhang, H. Liu, X. Du, Y. Liu, and H. Lin (2012). The effect of COD/N ratio on process performance and membrane fouling in a submerged bioreactor. *Desalination* 285(0), 232–238.
- Fenu, A., W. De Wilde, M. Gaertner, M. Weemaes, G. De Gueldre, and B. Van De Steene (2012). Elaborating the membrane life concept in a full scale hollow-fibers mbr. *Journal of Membrane Science* (0), –.
- Fenu, A., J. Roels, T. Wambecq, K. De Gussem, C. Thoeye, G. De Gueldre, and B. Van de Steene (2010). Energy audit of a full scale MBR system. *Desalination In Press, Corrected Proof*, –.
- Ferrero, G., H. Monclús, G. Buttiglieri, J. Comas, and I. Rodríguez-Roda (2010). Automatic control system for energy optimization in membrane bioreactors. *Desalination In Press, Corrected Proof*, –.
- Ferrero, G., H. Monclús, G. Buttiglieri, S. Gabarron, J. Comas, and I. Rodríguez-Roda (2011). Development of a control algorithm for air-scour reduction in membrane bioreactors for wastewater treatment. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology* 86(6), 784–789.
- Ferrero, G., I. Rodríguez-Roda, and J. Comas (2012). Automatic control systems for submerged membrane bioreactors : A state-of-the-art review. *Water Research* 46(11), 3421–3433.
- Foley, G. (2006). A review of factors affecting filter cake properties in dead-end microfiltration of microbial suspensions. *Journal of Membrane Science* 274(1–2), 38–46.

- Frolund, B., T. Griebe, and P. Nielsen (1995). Enzymatic activity in the activated-sludge floc matrix. *Applied Microbiology and Biotechnology* 43(4), 755–761.
- Galinha, C., G. Carvalho, C. Portugal, G. Guglielmi, R. Oliveira, J. Crespo, and M. Reis (2011). Real-time monitoring of membrane bioreactors with 2d-fluorescence data and statistically based models. *Water Science and Technology* 63(7), 1381–1388.
- Galinha, C., G. Carvalho, C. Portugal, G. Guglielmi, M. Reis, and J. Crespo (2012). Multivariate statistically-based modelling of a membrane bioreactor for wastewater treatment using 2d fluorescence monitoring data. *Water Research* 46(11), 3623–3636.
- Gander, M., B. Jefferson, and S. Judd (2000). Aerobic MBRs for domestic wastewater treatment : A review with cost considerations. *Separation and Purification Technology* 18(2), 119–130.
- Garcés, A., W. De Wilde, C. Thoeye, and G. De Guedre (2007). Operationa cost optimisation of mbr schilde.
- Germain, G., F. Nelles, A. Drews, P. Pearce, M. Kraume, E. Reid, S. Judd, and T. Stephenson (2007). Biomass effects on oxygen transfer in membrane bioreactors. *Water Research* 41, 1038–1044.
- Gil, J., L. Túa, A. Rueda, B. Montaña, M. Rodriguez, and D. Prats (2010). Monitoring and analysis of the energy cost of an MBR. *Desalination* 250, 997–1001.
- Gillot, S., S. Capela-Marsal, M. Roustan, and A. Héduit (2005). Predicting oxygen transfert of fine bubble diffused aeration systems – Model issued from dimensional analysis. *Water Research* 39, 1379–1387.
- Gillot, S. and A. Héduit (2008). Prediction of alpha factor values for fine pore aeration systems. *Water Science and Technology* 57, 1265–1269.
- Guglielmi, G. and G. Andreottola (2011). Alternate anoxic/aerobic operation for nitrogen removal in a membrane bioreactor for municipal wastewater treatment. *Water Science and Technology* 64(8), 1730–1735.
- Guglielmi, G., D. Chiarani, D. P. Saroj, and G. Andreottola (2008). Impact of chemical cleaning and air-sparging on the critical and sustainable flux in a flat sheet membrane bioreactor for municipal wastewater treatment. *Water Science and Technology* 57 (12), 1873–1879.
- Guglielmi, G., D. Saroj, D. Chiarani, and G. Andreottola (2007). Sub-critical fouling in a membrane bioreactor for municipal wastewater treatment : Experimental investigation and mathematical modelling. *Water Research* 41(17), 3903–3914.
- Gujer, W. (2006). Activated sludge modelling : Past, present and future. *Water Science and Technology* 53(3), 111–119.
- Gujer, W., M. Henze, T. Mino, T. Matsuo, M. Wentzel, and G. Marais (1995). The Activated Sludge Model no. 2 : Biological phosphorus removal. *Water Science and Technology* 31(2), 1–11.
- Gujer, W., M. Henze, T. Mino, and M. Van Loosdrecht (1999). Activated Sludge Model no.3. *Water Science and Technology* 39(1), 183–193.
- Guo, W., H.-H. Ngo, S. Vigneswaran, F. Dharmawan, T. T. Nguyen, and R. Aryal (2010). Effect of different flocculants on short-term performance of submerged membrane bioreactor. *Separation and Purification Technology* 70(3), 274–279.

- Han, S.-S., T.-H. Bae, G.-G. Jang, and T.-M. Tak (2005). Influence of sludge retention time on membrane fouling and bioactivities in membrane bioreactor system. *Process Biochemistry* 40(7), 2393–2400.
- Hasan, S. W., M. Elektorowicz, and J. A. Oleszkiewicz (2012). Correlations between trans-membrane pressure (TMP) and sludge properties in submerged membrane electro-bioreactor (SMEBR) and conventional membrane bioreactor (MBR). *Bioresource Technology* 120(0), 199–205.
- Hauduc, H. (2010). *Modèles biocinétiques de boues actives de type ASM : Analyse théorique et fonctionnelle, vers un jeu de paramètres par défaut*. Ph. D. thesis, PhD Thesis, Université Laval (Quebec) et AgroParisTech (France).
- Hauduc, H., S. Gillot, L. Rieger, T. Ohtsuki, A. Shaw, I. Takacs, and S. Winkler (2009). Activated sludge modelling in practice : An international survey. *Water Science and Technology* 60(8), 1943–1951.
- Hauduc, H., L. Rieger, I. Takacs, A. Héduit, P. A. Vanrolleghem, and S. Gillot (2010). A systematic approach for model verification - Application on seven published activated sludge models. *Water Science and Technology* 40, 32–50.
- Henkel, J., P. Cornel, and M. Wagner (2009). Free water content and sludge retention time : Impact on oxygen transfert in activated sludge. *Environmental Science and Technology* 43, 8561–8565.
- Henkel, J., P. Cornel, and M. Wagner (2011). Oxygen transfer in activated sludge - New insights and potentials for cost saving. *Water Science and Technology* 63(12), 3034–3038.
- Henkel, J., M. Lemac, M. Wagner, and P. Cornel (2009). Oxygen transfer in membrane bioreactors treating synthetic greywater. *Water Research* 43, 1711–1719.
- Henze, M., G. CPL, G. W., M. G., and T. Matsuo (1987). Activated Sludge Model no. 1. *IAWPRC Scientific and Technical Reports No.1, IWA Publishing, London, UK*.
- Heran, M., R. Aryal, H. Shon, S. Vigneswaran, S. Elmaleh, and A. Grasmick (2012). How to optimize hollow-fiber submerged membrane bioreactors. *Water Environment Research* 84(2), 115–119.
- Hernandez Rojas, M., R. Van Kaam, S. Schetrite, and C. Albasi (2005). Role and variations of supernatant compounds in submerged membrane bioreactors fouling. *Desalination* 179, 95–107.
- Huang, X., P. Gui, and Y. Qian (2001). Effect of sludge retention time on microbial behaviour in a submerged membrane bioreactor. *Process Biochemistry* 36(10), 1001–1006.
- Huyskens, C., E. Brauns, E. V. Hoof, L. Diels, and H. D. Wever (2011). Validation of a supervisory control system for energy savings in membrane bioreactors. *Water Research* 45(3), 1443–1453.
- Hwang, B.-K., C.-H. Lee, I.-S. Chang, A. Drews, and R. Field (2012). Membrane bioreactor : {TMP} rise and characterization of bio-cake structure using CLSM-image analysis. *Journal of Membrane Science* 419–420(0), 33–41.
- Jang, N., X. Ren, J. Cho, and I. S. Kim (2006). Steady-state modeling of bio-fouling potentials with respect to the biological kinetics in the submerged membrane bioreactor (SMBR). *Journal of Membrane Science* 284(1-2), 352–360.
- Jang, N., X. Ren, G. Kim, C. Ahn, J. Cho, and I. S. Kim (2007). Characteristics of soluble microbial products and extracellular polymeric substances in the membrane bioreactor for water reuse. *Desalination* 202(1-3), 90–98. Wastewater Reclamation and Reuse for Sustainability.

- Janus, T. and B. Ulanicki (2010). Modelling SMP and EPS formation and degradation kinetics with an extended ASM3 model. *Desalination* 261(1), 117–125.
- Jarusutthirak, C. and G. Amy (2006). Role of soluble microbial products (SMP) in membrane fouling and flux decline. *Environmental Science and Technology* 40, 969–974.
- Ji, J., J. Qiu, N. Wai, F.-S. Wong, and Y. Li (2010). Influence of organic and inorganic flocculants on physical-chemical properties of biomass and membrane-fouling rate. *Water Research* 44(5), 1627–1635.
- Jiang, T. (2007). *Characterization and Modelling of Soluble Microbial Products in Membrane Bioreactors*. Ph. D. thesis, Ghent University, Belgium.
- Jiang, T., M. D. Kennedy, V. D. Schepper, S.-N. Nam, I. Nopens, P. A. Vanrolleghem, and G. Amy (2010). Characterization of soluble microbial products and their fouling impacts in membrane bioreactors. *Environmental Science & Technology* 44(17), 6642–6648.
- Jiang, T., M. D. Kennedy, C. Yoo, I. Nopens, W. van der Meer, H. Futselaar, J. C. Schippers, and P. A. Vanrolleghem (2007). Controlling submicron particle deposition in a side-stream membrane bioreactor : A theoretical hydrodynamic modelling approach incorporating energy consumption. *Journal of Membrane Science* 297, 141–151.
- Jiang, T., S. Myngheer, D. J. W. De Pauw, H. Spanjers, I. Nopens, M. D. Kennedy, G. Amy, and P. A. Vanrolleghem (2008). Modelling the production and degradation of soluble microbial products (SMP) in membrane bioreactors (MBR). *Water Research* 42(20), 4955–4964.
- Jimenez, J., P. Grelier, J. Meinhold, and A. Tazi-Pain (2010). Biological modelling of MBR and impact of primary sedimentation. *Desalination* 250(2), 565–567.
- Joss, A., M. Boehler, D. Wedi, and H. Siegrist (2009). Proposing a method for online permeability monitoring in membrane bioreactors. *Water Science and Technology* 60(2), 497–506.
- Katsoufidou, K., S. Yiantsios, and A. Karabelas (2005). A study of ultrafiltration membrane fouling by humic acids and flux recovery by backwashing : Experiments and modeling. *Journal of Membrane Science* 266(1-2), 40–50.
- Khan, S. J., C. Visvanathan, and V. Jegatheesan (2009). Prediction of membrane fouling in MBR systems using empirically estimated specific cake resistance. *Bioresource Technology* 100(23), 6133–6136.
- Kim, I. S. and N. Jang (2006). The effect of calcium on the membrane biofouling in the membrane bioreactor (MBR). *Water Research* 40(14), 2756–2764.
- Kim, J. and F. A. DiGiano (2009). Fouling models for low-pressure membrane systems. *Separation and Purification Technology* 68(3), 293–304.
- Kimura, K., T. Naruse, and Y. Watanabe (2009). Changes in characteristics of soluble microbial products in membrane bioreactors associated with different solid retention times : Relation to membrane fouling. *Water Research* 43(4), 1033–1039.
- Kimura, K., N. Yamato, H. Yamamura, and Y. Watanabe (2005). Membrane fouling in pilot-scale membrane bioreactors (MBRs) treating municipal wastewater. *Environmental Science and Technology* 39, 6293–6299.

- Kornboonraksa, T. and S. H. Lee (2009). Factors affecting the performance of membrane bioreactor for piggery wastewater treatment. *Bioresource Technology* 100(12), 2926–2932.
- Krampe, J. and K. Krauth (2003). Oxygen transfer into activated sludge with high MLSS concentrations. *Water Science and Technology* 47(11), 297–303.
- Krzeminski, P., J. Van Der Graaf, and J. Van Lier (2012). Specific energy consumption of membrane bioreactor (mbr) for sewage treatment. *Water Science and Technology* 65(2), 380–392.
- Lapidou, C. S. and B. E. Rittmann (2002). Non-steady state modeling of extracellular polymeric substances, soluble microbial product, and active and inert biomass. *Water Research* 36, 1983–1992.
- Le-Clech, P., V. Chen, and T. A. G. Fane (2006). Fouling in membrane bioreactors used in wastewater treatment. *Journal of Membrane Science* 284(1-2), 17–53.
- Le-Clech, P., Y. Marselina, Y. Ye, R. M. Stuetz, and V. Chen (2007). Visualisation of polysaccharide fouling on microporous membrane using different characterisation techniques. *Journal of Membrane Science* 290(1-2), 36–45.
- Lee, W., S. Kang, and H. Shin (2003). Sludge characteristics and their contribution to microfiltration in submerged membrane bioreactors. *Journal of Membrane Science* 216(1-2), 217–227.
- Lee, Y., J. Cho, Y. Seo, J. W. Lee, and K.-H. Ahn (2002). Modeling of submerged membrane bioreactor process for wastewater treatment. *Desalination* 146, 451–457.
- Lencastre, A. (1960). *Manuel d'hydraulique générale*. Collection du laboratoire national d'hydraulique.
- Lesjean, B., A. Tazi-Pain, D. Thauere, H. Moeslang, and H. Buisson (2010). Ten persistent myths and the realities of membrane bioreactor technology for municipal applications. *Water Science and Technology* 63 (1), 32–39.
- Li, X.-Y. and X.-M. Wang (2006). Modelling of membrane fouling in a submerged membrane bioreactor. *Journal of Membrane Science* 278(1-2), 151–161.
- Liang, Z., A. Das, D. Beerman, and Z. Hu (2010). Biomass characteristics of two types of submerged membrane bioreactors for nitrogen removal from wastewater. *Water Research* 44(11), 3313–3320.
- Logan, B. (2011). Molecular and Colloidal Size of DOM : Classes at Department of Civil and Environmental Engineering The Pennsylvania State University. <http://www.engr.psu.edu/ce/enve/576/576-Molecular-size-spectra-2011.pdf>.
- Lousada-Ferreira, M., S. Geilvoet, A. Moreau, E. Atasoy, P. Krzeminski, A. F. van Nieuwenhuijzen, and J. Van der Graaf (2010). MLSS concentration : Still a poorly understood parameter in MBR filterability. *Desalination* 250(2), 618–622.
- Lowry, O. H., N. J. Rosebrough, A. L. Farr, and R. J. Randall (1951). Protein measurement with the folin phenol reagent. *Journal of Biological Chemistry* 193(1), 265–275.
- Lu, S., T. Imai, M. Ukita, M. Sekine, and T. Higuchi (2002). Modeling prediction of membrane bioreactor process with the concept of soluble microbial product. *Water Science and Technology* 46 (11-12), 63–70.

- Lu, S. G., T. Imai, M. Ukita, M. Sekine, T. Higushi, and M. Fukagawa (2001). A model for membrane bioreactor process based on the concept of formation and degradation of soluble microbial products. *Water Research* 35(8), 2038–2048.
- Lubello, C., S. Caffaz, R. Gori, and G. Munz (2009). A modified activated sludge model to estimate solids production at low and high solids retention time. *Water Research* 43(18), 4539–4548.
- Ludwig, G. and H. Goldberg (1956). The anthrone method for the determination of carbohydrates in foods and in oral rinsing,. *Journal of Dental Research* 35, 90–94.
- Ludwig, T., D. Gaida, C. Keyzers, J. Pinnekamp, M. Bongards, P. Kern, C. Wolf, and A. L. S. Brito (2012). An advanced simulation model for membrane bioreactors : Development, calibration and validation. *Water Science and Technology* 66 (7), 1384–1391.
- Lyko, S., T. Wintgens, D. Al-Halbouni, S. Baumgarten, D. Tacke, K. Drensla, A. Janot, W. Dott, J. Pinnekamp, and T. Melin (2008). Long-term monitoring of a full scale municipal membrane bioreactor – Characterisation of foulants and operational performance. *Journal of Membrane Science* 317, 78–87.
- Maere, T., B. Verrecht, S. Moerenhout, S. Judd, and I. Nopens (2011). BSM-MBR : A benchmark simulation model to compare control and operational strategies for membrane bioreactors. *Water Research* 45(6), 2181–2190.
- Maere, T., K. Villez, S. Marsili-Libelli, W. Naessens, and I. Nopens (2012). Membrane bioreactor fouling behaviour assessment through principal component analysis and fuzzy clustering. *Water Research* 46(18), 6132–6142.
- Malamis, S. and A. Andreadakis (2009). Fractionation of proteins and carbohydrates of extracellular polymeric substances in a membrane bioreactor system. *Bioresource Technology* 100(13), 3350–3357.
- Mannina, G., G. Di Bella, and G. Viviani (2011). An integrated model for biological and physical process simulation in membrane bioreactors (MBRs). *Journal of Membrane Science* 376(1-2), 56–69.
- Manser, R. b., W. b. Gujer, and H. b. Siegrist (2005). Consequences of mass transfer effects on the kinetics of nitrifiers. *Water Research* 39(19), 4633–4642.
- Marel, P. V. D., A. Zwijnenburg, A. Kemperman, M. Wessling, H. Temmink, and W. van der Meer (2010). Influence of membrane properties on fouling in submerged membrane bioreactors. *Journal of Membrane Science* 348(1-2), 66–74.
- Martin-Garcia, I., V. Monsalvo, M. Pidou, P. Le-Clech, S. Judd, E. McAdam, and B. Jefferson (2011). Impact of membrane configuration on fouling in anaerobic membrane bioreactors. *Journal of Membrane Science* 382(1-2), 41–49.
- Masse, A., M. Sperandio, and C. Cabassud (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.
- Maximous, N., G. Nakhla, and W. Wan (2009). Comparative assessment of hydrophobic and hydrophilic membrane fouling in wastewater applications. *Journal of Membrane Science* 339(1-2), 93–99.

- Meng, F., A. Drews, R. Mehrez, V. Iversen, M. Ernst, F. Yang, M. Jekel, and M. Kraume (2009). Occurrence, source, and fate of dissolved organic matter (DOM) in a pilot-scale membrane bioreactor. *Environmental Science and Technology* 43, 8821–8826.
- Meng, F., B. Liao, S. Liang, F. Yang, H. Zhang, and L. Song (2010). Morphological visualization, componential characterization and microbiological identification of membrane fouling in membrane bioreactors (MBRs). *Journal of Membrane Science* 361(1-2), 1–14.
- Meng, F., H. Zhang, F. Yang, S. Zhang, Y. Li, and X. Zhang (2006). Identification of activated sludge properties affecting membrane fouling in submerged membrane bioreactors. *Separation and Purification Technology* 51(1), 95–103.
- Meng, F., Z. Zhou, B.-J. Ni, X. Zheng, G. Huang, X. Jia, S. Li, Y. Xiong, and M. Kraume (2011). Characterization of the size-fractionated biomacromolecules : Tracking their role and fate in a membrane bioreactor. *Water Research* 45(15), 4661–4671.
- Menniti, A., S. Kang, M. Elimelech, and E. Morgenroth (2009). Influence of shear on the production of extracellular polymeric substances in membrane bioreactors. *Water Research* 43, 4305–4315.
- Menniti, A. and E. Morgenroth (2010a). The influence of aeration intensity on predation and EPS production in membrane bioreactors. *Water Research* 44(8), 2541–2553.
- Menniti, A. and E. Morgenroth (2010b). Mechanisms of SMP production in membrane bioreactors : Choosing an appropriate mathematical model structure. *Water Research* 44(18), 5240–5251.
- Metzger, U., P. Le-Clech, R. M. Stuetz, F. H. Frimmel, and V. Chen (2007). Characterisation of polymeric fouling in membrane bioreactors and the effect of different filtration modes. *Journal of Membrane Science* 301(1-2), 180–189.
- Mishima, I. and J. Nakajima (2009). Control of membrane fouling in membrane bioreactors process by coagulant addition. *Water Science and Technology* 57(7), 1255–1262.
- Miyoshi, T., I. Tanaka, T. Tsuyuhara, E. Watanabe, T. Aizawa, K. Kimura, and Y. Watanabe (2010). Fouling potentials of polysaccharides in membrane bioreactors (MBRs) assessed by lectin affinity chromatography. *Water Science and Technology* 61 (7), 1787–1792.
- Miyoshi, T., I. Tanaka, E. Watanabe, T. Aizawa, K. Kimura, and Y. Watanabe (2010). Fouling potentials of polysaccharides in membrane bioreactors (MBRs) assessed by lectin affinity chromatography. *Water Science and Technology* 61.7, 1787–1792.
- Miyoshi, T., T. Tsuyuhara, R. Ogyu, K. Kimura, and Y. Watanabe (2009). Seasonal variation in membrane fouling in membrane bioreactors (MBRs) treating municipal wastewater. *Water Research* 43, 5109–5118.
- Navaratna, D. and V. Jegatheesan (2011). Implications of short and long term critical flux experiments for laboratory-scale MBR operations. *Bioresource Technology* 102 (9), 5361–5369.
- Ng, H., T. T.W., and S. Ong (2006). Membrane fouling of submerged membrane bioreactors : Impact of mean cell residence time and the contributing factors. *Environment Science and technology* 40, 2706–2713.
- Ng, H. Y. and S. W. Hermanowicz (2005). Membrane bioreactor operation at short solids retention times : Performance and biomass characteristics. *Water Research* 39(6), 981–992.

- Ng, T. C. A. and H. Y. Ng (2010). Characterisation of initial fouling in aerobic submerged membrane bioreactors in relation to physico-chemical characteristics under different flux conditions. *Water Research* 44(7), 2336–2348.
- Ni, B.-J., F. Fang, B. E. Rittmann, and H.-Q. Yu (2009). Modeling microbial products in activated sludge under feast and famine conditions. *Environmental Science and Technology* 43(7), 2489–2497.
- Ni, B.-J., B. E. Rittmann, F. Fang, J. Xu, and H.-Q. Yu (2010). Long-term formation of microbial products in a sequencing batch reactor. *Water Research* 44(13), 3787–3796.
- Ni, B.-J., R. J. Zeng, F. Fang, W.-M. Xie, G.-P. Sheng, and H.-Q. Yu (2010). Fractionating soluble microbial products in the activated sludge process. *Water Research* 44(7), 2292–2302.
- Ognier, S., C. Wisniewski, and A. Grasmick (2004). Membrane bioreactor fouling in sub-critical filtration conditions : A local critical flux concept. *Journal of Membrane Science* 229(1-2), 171–177.
- Okamura, D., Y. Mori, T. Hashimoto, and K. Hori (2009). Identification of biofoulant of membrane bioreactors in soluble microbial products. *Water Research* 43(17), 4356–4362.
- Ouyang, K. and J. Liu (2009). Effect of sludge retention time on sludge characteristics and membrane fouling of membrane bioreactor. *Journal of Environmental Sciences* 21(10), 1329–1335.
- Pan, J., Y.-C. Su, C. Huang, and H.-C. Lee (2010). Effects of sludge characteristics on membrane fouling in membrane bioreactors. *Journal of Membrane Science* 349, 287–294.
- Parlement Européen (2000). Directive 2000/60/CE du parlement européen et du conseil du 23 octobre 2000 établissant un cadre pour la politique communautaire dans le domaine de l'eau, Journal Officiel des Communautés Européennes du 22.12.2000, L327/1-L327/72. Technical report.
- Patsios, S. and A. Karabelas (2011). An investigation of the long-term filtration performance of a membrane bioreactor (MBR) : The role of specific organic fractions. *Journal of Membrane Science* 372(1-2), 102–115.
- Psoch, C. and S. Schiewer (2008). Long-term flux improvement by air sparging and backflushing for a membrane bioreactor, and modeling permeability decline. *Desalination* 230(1-3), 193–204.
- Racault, Y., A.-E. Stricker, A. Husson, and S. Gillot (2011). Monitoring the variations of the oxygen transfer rate in a full scale membrane bioreactor using daily mass balances. *Water Science and Technology* 63(11), 2651–2657.
- Ramdani, A., P. Dold, A. Gadbois, S. Délérís, D. Houweling, and Y. Comeau (2012a). Biodegradation of the endogenous residue of activated sludge in a membrane bioreactor with continuous or on-off aeration. *Water Research* 46(9), 2837–2850.
- Ramdani, A., P. Dold, A. Gadbois, S. Délérís, D. Houweling, and Y. Comeau (2012b). Characterization of the heterotrophic biomass and the endogenous residue of activated sludge. *Water Research* 46(3), 653–668.
- Ramesh, A., D. Lee, and J. Lai (2007). Membrane biofouling by extracellular polymeric substances or soluble microbial products from membrane bioreactor sludge. *Applied Microbiology and Biotechnology* 74(3), 699–707.
- Ras, M., E. Girbal-Neuhauser, E. Paul, M. Spérandio, and D. Lefebvre (2008). Protein extraction from activated sludge : An analytical approach. *Water Research* 42(8-9), 1867–1878.

- Ratkovich, N. b., W. Horn, F. Helmus, S. Rosenberger, W. Naessens, I. Nopens, and T. Bentzen (2013). Activated sludge rheology : A critical review on data collection and modelling. *Water Research* 47(2), 463–482.
- Reid, E., X. Liu, and S. J. Judd (2008). Sludge characteristics and membrane fouling in full-scale submerged membrane bioreactors. *Desalination* 219(1-3), 240–249.
- Rosenberger, S., H. Evenblij, S. Poele, T. Wintgens, and C. Laabs (2005). The importance of liquid phase analyses to understand fouling in membrane assisted activated sludge processes – Six case studies of different european research groups. *Journal of Membrane Science* 263, 113–126.
- Rosenberger, S. and M. Kraume (2002). Filterability of activated sludge in membrane bioreactors. *Desalination* 151(2), 195–200.
- Rosenberger, S., C. Laabs, B. Lesjean, R. Gnirss, G. Amy, M. Jekel, and J.-C. Schrotter (2006). Impact of colloidal and soluble organic material on membrane performance in membrane bioreactors for municipal wastewater treatment. *Water Research* 40, 710–720.
- Santos, A., W. Ma, and S. Judd (2011). Membrane bioreactors : Two decades of research and implementation. *Desalination* 273(1), 148–154.
- Saroj, D. P., G. Guglielmi, D. Chiarani, and G. Andreottola (2008a). Modeling and simulation of membrane bioreactors by incorporating simultaneous storage and growth concept : An especial attention to fouling while modeling the biological process. *Desalination* 221(1-3), 475–482.
- Saroj, D. P., G. Guglielmi, D. Chiarani, and G. Andreottola (2008b). Subcritical fouling behaviour modelling of membrane bioreactors for municipal wastewater treatment : The prediction of the time to reach critical operating condition. *Desalination* 231(1-3), 175–181.
- Schier, W., F.-B. Frechen, and S. Fischer (2009). Efficiency of mechanical pre-treatment on european MBR plants. *Desalination* 236(1-3), 85–93.
- Schraa, O., M. Sarioglu, H. Andres, S. Snowling, and R. Goel (2010). A dynamic model of membrane bioreactors systems for wastewater treatment. *Proceedings of the Water Environment Federation* 5, 151–165.
- Schröder, H., J. Tambosi, R. Sena, R. Moreira, H. José, and J. Pinnekamp (2012). The removal and degradation of pharmaceutical compounds during membrane bioreactor treatment. *Water Science and Technology* 65(5), 833–839.
- Shen, Y., W. Zhao, K. Xiao, and X. Huang (2010). A systematic insight into fouling propensity of soluble microbial products in membrane bioreactors based on hydrophobic interactions and size exclusion. *Journal of Membrane Science* 346, 187–193.
- Shen, Y.-X., K. Xiao, P. Liang, J. yu Sun, S. jie Sai, and X. Huang (2012). Characterization of soluble microbial products in 10 large-scale membrane bioreactors for municipal wastewater treatment in China. *Journal of Membrane Science* 415–416(0), 336–345.
- Sheng, G.-P., H.-Q. Yu, and X.-Y. Li (2010). Extracellular polymeric substances (EPS) of microbial aggregates in biological wastewater treatment systems : A review. *Biotechnology Advances* 28(6), 882–894.

- Shin, H.-S. and S.-T. Kang (2003). Characteristics and fates of soluble microbial products in ceramic membrane bioreactor at various sludge retention times. *Water Research* 37(1), 121–127.
- Siegrist, H. and A. Joss (2012). Review on the fate of organic micropollutants in wastewater treatment and water reuse with membranes. *Water Science and Technology* 66(6), 1369–1376.
- Smith, C., D. DiGregorio, and R. Talcott (1969). The use of ultrafiltration membranes for activated sludge separation. In *Proceedings of the Industrial Waste Conference, Lafayette, Etats-Unis*.
- Song, K.-G., Y. Kim, and K.-H. Ahn (2008). Effect of coagulant addition on membrane fouling and nutrient removal in a submerged membrane bioreactor. *Desalination* 221, 467–474.
- Spérandio, M. and M. C. Espinosa (2008). Modelling an aerobic submerged membrane bioreactor with ASM models on a large range of sludge retention time. *Desalination* 231(1-3), 82–90.
- Spérandio, M., M.-A. Labelle, A. Ramdani, A. Gadbois, E. Paul, Y. Comeau, and P. L. Dold (2013). Modelling the degradation of endogenous residue and 'unbiodegradable' influent organic suspended solids to predict sludge production. *Water Science and Technology* 67 No4, 789–796.
- Stefanski, M., S. Kennedy, and S. Judd (2011). The determination and origin of fibre clogging in membrane bioreactors. *Journal of Membrane Science* 375 (1–2) 198–203, 198–203.
- Stricot, M., A. Filali, N. Lesage, M. Spérandio, and C. Cabassud (2010). Side-stream membrane bioreactors : Influence of stress generated by hydrodynamics on floc structure, supernatant quality and fouling propensity. *Water Research* 44(7), 2113–2124.
- Su, Y., J. Pan, C. Huang, and C. Chang (2011). Impact of sludge retention time on sludge characteristics and microbial community in MBR. *Water Science and Technology* 63(10), 2250–2254.
- Sweity, A., W. Ying, M. S. Ali-Shtayeh, F. Yang, A. Bick, G. Oron, and M. Herzberg (2011). Relation between EPS adherence, viscoelastic properties, and MBR operation : Biofouling study with QCM-D. *Water Research* 45(19), 6430–6440.
- Takacs, I., A.-E. Stricker, S. Achleitner, A. Barrie, W. Rauch, and S. Murthy (2008). Do you know your sludge age. Volume 2008, pp. 3639–3655.
- Tang, S., Z. Wang, Z. Wu, and Q. Zhou (2010). Role of dissolved organic matters (DOM) in membrane fouling of membrane bioreactors for municipal wastewater treatment. *Journal of Hazardous Materials* 178(1-3), 377–384.
- Te Poele, S., J. Roorda, and J. Van Der Graaf (2004). Influence of the size of membrane foulants on the filterability of WWTP-effluent. *Water Science and Technology* 50(12), 111–118.
- Teck, H., K. Loong, D. D. Sun, and J. O. Leckie (2009). Influence of a prolonged solid retention time environment on nitrification/denitrification and sludge production in a submerged membrane bioreactor. *Desalination* 245, 28–43.
- Tian, Y., L. Chen, and T. Jiang (2010). Characterization and modeling of the soluble microbial products in membrane bioreactor. *Separation and Purification Technology In Press, Accepted Manuscript*, –.
- Tian, Y., L. Chen, and T.-L. Jiang (2011). Simulation of a membrane bioreactor system for wastewater organic removal : Biological treatment and cake layer membrane filtration. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 50(2), 1127–1137.

- Tian, Y., L. Chen, S. Zhang, C. Cao, and S. Zhang (2011). Correlating membrane fouling with sludge characteristics in membrane bioreactors : An especial interest in EPS and sludge morphology analysis. *Bioresource Technology* 102(19), 8820–8827.
- Tian, Y. and X. Su (2012). Relation between the stability of activated sludge flocs and membrane fouling in MBR : Under different SRTs. *Bioresource Technology* 118(0), 477–482.
- Tiranuntakul, M., P. Schneider, and V. Jegatheesan (2011). Assessments of critical flux in a pilot-scale membrane bioreactor. *Bioresource Technology* 102(9), 5370–5374.
- Tixier, N., G. Guibaud, and M. Baudu (2003). Determination of some rheological parameters for the characterization of activated sludge. *Bioresource Technology* 90(2), 215–220.
- Trussell, R. S., R. P. Merlo, S. W. Hermanowicz, and D. Jenkins (2006). The effect of organic loading on process performance and membrane fouling in a submerged membrane bioreactor treating municipal wastewater. *Water Research* 40(14), 2675–2683.
- Van Bentem, A., N. Nijman, P. Schyns, and C. Petri (2010). MBR Varsseveld : 3 years of operational experience. *Water Practice and Technology* 5, 1.
- Van den Brink, P., O.-A. Satpradit, A. Van Bentem, A. Zwijnenburg, H. Temmink, and M. Van Loosdrecht (2011). Effect of temperature shocks on membrane fouling in membrane bioreactors. *Water Research* 45(15), 4491–4500.
- Van den Broeck, R., P. Krzeminski, J. Van Dierdonck, G. Gins, M. Lousada-Ferreira, J. Van Impe, J. Van der Graaf, I. Smets, and J. Van Lier (2011). Activated sludge characteristics affecting sludge filterability in municipal and industrial MBRs : Unraveling correlations using multi-component regression analysis. *Journal of Membrane Science* 378(1-2), 330–338.
- Van den Broeck, R., J. Van Dierdonck, P. Nijskens, C. Dotremont, P. Krzeminski, J. Van der Graaf, J. Van Lier, J. Van Impe, and I. Smets (2012). The influence of solids retention time on activated sludge bioflocculation and membrane fouling in a membrane bioreactor (MBR). *Journal of Membrane Science* 401–402(0), 48–55.
- Verrecht, B., S. Judd, G. Guglielmi, C. Brepols, and J. W. Mulder (2008). An aeration energy model for an immersed membrane bioreactor. *Water Research* 42(19), 4761–4770.
- Verrecht, B., T. Maere, I. Nopens, C. Brepols, and S. Judd (2010). The cost of a large-scale hollow fibre MBR. *Water Research* 44 (18), 5274–5283.
- Villain, M. and B. Marrot (2013). Influence of sludge retention time at constant food to microorganisms ratio on membrane bioreactor performances under stable and unstable state conditions. *Bioresource Technology* 128(0), 134–144.
- Wang, P., Z. Wang, Z. Wu, Q. Zhou, and D. Yang (2010). Effect of hypochlorite cleaning on the physiochemical characteristics of polyvinylidene fluoride membranes. *Chemical Engineering Journal* 162(3), 1050–1056.
- Wang, X., J. Qian, X. Li, K. Chen, Y. Ren, and Z. Hua (2012). Influences of sludge retention time on the performance of submerged membrane bioreactors with the addition of iron ion. *Desalination* 296(0), 24–29.
- Wang, Z., Z. Wu, X. Yin, and L. Tian (2008). Membrane fouling in a submerged membrane bioreactor (mbr) under sub-critical flux operation : Membrane foulant and gel layer characterization. *Journal of Membrane Science* 325(1), 238–244.

- Wang, Z.-P. and T. Zhang (2010). Characterization of soluble microbial products (SMP) under stressful conditions. *Water Research* 44(18), 5499–5509.
- Wei, C.-H., X. Huang, R. B. Aim, K. Yamamoto, and G. Amy (2011). Critical flux and chemical cleaning-in-place during the long-term operation of a pilot-scale submerged membrane bioreactor for municipal wastewater treatment. *Water Research* 45(2), 863–871.
- Wintgens, T., J. Rosen, T. Melin, C. Brepols, K. Drensla, and N. Engelhardt (2003). Modelling of a membrane bioreactor system for municipal wastewater treatment. *Journal of Membrane Science* 216, 55–65.
- Wintgens, T., J. Rosen, T. Melin, C. Brepols, K. Drensla, and N. Engelhardt (2003). Modelling and simulation of filtration performance in membrane bioreactor systems for municipal wastewater treatment. *Water Science and Technology : Water Supply* 3 (5-6), 267–273.
- Wu, B., T. Kitade, T. H. Chong, T. Uemura, and A. G. Fane (2012). Role of initially formed cake layers on limiting membrane fouling in membrane bioreactors. *Bioresource Technology* 118(0), 589–593.
- Yang, X.-L., H.-L. Song, M. Chen, and B. Cheng (2011). Characterizing membrane foulants in MBR with addition of polyferric chloride to enhance phosphorus removal. *Bioresource Technology* 102(20), 9490–9496.
- Yao, M., K. Zhang, and L. Cui (2010). Characterization of protein-polysaccharide ratios on membrane fouling. *Desalination* 259(1-3), 11–16.
- Ye, Y., V. Chen, and A. Fane (2006). Modeling long-term subcritical filtration of model EPS solutions. *Desalination* 191(1-3), 318–327.
- Yigit, N., G. Civelekoglu, I. Harman, H. Koseoglu, and M. Kitis (2009). Effects of various backwash scenarios on membrane fouling in a membrane bioreactor. *Desalination* 237(1-3), 346–356.
- Zarragoitia, A., S. Schetrite, M. Alliet, U. Jquregui-Haza, and C. Albasi (2008). Modelling of submerged membrane bioreactor : Conceptual study about link between activated sludge biokinetics, aeration and fouling process. *Journal of Membrane Science* 325, 612–624.
- Zhang, H.-F., B.-S. Sun, X.-H. Zhao, and Z.-H. Gao (2008). Effect of ferric chloride on fouling in membrane bioreactor. *Separation and Purification Technology* 63(2), 341–347.

ANNEXES

Annexe A

Protocole expérimental pour détecter la présence d'une activité biologique déphosphatante

Protocole pour vérifier la présence de bactéries accumulatrices de phosphates dans une boue issue de station d'épuration

Le graphique suivant décrit de façon qualitative les évolutions des différentes espèces en jeu lors des deux phases de l'expérimentation, ainsi que les principales étapes opératoires.

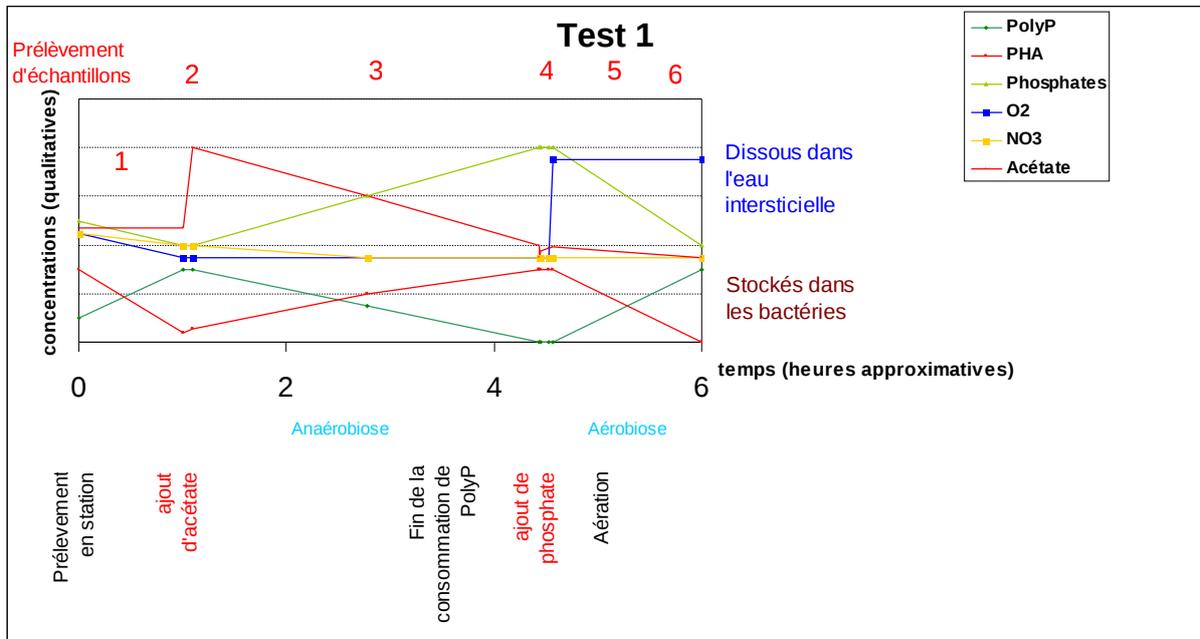


Figure 1 : Evolutions qualitatives des principaux composants de la boue dans le cas de la présence de PAO

Schéma de l'installation à préparer :

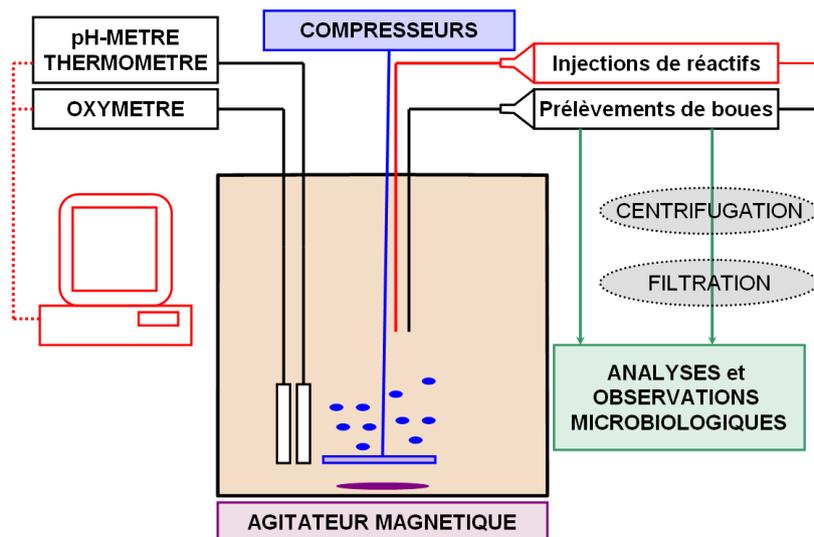


Figure 2 : Schéma de l'installation

Matériel :

S'assurer également d'avoir le matériel nécessaire à l'expérience :

- 1 seau avec une corde
- 1 bidon (10L)
- Réacteur prévu à cet effet, équipé de :
 - deux aérateurs (tubes en céramique poreux d'environ 10cm de long, à brancher sur les tuyaux d'air et à fixer grâce à des ventouses sur le support immergé)
 - un agitateur magnétique avec un barreau adapté.
- 2 compresseurs d'air
- Sonde à oxygène
- Sonde pH – température
- Système d'enregistrement des données
- Seringue avec un petit tuyaux flexible (15cm) pour les prélèvements et un embout vissable sur les filtres
- Eau déminéralisée en pissette
- Centrifugeuse, programmée pour des séquences de 10 minutes à 10 000g.
- 7 filtres Whatmann PTFE 0.45µm
- flacon de 200 mL pour le prélèvement pour le labo : MES et Phosphore total.
- 1 fiole jaugée 50mL
- Micropipette 5mL
- 10 piluliers
- 2 bécher (un pour l'acide, un pour faire tremper les sondes)
- 1 pipette
- 1 marqueur
- Cahier de labo
- Incubateur Dr Lange
- Spectromètre Dr Lange
- Tubes MicroMéthodes Dr Lange :
 - Fer (à conserver au frigo)
 - 8 tubes PT-PO4, plus du rabe en cas de mauvaise dilution
 - 2 tubes Nitrates
- Multi-prises
- Balance de précision (0.1mg)
- Réactifs :
 - Acétate de sodium
 - Dihydrogénophosphate de potassium

Protocole :

La veille :

- Préparation des réactifs (environ 10 min) :
 - o 1 pilulier avec 1.39g d'acétate de sodium. Marquer « NaAc » sur le pilulier
 - o 1 pilulier avec 439.1mg de di hydrophosphate de potassium. Marquer « KH₂PO₄ » sur le pilulier
 - o Solution d'acide dilué (la même que pour le pilote de nitrification : un bécher de 100mL devrait suffire) avec une pipette.

- Préparation du matériel (environ 1h) :
 - o Mettre le réacteur sur l'agitateur
 - o Mettre les tubes poreux à leur emplacement, brancher les compresseurs
 - o Calibrer la sonde à oxygène, puis la faire tremper dans un bécher d'eau (avec le capuchon contenant une éponge imbibée)
 - o Calibrer la sonde pH, puis la faire tremper dans le bécher d'eau (avec le capuchon contenant un fond de KCl (chlorure de potassium))
 - o S'assurer qu'il y a suffisamment de prises (8) pour brancher :
 - Les deux compresseurs
 - La sonde pH
 - L'agitateur
 - L'enregistreur
 - L'incubateur Dr Lange
 - Le spectromètre Dr Lange
 - La centrifugeuse
 - o Préparer une pissette d'eau déminéralisée
 - o Programmer l'enregistreur pour acquérir O₂, pH et T, toutes les 30s
 - o Préparer les flacons et les lames (et les nommer)
 - 1 flacon 200mL : MES-MVS-PT-Fer
 - 7 piluliers surnageant
 - 3 lames de 10 cuvettes
 - o Installer le rotor de la centrifugeuse avec 2 tubes
 - o Préparer une page du cahier de suivi avec les colonnes suivantes :

Heure	T	pH	O ₂	Prélèvement	Injection de réactif	Autres
hh :mm	°C		mgO ₂ /L	Description du prélèvement (volume, prétraitements et analyses effectuées)	Description de l'injection (volume, quantité de l'espèce injectée...)	Commentaires, marche/arrêt des sondes, des compresseurs...

Le jour même :

- T=8h :

1. Prélever 7L de boues dans le bassin d'aération
 2. Réserver 200mL pour la mesure de MES, MVS et pour la mesure de Phosphore total et Fer
 - Ech. MES-MVS-PT-Fer
 3. Mettre 50mL de boue dans un des tubes de la centrifugeuse, le placer dans l'emplacement 1.
- t=8h30 :
1. Remplir le réacteur avec 5L de boue (bien agiter avant de remplir pour éviter la décantation)
 2. Mettre l'agitation en marche
 3. Refermer le réacteur, et mettre en place les sondes O₂ et pH-T
 4. Mettre le programme d'acquisition en marche.
 5. 1^{er} Prélèvement 50mL pour l'analyse de PO₄, de nitrates. Centrifuger, filtrer.
 - Ech. Surnageant 1
 6. Compléter avec 50mL de boues (essayer au mieux de bien agiter les boues avant de compléter).
 7. **Prélèvement pour la microbiologie : 5mL d'échantillon dans un pilulier**
 - **Préparer la lame 1 et mettre à l'étuve**
- t=9h30 :
1. Injecter l'acétate : vider le pilulier d'acétate de sodium (NaAc), le rincer à l'eau déminéralisée pour s'assurer que tout l'acétate de sodium est dans le réacteur.
 2. 2^{ème} Prélèvement 50mL pour analyses de nitrates et PO₄, centrifuger et filtrer
 - Ech Surnageant 2
 2. **Faire les analyses de MES, MVS, PT, fer sur l'échantillon «MES-MVS-PT-Fer »**
 - **Attention ! : Pour le PT : dilution nécessaire (1:10)**
- t=11h :
1. 3^{ème} Prélèvement pour analyses de PO₄. Centrifuger et filtrer
 - Ech Surnageant 3
 3. **faire les analyses P-PO₄ des trois premiers échantillons de surnageant centrifugés et filtrés.**
 - **Attention ! : Pas de dilution pour les 2 premiers, Dilution 1:5 pour l'échantillon 3**
 4. **Faire les analyses N-NO₃ des échantillons 1 et 2**
- t=13h :
1. 4^{ème} prélèvement pour analyses de PO₄. Centrifuger et filtrer
 - Ech Surnageant 4
 2. Injecter les phosphates : vider le pilulier « KH₂PO₄ » dans le réacteur, le rincer à l'eau déminéralisée pour s'assurer que tout le contenu est dans le réacteur.
 3. Brancher les 2 compresseurs (commencer avec les deux compresseurs, puis continuer avec un seul si ça suffit pour maintenir un bon niveau d'aérobiose (>3mgO₂/L))
 4. **Prélèvement pour la microbiologie : 5mL d'échantillon dans un pilulier**
 - **Préparer la lame 2 et mettre à l'étuve**
 5. C'est à partir de ce moment que le pH de la boue est susceptible d'augmenter (une unité en 1h environ). Il faut donc veiller à ce qu'il ne monte pas au delà de 7.5). Dans le cas où le pH monte, ajouter par petites doses de l'acide sulfurique jusqu'à atteindre un pH de 7.
 6. Vérifier le pH, le corriger le cas échéant
- t=14h30 :

1. 5ème prélèvement pour analyses de PO4. Centrifuger et filtrer.
 - Ech. Surnageant 5.
 2. Vérifier le pH, le corriger le cas échéant
- t=16h :
1. 6ème prélèvement pour analyses de PO4 Centrifuger et filtrer.
 - Ech. Surnageant 6.
 2. Vérifier le pH, le corriger le cas échéant
 3. faire les analyses P-PO4 des échantillons de surnageant centrifugés et filtrés 4, 5 et 6.
 - Attention ! : Dilution 1:5
- t=18h :
1. 7ème prélèvement pour analyses de PO4 Centrifuger et filtrer.
 - Ech. Surnageant 7.
 2. Prélèvement pour la microbiologie : 5mL d'échantillon dans un pilulier
 - Préparer la lame 3 et mettre à l'étuve
 5. faire l'analyse P-PO4 de l'échantillon centrifugé et filtré 7.
 - Attention ! : Dilution 1:5
- Arrêt de l'expérience si le PO4 consommé est supérieur au PO4 relargué pendant la phase anaérobie.

Conclusion – exploitation des résultats :

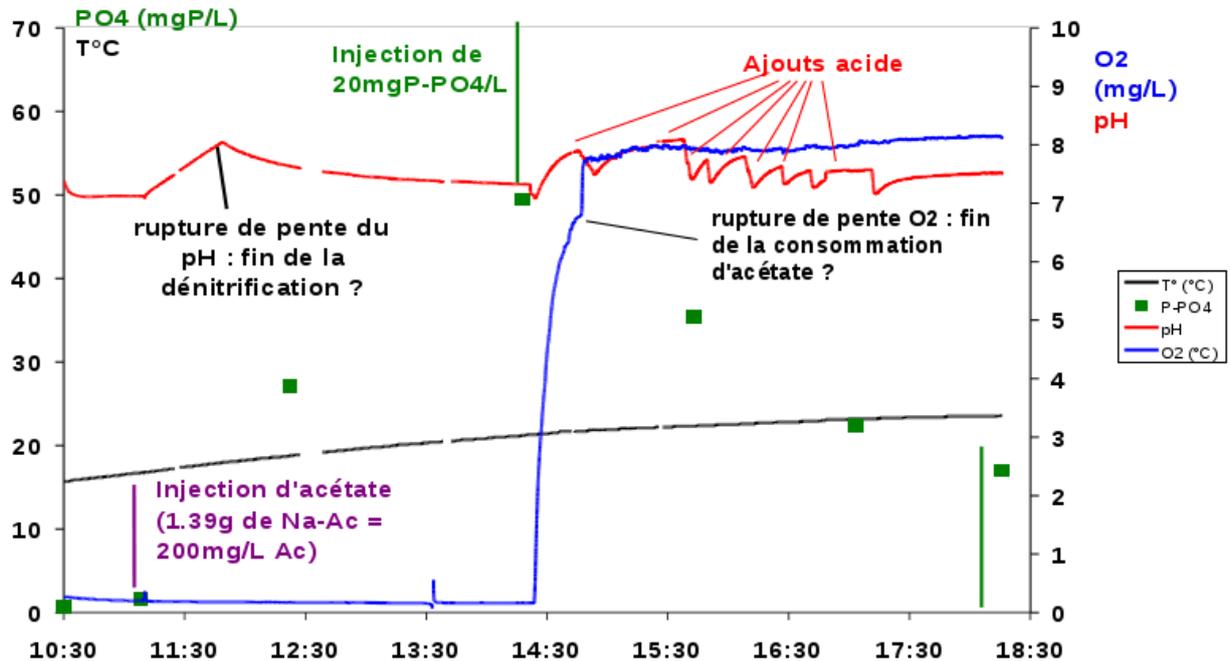
- Importer dans un tableur (Excel) dans le même tableau les données de l'oxymètre et du pH-mètre.
- Ajouter une colonne pour la concentration en phosphates, la remplir (ne pas oublier de mettre un point qui représente l'ajout dosé)
- ajouter une colonne pour noter les différents événements (ajouts d'acétate, détails du cahier de labo...)
- Si le temps le permet, on peut ensuite observer les évolutions en traçant des courbes.

Annexe B

Résultats de mesure d'activité déphosphatante : deux exemples

Résultats du protocole de déphosphatation : 1^{er} exemple : Cestas

Le graphe suivant montre les résultats de l'expérience testée sur des boues issues de la station d'épuration de Cestas (33).

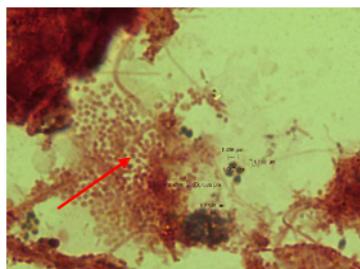


En effet, on observe clairement une augmentation de la concentration en phosphates après l'injection d'acétate (utilisation des polyphosphates stockés pour assimiler l'acétate), puis une baisse de cette concentration après le début de la phase aérobie (stockage des phosphates).

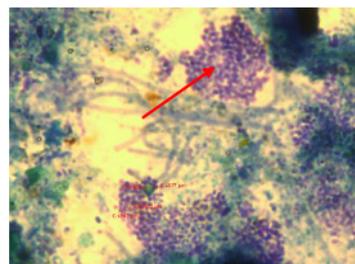
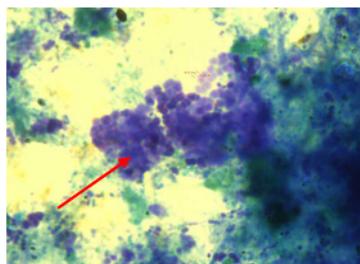
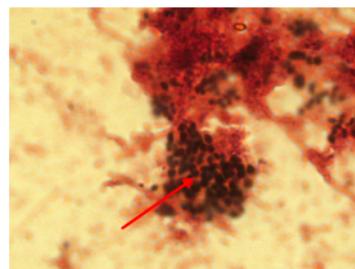
Confirmation par des observations microscopiques :

On constate la formation de granules de PHB pendant la phase anaérobie (photos du haut, coloration rouge), ainsi que la diminution de la taille des granules de polyphosphates (photos du bas, coloration bleue). Ce comportement est caractéristique des bactéries suraccumulatrices de phosphates

Début d'anaérobiose



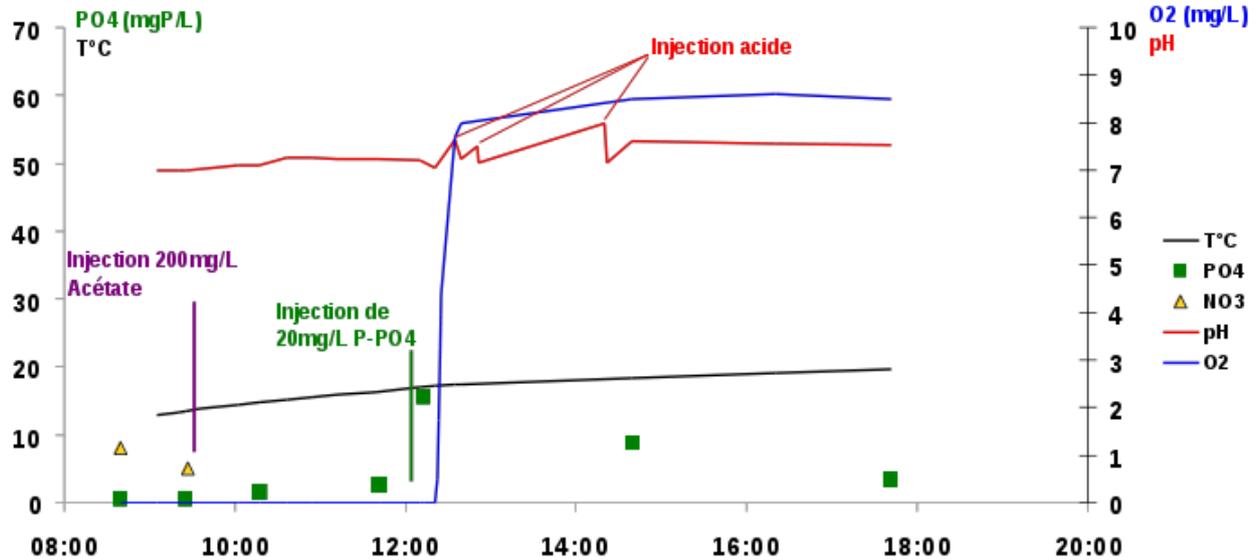
Fin d'anaérobiose



Conclusion : Il y a développement d'une population de PAO dans cette station d'épuration. Elle comporte probablement des zones mortes (anaérobiose ?) car les bassins sont rectangulaires et agités par des turbines centrales.

Résultats du protocole de déphosphatation : 2^{ème} exemple : BRM étudié

Le graphe suivant montre les résultats de l'expérience testée sur des boues de la station d'épuration étudiée pendant la thèse.

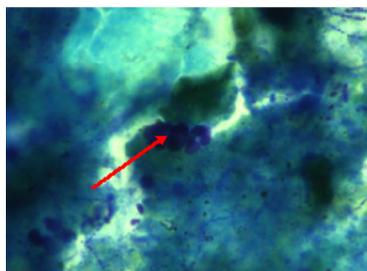


L'injection d'acétate ne semble pas provoquer de relargage de phosphates. De plus les variations de la concentration en phosphates sont beaucoup moins importantes que dans le premier exemple, ce qui traduirait une absence de granules de polyphosphates.

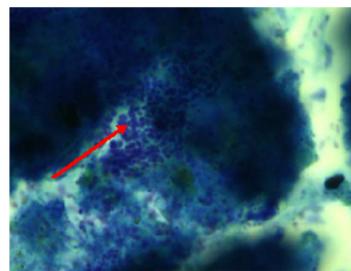
Confirmation par des observations microscopiques :

Sur la figure suivante, les granules de PHB ne sont pas représentés car l'examen des lames n'a pas permis d'en trouver. De plus il faut prendre en considération que les images montrées ont été plus difficiles à trouver, et sont donc moins représentatives du contenu global de la boue. Ces observations sont donc mitigées, mais l'absence de PHB porte à croire qu'il n'y a pas (ou peu) de PAO dans cet échantillon.

Début d'anaérobiose



Fin d'anaérobiose



Conclusion : La présence d'une activité biologique déphosphatante est moins évidente que pour le premier exemple. Une zone d'anaérobiose a été prévue par les constructeurs, cependant le temps de passage réduit (30 minutes), ainsi que les retours en tête d'oxygène dissous depuis les bassins d'aération peuvent empêcher les processus anaérobiose de se développer. De plus, la suraccumulation biologique peut être concurrencée par les injection de chlorure ferrique.

Annexe C

Application de la modélisation statistique de la perméabilité aux données issues d'un autre BRM

Statistical study of fouling in a full-scale flat sheet membranes MBR: Impact of operational variables and prediction of long-term permeability evolutions.

1. Materials and methods

a. Materials

i. MBR presentation

A MBR plant in Britain area designed for 7000 P.E was monitored for 1.5 year. Raw wastewater is sieved (0.75mm). The mixed liquor from the biological treatment train (anoxic and aerobic tanks) is filtered in two membrane tanks (MTs) by 20 racks of Kubota flat-sheet membranes (total: 3200m²). Permeate suction is gravitational, and flow is regulated with settable valves on the basis of water level in MTs.

Regeneration cleanings are performed two or three times a year.

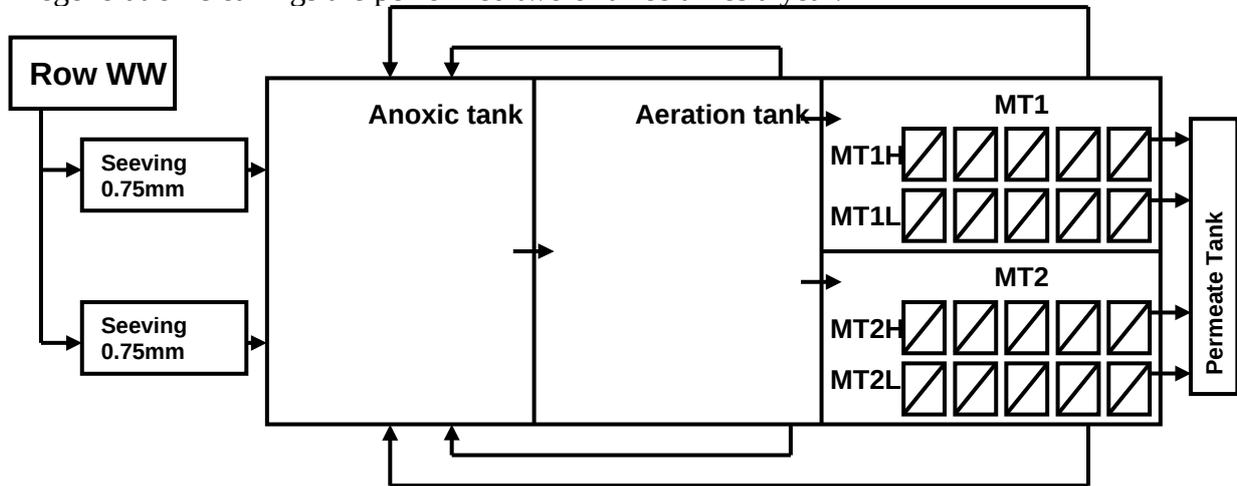


Figure 1: layout of the MBR

ii. Data acquisition

TMP and flux are measured on permeate tubes every 15s. Two datasets are measured on each MT: lower membranes and upper membranes. During the monitoring period (January 2008 to July 2009), additional online sensors were set up in the influent, effluent streams to monitor COD, nitrogen (NH₄, NO₃) and TSS, and in the biological tanks to monitor MLSS, DO and pH. Sampling enhanced the setup for probe calibration and additional analysis (BOD₅, TKN, NO₂, TP, PO₄). The samples were analysed using the French or European standard methods (NF-EN) in the Irstea laboratory, and on site using rapid test kits. Temperature, sludge wastage, ferric chloride dose, equipment operation logs etc come from plant's existing data acquisition system.

Figure 2 show the variations of the 14 operational variables used in this study. The majority of them are the same for the four membrane units, and SADm, J_{mean}, Filtration time and Cumulative permeate flow are specific (but similar) for each membrane units.

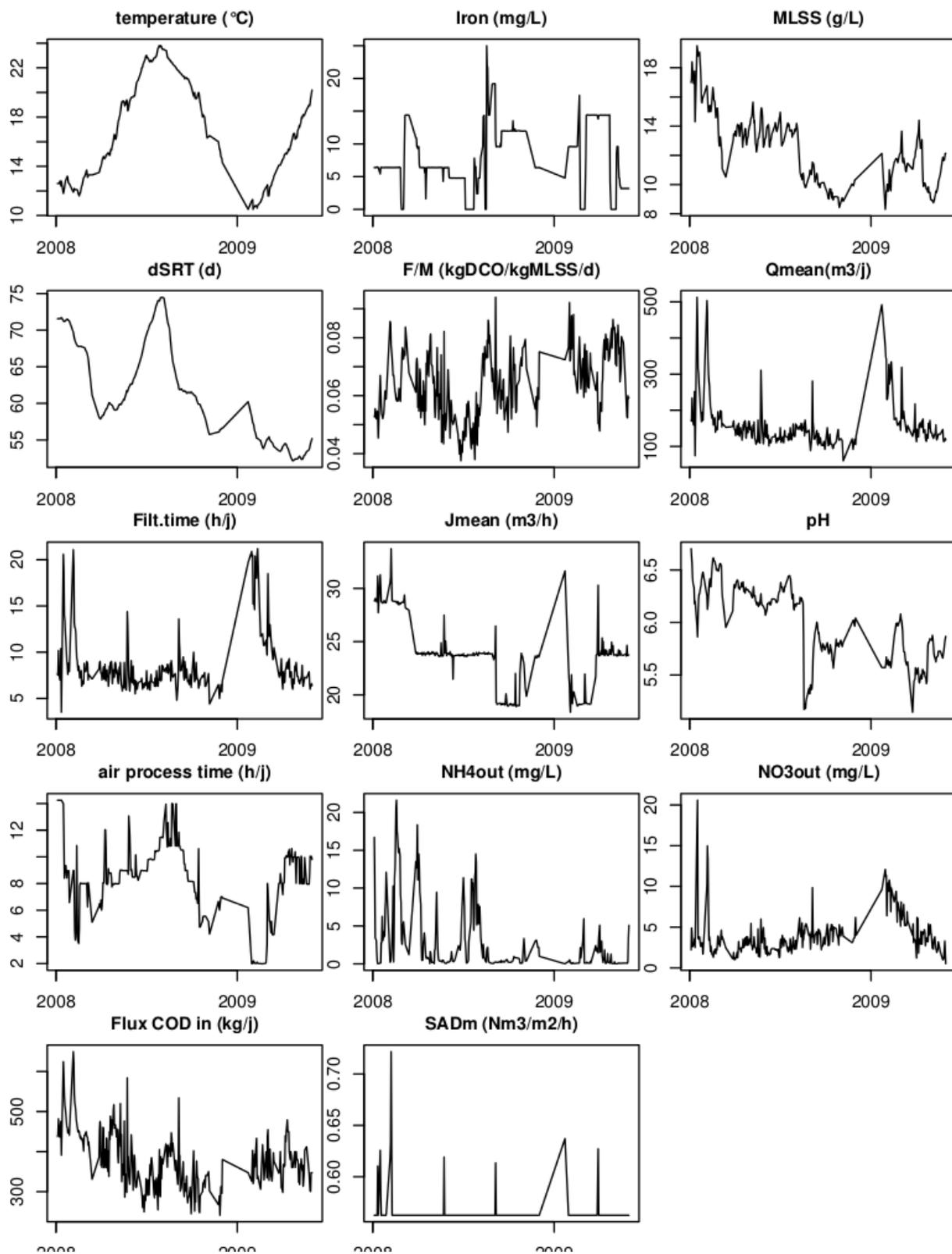


Figure 2: operational variables

iii. Pretreatment

A program has been developed with the R language (R development Core Team, 2009) to isolate stable flux-steps and remove TMP stabilization phases for permeability calculation. About 25% of total time could finally be selected for permeability calculation. Permeability (L_p , LMH/bar) was calculated according to the following equation:

$$L_p = \frac{\mu_p}{\mu_p^{20}} \cdot \frac{J}{\text{TMP}_{\text{measure}} - \text{TMP}_0 - \alpha J^2 L_{\text{tube}}}$$

Where μ_p is the permeate viscosity at sludge temperature, μ_p^{20} is the permeate viscosity at 20°C, α is a head-loss coefficient in permeate tubes between membranes and TMP sensors (it was neglected in this case), TMP_0 is the residual TMP during relaxation phases and assimilated to a pressure sensor drift.

b. Fouling indicators calculation

Two type of fouling indicators were calculated: short term ones that correspond to permeability behaviour on a flux-step or during one relaxation phase and long term ones that correspond to long-term (daily) evolutions.

i. Short-term fouling and fouling reversibility indicators : iPE and iRel

Two short-term indicators were calculated.

iPE (instantaneous permeability evolution): on each flux-step, a time-linear regression is performed on permeability. iPE is then calculated as the daily average of the permeability slopes (LMH/bar/s). It represents short-term fouling, often associated with particles deposition on membrane surface.

iRel (impact of relaxations on permeability): When permeability can be calculated less than 2 min before and after a relaxation sequence, the difference between the two values is an indicator of the relaxation efficiency. iRel is then calculated as the daily average of this indicator. It represents a part of the physically reversible fouling which may include loosely attached cake.

ii. Daily permeability evolution: dPE

dPE is the daily evolution of permeability it is calculated as the difference between permeability daily average between day d+1 and day d. It represents numerical derivative of the long-term permeability drift.

c. Statistical methods

Two statistical methods are used to establish different kinds of links between operational variables and fouling indicators. These two methods are used in order dissociate the impact of input variables that are correlated in our input dataset on fouling indicators.

i. Principal Component Analysis : PCA

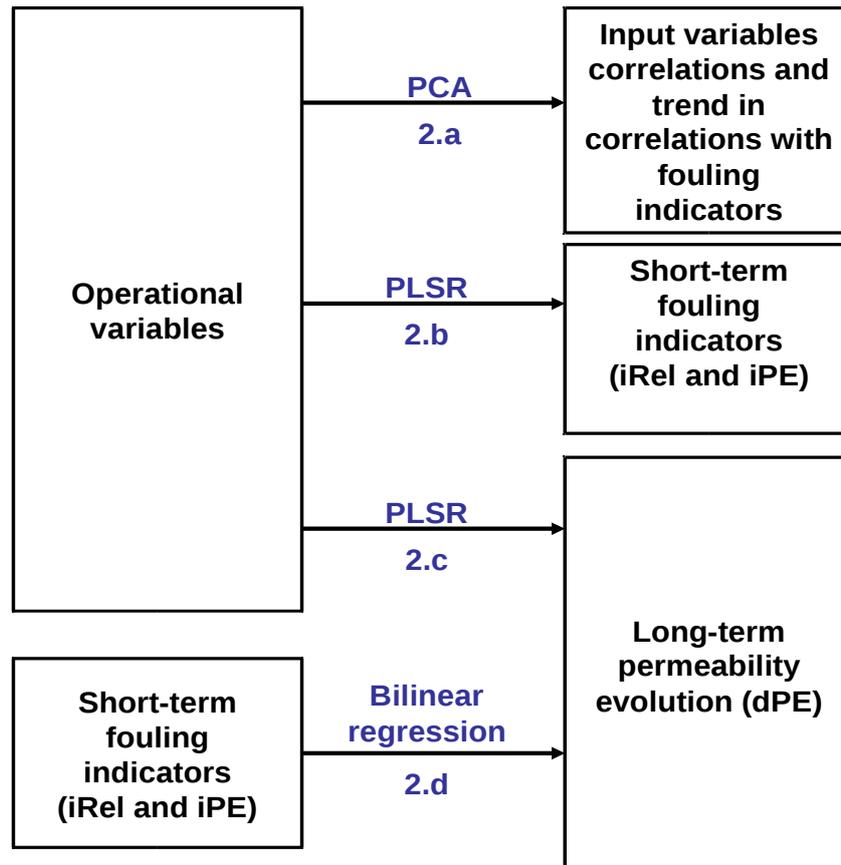
Principal components analysis allows mapping input and output variables. The dataset is projected in a new orthogonal frame of references (components), which allows to represent the majority of the variations of the dataset on a limited number of axes.

ii. Partial least square regression: PLSR

PLSR, is a multilinear regression, based on components (not orthogonal) built to maximize total variance of data-set in a minimal number of independent components, components used are calculated to maximize both output variable representation and input variables representation.

d. Statistical approaches

These regression methods have been used in different ways to study and model the behavior of membranes during the monitoring period.



i. Correlations between input variables : PCA

In order to have a insight into correlations between operational variables, a PCA was performed on the initial dataset. This statistical methods allows to show on the same graph the links between the whole dataset, by their projection on orthogonal components that gather the majority of total variance of dataset.

ii. Correlations between operational variables and short-term fouling indicators (PLSR)

Partial least square regression was used to evaluate the impact of the different operational variables on dPE. This approach aims at determining which operational variable have an impact on these indicator, but not a predictive aim.

iii. Modeling dPE with operational variables (PLSR)

dPE can be estimated by a multilinear regression on partial least square components. Then permeability is calculated by iteration assuming the following equation:

$$dPE = L_{p,d+1} - L_{p,d} = \sum a_i \cdot X_i$$

Where X_i are the operational variables at day d , and a_i are the coefficients from the statistical method used and calculated with data from the whole dataset (if no validation is performed) or from a partial dataset (calibration period).

The main point of this method is to assess if global trends in the input dataset (trends are represented by first principal components) are leading the long term permeability evolutions. A difficulty with this method is to understand which constituent of each component leads the evolution of permeability. In this study, the 4 first components are used to model the permeability evolution.

iv. Modeling dPE with iPE and iRel

A simple bilinear regression to evaluate the effect of iPE and iRel on dPE is performed. Coefficients of the bilinear regression are then applied as the a_i and iPE and iRel as the X_i .

2. Results

a. **Links between operational variables themselves : Results of PCA**

In this part, only results about data concerning MT1H are presented because operating variables and results are quite similar for the three other membrane groups.

Figure 3 shows that the total variance of the input dataset is mainly represented by the first two components.

Figure 4 (left) shows that an axis that contains Temperature, filtration time, effluent nitrate concentration, influent COD specific charge, cumulated flow and SAD_m is decoupled from an axis that contains iron dose, MLSS, mean flow during filtration, pH, effluent ammonium, dSRT and air process time. Specific COD charge and charge are not highly correlated because TSS concentration is highly variable during monitoring. This shows that operational variables are highly dependant, and indicates which ones should be evaluated carefully to take these correlation into account for the interpretation of results.

Fouling indicators have been added in this PCA. We can state here that they are poorly represented by the two first components. Figure 4 (right) shows that dPE, iRel and iPE are better represented by the components 3 and 4. iPE and iRel seems to be inversely correlated with dSRT, temperature and iron dose. dPE seems to be better represented by filtration time, mean flux and effluent nitrate.

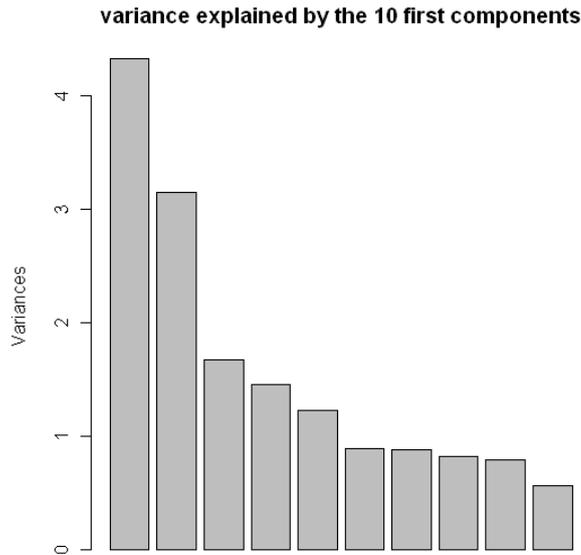


Figure 3: part of total variance explained by the ten first components (MT1H)

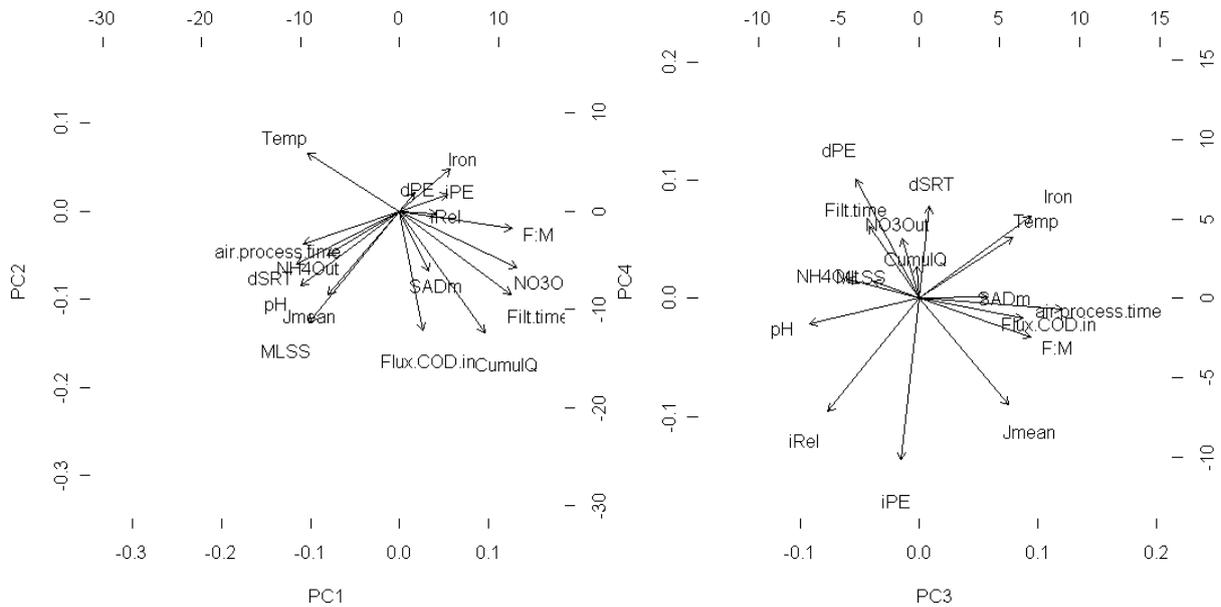


Figure 4: projection of variables on PC1 and 2 (left) and on PC3 and 4 (right) (MT1H)

b. Operational variables VS short-term fouling indicators

A PLSR performed between operational variables and each of the short-term fouling indicators doesn't show clear correlation between them. Surprisingly, this method doesn't show significant correlations between flux or aeration intensity and instantaneous permeability evolution. The main variables that determine iPE are cumulated flow and

filtration time. Fouling seems to be also correlated with temperature, COD in influent and F:M.

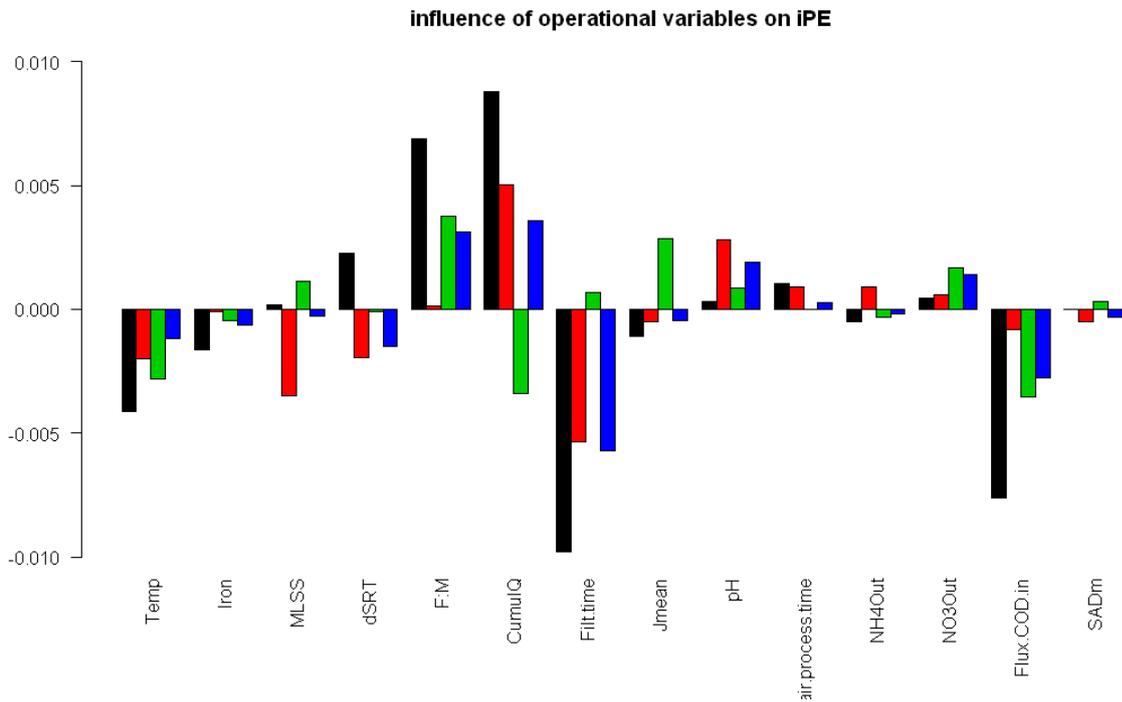


Figure 5: impact of operational variables on iPE

The reversibility of fouling seems to be also determined by cumulated flow and filtration time. Flux has a positive impact on reversibility, while MLSS and SRT a negative one.

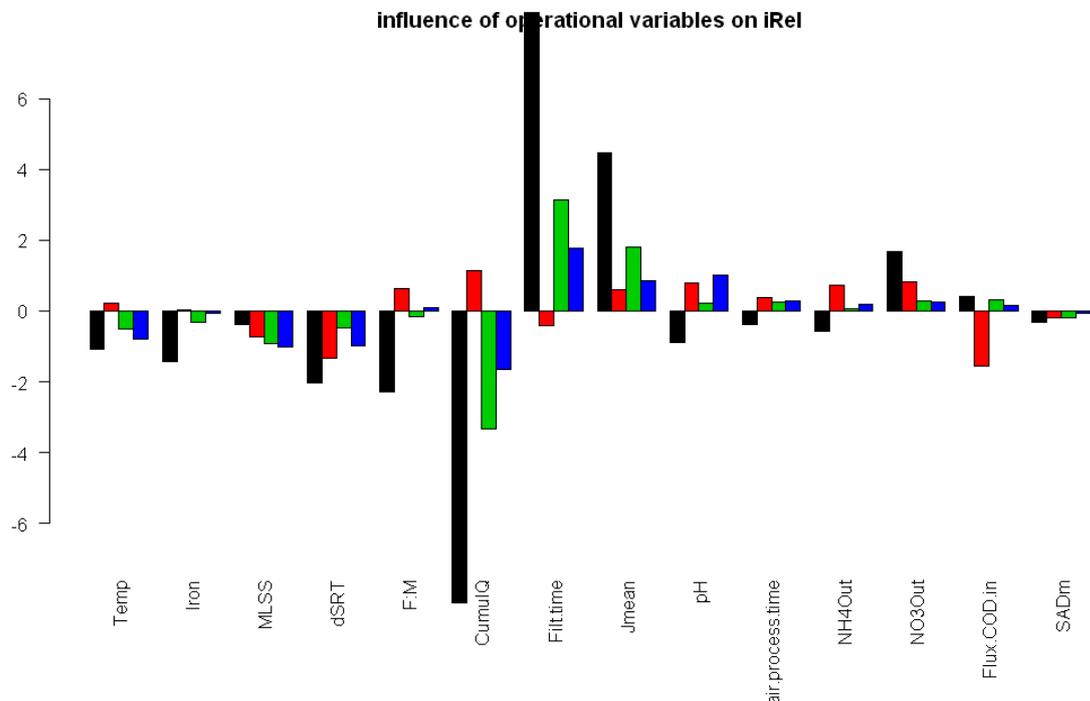


Figure 6: impact of operational variables on iRel

The correlation between Jmean and iRel indicates that high flux leads to reversible fouling.

c. Prediction of long-term trends with operational variables (PLSR)

For the majority of operational variables, no clear impact on dPE is observed (Figure 7). As expected, one of the variables that seems to have the most important impact on permeability is the permeate volume filtered during each day. Variables linked to the biological process in the MBR seem also to be key players in permeability evolution: influent loading rate and process aeration time, and especially F:M ratio, COD flux in influent, biological aeration time. An interpretation of this result would be that high process organic loading rate can be beneficial for filtration, but when C_m is low (i.e when MLSS is high).

Surprisingly, SAD_m and J_{moy} seem to have a minor impact, while positive as we could expect. High MLSS concentration seems to enhance membrane fouling (minor effect). Another surprise come from pH, that seem to not impact fouling significantly, while its variation range is between 5 and 7, which is relatively wide.

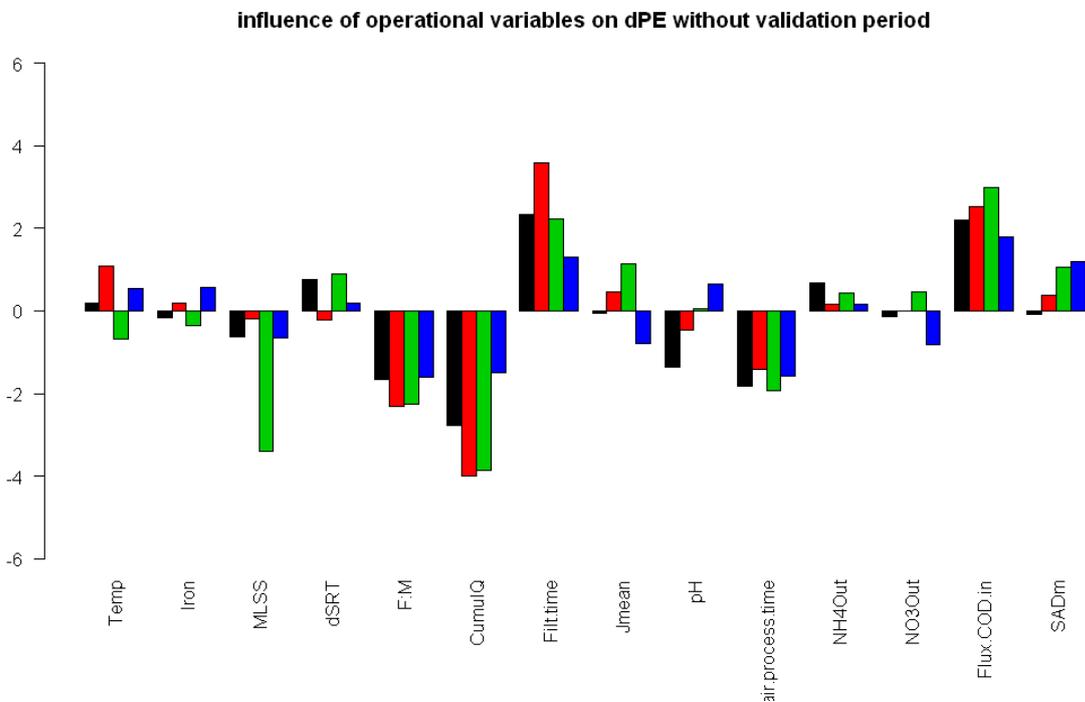


Figure 7: influence of operational variables on dPE

These sets of coefficients allow to model long-term permeability evolutions. To obtain this prediction, permeability was re-initialized to its measured value after each regeneration cleaning. A global observation of the result shows that fitted model allow to simulate a permeability signal relatively close to the reality (Figure 8). However, the slopes observed at the end of 2008 on MT1H and MT1L are not well modeled. It is probably due to some errors of operation during the previous regeneration cleaning, that had a negative impact on fouling reversibility.

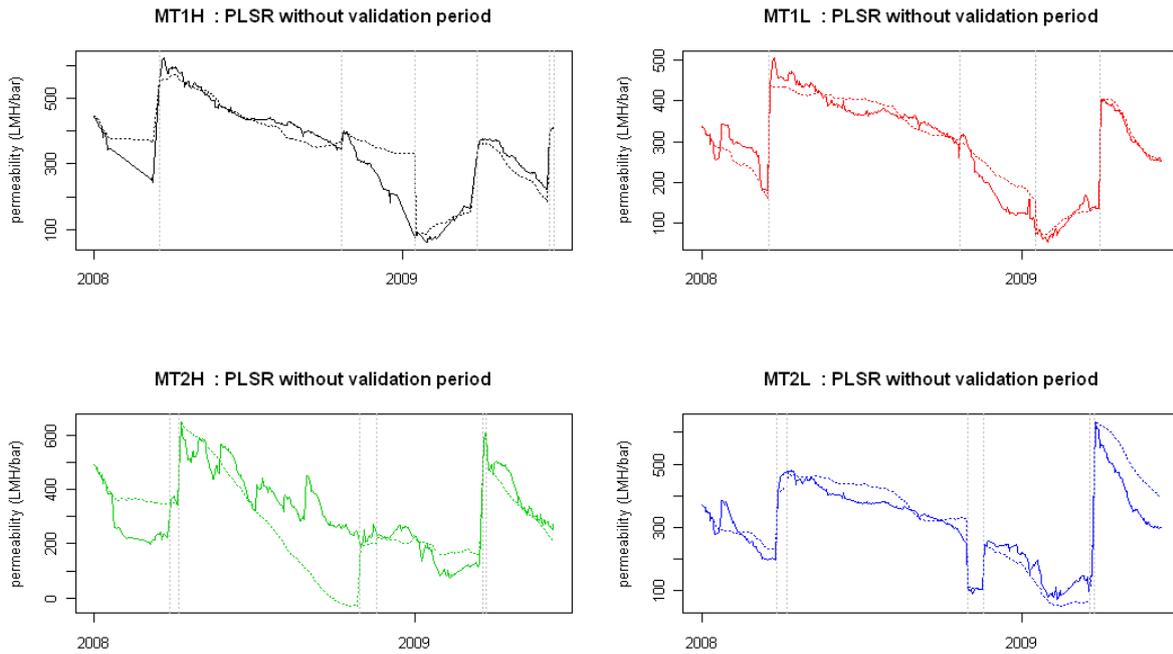


Figure 8: Long-term permeability evolution (plain) and PLSR model (dotted lines)

To assess the validity of model, an attempt of calibration/validation was made. Figure 9 shows that results obtained with a calibration of 300d on the four MTs. The model fitted on MT1H (and at a lesser extent on MT2L) during the 300 first days was able to predict permeability evolution during the end of period, while some important drifts were observed on MT1L and MT2H. These drifts can be explained by an over-estimation of the positive impact of filtration time on dPE (Figure 10). During beginning of 2008, filtration time was high, due to a high hydraulic loading, that lead to an important permeability jump in predicted values for both MT1L and MT2H.

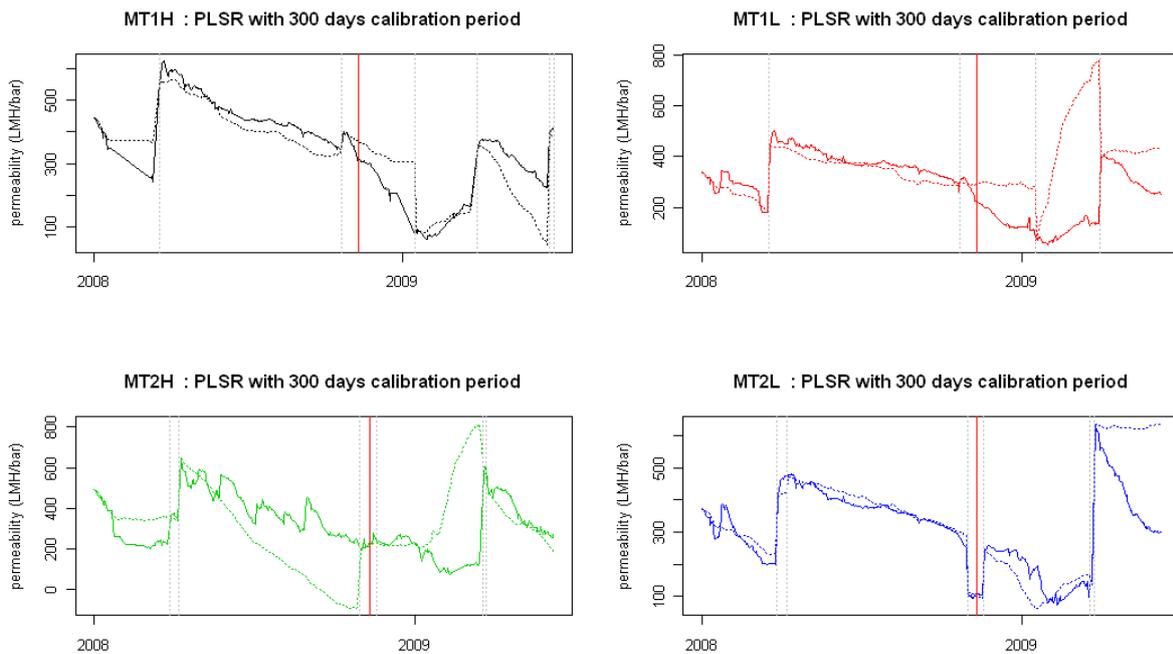


Figure 9: modelisation with calibration period (left of red lines) and validation period (right of red line)

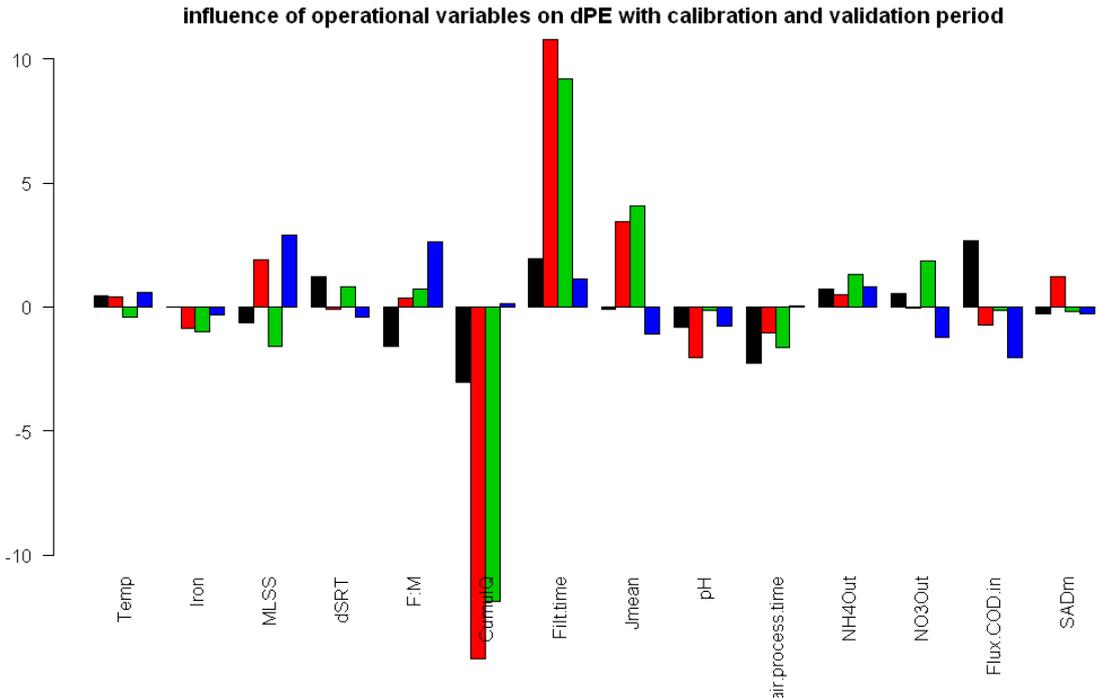


Figure 10: coefficients found with PLSR during the 300 first days (calibration period)

d. Prediction of long-term trends with iPE and iRel (bilinear regression : method 2.d)

The aim of this last approach was to evaluate the impact of measured short-term behaviour (instantaneous fouling during filtration and permeability gain during relaxation) on the daily permeability drift. Table 1 presents the coefficients obtained in the bilinear regressions for prediction of dPE on the basis of iRel and iPE. Even if overall, this method is able to predict the main trend (decrease), the positive permeability evolutions are hardly never predicted. It results in a useless prediction.

Table 1: Coefficients used in the bilinear regression for prediction of dPE on the basis of iRel and iPE

	intercept	iPE	iRel
MT1H	-0.74	-111	0.0069
MT1L	-0.74	-79	0.031
MT2H	-2.82	264	0.062
MT2L	-1.23	-12	0.068
Mean	-1.38	15.4	0.042

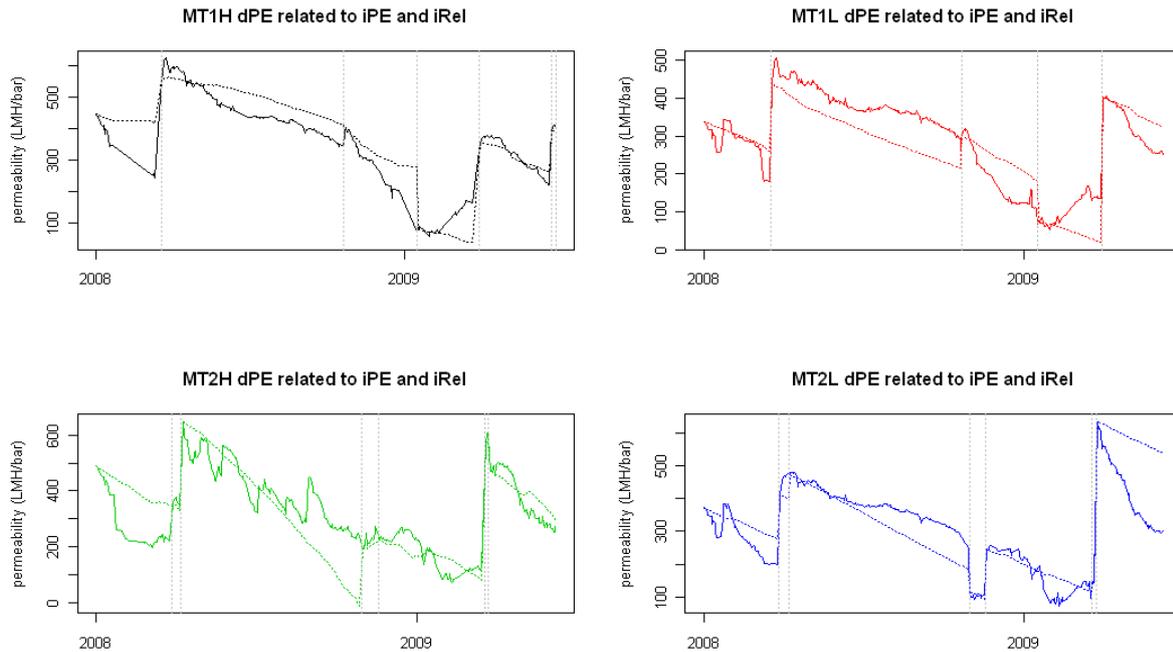


Figure 11: prediction of permeability evolution on the basis of short-term fouling indicators

3. Conclusion

The best method for long-term permeability evolution prediction is to predict dPE with a PLSR based on operational variables. It allows to dissociate the impact of originally correlated variables. It also allows to predict permeability trend for several months.

Short-term indicators don't allow to predict the long-term trends. This suggests that links between short-term mechanisms and long-term ones are limited.

The prediction ability of PLSR method allow to interpret coefficients to have a better understanding of fouling determinisms.

Filtration time have a positive impact on permeability for the three fouling indicators. It can be explained by the fact that filtration determines membrane aeration time.

Daily cumulative flow through membranes is the main factors that lead to membrane fouling according to the three indicators.

Influent load (positive impact on dPE) and specific load (negative impact on dPE), process aeration time (negative impact on dPE) seem to be the only factors that impact permeability on the four membrane units. This seems to indicate that an intense biological activity is good for filtration when biomass is concentrated, and with long anoxic periods. However, during period of low process aeration time, the oxygen input by membrane aeration is often high.

At a lesser extent, SAD_M (positive impact on dPE) have a weak impact on permeability and flux has a quasi-null impact. This is surprising because these hydraulic variables are reported to have a great impact in literature. An hypothesis to explain this is that the variation range of these variables is not relevant (over-dimensionned ?).

Some conclusions can also be suggested about short-term fouling indicators : Flux has a small and dispersed impact on short-term fouling, but a positive impact on its reversibility.

Conclusion on impact of influent load and specific load are the same for iPE and for dPE, but these variables seem to not influence iRel

In the future, long-term prediction of permeability with operational variables with PLSR could be used in operation to test different scenarios and increase robustness of results. To improve this approach, the introduction of non-linearity and maybe some other variables would be of interest.

The short-term indicators used in this study seems to be not adapted to the study of long-term trends. Maybe fouling indicators calculated by a different way could be of interest.

Annexe D

Quelques résultats d'analyses des PMS dans le BRM étudié

Interprétation des résultats obtenus sur les analyses de PMS dans les échantillons issus du BRM étudié

Polysaccharides :

Les résultats des analyses de polysaccharides obtenus par la méthode à l'antrone (valable environ à partir de 5mg equ-glucose/L d'après les courbes étalons) sur les échantillons issus du BRM étudié sont tous inférieurs à la gamme de mesure.

Plusieurs explications possibles :

- **Hypothèse privilégiée** : les âges de boues trop élevés conduisent à des concentrations trop faibles. Dans ce cas, l'absence de résultats ne devrait pas être dommageable pour l'étude, car les concentrations en jeu seraient alors trop faibles pour influencer significativement le colmatage des membranes.
- La méthode d'analyse n'est pas adaptée à ce type d'échantillons, ce qui est peu probable au vu des résultats de la littérature.
- La méthode de séparation (centrifugation + filtration avec différents types de filtres) n'est pas adaptée aux polysaccharides présents dans les échantillons.

Les deux premières hypothèses semblent les plus privilégiées. Il faudrait donc changer de méthode d'analyse pour en savoir plus. Cependant, après discussion avec Dominique Gorini (Chimiste au Cemagref de Lyon), il semble difficile de mettre en place une méthode adaptée à des échantillons dont la concentration ne dépasse pas 5mg-equ_{GLUCOSE}/L (les méthodes qu'il a testées descendent à 2mg-equ_{GLUCOSE}/L, et ont l'air très lourdes à mettre en œuvre).

Protéines :

Méthode d'analyse

Conservation des échantillons

Constat

Les échantillons centrifugés et filtrés sur filtres MES semblent mal se conserver (soupçon d'abattement de 30% en 4j). Après discussions avec les chimistes du laboratoire, cela pourrait être dû à la présence de bactéries dans l'échantillon, ou à la présence d'enzymes qui accélèrent la dégradation des protéines. Sans activité biologique, en principe les protéines ne se dégradent pas spontanément à de telles échelles de temps (par exemple, les étalons de BSA fournis dans le kit se conservent à température ambiante, et aucune date limite n'est indiquée, ce qui laisse à penser qu'ils ne bougent pas en 1 semaine !)

A prévoir

Faire en parallèle des tests échelonnés sur plusieurs jours sur des échantillons ayant subi d'une part une filtration MES et d'autre part une filtration 0.45, voire une filtration 0.22 ou 0.01 conservés au réfrigérateur.

On pourrait ainsi savoir pour quelle raison (plutôt chimique ou biologique) on obtient un tel abattement.

Méthode de séparation du surnageant

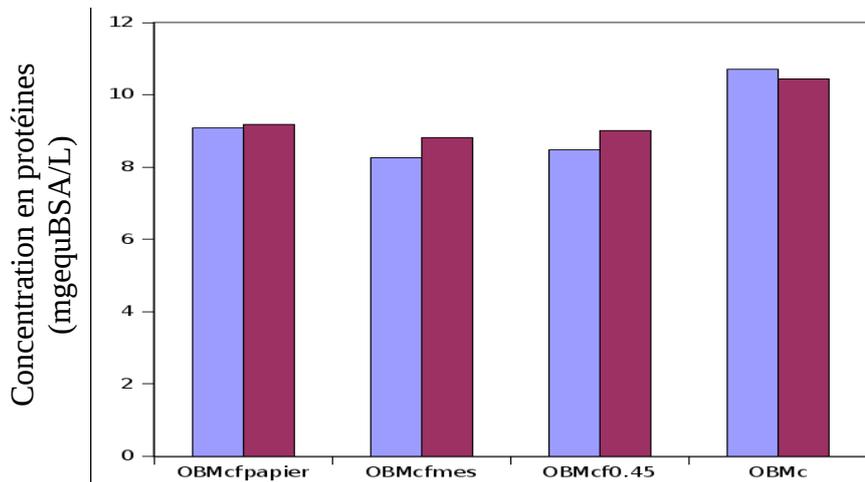
Pour l'instant, une série de tests a été effectuée pour étudier l'abatement dû aux différentes méthodes de filtration des échantillons (filtre papier (-14%), filtres MES (-19%), filtres 0.45 μ m PTFE (-17%) et membranes in-situ 0.04 μ m (-27%), voire les résultats de la semaine 48).

Une des rares informations trouvée sur la taille des pores des filtres MES en fibres de verre provient du site internet de l'ineris

(http://aida.ineris.fr/bref/brefpap/bref_pap/francais/AnnexeIII.htm). On peut y lire que les filtres utilisés pour les MES en Allemagne par exemple (pas d'infos sur les français) ont des pores de 0.3 à 1 μ m.

Ce qui suppose que l'abatement dû aux filtres MES –très légèrement- supérieur à celui dû aux filtres PTFE 0.45 serait plus dû à des interactions entre les protéines et le filtre qu'à la taille des pores.

Cela confirme le besoin d'utiliser (ou du moins de tester) les filtres 0.45 μ m PTFE pour la filtration des échantillons centrifugés, pour éviter les effets de ces interactions.



Résultats des analyses de protéines avec différentes méthodes de séparation du surnageant (mesures en doublon sur de la liqueur mixte prélevée dans les bassins membranaires) : Centrifugation/filtration sur filtres cellulose, Centrifugation/filtration sur filtres fibres de verre, Centrifugation/filtration sur filtres PVDF 0.45 μ m, Centrifugation seulement

Précision de la mesure

Dans la gamme étudiée (le surnageant des boues et les perméats d'ultrabox contiendraient entre 5 et 15 mg-equBSA/L), la mesure semble assez bonne (en attestent les ajouts dosés : la récupération des ajouts dosés est comprise entre 90% et 110% pour les échantillons de perméat et de surnageant des boues).

Une mise au point méthodologique est cependant à faire sur les échantillons d'eau d'entrée brute car la récupération des ajouts dosés est inférieure à 60% ! (estimer la dilution, pratiquer des ajouts dosés et différentes dilutions, puis adapter le protocole ou changer de méthode analytique).

Résultats des analyses :

Dans l'eau d'entrée, les concentrations sont comprises entre 30 et 40 mg-eqBSA/L, mais la méthodologie utilisée n'est pas fiable (mauvais résultats sur les ajouts dosés, parfois récupérés à seulement 40%).

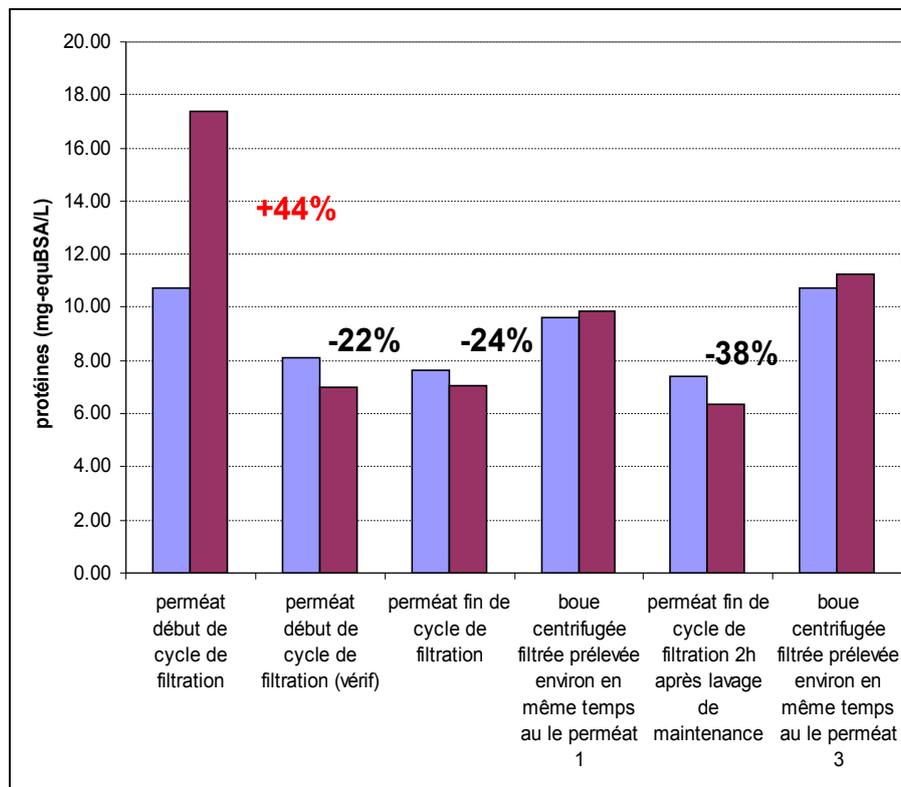
Les résultats d'analyses des protéines dans des échantillons de perméat et des échantillons de boue montrent que semblent plus pertinents, mais les valeurs sont faibles : (<15mg/L).

Dans la littérature en général, de telles concentrations sont peu corrélées avec le colmatage. Plusieurs tests ont été effectués pour déterminer la pertinence des analyses et en tirer le maximum d'information.

Selectivité de la membrane :

Une tentative d'évaluation de la sélectivité de la membrane pour les protéines a été effectuée en fonction du positionnement temporel dans les cycles de filtration (par rapport aux lavages). Le graphe ci-dessous montre l'influence du moment de prélèvement suivant un rétrolavage et un lavage de maintenance.

Les concentrations en protéines obtenues dans le surnageant de la boue sont légèrement plus élevées (20%) que celles obtenues dans le perméat. Cependant, la place dans le cycle de filtration (par rapport à un rétrolavage) ne semble pas affecter la sélectivité. Le même type de prélèvement effectué immédiatement après un lavage de maintenance (membrane sensée être propre, donc moins sélective, donc moins d'abattement) donne un résultat inverse à celui attendu.



Ce type de résultat, rapporté à la difficulté d'effectuer ces mesures, nous a incité à abandonner les mesures de PMS dans le BRM étudié.