

Evaluation du colmatage de fibres creuses en mode frontal : détermination des conditions critiques pour un fonctionnement durable

BESSIERE Yolaine^{a*}, BACCHIN Patrice^a, ABIDINE Nouhad^b

^aLaboratoire de Génie chimique, Université Paul Sabatier
118, route de Narbonne, Toulouse cedex, France

^b Aquasource
20 avenue Didier Daurat, BP 4050, Toulouse cedex 4, France

Résumé

L'ultrafiltration est un procédé de plus en plus utilisé comme étape principale lors de la production d'eau potable. Du fait de la faible valeur ajoutée de l'eau, les industriels sont contraints à développer des usines présentant de faibles coûts d'investissement. Une solution envisagée par la société Aquasource (Toulouse, France) consiste à mettre en œuvre une opération de filtration en mode frontal. Il est alors nécessaire d'optimiser les conditions opératoires de filtration afin de réduire au maximum l'impact du colmatage, qui prend dans ces conditions de filtration un poids considérable d'un point de vue technico-économique. Dans ce cadre, un protocole est dans un premier temps développé pour déterminer les conditions opératoires (durée de la phase de filtration avant décolmatage) pour lesquelles la formation d'un dépôt irréversible, et donc coûteux en énergie, est évité en filtration frontale. Par la suite, les résultats obtenus sont mis en application sur des filtrations de plus longue durée (48 heures) sur une ressource naturelle au cours desquelles l'inclusion d'étapes de purge permettant une déconcentration amène une amélioration notable de l'opération, notamment en tenant compte de considérations énergétiques. Des éléments pour le fonctionnement durable des unités de filtration frontale sont alors proposés.

Mots-clés : colmatage, conditions critiques, fibres creuses, opération durable, filtration

1. Introduction

Lors de la filtration d'une eau de surface naturelle, l'accumulation de composés variés à la surface de la membrane entrave la filtration par le biais de différents mécanismes (concentration de polarisation, dépôt, gel ou adsorption). Cette accumulation conduit à dépenser plus d'énergie pour une même productivité et rend nécessaire la mise en œuvre de moyens techniques (plus ou moins important) pour y remédier (§1.1). Par rapport au marché de l'eau potable, produit indispensable mais de faible valeur ajoutée, les industriels sont contraints à développer des usines avec des faibles coûts d'investissement. Le fonctionnement « tout frontal », permettant d'éliminer l'installation de la pompe de recirculation, tend ainsi actuellement à être privilégié.

Or ce type de fonctionnement renforce le poids du coût énergétique et économique du colmatage dans le procédé et nécessite de minimiser l'impact du colmatage avec des moyens peu coûteux (§1.2). Cette optimisation conduit à rechercher des conditions de filtration durables, la minimisation du coût étant dans ce cas corrélée à un impact environnemental minimum. Cette étude s'inscrit dans le projet MemEau du réseau Riteau « Procédés de clarification de l'eau par ultrafiltration : pour une gestion maîtrisée de la qualité, de l'énergie, des rejets et des coûts ».

1.1 Mécanismes de colmatage et moyens de lutte

L'accumulation de matière lors d'une ultrafiltration (UF) est inévitable mais peut se présenter sous différentes formes (fig. 1) nécessitant alors des moyens à mettre en œuvre pour y remédier différents :

* Auteur/s à qui la correspondance devrait être adressée : bessiere@chimie.ups-tlse.fr

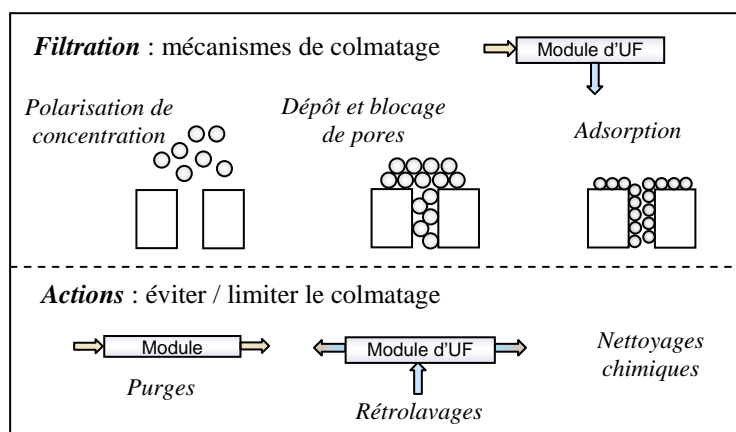


Figure 1 : Les différents mécanismes de colmatage en ultrafiltration et les moyens de lutte associés

- **La polarisation de concentration** : pendant une opération de filtration, les particules présentes dans la suspension se concentrent à l'interface membrane/suspension ou dépôt/suspension sous forme dispersée et exercent une contre pression osmotique opposée à la force de séparation. Cette résistance au transfert est réversible par une simple relaxation de la force de séparation, c'est-à-dire par une **purge** du compartiment rétentat lorsque l'on fonctionne en mode frontal.
- **Le dépôt** : lors de la filtration, la concentration à la surface de la membrane peut augmenter jusqu'à provoquer la déstabilisation des particules en une phase condensée (sous forme d'un gel ou d'un dépôt cohésif), induisant ainsi une résistance hydraulique additionnelle à celle de la membrane. Cette contribution à la résistance ne peut être éliminée que par un **rétrolavage** (inversion momentanée du sens d'écoulement au travers de la membrane).
- **Le blocage de pores** : il s'agit de l'intrusion de particules de tailles inférieures ou égales à celle des pores, qui entraîne donc une diminution de la surface de passage. Un **rétrolavage** mettant en œuvre une pression sensiblement supérieure à la pression de filtration est nécessaire.
- **L'adsorption** : elle résulte d'interactions physico-chimiques entre les composés présents dans l'eau brute et la membrane. L'utilisation de **nettoyage chimique** est alors nécessaire pour éliminer cette contribution.

1.2 Conditions critiques de colmatage

Diverses études ont montré que le colmatage et son irréversibilité sont des phénomènes complexes dépendant de la membrane (Cho et al., 1999), des caractéristiques de la suspension à traiter (Jones et O'Melia, 2001), et des paramètres opératoires (Espinasse et al., 2002). Un objectif primordial pour améliorer les opérations de séparation est d'être capable de définir simplement et rapidement les paramètres opératoires permettant de mener une opération durable, c'est-à-dire une filtration durant laquelle le colmatage – et par là même, la consommation énergétique qui lui est associée – est réduit à son minimum.

C'est dans ce cadre que le concept de flux critique (J_{crit}) a été développé (Field et al., 1995 ; Bacchin et al., 1995) pour décrire les conditions en dessous desquelles on n'observe pas de diminution de perméabilité irréversible (par une baisse de pression) en filtration tangentielle (fig. 2). En filtration frontale, opération continuellement en état transitoire, cette description ne peut pas être directement appliquée : en effet, la concentration à la surface de la membrane ne cesse d'augmenter du fait de l'apport continu de matière et ce, quel que soit le flux utilisé. Ainsi, Harmant et Aimar (1996) considèrent une masse critique, associée à un temps de filtration critique (t_{crit}) lorsque l'opération est menée à flux constant, qui conduit à la déstabilisation des particules qui se condensent alors sous la forme d'un dépôt multicouches irréversible.

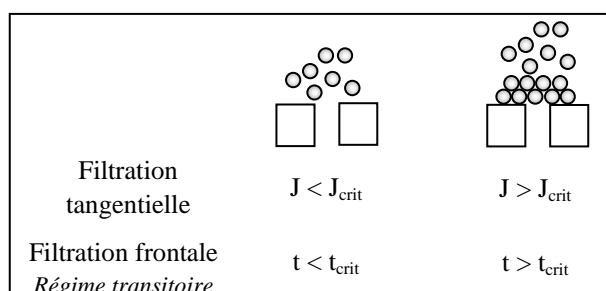


Figure 2 : représentation schématique des conditions critiques

1.3. Positionnement de l'étude

L'objectif du travail présenté est dans un premier temps d'identifier expérimentalement lors de la filtration frontale d'une eau de surface la transition entre phase dispersée, induisant un colmatage réversible, et phase condensée, entraînant une résistance irréversible de façon à, dans un deuxième temps, en tirer les informations permettant d'adapter les paramètres vers des conditions de filtration durables.

2. Matériel et méthode

2.1 Suspension filtrée

Les filtrations frontales ont été réalisées sur l'eau du Canal du Midi à Toulouse qui représente une eau à traiter relativement difficile. Cette eau se caractérise par une concentration en Carbone Organique Dissous de 5 mg.l^{-1} , une absorption UV à 254 nm de $6,9 \text{ m}^{-1}$ et une turbidité de 13 NTU. La température au cours des expériences variant entre 16 et 21°C , une correction de façon à prendre en compte les variations de viscosité est faite sur tout les résultats présentés par la suite.

2.2 Dispositif expérimental

Les expériences réalisées dans cette étude, ont été conduites à l'aide d'un pilote de filtration totalement automatisé (fig. 3) placé sur site à proximité de la ressource ; l'unité est doublée de façon à conduire des comparaisons de mode de fonctionnement en filtration de la même eau brute. Ces deux pilotes mettent en œuvre des fibres creuses d'ultrafiltration (80 KDa de seuil de coupure) en acétate de cellulose (Aquasource, Toulouse, France) dont le sens de filtration est interne-externe ; la surface des modules est de l'ordre de $0,07 \text{ m}^2$. L'eau du canal du midi est pompée (P0) de façon continue et préfiltrée à $200 \mu\text{m}$ puis transférée dans le réservoir d'eau brute. Une pompe volumétrique (P1) assure un flux constant pendant la filtration. Les paramètres nécessaires à l'étude, tels que la température, le débit d'alimentation et les pressions d'entrée, de sortie du module et du perméat sont enregistrés toutes les 30 secondes.

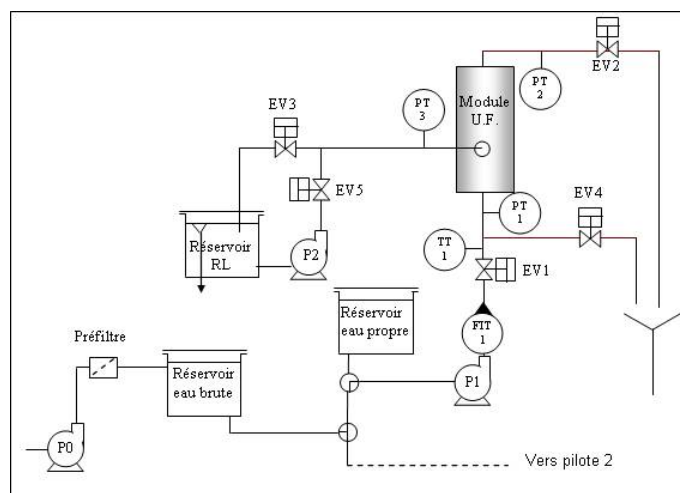


Figure 3 : Banc expérimental de filtration frontale à séquence de filtration, purge et rétrolavage automatisées

Pour les besoins de notre étude, l'automate du pilote permet la succession de différentes phases, en adéquation avec les différents fonctionnements des unités de production industrielles :

- **filtration frontale** : les filtrations sont réalisées à flux constant. Dans un premier temps, le flux est ajusté en filtrant de l'eau osmosée (réservoir eau propre) ; la perméabilité initiale Lp_0 du module peut ainsi être vérifiée. Ensuite, l'alimentation se fait par le bac d'eau brute, indiquant le début du test de filtration. Dans cette étape, la pompe P1 est en marche et les vannes EV1 et EV3 sont ouvertes.
- **purges** : les phases de purges sont réalisées avec un débit équivalent à un flux de $80 \text{ l.h}^{-1}.\text{m}^{-2}$ pendant 105 secondes. Cela correspond à une vitesse de circulation de $0,1 \text{ m.s}^{-1}$ dans les fibres (soit un nombre de Reynolds $Re=98$) et à un volume de 10 fois le volume interne des fibres, soit $2,3 \text{ l.m}^{-2}$, de façon à assurer l'élimination de la majeure partie des composés présents sous forme dispersée. Dans cette étape, la pompe P1 est en marche, et seules les vannes EV1 et EV2 sont ouvertes.
- **Rétrolavages** : les rétrolavages sont réalisés par envoi à contre courant (P2) d'une partie de l'eau préalablement filtrée pendant 80 secondes. Ils sont réalisés à flux constant (300 l.m^{-2}) ce qui entraîne une augmentation de la pression de rétrolavage lorsque le colmatage augmente. La quantité d'eau utilisée lors de cette étape correspond à $6,4 \text{ l.m}^{-2}$. Dans cette étape, la pompe P2 est en marche et les vannes EV5, EV2 et EV4 sont ouvertes.

2.3 Protocole pour la détermination des conditions critiques

Avec l'objectif dans un premier temps de dissocier les contributions du colmatage totalement réversibles de celles irréversibles, c'est-à-dire de déterminer les conditions critiques lors d'une opération de filtration frontale, une succession d'étapes de filtration et de purges est réalisée, et la dérive de perméabilité est observée. Cette opération est réalisée pour des flux de 50 et $80 \text{ l.h}^{-1}.\text{m}^{-2}$ et la durée de la phase de filtration est définie par le volume filtré avant de réaliser une purge, ici de 20 à 115 l.m^{-2} . Un rétrolavage est réalisé avant de passer au volume suivant de façon à avoir une membrane propre pour le cycle suivant.

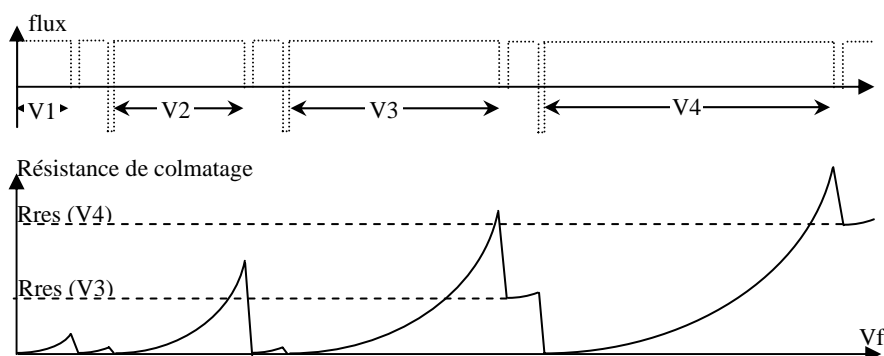


Figure 4 : représentation schématique du protocole de détermination des conditions critiques

Les conditions critiques sont décrites par le volume filtré critique V_{fc} , correspondant au volume filtré conduisant à une résistance résiduelle définie comme étant la résistance additionnelle persistant après une purge (contribution irréversible du colmatage). Ainsi, sur la figure 4 qui schématise l'évolution de résistance additionnelle selon le volume fixé, V1 et V2 n'entraînent pas de résistance résiduelle alors que la filtration d'un volume V3 conduit à l'apparition d'une résistance irréversible. Cela signifie que le volume filtré critique est compris entre V2 et V3.

3. Résultats et discussion

3.1 Mise en évidence des conditions critiques

La procédure décrite en §2.3 permet de déterminer la résistance résiduelle, relative à une résistance hydraulique potentiellement générée par des phénomènes de blocage de pores, formation de dépôt et adsorption lorsque l'on travaille avec un fluide aussi complexe qu'une eau de surface. L'évolution de la résistance résiduelle avec le volume filtré avant de procéder à une purge est représentée sur la figure 5 pour deux flux de perméation.

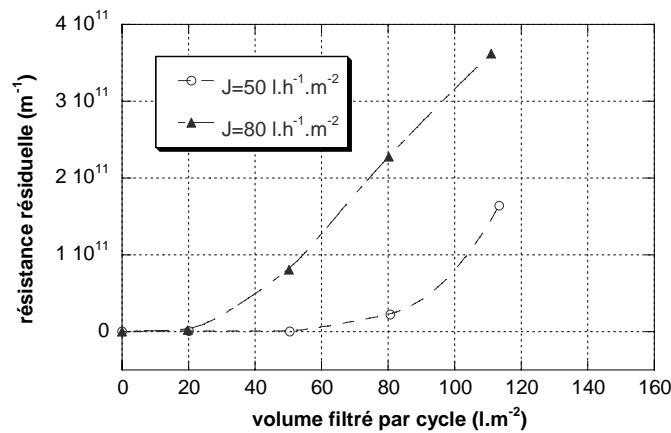


Figure 5 : Variation de la résistance résiduelle avec le volume filtré par cycle de filtration pour deux flux de perméation différents lors de la filtration frontale de l'eau du Canal du Midi.

Les courbes obtenues, qui présentent la même tendance quel que soit le flux, comportent deux zones bien différentes selon le volume filtré :

- une première partie durant laquelle la résistance irréversible est négligeable. Un volume filtré critique peut ainsi être défini à 20 et 50 l.m⁻² pour les flux de 80 et 50 l.h⁻¹.m⁻² respectivement,
- une deuxième partie où intervient une augmentation brutale de la résistance résiduelle.

Ce résultat préliminaire permet de montrer qu'il est possible d'éviter ou tout du moins de limiter le colmatage irréversible même en filtration frontale d'eau fortement chargée en matière organique naturelle ; il est ici mis en évidence que l'apparition d'un dépôt et/ou de phénomènes d'adsorption irréversibles se fait pour un volume filtré d'autant plus faible que le flux de filtration est grand. Ces résultats confirment l'existence de conditions critiques pour le colmatage par une eau de surface : ce type d'observation n'ayant jusqu'à présent été réalisé que pour des suspensions reconstituées et ne comportant pas de substances dissoutes (Bessière et al., 2005) où n'intervenaient donc que des phénomènes de concentration de polarisation et de formation de dépôt.

Une bonne adéquation entre flux de perméation et fréquence de purge, de façon à se maintenir dans la zone où la résistance résiduelle est limitée (conditions subcritiques), doit permettre de limiter la dérive de perméabilité à long terme.

3.2 Expériences de longue durée en conditions subcritiques

Au vu des résultats présentés précédemment, des opérations de filtrations subcritiques sont mises en œuvre aux deux flux étudiés en introduisant des purges après 25 l.m⁻², ce qui correspond au volume filtré critique associé à un flux de 80 l.h⁻¹.m⁻² et qui est bien inférieur à celui de 50 l.h⁻¹.m⁻². L'évolution de la résistance additionnelle au transfert est présentée figure 6.

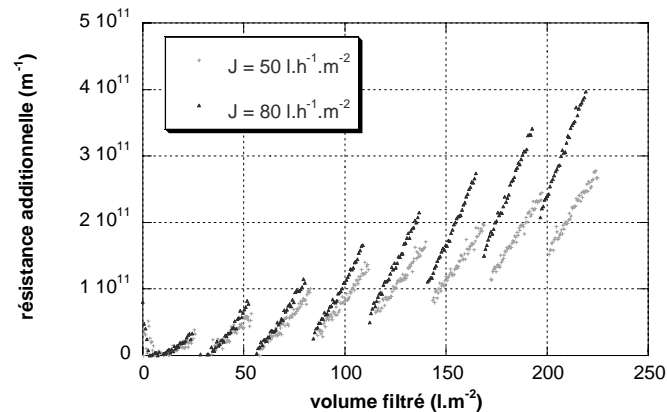


Figure 6 : mise en œuvre de purges dans une filtration « subcritique » - volume filtré entre purges Vf=25 l.m⁻²

On observe que les premières purges permettent effectivement de restaurer les capacités initiales de la membrane, mais qu'une lente dérive s'installe, et ce, quel que soit le flux bien que le phénomène soit accentué pour un flux élevé.

Ainsi, on confirme que, du fait de la complexité de l'eau à traiter et donc des phénomènes mis en jeu lors de la filtration, des rétrolavages restent inéluctables si l'on souhaite stabiliser la dérive des capacités de la membrane. La figure 7 compare une opération alternant de façon classique périodes de filtration et rétrolavages et une filtration en conditions subcritiques dans laquelle des purges sont réalisées tout les 25 l.m⁻² entre les rétrolavages; la fréquence des rétrolavages est la même pour les deux opérations.

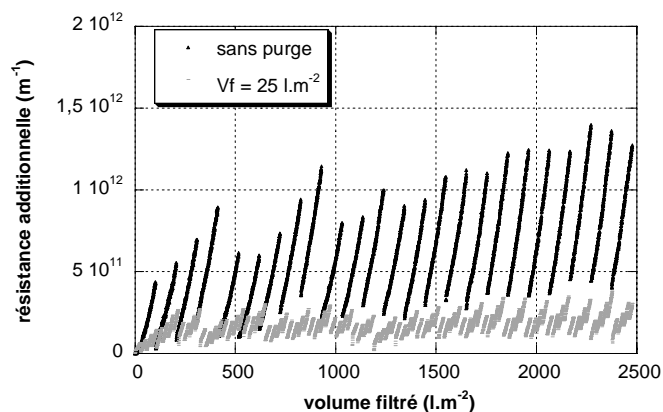


Figure 7 : Incidence de l'ajout de purges dans une opération de filtration sur l'évolution de la résistance de colmatage – fréquence des rétrolavages : 100 l.m⁻² – J=50 l.h⁻¹.m⁻²

L'évolution de la résistance additionnelle avec le volume filtré pour ces deux opérations montre l'apport indéniable des purges dans la procédure de filtration : la résistance maximale observée pour l'opération incluant des purges est de 4,0.10¹¹ contre 1,4.10¹² lorsque seuls des rétrolavages sont utilisés pour lutter contre les effets du colmatage. D'autre part, la dérive de perméabilité est stabilisée pour l'expérience utilisant des purges alors qu'une dérive de perméabilité est toujours présente après 2500 l.m⁻² soit 50 heures de fonctionnement pour l'opération dite classique. Il reste cependant difficile, à la seule vue de l'évolution de la résistance, de déterminer si ces conditions représentent des conditions durables de fonctionnement.

3.3 Eléments pour la définition d'opérations durables

« Le développement durable nécessite que les besoins présents soient satisfaits sans compromettre l'aptitude des générations futures à répondre à leurs propres besoins »

Cette définition implique non seulement une considération économique, inhérente à la faisabilité d'une opération, mais aussi, une prise en compte essentielle de l'impact de l'opération sur l'environnement afin d'associer une notion de « long terme » au procédé. Les opérations durables sont souvent à associer à de faibles productivités représentant ainsi une façon extensive de travailler avec un procédé.

De nombreux paramètres opératoires influencent la productivité et la consommation énergétique du procédé de filtration (table 1):

- la fréquence des purges qui nécessitent une consommation en eau brute (volume, V_{purge}) mais représentent un coût énergétique lié à la perte de charge dans la fibre (ΔP_{purge}) négligeable,
- la fréquence des rétrolavages qui nécessitent une consommation en eau UF, V_{RL}, et une consommation énergétique liée à la contre pression, P_{tmRL},
- le flux de perméation qui est d'autant plus coûteux en énergie que le colmatage est important.

Table 1. Pertes en eau et consommation énergétique

| Étape de l'opération | Pertes en eau | Consommation énergétique |
|----------------------|------------------|---|
| filtration | - | V _{filtration} × P _{tmfiltration} |
| purge | Eau brute | V _{purge} × ΔP _{purge} ≈ 0 |
| rétrolavage | Eau ultrafiltrée | V _{RL} × P _{tmRL} |

Ainsi, la figure 8 présente l'énergie consommée en fonction du volume filtré pour les mêmes conditions opératoires que pour la figure 7, c'est-à-dire une opération dite « classique » et une durant laquelle des purges sont mises en œuvre.

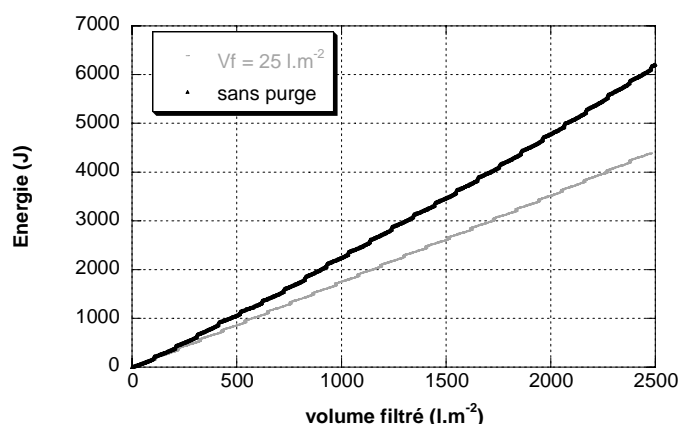


Figure 8 : Incidence de l'ajout de purges dans une opération de filtration sur la consommation énergétique – fréquence des rétrolavages : 100 l.m⁻² – J=50 l.h⁻¹.m⁻²

Après moins de 500 l.m⁻², les consommations énergétiques dérivent de façon significative : l'écart en faveur des opérations incluant des purges est de 28 % après 1 m³.m⁻² et atteint 40 % après seulement 2 m³.m⁻².

Appliqué à une opération de filtration, le terme « durable » va donc reposer sur des contraintes parfois en oppositions :

- productivité maximale : cela implique d'une part de minimiser les pertes en eau, donc de réduire le nombre de rétrolavages (pertes en eau ultrafiltrée) et de purges (pertes en eau brute), d'autre part d'avoir un flux aussi important que possible.
- consommation énergétique minimisée : la consommation énergétique augmente avec le colmatage du fait de l'augmentation de résistance au transfert mais elle est aussi très importante dans la phase de rétrolavage, du fait des hautes pressions appliquées, qui a pourtant une grande part dans la limitation du colmatage.

De façon à trouver le meilleur compromis et à prendre en compte ces deux contraintes, productivité maximale et consommation énergétique minimale, il est ici proposé un « rapport de durabilité », représentant le ratio productivité sur consommation énergétique, que l'on doit chercher à maximiser pour s'approcher de conditions durables.

Table 2. Conditions opératoires et consommations associées

| | | | |
|--|--|-------|-------|
| Conditions opératoires | Flux de perméation (l.h ⁻¹ .m ⁻²) | 50 | 50 |
| | Fréquence de purge (l.m ⁻²) | 25 | 0 |
| | Fréquence des rétrolavages (l.m ⁻²) | 100 | 100 |
| Pertes en eau (%) | | 11,6 | 7,2 |
| Productivité (l.h ⁻¹ .m ⁻²) | | 44,2 | 46,4 |
| ^a Energie (J.m ⁻³) | | 2021 | 2675 |
| Rapport de durabilité P/E (*10 ⁻²) | | 21,87 | 17,34 |

^a extrapolé à partir des données à 2,5 m³.m⁻².

La table 2 présente, pour les conditions opératoires étudiées (fig. 7 et 8), les pertes en eau et la productivité correspondante, la consommation énergétique et le « rapport de durabilité » associé. Il est

ainsi mis en évidence l'intérêt d'inclure des purges dans les opérations de filtration, qui de par la limitation du colmatage se traduisent par un rapport de durabilité 23 % supérieur.

Ainsi l'utilisation de purges apparaît être un élément clé pour mener une opération de filtration qualifiée de durable ; en effet, lorsque leur fréquence est choisie de façon adéquate (fig. 4), elles permettent de grandement limiter le colmatage et donc la consommation énergétique qui lui est associée. De plus, elles ne requièrent qu'un apport énergétique négligeable par rapport aux autres phases de l'opération du fait de la faible vitesse de circulation utilisée. Le seul inconvénient qui leur est imputable est les pertes en eau qui sont associées à la procédure même de la purge ; cependant, ce bémol est largement atténué dans la mesure où ces pertes sont des pertes en eau brute (contrairement aux rétrolavages) donc relativement peu coûteuses.

4. Conclusion

Un protocole mettant en œuvre une succession d'étapes de filtration et de purge est proposé afin de déterminer des conditions opératoires critiques de filtration au dessus desquelles un dépôt irréversible apparaît à la surface de la membrane. Le volume filtré critique (V_{fc}) est une caractéristique du couple fluide traité / membrane qui s'avère utile pour choisir les conditions opératoires du procédé : à l'échelle d'un cycle, en dessous du V_{fc}, les purges sont totalement efficaces (figure 5) et permettent de retrouver la perméabilité initiale (régime de fonctionnement subcritique), au dessus, une résistance résiduelle persiste après les purges.

Appliquées à des filtrations de longue durée sur une ressource naturelle, ces purges associées à des rétrolavages s'avèrent intéressantes pour limiter les dérives de perméabilité des membranes à long terme (figures 6 et 7). Ces résultats sont analysés en prenant en compte à la fois l'énergie consommée et la productivité des cycles filtration / purge / rétrolavage. Un critère est ainsi défini pour optimiser les fréquences des actions hydrauliques (purges et rétrolavages) par rapport à un objectif de durabilité.

En considérant les conditions critiques de filtration, la purge s'avère être un moyen très intéressant pour réduire l'impact du colmatage. Ce moyen peu coûteux énergétiquement et environnementalement parlant doit prendre une place dans les procédures de filtration pour développer un procédé fonctionnant dans des conditions durables.

Références

- Bacchin P., P. Aimar et V. Sanchez, 1995, Model for colloidal fouling of membranes. *AIChE journal* 41, 368-376.
- Bessiere Y., P. Bacchin et N. Abidine, Low fouling conditions in dead-end filtration: evidence for a critical filtered volume and interpretation using critical osmotic pressure, accepté pour publication à *J. Membr. Sci.*
- Cho J., G. Amy et J. Pellegrino, 1999, Membrane filtration of natural organic matter: initial comparison of rejection and flux decline characteristics with ultrafiltration and nanofiltration membranes. *Wat. Res.* 33, 2517-2526.
- Espinasse B., P. Bacchin et P. Aimar, 2002, On an experimental method to measure critical flux in ultrafiltration. *Desalination* 146, 91-96.
- Field R.W., D. Wu, J.A. Howell et B.B. Gupta, 1995, Critical flux concept for microfiltration fouling. *J. Membr. Sci.*, 100, 259-272.
- Harmant P. et P. Aimar, 1996, Coagulation of colloids retained by porous wall. *AIChE journal*, 42, 3523-3532.
- Jones K.L. et C.R. O'Melia, 2001, Ultrafiltration of protein and humic substances: effect of solution chemistry on fouling and flux decline. *J. Membr. Sci.* 193, 163-173.

Remerciements

Le travail présenté est réalisé dans le cadre de Riteau (Réseau de Recherche et d'Innovation Technologique « eau et technologies de l'environnement ») au travers du projet Mem'Eau « procédé de clarification de l'eau par ultrafiltration : pour une gestion maîtrisée de la qualité de l'énergie, des rejets et des coûts ».

Les auteurs remercient J.C. Rouch et D. Bourdiol pour leur participation à la conception et à la réalisation des pilotes.