

ETUDE DE COLMATAGE D'UN BIOREACTEUR MEMBRANAIRE AUTOTROPHE POUR LE TRAITEMENT DES EAUX USEES

STUDY OF MEMBRANE FOULING IN AUTOTROPHIC BIOREACTOR FOR WASTEWATER TREATMENT

Aicha GASMI^{a,b*}, Marc HERAN^b, Abdelnasser Mabrouk^c, Ahmed HANNACHI^a, Ahmed KETTAB^d, Alain GRASMICK^b

^a *Laboratoire génie des procédés et systèmes industriels, école nationale d'ingénieurs de Gabès Tunisie*

^b *Laboratoire génie des procédés membranaires, Institut européen des membranes, Montpellier France*

^c *Université du canal de Suez, département de sciences de l'ingénieur, Egypte.*

^d *Laboratoire de recherche en sciences de l'eau - LRS-EAU*

**aicha.gasmi@yahoo.fr*

**Auteur correspondant*

Résumé

Ce travail concerne l'analyse de colmatage d'un bioréacteur à membranes (BRM) immergées alimenté par un substrat appauvri en matière organique et sous différents âge de boues (TSB). Pour ce faire cinq campagnes de mesure ont été faites se caractérisant par un ratio DCO/N = 0 et opérant sous différents TSB (20, 40 et 60 j). Le suivi des évolutions de pression transmembranaire (PTM) montre deux phases, une phase rapide (0,1 à 0,3 kPa/j) comparable à celle observée dans des BRM classiques, suivie d'une phase d'évolution plus lente (< 0,1kPa/j), comparable à celle observée sur des BRM fonctionnant sous faible charge organique ou âge de boues élevé (> 40j). L'analyse des processus à l'origine du colmatage membranaire met en avant trois barrières dominantes, (i) l'accumulation réversible de composés sur la membrane (ii) la présence d'un biofilm nécessitant un lavage mécanique, (iii) l'adsorption éliminée par lavage chimique qui est resté minime, ce qui réduit le cout de la régénération chimique de la membrane. Des essais de mesure d'activité épurative spécifique du biofilm ont montré une activité épuratrice certaine du biofilm engendrant une barrière hydraulique indépendante des conditions de filtration mais propre à sa dynamique intrinsèque de développement. Les essais de mesure de filtrabilité en mode frontal ne reflètent pas le comportement de suspension biologique en mode tangentiel.

Mots clés- MBR, filtration, colmatage, vitesse de colmatage, résistance.

Abstract

This work concerns the analysis of fouling in immersed membrane bioreactor (MBR) feeding by a substrate with low organic matter and at different sludge age (SRT). To do this five runs were done characterized by a COD / N ratio = 0 and operating under different TSB (20, 40 and 60 days). The Monitoring of transmembrane pressure (TMP) shows two phases, the first one (0.1 to 0.3 kPa / day) comparable to that observed in conventional MBR, followed by a slower evolution phase (<0.1 kPa / day), comparable to that observed on MBR operating at low organic load or high sludge age (> 40j). The analysis of the fouling process on membrane highlights three dominant barriers, (i) the reversible accumulation of sludge on surface of the membrane (ii) the development of a biofilm requiring mechanical washing, (iii) chemical adsorption of particles on pore of membrane. The last process was very low compared to others, which reduces the cost of chemical regeneration of the membrane. Tests specific

biofilm activity measurement showed some purifying biofilm activity generating an hydraulic barrier independent of filtration conditions but related to its own intrinsic dynamic of development. Tests measuring filterability showed that the frontal mode does not reflect the behavior of biological suspension tangential mode.

Keywords-MBR, filtration, fouling, fouling rate, resistance.

I. Introduction

Beaucoup de travaux ont été conduits pour la compréhension de la dynamique de colmatage en bioréacteurs à membranes. La plupart concerne des systèmes biologiques traitant une eau dont la pollution majoritaire est la matière organique (eaux usées urbaines ou industrielles). Les causes majeures de colmatage ont toujours faits ressortir le rôle de la concentration en matière en suspension (notamment au travers du phénomène de clogging), des fractions organiques solubles (au travers de leurs interactions avec le matériau membranaire) et du développement d'un biofilm en surface membranaire. Très peu de travaux ont été ciblés sur le fonctionnement d'un bioréacteur à membranes ne traitant qu'une pollution azotée minérale. L'originalité de ce type de système est en effet de développer des cultures moins concentrées en matière en suspension (par le fait de taux de croissance nettement plus faible que ceux observés avec des populations hétérotrophes) et, on peut le supposer, moins concentrées en métabolites bactériens colmatants (EPS). L'objectif de ce quatrième chapitre est donc d'analyser la dynamique de colmatage dans le bioréacteur à membranes autotrophe en essayant de la relier aux caractéristiques de la suspension biologique à filtrer.

Cet article est devisé en trois paragraphes:

- Analyse de l'évolution de la pression transmembranaire au cours du temps.
- Identification et quantification des différentes origines du colmatage selon les conditions opératoires imposées.

II. Conditions opératoire

Les conditions opératoires des différentes campagnes sont rappelées dans le tableau 1.

Tableau 1 Conditions opératoires

Campagne	I	II	III		IV
SRT(j)	20	20	Sans extraction	40	60
Période	01/12/2011-15/01/2012	16/01/2012-30/01/2012	31/01/2012-16/02/2012	17/02/2012-03/04/2012	01/05/2012-01-06-2012
flux Membranaire (L/m ² /h)	10	20	17	17	17
HRT (j)	0,625	0,312	0,334	0,334	0,334
NLR (kgN/m ³ /j)	0,22	0,44	0,374	0,374	0,374
OLR (kgCOD/m ³ /j)	0	0	0	0	0

Au cours de ces 4 campagnes, la maîtrise du colmatage membranaire a été effectuée par une aération continue au voisinage des membranes (aucune période de relaxation ou rétrolavage n'a été effectuée). Le débit d'air imposé au niveau du module membranaire est resté inchangé et égal à 200 NL/h pour les 4 campagnes, cette valeur a été trouvée comme optimale pour le BRM étudié par Lebègue et al., (2008). Le travail à débit de filtration imposé induit des évolutions de pression et des régénérations chimiques ont été périodiquement nécessaires. La figure 1 indique, sur la période expérimentale, les 4 jours où les membranes ont été régénérées

chimiquement. Il est remarquable de noter que pour une période globale de pratiquement 6 mois, seules quatre régénérations chimiques ont été nécessaires.

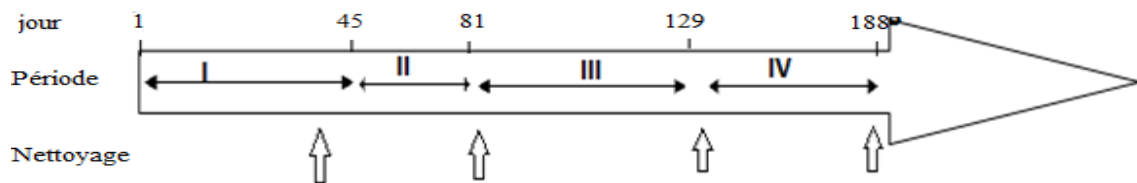


Figure 1 Les jours de nettoyage chimique des membranes pendant les 4 campagnes.

III. Résultats et discussion

III.1 Evolution de PTM

La figure 2 représente l'évolution de la pression transmembranaire au cours du temps pendant les quatre périodes de fonctionnement (soit sur une durée totale de 200 jours). Sur cette figure 2, les flèches désignent les jours où une régénération complète de la membrane a été effectuée.

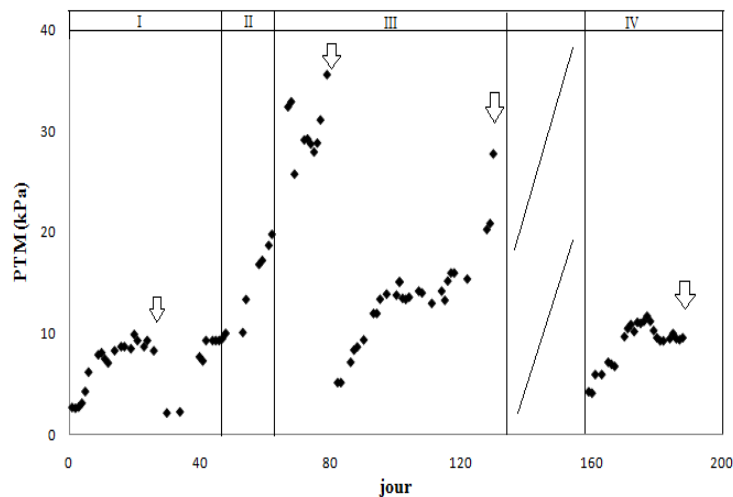


Figure 2 Evolution de PTM au cours du temps.

Quelle que soit la campagne considérée, juste après une régénération chimique des membranes, l'évolution de la pression transmembranaire présente 2 phases principales:

- Une première phase d'augmentation à une vitesse sensiblement constante, $d(PTM)/dt$ variant entre 0,15 et 0,3 kPa/j, cette augmentation se poursuit sur une vingtaine de jours
- Une seconde phase où la pression transmembranaire évolue très lentement ($< 0,007$ kPa/j)

L'évolution de la PTM pendant la campagne II et en début de campagne III est particulière. Ce comportement peut avoir plusieurs origines :

- ces périodes débutent avec des membranes qui sont dans un état de colmatage correspondant à la deuxième phase décrite ci-dessus
- un doublement du flux de filtration en début de campagne II est imposé brutalement.

Ces conditions de travail se traduisent par une augmentation importante et continue de la PTM (0,976 kPa/j), bien au-delà de ce qu'engendrerait le simple doublement de débit pour le début de la campagne II par exemple). Il est probable qu'un état limite de colmatage était déjà atteint en fin de campagne I et l'augmentation de débit a brutalement intensifié le colmatage (compression du dépôt ou biofilm présent en surface de membrane, augmentation de la masse de particules apportée à chaque instant sur la membrane...). L'analyse du comportement du

réacteur biologique pendant cette deuxième campagne montre aussi une grande instabilité des processus réactionnels qui peut aussi jouer un rôle très négatif dans la dynamique de colmatage. Un phénomène analogue, bien que le débit de filtration n'ait pas été modifié apparaît aussi en fin de campagne III. Le tableau 2 donne les valeurs des vitesses de colmatage, traduite au travers de la variation instantanée de la résistance hydraulique en fonction du temps pour les 4 campagnes.

Tableau 2 Vitesse de colmatage au cours des différentes campagnes.

Période	Conditions	dR/dt ($m^{-1}j^{-1}$) E+12
Période 1	SRT =20 LMH=10 Cv=0.22 kgN/m ³ /jour	Phase I : 0.26
		Phase II : 0.0023
Nettoyage jour 30		
Période 2	SRT =20 LMH=20 Cv=0.44 kgN/m ³ /jour	0.18
Période 3	Sans extraction, LMH=17 Cv=0.374 kgN/m ³ /jour	0.16
	Nettoyage jour 82	
	SRT=40 LMH=17 Cv=0.374 kgN/m ³ /jour	Phase I : 0.17 Phase II : 0.006 Phase III : 0.24
Nettoyage jour 126		
Période 4	SRT=60 LMH=17 Cv=0.374 kgN/m ³ /jour	Phase I : 0.09 Phase II (pente positive)
Nettoyage fin période 4		

Le colmatage rapide après lavage peut correspondre à l'accumulation de composés et la structuration progressive d'un dépôt sur la surface membranaire incluant le bouchage des plus gros pores. La phase quasi-stationnaire peut être due à l'atteinte d'un équilibre entre cisaillement et dépôt, puis, en fonction de la durée de l'opération, un biofilm se structure en surface de membrane et impose sa propre perméabilité fonction de son développement. Dans les conditions de travail choisies, le rôle de la charge en azote imposée sur le système et de l'âge des boues n'apparaît pas clairement sur la dynamique de ce processus à l'inverse de ce qui a pu être observé par d'autres auteurs (Zubair et al., 2007; Grelier et al., 2006). Les valeurs trouvées dans ce travail peuvent être comparées à celles relevées dans d'autres travaux (tableau 3.). Il peut être noté dans ces tableaux :

- le rôle de la charge organique appliquée sur le réacteur, si elle est très faible, les valeurs de dR/dt sont proches de celles observées au cours de la phase 2, à faible croissance de colmatage observée dans cette étude après lavage des membranes (<0,01 kPa/j)
- pour des charges conventionnelles sur un bioréacteur à membranes traitant un effluent contenant de la pollution organique, cette vitesse est plutôt de quelques dixièmes de kPa/j, valeurs comparables à l'évolution observée pendant la phase 1 de nos expériences.
- le rôle du débit de perméat apparaît aussi clairement, dès qu'il est supérieur à 25 L.m⁻².h⁻¹, la vitesse de colmatage peut dépasser largement le kPa/j.

Tableau 3 Exemples de vitesse de colmatages indiqués dans d'autres études

Référence	Conditions	dR/dt (m j) ⁻¹ E+12
Ognier et al., 2004	Cv=3 kgDCO/m ³ /j LMH=10 l.m ⁻² .h ⁻¹	0,31
Lobos, 2006	SRT=150j Cv=1kgDCO/m ³ /j LMH=2,3 l.m ⁻² .h ⁻¹	0,037
Van den Broeck et al., 2012	SRT = 10-30-50 j LMH= 16-27 Cv=0.39-0.65kgDCO/m ³ /j Cv=0.031 kgN//m ³ /j	SRT=10 jour + 0,24(LMH=16) SRT= 30 + 0,07(LMH=16) +0,87 (LMH=27) SRT=50 j +0,0042 (LMH=16) +0,25 (LMH=27)
Lebègue, 2008	-SRT=40j; 1.7kgDCO/m ³ /j; LMH=30 L.m ⁻² .h ⁻¹	+ 0.021-0.077
Zhichao et al., 2010	SRT=30j, 1.2kgCOD/m ³ /j	0.63
Zhichao et al.,2010	Membrane plane, 0.2µm, 1.2kgCOD/m ³ /j, SRT=30j, Air flux=480 L/h, 33L/m ² /h,	0.163
Drews et al.,2008	SRT=35j 0.66kgDCO/m ³ /jour	0.14

III.2 Identification des processus dominants de colmatage

Une procédure de lavage spécifique des membranes a été mise en place pour identifier, à chaque régénération de membrane, les barrières réduisant le flux de transfert transmembranaire et/ou la résistance hydraulique du milieu filtrant (GASMI et al., 2013). Pour rappel, les barrières au transfert peuvent être décrites simplement comme une addition de résistances en série composées de:

- Une résistance hydraulique due à l'accumulation de composés sur la barrière filtrante que représente la surface membranaire. Il est supposé que cette accumulation est réversible et que la résistance due à cette accumulation est enlevée par un simple lavage à l'eau. Cette fraction de résistance à l'écoulement de l'eau au travers de la membrane sera appelée la résistance due au gâteau de filtration.
- En fonction de la durée de l'expérience entre deux lavages, un biofilm adhérent au matériau membranaire peut se développer. Il est supposé que le simple rinçage sous un filet d'eau ne peut l'enlever mais qu'un essuyage physique permet de l'éliminer. Cette part de résistance sera la part due au biofilm.
- Enfin, une fraction des molécules solubles peut être adsorbée en surface membranaire et dans les pores. Ces processus nécessitent alors une régénération chimique pour être éliminés. Cette dernière barrière de résistance à l'écoulement sera définie comme la résistance irréversible.

Le tableau 4 regroupe les parts respectives des résistances présentes sur la membrane avant chaque nettoyage et les conditions associées. La figure 3 illustre les niveaux respectifs de chacune d'elles.

Tableau 4 Parts respectives des résistances hydrauliques.

Nettoyage	I	II	III	IV
Jour	30	82	126	Fin suivi
Conditions	SRT =20 LMH=10 Cv=0.22 kgN/m ³ /jour	Sans extraction, LMH=17 Cv=0.374 kgN/m ³ /jour	SRT=40 LMH=17 Cv=0.374 kgN/m ³ /jour	SRT=60 LMH=17 Cv=0.374 kgN/m ³ /jour
Résistance totale m ⁻¹ (E+12)	4,85	6,92	5,35	2,7
Rm m ⁻¹ (E+12)	0,6	0,6	0,6	0,6
% du gâteau de filtration (Rg) dans Rt	31,5	59,3	47,2	47
% du biofilm (Rbio) dans Rt	47,6	19,3	2,71	7,17
% du couche irréversible (Rads) dans Rt	8,45	8,58	38,9	23,6

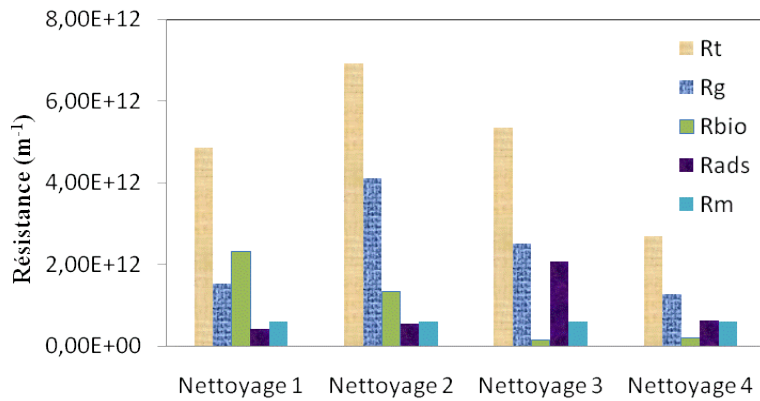


Figure 3 Valeurs des résistances hydrauliques de chaque processus de colmatage.

Ces résultats mettent en avant: Le rôle dominant de la résistance due à l'accumulation hydrauliquement réversible de matière sur la membrane, quelle que soit la campagne considérée. La part de cette résistance est très importante avant le deuxième lavage car le système avait d'abord subi un doublement du débit de filtration avant de subir une période sans extraction de boues pendant laquelle la teneur en MES dans le système avait augmentée simultanément à l'augmentation des teneurs en matières organiques solubles.

- Le rôle important du biofilm au moment des deux premiers lavages alors qu'il est presque inexistant pour les deux derniers lavages. Le premier lavage a lieu après une durée de fonctionnement de 30j environ, la présence du biofilm peut être lié à la présence initiale importante de culture hétérotrophe dans le milieu. Pour le deuxième lavage, cela peut être attribué à la durée de l'expérience entre les lavages I et II (environ 60 jours) pendant laquelle la charge à traiter a doublé sur le système provoquant sans doute une déstructuration des floccs (avec une DCO soluble importante) et un attachement important de biomasse active en développement sur le support de filtration. Les âges de boues plus élevés imposés dans les campagnes III et IV ont sans doute fortement ralenti l'activité du biofilm et sa dynamique de croissance, réduisant ainsi son influence sur le colmatage.
- La résistance hydraulique liée à l'adsorption reste d'un ordre de grandeur voisin de la résistance membranaire.

Rapporter ces résistances hydrauliques au volume d'eau récupéré par unité de surface filtrante (figure 4), nous permettrait de comparer les valeurs trouvées avec:

- celles d'autres travaux, les résistances pourraient ainsi être comparées à production égale (mais très peu de résultats ont été publiés sous cette forme).
- celles du coefficient αC trouvées en filtration frontale (ces deux grandeurs ayant la même dimension, m^{-2} , soit l'inverse d'une perméabilité). La comparaison des valeurs (figure 3 et figure 4) montre des rapports égaux, voire très supérieurs, à 100, les résistances spécifiques mesurées en mode tangentiel étant très petites devant celles mesurées en mode frontal. Ce résultat met en avant le rôle du cisaillement pariétal pour la remise en suspension continue de certains composés retenus par la membrane (notamment les plus petits colloïdes) changeant ainsi drastiquement la structure du dépôt qui devient alors beaucoup plus perméable que celui obtenu en filtration frontale. Cette réduction importante de la résistance rend alors possible une filtration continue de la suspension (initialement peu filtrable).

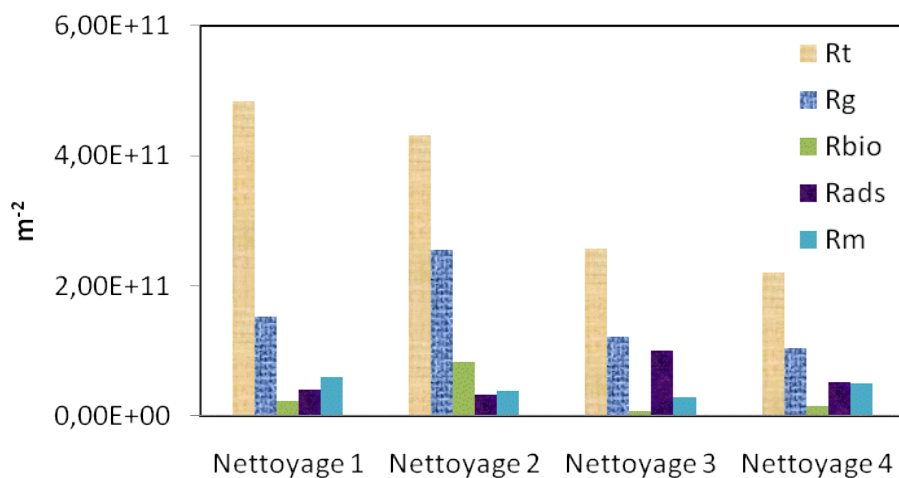


Figure 4 Part des différentes résistances rapportées au volume spécifique collecté de suspension avant lavage.

III.3 Rôle spécifique du biofilm

La résistance due au biofilm représente presque 50% de la résistance totale au moment du premier lavage (campagne I). Il a alors été décidé de caractériser l'activité de ce biofilm pour savoir s'il était constitué seulement d'amas organique inerte (débris cellulaire) ou s'il avait une activité réelle vis-à-vis de l'épuration et donc une activité propre de croissance indépendante de la filtration mécanique. Au moment du premier lavage des membranes, le lavage a été d'abord arrêté juste après le rinçage des membranes et celles-ci ont été replacées dans le module membranaire, préalablement isolé du réacteur biologique et lavé de toute présence de biomasse. Le module membranaire a alors été alimenté en boucle fermée (sur un volume de 1L, figure 5) avec une eau synthétique contenant le même substrat minéral que l'eau d'entrée dans le réacteur, avec une concentration initiale en azote ammoniacal égale à 200 $mgN-NH_4^+/l$. L'aération membrane a été mise en route pour apporter l'oxygène nécessaire à une activité biologique.

La variation de la concentration en azote ammoniacal a été suivie au cours du temps (Figure 6).

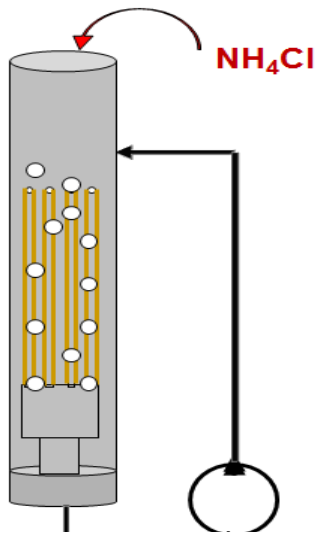


Figure 5 Schéma de la membrane en boucle fermée.

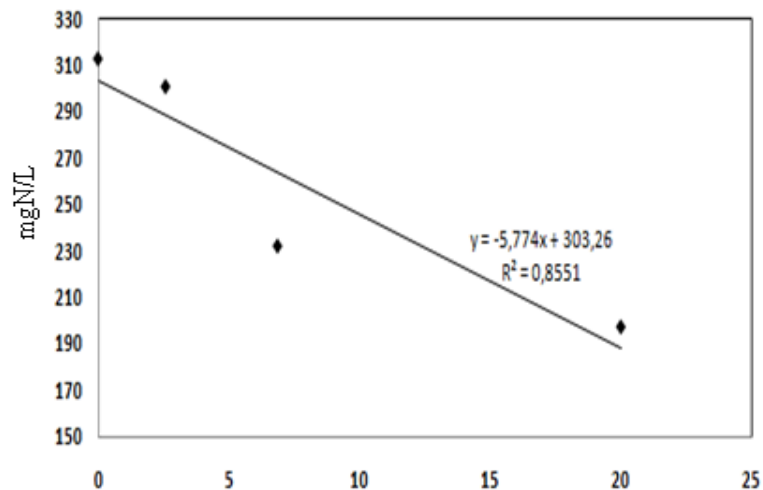


Figure 6 Evolution de la concentration en ammonium. au cours du temps

Tableau IV.5 Vitesse de nitrification dans le biofilm

Vitesse	Valeur
rNbiof (mgN/(L.h))	5,8
rN (mgN/gBiofilm/h)	6 à 12
rNréacteur (mgN/gMVS/h)*	22

*Gasmi et al 2013

La pente de la droite nous permet d'accéder à une vitesse apparente qui a été successivement (i) rapportée à la masse de biofilm (en poids sec) et (ii) comparée à celle mesurée au sein du bioréacteur pendant la campagne I. Les valeurs obtenues montrent que le biofilm a une activité épuratrice certaine. La précision sur la mesure de la masse de biofilm a été faible (50%), la valeur indiquée de son activité est donc incertaine. Néanmoins, cette valeur d'activité peut expliquer que le biofilm a pu se structurer et contribuer significativement à la résistance hydraulique globale.

IV Conclusion

Le suivi des évolutions de pression montre deux phases d'évolution de la PTM, une phase rapide (0,1 à 0,3 kPa/j) suivant la remise en route après un lavage, cette vitesse d'évolution est comparable à celle observée dans des BRM classiques. Cette première phase est suivie d'une phase d'évolution plus lente (< 0,1kPa/j), comparable à celle observée sur des BRM fonctionnant sous faible charge organique ou âge de boues élevé (> 40j).

L'analyse des processus à l'origine du colmatage membranaire met en avant trois barrières dominantes, (i) l'accumulation réversible de composés sur la membrane, (ii) la présence d'un biofilm nécessitant un lavage mécanique par essuyage pour l'enlever, (iii) l'adsorption éliminée par lavage chimique. Dans les expériences réalisées, le troisième processus est resté minime, occasionnant un cout de lavage chimique minime. Des essais de filtrabilité en mode frontal. La mesure de coefficient traduisant la perméabilité des gâteaux en mode frontal et tangentiel traduit des filtrabilités effectivement très différentes, confirmant qu'aucune extrapolation ne peut être déduite d'essais réalisés en mode frontal pour connaître le comportement de telles suspensions biologiques lors de filtration en mode tangentiel.

Références

Lebegue, J., 2008. Aeration and dynamics of fouling in submerged membrane bioreactor
Thèse de doctorat , Université de Montpellier.

- Ognier, S., Wisniewski, C. Grasmick, A., 2004. Membrane bioreactor fouling in sub-critical filtration conditions: a local critical flux concept. *Journal of Membrane Science.*, 229: 171-177.
- Lobos, B., 2006. Dynamique de population épuratives en réacteurs fermé et en bioréacteur à membrane continu et séquencé :Influence du critère "substrat/Biomasse"
Thèse de doctorat, Université Montpellier 2.
- Van den Broeck, R., Van Dierdonck, J., Nijskens, P., Dotremont, C., Krzeminski, P., 2012. The influence of solids retention time on activated sludge bioflocculation and membrane fouling in a membrane bioreactor (MBR). *Journal of Membrane Science.*, 402:48–55.
- Zhichao, W., Shujuan, T., Zhiwei, W., Qi, Z., 2010. Role of dissolved organic matters (DOM) in membrane fouling of membrane bioreactors for municipal wastewater treatment. *Journal of Hazardous Materials.*, 178 : 377–384.
- Drews, A., Vocks, M., Bracklow, U., Iversen, V., Kraume, M., Does fouling in MBRs depend on SMP?. *Desalination.*, 231:141–149.
- Zubair, A., Jinwoo, C., Byung-Ran, L., Kyung-Guen, S., Kyu-Hong, A., 2007 Effects of sludge retention time on membrane fouling and microbial community structure in a membrane bioreactor. *J.Mem.Sc.*, 287: 211–218.
- Grelier, P., Rosenberger, S., Tazi-Paina, A., 2006. Influence of sludge retention time on membrane bioreactor hydraulic performance. *Desalination.*, 192: 10–17.
- GASMI, A., Heran, M., Hannachi, A., Grasmick, A., 2013. New technology for wastewater treatment toward decrease fouling propensity. *Deswater*. In press.