



**HAL**  
open science

# Méthodes pour l'identification et la caractérisation de mécanismes de colmatage en filtration frontale

Alexia Grenier

► **To cite this version:**

Alexia Grenier. Méthodes pour l'identification et la caractérisation de mécanismes de colmatage en filtration frontale. Génie des procédés. Université Paul Sabatier, 2005. Français. NNT: . tel-01306696

**HAL Id: tel-01306696**

**<https://ut3-toulouseinp.hal.science/tel-01306696>**

Submitted on 25 Apr 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THESE

Présentée devant  
L'UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE – TOULOUSE III

en vue de l'obtention du grade de  
**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PAUL SABATIER**  
Spécialité : GENIE DES PROCEDES

par

**Alexia GRENIER**  
Ingénieur E.N.S.I.G.C.

## **METHODES POUR L'IDENTIFICATION ET LA CARACTERISATION DE MECANISMES DE COLMATAGE EN FILTRATION FRONTALE**

Soutenue publiquement le 8 juin 2005 devant le jury composé de :

Alain GRASMICK - Professeur, Université de Montpellier II (rapporteur).  
Philippe MOULIN - Maître de Conférences, Université d'Aix-Marseille III (rapporteur).  
Philippe CARVIN - Ingénieur, Rhodia Recherche, Lyon.  
Rémi VALERO - Ingénieur, Rhodia Silices, Collonges-au-Mont-d'Or.  
Martine MEIRELES-MASBERNAT - Chargée de Recherche CNRS, LGC, Toulouse.  
Pierre AIMAR - Directeur de Recherche CNRS, LGC, Toulouse.  
Maurice COMTAT - Professeur, Université Paul Sabatier, Toulouse III.

Directeur de thèse : Martine MEIRELES-MASBERNAT

U.F.R. Physique – Chimie – Automatique  
Laboratoire de Génie Chimique  
CNRS – UMR 5503 - Toulouse



## ***Méthodes pour l'identification et la caractérisation de mécanismes de colmatage en filtration frontale***

### **Résumé**

La démarche utilisée lors de ces travaux de thèse s'inscrit dans une problématique industrielle qui vise à évaluer les risques de colmatage d'un média filtrant lors de la filtration frontale d'une suspension solide-liquide. L'objectif est d'identifier et de caractériser les mécanismes dominants au cours d'une opération de filtration. La stratégie repose sur une approche générique et phénoménologique, basée sur des paramètres facilement accessibles, tels que le suivi du volume  $V(t)$  de filtrat. Elle s'appuie, en outre, sur l'utilisation de l'équation

$$\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left( \frac{dt}{dV} \right)^n$$

qui permet de tester la dynamique du système au cours du temps. Le média filtrant est ici considéré comme un collecteur de particules et la notion de capture de particules, bien connue en filtration en profondeur, a été étendue à d'autres mécanismes comme le blocage de surface et la construction d'un gâteau de filtration. La méthodologie initialement développée sur un système modèle (suspension de bentonite/ membranes de microfiltration) à l'échelle du laboratoire a permis d'étudier de larges gammes de concentration et de pression de filtration. De cette étude, nous avons montré que le paramètre caractéristique du gâteau ne dépendait ni de la nature, ni de la structure du média filtrant. Concernant le blocage de surface, nous avons quantifié l'influence du rapport des diamètres de particule et de pore ( $d_{particule}/d_{pore}$ ), et de la contrainte de cisaillement  $\tau_w$  à la paroi à l'entrée d'un pore sur la capture de particule. Enfin, la transposition à un système complexe et variable (suspension de silice précipitée/ toiles de filtration) à l'échelle d'un pilote industriel a été réalisée.

---

## ***Methods for identifying and characterising fouling mechanisms in dead-end filtration***

### **Abstract**

How is it possible to evaluate the risks of a filter media to be fouled when filtering a particle suspension through it? This industrial issue can be dealt with a macroscopic and generic approach through phenomenological parameters. The goal of this study is to identify and to characterise the successive prevailing mechanisms which occur during a filtration step. This approach is based on experimental data (filtrate volume  $V$  versus time  $t$ ) and lies in the use of

the equation  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left( \frac{dt}{dV} \right)^n$  which enables us to test the system dynamics. The filter media

is considered as a particle collector and the particle capture notion is extended to different locations: inside, at the surface and even outside the filter media for the cake filtration mechanism. The methodology has been initially developed on a model system (bentonite suspension / microfiltration membranes) at a lab-scale. We have studied the effect of parameters, such as suspension concentration and filtration pressure, on the phenomenological parameters. It has been shown that the parameter characterising the cake is not dependent on the filter media structure. Concerning the pore blocking mechanism, we have quantified the influence of the wall shear stress  $\tau_w$  at the pore entrance and the strong dependence of the ratio of diameters of the particle and the pore ( $d_{particle}/d_{pore}$ ) on the particle capture phenomenon. Lastly, the scaling up to a more complex system (precipitated silica suspension / woven media) at a pilot scale has been achieved.

Cette thèse s'est déroulée au Laboratoire de Génie Chimique à Toulouse, au sein de l'équipe Procédés de Séparation Et Membranes. Je souhaite tout d'abord remercier Joël BERTRAND, directeur du laboratoire, de m'y avoir accueilli.

Les travaux présentés dans ce mémoire ont été effectués dans le cadre d'une bourse CIFRE, financée par le groupe Rhodia Recherche. Je remercie Philippe CARVIN, bien que géographiquement éloigné, d'avoir suivi et prêté une attention particulière à ces travaux.

Côté laboratoire, ce travail a été co-dirigé par Martine MEIRELES et Pierre AIMAR. Je souhaite remercier Martine pour son ouverture d'esprit, sa disponibilité au quotidien, et sa gentillesse, et Pierre pour son esprit critique et pour le recul qu'il a su apporter à ce travail. Enfin, je suis reconnaissante de la confiance qu'ils m'ont accordée au cours de ces trois années passées.

Je remercie Maurice COMTAT d'avoir accepté la présidence du jury de soutenance de thèse et pour nos discussions « provençales ». Que Philippe MOULIN et Alain GRASMICK trouvent ici l'expression de ma gratitude pour m'avoir fait l'honneur et pour avoir pris le temps de rapporter ce travail. Je tiens aussi à remercier Rémi VALERO d'avoir accepté de prendre part au jury de soutenance, ainsi que de m'avoir accueillie dans son laboratoire de Rhodia Silices.

Pour les aspects plus techniques, je souhaite remercier Jean-Pierre LAFAILLE pour son aide concernant la conception et la maintenance du pilote, et Patrick COLOMBIES pour son savoir-faire et sa rapidité lors de la construction d'une nouvelle cellule de filtration en fin de thèse.

Je ne saurais oublier, dans ces quelques lignes, toutes les personnes du laboratoire, permanents et doctorants, qui ont rendu ces trois années très agréables.

Une pensée particulière à Yolaine et aux cryptophiles, JiB, Antoine le Tonton d'Amérique, Désiré et Sandrine.

Et enfin, je tiens à remercier Cyril pour sa patience, son soutien inconditionnel tout au long de cette thèse, et pour cette nouvelle aventure qui commence...

*A Maelys,*

# Table des matières

<b>INTRODUCTION GENERALE .....</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE I. ETAT DE L'ART .....</b>	<b>5</b>
<b>1 GENERALITES SUR LA FILTRATION.....</b>	<b>6</b>
1.1 FILTRATION SUR SUPPORT .....	6
1.2 FILTRATION EN PROFONDEUR .....	7
1.3 MODES DE FILTRATION .....	7
<b>2 LES DIFFERENTS TYPES DE MEDIA FILTRANTS.....</b>	<b>10</b>
2.1 LES MEDIA TISSES .....	11
2.2 LES MEDIA NON-TISSES [6] .....	16
2.3 LES MEDIA POREUX RIGIDES .....	19
2.4 LES MEMBRANES .....	19
<b>3 CHOIX DE MEDIA FILTRANTS EN FONCTION DE LA TAILLE DES PARTICULES ET DU FONCTIONNEMENT D'UNE OPERATION DE FILTRATION .....</b>	<b>22</b>
<b>4 DESCRIPTION DES PHENOMENES DE COLMATAGE .....</b>	<b>24</b>
4.1 DEFINITION DU COLMATAGE.....	24
4.2 OBSERVATIONS DU COLMATAGE .....	24
4.3 COLMATAGE REVERSIBLE/IRREVERSIBLE .....	26
<b>5 MODELISATION DES PHENOMENES DE COLMATAGE ET DE FORMATION DU GATEAU DE FILTRATION.....</b>	<b>27</b>
5.1 ECOULEMENT A TRAVERS UN MILIEU POREUX .....	27
5.2 MODELISATION D'UN PROCESSUS DE FORMATION D'UN DEPOT .....	29
5.3 LES MODELES CLASSIQUES DE BLOCAGE EN FILTRATION .....	31
<b>6 ANALYSE CRITIQUE SUR L'UTILISATION DES LOIS DE BLOCAGE EN FILTRATION FRONTALE .....</b>	<b>36</b>
6.1 COLMATAGE INTERNE DU MEDIA .....	36
6.2 CARACTERE NON DISCRIMINANT DES MODELES DE BLOCAGE.....	37
6.3 UTILISATION DE LA REPRESENTATION $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$ .....	39
6.4 DISCUSSION SUR D'AUTRES MODELES DE COLMATAGE.....	42
<b>CONCLUSION .....</b>	<b>47</b>

<b>CHAPITRE II. APPROCHE PHENOMENOLOGIQUE .....</b>	<b>49</b>
<b>1 ETAPES DE COLMATAGE ET DE FORMATION DE GATEAU .....</b>	<b>50</b>
1.1 COLMATAGE DU MEDIA .....	50
1.2 FORMATION DU GATEAU DE FILTRATION .....	51
<b>2 BASES ET HYPOTHESES DE L'APPROCHE DEVELOPPEE .....</b>	<b>53</b>
<b>3 EXIGENCES DE L'APPROCHE.....</b>	<b>55</b>
<b>4 MODELE PHENOMENOLOGIQUE.....</b>	<b>56</b>
4.1 CONCEPT .....	56
4.2 EQUATIONS DU MODELE .....	56
4.3 « RECAPITULATIF » .....	66
<b>5 CLASSIFICATION DES PARAMETRES-CLES EN DIFFERENTS NIVEAUX .....</b>	<b>68</b>
<b>CONCLUSION .....</b>	<b>70</b>
<b>CHAPITRE III. MATERIELS ET ELEMENTS DE METHODOLOGIE .....</b>	<b>71</b>
<b>1 MATERIELS .....</b>	<b>72</b>
1.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....	72
1.2 CELLULE DE FILTRATION .....	73
1.3 MEMBRANES DE MICROFILTRATION.....	73
1.4 SUSPENSION.....	77
<b>2 ACQUISITION ET GESTION DES DONNEES EXPERIMENTALES .....</b>	<b>80</b>
2.1 ACQUISITION DES DONNEES EXPERIMENTALES .....	80
2.2 TRAITEMENT DES DONNEES EXPERIMENTALES .....	80
<b>3 IDENTIFICATION DES MECANISMES DE COLMATAGE DOMINANTS APPARENTS .....</b>	<b>83</b>
3.1 UTILISATION DE LA REPRESENTATION $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$ .....	83
<b>4 DETERMINATION DES PARAMETRES-CLES CARACTERISANT LE COLMATAGE.....</b>	<b>90</b>
4.1 BLOCAGE DE PORE OU « BLOCAGE COMPLET » .....	93
4.2 FORMATION D'UN DEPOT OU « FILTRATION SUR GATEAU » .....	94
<b>5 DESCRIPTION D'UNE COURBE EXPERIMENTALE DE FILTRATION .....</b>	<b>96</b>
5.1 APPROXIMATION PAR DES MECANISMES DE COLMATAGE SUCCESSIFS .....	96
5.2 MODELISATION DE LA COURBE DE FILTRATION .....	96
5.3 EXEMPLE DE RECONSTRUCTION DE LA COURBE DE FILTRATION.....	96
<b>CONCLUSION .....</b>	<b>100</b>

<b>CHAPITRE IV. RESULTATS ET DISCUSSION SUR LA BENTONITE.....</b>	<b>101</b>
<b>1 RECONSTRUCTION D'UNE COURBE DE FILTRATION.....</b>	<b>102</b>
<b>2 INFLUENCE DES PARAMETRES OPERATOIRES SUR LA VARIATION DES PARAMETRES PHENOMENOLOGIQUES.....</b>	<b>107</b>
2.1 EFFET DE LA CONCENTRATION.....	107
2.2 EFFET DE LA PRESSION.....	114
2.3 EFFET DU DIAMETRE DE PORE.....	128
<b>3 DISCUSSION.....</b>	<b>132</b>
3.1 FORMATION DE DEPOT.....	132
3.2 BLOCAGE DE SURFACE.....	132
<b>CONCLUSION .....</b>	<b>136</b>
<b>CHAPITRE V. RESULTATS ET DISCUSSION SUR LA SILICE PRECIPITEE.....</b>	<b>139</b>
<b>1 OBJECTIFS DE L'ETUDE.....</b>	<b>140</b>
<b>2 MATERIELS .....</b>	<b>143</b>
2.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....	143
2.2 CELLULE DE FILTRATION .....	143
2.3 TOILES DE FILTRATION .....	145
2.4 DEUX TYPES DE SUSPENSION DE SILICE PRECIPITEE .....	148
<b>3 FILTRATION DE SUSPENSIONS DE SILICE PRECIPITEE SUR TOILES DE FILTRATION</b>	<b>150</b>
3.1 OBJECTIFS.....	150
3.2 PROTOCOLE OPERATOIRE.....	150
3.3 SUSPENSION ZA.....	150
<b>4 CYCLES DE FILTRATION – RETROLAVAGE SUR UNE TOILE DE FILTRATION.....</b>	<b>167</b>
4.1 OBJECTIFS DE L'ETUDE .....	167
4.2 PROTOCOLE .....	167
4.3 EFFICACITE DU RETROLAVAGE .....	168
4.4 IMPACT DES RETROLAVAGES SUR LES PARAMETRES DU MODELE.....	171
<b>5 DISCUSSION.....</b>	<b>178</b>
5.1 COMPARAISON TOILES DE FILTRATION POUR LA SILICE ZA .....	178
5.2 MASSE « DEPOSEE » A L'INTERIEUR ET A LA SURFACE DU MEDIA FILTRANT .....	179
5.3 DESCRIPTION DU PHENOMENE DE COLMATAGE EN TERME DE RESISTANCE HYDRAULIQUE .....	182
<b>CONCLUSION .....</b>	<b>192</b>
<b>CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES .....</b>	<b>195</b>

<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	<b>201</b>
<b>NOMENCLATURE.....</b>	<b>205</b>
<b>ANNEXES .....</b>	<b>209</b>

# Introduction générale

La filtration est une opération des plus familières, que l'on côtoie dans les jeux de l'enfance, puis dans les tâches domestiques, et ce depuis l'antiquité puisque l'on retrouve des témoignages explicites de filtration sur les parois de certaines pyramides égyptiennes. A cette proximité, correspond une relative simplicité de principe, aisément compréhensible, mais également une relative facilité de mise en œuvre, du moins pour ce qui concerne les opérations simples : en effet, on obtient assez facilement d'assez bons résultats de séparation par filtration sans étude préalable approfondie, alors que par comparaison, mettre au point une colonne à reflux ou un réacteur continu multiphasique requiert l'acquisition préalable de données théoriques importantes avant de donner un quelconque résultat, sans parler des risques de fonctionnement associés à la pratique des essais à l'aveugle.

C'est probablement pour de telles raisons que la filtration est une opération extrêmement répandue, dans l'artisanat, l'industrie traditionnelle comme la chimie de spécialité ou la chimie fine, et demeure une étape irremplaçable de séparation liquide – solide, concurrencée par la centrifugation, plus productive mais plus chère, ou la décantation, moins sélective et souvent plus lente.

De nombreux travaux de recherche traitant de la filtration ont porté en particulier sur la structure des gâteaux de filtration, leur consolidation, leur perméabilité, et ont souvent été vus par des mécaniciens ou des physiciens (pour la partie comportement granulaire). Cependant, ces recherches, aussi avancées soient elles, n'ont pas permis de bien résoudre les questions posées par l'industrie moderne : adaptabilité des ateliers, choix rapide des matériaux de filtration et des conditions opératoires, anticipation des ruptures de média ou de leur fin de vie, etc. Parallèlement, se développe avec l'évolution des connaissances et des technologies, un mouvement vers l'usage de plus en plus important de matériaux divisés de taille de plus en plus petite : cette évolution pose la question de la conception de nouvelles installations qualifiées pour traiter de tels milieux, et donc de la mise en concurrence des technologies de type membranaire avec les technologies de filtration de type traditionnel.

Les travaux développés jusqu'ici n'apportent que des réponses partielles à ces types de questions. Notamment, le colmatage et le blocage des média filtrants demeurent mal connus. Ces travaux couvrent des approches très variées notamment en termes d'échelles des phénomènes et des mécanismes pris en compte. Les travaux certainement les plus prometteurs

sont aujourd'hui menés à l'échelle locale (microphysique d'une particule dans un milieu dense). Ils permettent d'accéder à une compréhension fine du comportement des lits, au moins à l'échelle locale. Progressivement, avec l'arrivée des particules submicroniques, les interactions de surface sont prises en compte, notamment dans les travaux récents concernant les écoulements diphasiques en milieux poreux. L'intégration de ces connaissances dans des modèles globaux demeure encore un objectif à long terme, notamment parce que ce problème suppose a priori que l'on intègre une multitude de paramètres (et donc que l'on alimente les modèles à l'aide d'une multitude de paramètres physiques caractérisant les média, les fluides, les procédés, leurs évolutions sous contraintes...) pour finalement découvrir pourquoi seule une partie de ces données est nécessaire au travail d'ingénierie.

A l'analyse, cette approche intégrative peut être un frein au développement des procédés, car elle suppose une connaissance initiale largement supérieure à celle qui sera in fine, utile au procédé. Tout en conservant un œil attentif aux travaux théoriques en cours de développement et en particulier en France sur la mécanique des milieux poreux et des milieux divisés denses, on peut chercher à faciliter l'intégration dont on vient de parler ci-dessus, en s'interrogeant sur des méthodologies descendantes classiques, partant du procédé ou du pilote, et qui établissent, sur des bases physiques aussi rigoureuses que possible, des liens formels et quantitatifs entre les variables de base d'un procédé (dimensions, grandeurs intensives (pression, température, concentration, viscosité, etc.)) et ses performances. La filtration possède une particularité, qui est que la principale grandeur de performance est relativement peu spécifique des phénomènes qui interviennent à l'intérieur ou à la surface d'un média filtrant : le flux diminue, plus ou moins vite, mais on trouve difficilement la signature irréfutable de tel ou tel mécanisme. Ainsi, et de manière assez étonnante, les modèles physiques les plus simples et les plus indiscutables pour la filtration, développés dès le début du XX<sup>ème</sup> siècle, sont très souvent invoqués, mais rarement utilisés efficacement pour modéliser ou dimensionner une installation, et souvent rapidement abandonnés pour d'autres modèles, comme des modèles statistiques qui nécessitent une description plus fine des média, des fluides et de leurs composants : le nombre de données nécessaires explose, sans que l'efficacité des modèles, pour l'instant, n'augmente en proportion. En d'autres termes, le fameux modèle à 10 \$ d'Octave Levenspiel [1] n'est pas encore arrivé en filtration...

Les discussions qui ont présidé à cette thèse ont porté sur ce besoin, de la part d'industriels, de pouvoir, rapidement, disposer d'informations suffisamment fiables pour décider d'avancer dans une voie de procédé utilisant la filtration. Au départ, cette approche incluait la fois la

filtration particulaire et la séparation membranaire, allant jusqu'aux bioréacteurs à membrane, dont le colmatage important est également très problématique.

Dans le contexte industriel, la problématique partait d'une analyse de type systémique (mais aussi technico-économique) et donc était porteuse d'une logique forte et intégrative, mais elle paraissait très ambitieuse vue du côté recherche.

Progressivement au cours des trois années, l'avancée des résultats et la pression des différents services ont délimité un champ plus étroit à notre recherche (sans jamais perdre de vue que les travaux devaient pouvoir être étendus le plus largement possible à tout moment). C'est dans ce contexte que nous avons cherché à élaborer une réponse aux questions posées, et pour cela, une stratégie de recherche. Le manuscrit essaie de retracer cette démarche.

Nous essayons de mettre en évidence sur quels travaux nous nous sommes basés, et les raisons de ces choix. Il n'a pas été jugé utile ici de citer tous les travaux réalisés ces 20 dernières années sur les questions de colmatage de membranes. Ceux portant sur le colmatage des média filtrants demeurent assez rares, et relativement peu exploitables dans notre démarche.

La thèse se compose ensuite d'une partie où nous décrivons les modèles de colmatage utilisés (modèles classiques) et les méthodes pour les exploiter (moins classiques), et enfin notre parti pris quant à la modélisation de l'opération toute entière, qui fera l'objet de la thèse. Dans les deux chapitres expérimentaux suivants, nous avons éprouvé cette approche d'abord sur un système « bentonite – membranes de microfiltration », puis sur un des systèmes industriels concernés par le projet « silice précipitée – toiles filtrantes ».

On verra au cours de ces développements que les approches classiques possèdent un fort potentiel, lorsqu'on les emploie dans des conditions rigoureusement établies. On voit aussi que sous ces aspects familiers, la filtration présente des dynamiques très élevées dans les premiers instants, que nous ne parviendrons pas à saisir cette fois.

## Chapitre I. Etat de l’art

### **Chapitre d'équation 1 Section 1**

Dans ce chapitre, nous présentons une revue bibliographique concernant la problématique du choix d’un média filtrant lorsqu’on cherche à filtrer une suspension pour récupérer soit la phase solide (sous forme d’un gâteau), soit la phase liquide (qui est le filtrat), soit les deux.

Après des considérations générales sur la filtration, nous passerons en revue les différents types de média filtrants existants. Une attention particulière sera portée aux média tissés et aux membranes de microfiltration qui ont été utilisés pendant ces travaux de thèse.

Ensuite, nous nous intéresserons à la manière dont ces média se colmatent. Nous présenterons les principaux modèles qui permettent de décrire les phénomènes de colmatage mis en jeu lors d’une étape de filtration.

Une analyse critique sera faite sur les modèles de blocage proposés par Hermia, il y a une vingtaine d’années.

# 1 Généralités sur la filtration

Le but d’une opération de filtration est la séparation d’une phase dispersée ou dissoute dans une phase continue.

Suivant les cas, on cherche à récupérer :

- soit la phase continue débarrassée au maximum de la phase dispersée (filtration de l’air ou de l’eau, d’une huile moteur, d’un liquide alimentaire, etc.);
- soit la phase dispersée (récupération d’un précipité cristallin, de poussières de métal précieux dans des fumées, etc.);
- ou les deux.

Les deux phases en présence peuvent être :

- un gaz et un solide (fumées);
- un gaz et un liquide (brouillard);
- un liquide et un solide (suspension).

On se limitera, dans ce qui suit, essentiellement à l’étude de la *filtration des mélanges solide-liquide*, bien que de nombreux principes généraux soient applicables aux autres types de filtration.

Pour effectuer une séparation solide-liquide, on fait passer la suspension au travers d’un *corps poreux* appelé *média filtrant* qui, de façon schématique, retient les particules solides et se laisse traverser par le liquide. Le liquide clarifié est appelé *filtrat*. La force de transfert est, ici, la différence de pression. Elle peut être exercée par une pompe ou par un gaz sous pression, c’est la *filtration sous pression* ; elle peut aussi résulter d’un vide appliqué en aval du milieu filtrant, c’est la *filtration sous vide*.

Pour séparer les particules solides de la suspension, on peut distinguer deux techniques principales : la filtration sur support et la filtration en profondeur.

## 1.1 Filtration sur support

La suspension à filtrer est amenée au-dessus d’un support perméable (grille, toile, membrane) sur lequel les particules se déposent sous la forme d’un *gâteau* d’épaisseur croissante. Tout au long de ce manuscrit, on utilisera indifféremment les termes de *dépôt* et de *gâteau*.

## 1.2 Filtration en profondeur

La suspension s’écoule au travers d’une masse poreuse (média tissé, couche de sable ou de graviers, particules agglomérées sous forme de disques, cylindres, bougies, etc.). Il existe des pores tortueux entre les grains, pores dont les dimensions sont en général plus grandes que celles des particules de la suspension. L’expérience montre cependant que des particules de la suspension viennent se loger dans les pores de la masse en se coinçant entre des grains ou en se déposant dans des anfractuosités, ou encore en se collant contre les faces des grains. Il s’ensuit alors un colmatage progressif de la masse poreuse. Le filtrat sort plus ou moins pur suivant la texture de cette masse, la forme des particules à retenir et leur répartition granulométrique, les propriétés physico-chimiques des particules et du filtrat, l’épaisseur de la couche filtrante, le temps, le débit de suspension, etc.

Cette filtration, dite *dans la masse*, ou *en profondeur*, est en général utilisée pour les suspensions peu chargées en matières solides.

Les deux techniques de filtration sont très utilisées dans l’industrie. Nous nous focaliserons surtout sur la *filtration sur support*. Cependant, la *filtration en profondeur* sera abordée pour tenter d’expliquer les phénomènes de capture de particules dans le volume poreux du média filtrant qui peuvent intervenir au cours de la filtration sur support lorsque les fines (particules non retenues à la surface du média) traversent ce dernier.

## 1.3 Modes de filtration

### 1.3.1 Mode frontal - tangentiel

Au cours d’une opération de filtration, deux modes de fonctionnement peuvent être distingués : le mode *frontal* et le mode *tangentiel*.

En mode *frontal*, l’écoulement du fluide est normal à la surface filtrante. Les espèces amenées vers le média filtrant, s’y accumulent de façon continue, ce qui engendre une augmentation de la résistance hydraulique, notamment par production d’un gâteau de filtration. Le mode frontal permet de réduire fortement les coûts d’énergie (pas d’utilisation de pompe de recirculation). Il est, conventionnellement, le plus utilisé en clarification d’eau potable.

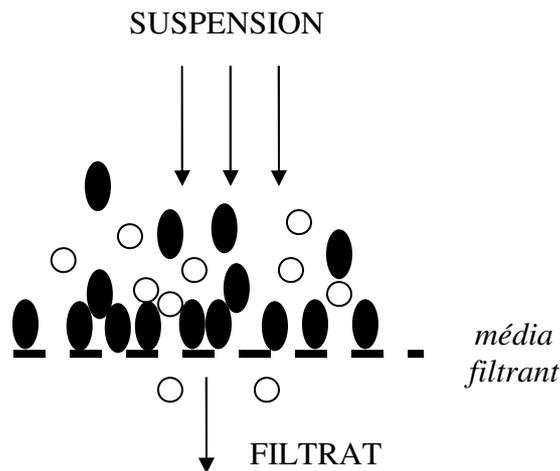


Figure I-1 : Mode frontal

En mode *tangential*, le fluide à filtrer est en écoulement parallèle à la surface filtrante (ceci est seulement vrai lors d'écoulement en mode interne - externe dans les membranes, ce n'est rarement vrai en écoulement externe - interne (écoulement croisé, aération...)). L'avantage de ce mode est la limitation de l'accumulation de matière sur la surface filtrante, ce qui permet d'obtenir, pour des pressions imposées, des flux de filtrat plus élevés en moyenne que dans le cas de la filtration frontale. Enfin, le mode tangential est utilisé dans le domaine des particules de petites tailles ou de solutés.

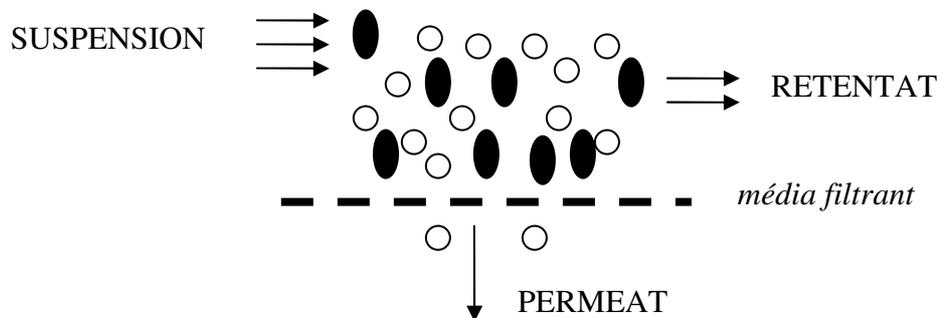


Figure I-2 : Mode tangential

Schématiquement, aussi bien en mode frontal qu'en mode tangential, la suspension à traiter se divise au niveau du support filtrant (cf. figures I-1 et I-2) en deux parties de concentrations différentes :

- une partie qui passe à travers le média, appelé *filtrat* ou *perméat*, qui contient les espèces transférées en aval du média filtrant ;
- une partie qui ne traverse pas le média, appelée *concentrat* ou *rétenant*, et qui contient les molécules ou particules retenues par le média filtrant.

Selon l'application finale du procédé, on peut récupérer soit la phase solide (production d'un gâteau de filtration), soit la phase liquide (obtention d'un filtrat clair), ou les deux.

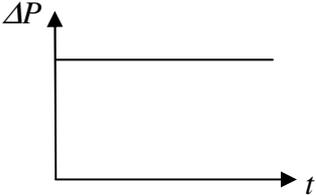
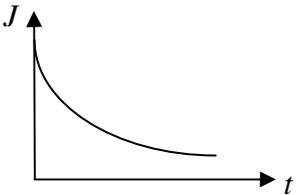
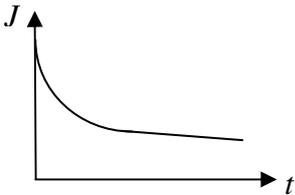
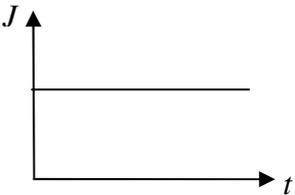
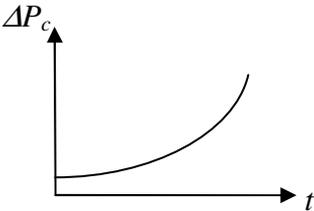
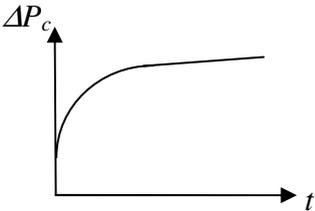
### 1.3.2 Conduite à pression/ flux constant

Généralement, on mène la filtration selon deux modes de conduites : à *différence de pression constante* et à *flux constant*.

D’après le tableau I-1, lors d’une opération de filtration, on assiste à une accumulation de matière à la surface ou à l’intérieur du média filtrant, qui se traduit par :

- une diminution de flux ( $J$ ) au cours du temps, à *différence de pression constante*  $\Delta P$  ;
- une augmentation de la perte de charge ( $\Delta P_c$ ) à travers le média avec le temps, à *flux constant* imposé.

Tableau I-1 : Effet de l’accumulation de matière à la surface ou dans le média filtrant sur le paramètre de production ( $J$  ou  $\Delta P_c$ )

CONDUITE :	MODE FRONTAL	MODE TANGENTIEL
		
		

Le mode tangential permettant de limiter l’accumulation de matière à la surface filtrante, le paramètre de production ( $J$  ou  $\Delta P_c$ ) se stabilise alors à une certaine valeur correspondant à un état quasi-stationnaire.

## 2 Les différents types de média filtrants

Dans la filtration sur support, un média filtrant a pour rôle principal de retenir les particules solides d’une suspension avec une consommation en énergie minimale. Il est possible de classer les média suivant deux catégories :

- (a) ceux qui ont pour but de récupérer le produit solide sous forme d’un gâteau qui se forme à la surface du média
- (b) ceux utilisés en clarification d’un fluide pour lequel on veut se débarrasser des impuretés ; le produit d’intérêt est ici le filtrat.

Les techniques de filtration nécessitent l’utilisation d’un média filtrant et la performance d’un filtre est due pour une grande part au choix de ce média. Il représente le « cœur » du système de filtration. Malgré son rôle « clé » dans l’opération de filtration, à l’heure actuelle, peu d’informations exploitables (perméabilité à l’air, poids au mètre carré, point de bulle, résistances et allongements à la rupture, épaisseur...) sont disponibles pour l’utilisateur.

La plupart des fabricants de média filtrants donnent la perméabilité à l’air comme une caractéristique intrinsèque du média filtrant. Le débit ( $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ) par unité d’aire ( $\text{m}^2$ ) et sous une différence de pression constante (1693 Pa) est pris comme une mesure de perméabilité ; cette dernière est directement reliée à la porosité (volume spécifique de vide) du média. Ainsi, une perméabilité élevée indique souvent une porosité élevée.

La figure I-3 montre deux média tissés, dont la caractéristique commune est de retenir les particules ayant une taille supérieure à 40  $\mu\text{m}$ . Cependant, ils présentent des capacités de rétention très différentes pour des tailles de particules plus petites.

La connaissance de paramètres tels que la perméabilité à l’air et la capacité de rétention n’est donc pas suffisante pour faire un choix entre plusieurs média filtrants.

De ce constat, il apparaît que les expériences de filtration sont un passage obligé pour pouvoir choisir le média filtrant le plus à même de réaliser la séparation demandée.

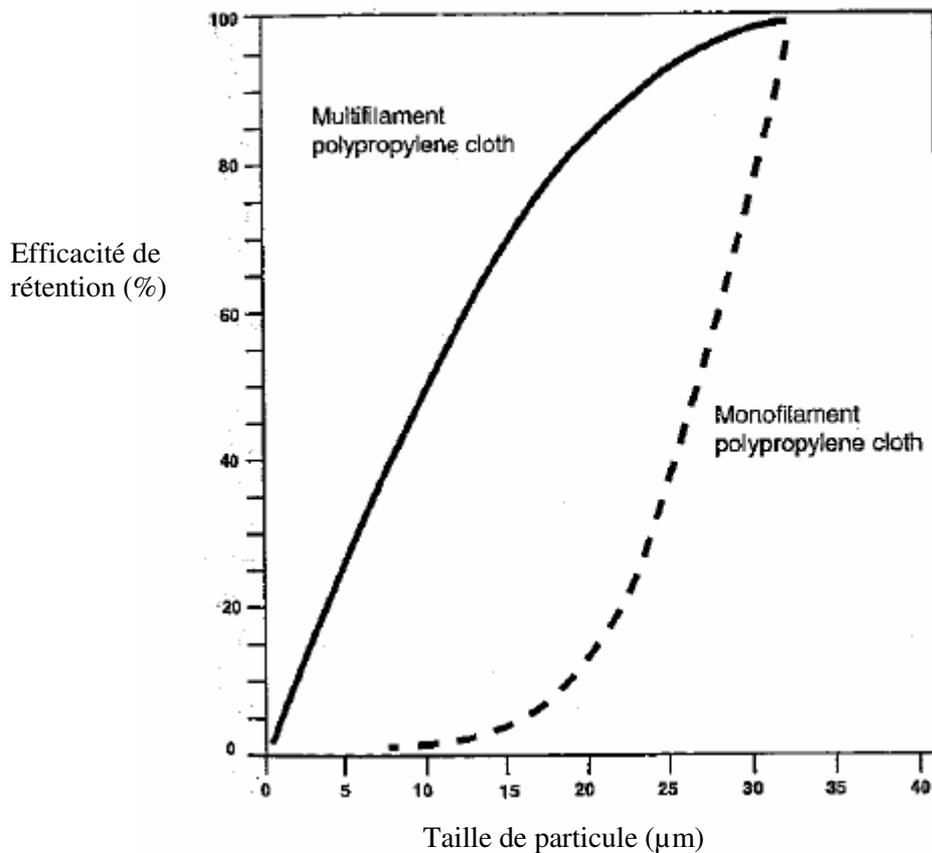


Figure I-3 : Caractéristiques de rétention de média tissés [2]

Il existe deux grands types de média filtrants : les média tissés et les média non-tissés. Ils se distinguent principalement par leur structure poreuse. Dans les média tissés, les pores (espaces libres à l'écoulement) sont réguliers en taille et en forme grâce aux techniques mêmes du tissage. En revanche, pour les média non-tissés, la taille et la forme des pores sont plus aléatoires. Dans un premier temps, les média tissés sont présentés. Puis, dans le cadre des média non-tissés, nous nous intéressons plus particulièrement aux membranes.

## 2.1 Les média tissés

Les média tissés sont fabriqués à partir de fibres, d'origines naturelle ou synthétique, ou à partir de fils métalliques (cas des tissus métalliques). Les diamètres d'ouverture peuvent descendre jusqu'à quelques dizaines de microns. La résistance hydraulique des toiles filtrantes est souvent comprise entre  $10^7$  et  $10^8$   $m^{-1}$ , parfois plus [3].

La structure des média tissés dépend aussi bien du type de fil utilisé que du type de tissage. Les fils sont disponibles sous deux formes : le fil monofilament et le fil multifilament. Le fil monofilament est un seul fil continu de fibre synthétique. Le fil multifilament peut être obtenu de deux manières différentes : soit à partir de brins de fibres torsadés de façon continue (obtention d’un fil chevelu), soit à partir de plusieurs fils monofilaments torsadés ensemble.

### 2.1.1 Quelques notions de tissage

Les fils de *chaîne* sont les fils montés sur l’axe du métier à tisser et sont traversés par les fils de *trame* pour former l’*armure* du tissu. L’armure représente le mode de tissage, c’est-à-dire, la façon dont les fils de chaîne et de trame s’entrecroisent.

On distingue trois armures fondamentales (figures I-7 et I-8) :

#### *L’armure toile ou unie*

C’est l’armure la plus simple, caractérisée par la disposition inverse des fils pairs et impairs. Le fil de trame passe successivement par dessus et par en dessous les fils de chaîne sur toute la largeur du tissu.

Caractéristiques : ni endroit, ni envers, aspect uni.

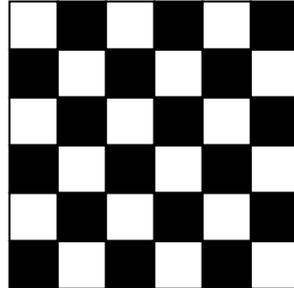


Figure I-4 : Armure toile

#### *L’armure croisée ou sergée*

C’est un tissu caractérisé par des côtes obliques et son rythme (1 pris, x laissés ou 1 laissé, x pris) avec un décochement de 1. Un *laissé*, c’est lorsque le fil de trame passe sur la chaîne ; et un *pris*, c’est lorsque le fil de trame passe sous le fil de chaîne.

Caractéristiques : l’armure sergée présente un envers et un endroit nettement différents ; les sillons se dirigent de la gauche vers la droite en escalier.

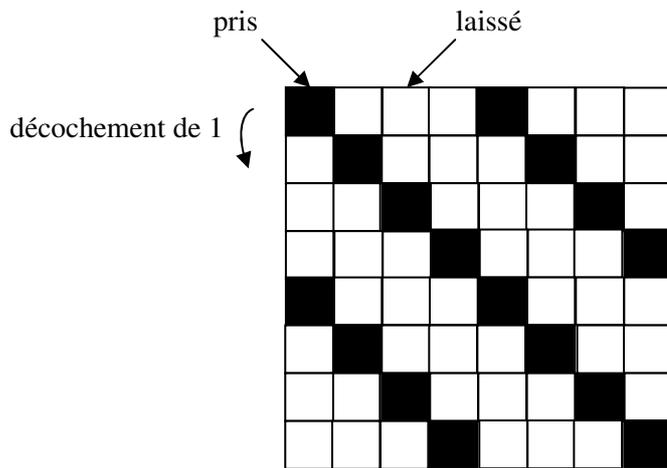


Figure I-5 : Armure sergé (1 pris, 3 laissés)

*L’armure satin*

C’est un tissu uni dans lequel on évite tout effet accentué de diagonale, grâce à des disséminations des points de liage (les pris).

Caractéristiques : ce tissu présente un envers et un endroit différents. L’endroit a une surface lisse et brillante.

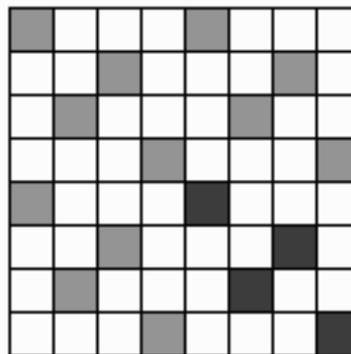


Figure I-6 : Armure satin

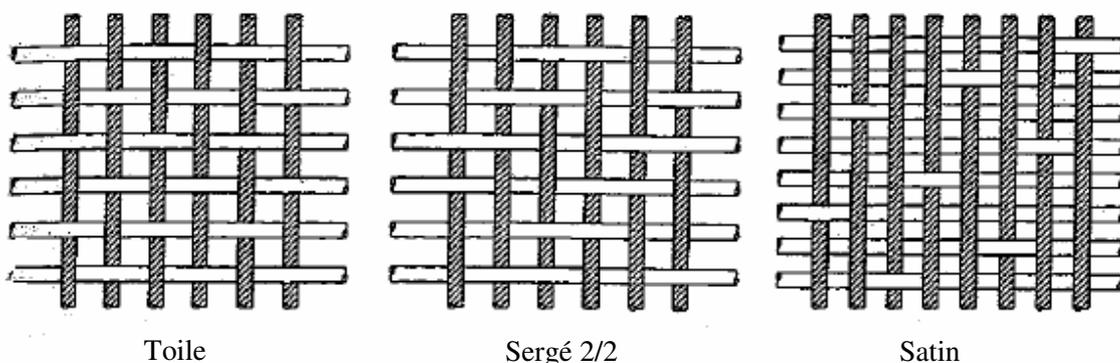


Figure I-7 : Schémas des modes de tissage pour les média tissés mono- et multifilaments (le fil de chaîne est représenté en noir, tandis que le fil de trame est représenté en blanc) [4]

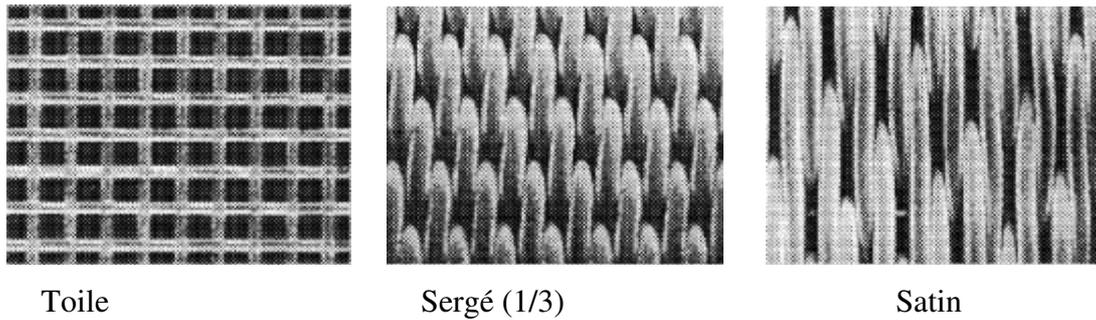


Figure I-8 : Photos des trois modes de tissage (Photo Sefar Fytlis)

Il existe des procédés de finition, comme le traitement par chauffage et le calandrage, qui donnent de nouvelles propriétés mécaniques aux média tissés. Le *traitement par chauffage* est appliqué aux toiles synthétiques pour les stabiliser et permettre leur utilisation aux températures élevées. Le *calandrage*, quant à lui, utilise des hautes pressions : la toile passe entre deux cylindres chauds ; ce procédé a pour effet d’améliorer le pouvoir de rétention et de rendre la surface plus lisse (cf. figure I-9) afin de faciliter le débâtissage du gâteau et d’augmenter le durée d’utilisation de la toile.

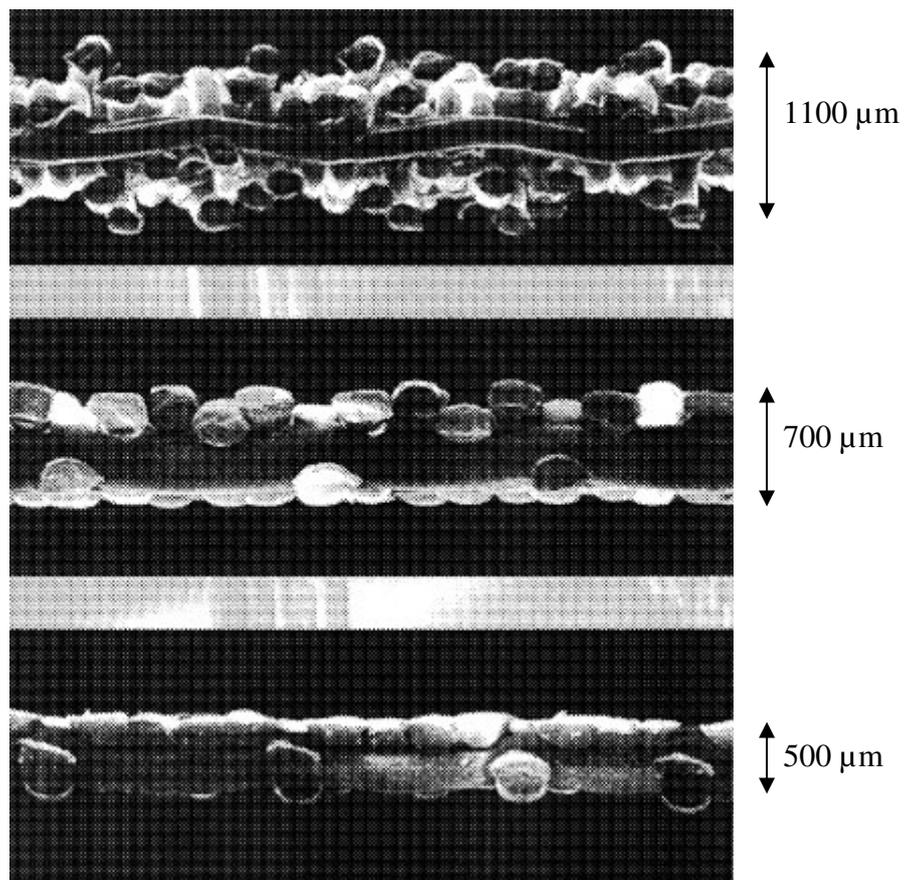


Figure I-9 : en haut : tissu non calandré ; au milieu : calandrage ordinaire, surface irrégulière ; en bas : calandrage qualité Sefar Fytlis, surface plane (Photos Sefar Fytlis)

## 2.1.2 Nature des fibres utilisées

Les toiles filtrantes sont tissées à partir de fibres synthétiques comme le nylon, le polyester, le polypropylène et occasionnellement le polyéthylène. Les caractéristiques spécifiques d’une fibre sont reliées à des propriétés chimiques, thermiques et mécaniques qui définiront l’adéquation d’une fibre pour une filtration spécifique.

## 2.1.3 Tissus métalliques [5]

Le tissage est le même que pour les médias tissés avec des fibres synthétiques. Les tissus métalliques sont plus chers que les tissus non métalliques mais ont généralement une durée de vie plus longue. Ils sont choisis, en particulier, lorsqu’il faut travailler à des températures élevées ou en présence d’agents chimiques agressifs, ainsi que pour la filtration des produits radioactifs où l’emploi des matières organiques, par exemple, est souvent proscrit, alors que les aciers inoxydables sont souvent utilisés. Le diamètre d’ouverture est de l’ordre de 40  $\mu\text{m}$ . Ce diamètre peut descendre à 10 microns par frittage de tissu métallique.

## 2.1.4 Sélection d’un média tissé

Lorsqu’on sélectionne un média, il est nécessaire de prendre en compte les résistances du matériau vis-à-vis de la chaleur, de l’abrasion et des attaques chimiques eu égard du produit à filtrer. Mais, une autre considération est aussi importante : le type de tissage et de fil utilisé. Les multifilaments peuvent donner des filtrats plus clairs mais ont une plus grande tendance à se colmater que les monofilaments. Le tableau I-2 montre l’effet du type de fil sur la performance du média tissé.

Tableau I-2 : Effet du type de fil sur la performance du média tissé [2]

	<i>Filtrat clair</i>	<i>Minimum de résistance à l’écoulement</i>	<i>Minimum d’humidité dans le gâteau</i>	Facilité du déchargement du gâteau	<i>Durée de vie maximale</i>	<i>Tendance à colmater</i>
+	Multifil	Monofil	Monofil	Monofil	Multifil	Multifil
–	Monofil	Multifil	Multifil	Multifil	Monofil	Monofil

Le signe + désigne le média qui répond au mieux à la caractéristique testée, et le signe – celui qui y satisfait le moins.

Tableau I-3 : Effet du type de tissage sur la performance du média tissé

	<i>Filtrat clair</i>	<i>Minimum de résistance à l'écoulement</i>	<i>Minimum d'humidité dans le gâteau</i>	<i>Facilité du déchargement du gâteau</i>	<i>Durée de vie maximale</i>	<i>Tendance à colmater</i>
+	Satin	Toile	Toile	Satin	Satin	Satin
↓	Sergé	Sergé	Sergé	Sergé	Sergé	Sergé
-	Toile	Satin	Satin	Toile	Toile	Toile

Les tableaux I-2 et I-3 donnent des tendances générales sur la performance d’un média tissé. Néanmoins, le meilleur moyen de choisir un média consiste à faire des expériences en laboratoire ou directement sur le filtre à l’échelle industrielle. On attend alors du média choisi les résultats suivants : un filtrat clair, une faible résistance hydraulique, une bonne résistance mécanique, un décollement aisé du gâteau de filtration et un colmatage tardif du média.

## 2.2 Les médias non-tissés [6]

### 2.2.1 Introduction

Selon l’INDA (International Nonwovens & Disposables Association), le non-tissé est « une feuille ou un voile de fibres naturelles et/ou de fibres ou filaments manufacturés, exclusion faite du papier, qui n’ont pas été tissés et qui peuvent être liés entre eux de différentes façons ». En fait, les non-tissés sont à l’interface :

- du papier (industrie papetière) ;
- des feutres, tapis ou voies aiguilletés (industrie textile) ;
- des films plastiques (industrie chimique).

### 2.2.2 Les matières premières utilisées [7]

La grande majorité des fibres utilisées est d’origine pétrolière (polyester, polypropylène, aramide, polyéthylène, etc.) :

- très peu contiennent de la cellulose ou des fibres d’origine naturelle, bien que de plus en plus de consommateurs recherchent des produits biodégradables ;
- certains produits sont à base de fibres de verre, de céramique.

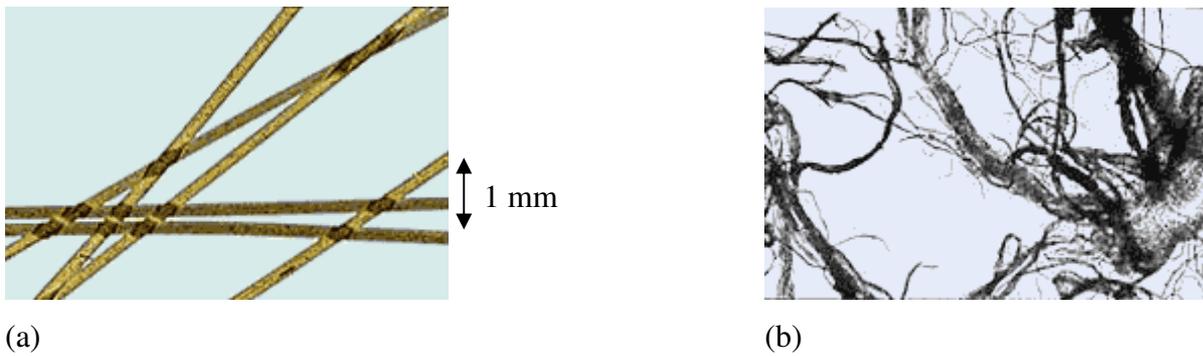


Figure I-10 : (a) fibres de polyester ; (b) Fibres de polyéthylène ; (Photo IRFIP/EFPG)

### 2.2.3 La fabrication des non-tissés

La fabrication d’un non-tissé comprend trois étapes : la formation d’une nappe, sa consolidation et sa finition. Les quatre procédés de base pour la formation de la nappe sont : la voie sèche, la voie humide, la voie fondue et la voie « in situ ».

Selon l’EDANA (European Disposables and Nonwovens Association), ce sont les voies sèches et fondues qui prédominent en Europe de l’Ouest. Dans la suite, nous ne détaillons que ces deux méthodes de fabrication.

#### *La voie sèche*

La formation de la nappe est réalisée soit par dépose des fibres sur un tapis de formation, soit par dispersion de ces fibres dans un flux d’air au-dessus d’un tapis de formation (voie aérodynamique).

La nappe, ainsi constituée, est ensuite cardée, c’est-à-dire démêlée, en passant dans des grands rouleaux recouverts de pointes de plus en plus fines, pour former un voile dans lequel les fibres peuvent être orientées au hasard ou longitudinalement. Cette technique est celle qui se rapproche le plus de celles utilisées dans l’industrie textile (cardage ou peignage des laines).

La figure I-11 représente un échantillon de non-tissé Viscose/Polyester obtenu par le procédé de voie sèche par cardage.

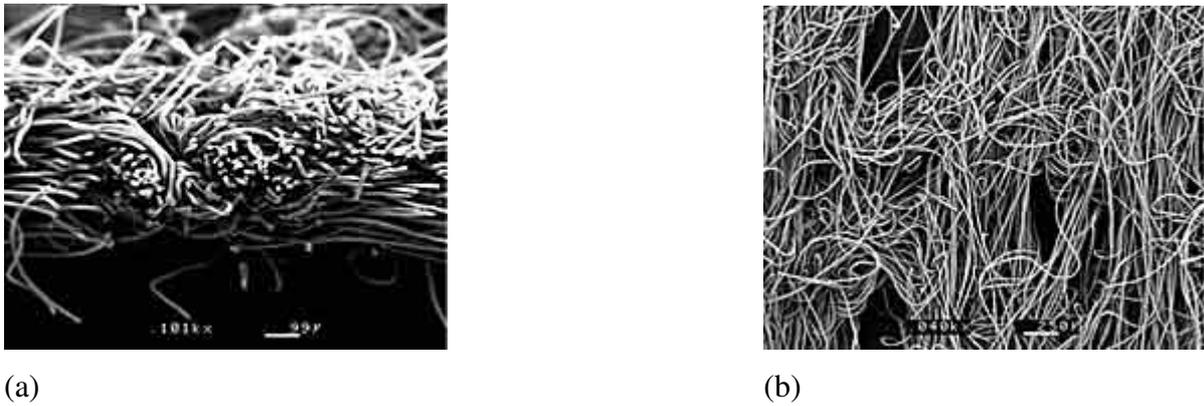


Figure I-11 : (a) voile en coupe ; (b) surface du voile non-tissé Viscose/Polyester (Photo IRFIP/EFPG)

### *La voie fondue*

Cette voie est utilisée seulement avec des fibres qui peuvent être filées à l'état fondu. Dès la sortie de filière, les filaments de matière sont refroidis et disposés sur un tapis de formation, où ils forment un voile fibreux.

Trois principes de base permettent de consolider les fibres entre elles.

*Consolidation chimique* : un liant polymère, et liquide, est appliqué au voile (enduction, imprégnation, pulvérisation,...), puis l'ensemble est séché, afin de permettre la polymérisation du liant.

*Consolidation thermique* : on utilise les propriétés de thermo-plasticité et de thermo-fixation de certaines fibres synthétiques qui peuvent créer une adhésion sous des conditions de température adaptées. Ces fibres peuvent constituer le voile initial ou être introduites dès la constitution du voile. La consolidation se fait par chauffage (convection, chaleur radiante).

*Consolidation mécanique* : la cohésion du voile est assurée par l'enchevêtrement des fibres ; ce dernier est obtenu soit par un aiguilletage mécanique, soit par des jets d'eau à très haute pression, où l'eau remplace les fines aiguilles de l'aiguilletage mécanique.

Pour améliorer leurs caractéristiques d'hydrophobie, de porosité, et d'ignifugation, les non-tissés peuvent être traités lors des phases de fabrication et de consolidation, généralement à l'aide de produits chimiques.

Enfin, les non tissés sont utilisés pour la séparation par échange d'ions et la séparation catalytique, l'industrie agroalimentaire, le conditionnement de l'air, la fabrication des sachets de thé, des sacs d'aspirateur, etc. Ils sont principalement recherchés pour les qualités suivantes : structure homogène et bonne résistance aux agressions chimiques.

## 2.3 Les média poreux rigides

### *Les céramiques*

Les céramiques ont une bonne résistance aux attaques chimiques et aux températures élevées. Les éléments céramiques sont souvent fragiles. Cependant, leur fragilité est compensée par une résistance élevée à la corrosion, ainsi que par le large éventail de porosités disponibles. Les tailles de pores peuvent varier de 1 à 2500  $\mu\text{m}$ . Les céramiques sont utilisées en filtration de gaz et pour la séparation de poussières et de gouttes dans un gaz.

### *Les métaux frittés*

Les métaux frittés peuvent être fabriqués soit à partir de métaux sous forme de poudre soit à partir de toiles métalliques. Les poudres sont frittées sous atmosphère contrôlée à des températures en dessous de leur point de fusion. Leur coût est généralement élevé mais est compensé par leur capacité à être nettoyés par rétrolavage ou par nettoyage chimique.

Les frittés peuvent aussi être fabriqués avec une ou plusieurs couches de toiles métalliques frittées avec de la poudre. En contrôlant la taille de particule de la poudre, l'épaisseur du fil et le tissage de la toile métallique, la porosité du fritté peut être obtenue avec une précision allant de 400 à moins d'un micron.

### *Les plastiques poreux*

Pour obtenir un plastique poreux, des grains de plastique sont agglomérés grâce à la chaleur et à la pression. Une sélection précise des tailles et des formes de grains donne un produit poreux homogène. Les matériaux utilisés sont le nylon, le polyester, le polyuréthane, le polyéthylène et le fluorocarbène. Les tailles de pore peuvent varier de 1 à 500  $\mu\text{m}$  grâce à des techniques de frittage.

## 2.4 Les membranes

Les membranes, ne faisant pas partie des média tissés, peuvent être considérées comme étant des non-tissés.

Il y a deux grands types de membrane : les membranes symétriques et asymétriques. Les membranes symétriques sont caractérisées par une structure uniforme dans le sens de l'écoulement à travers les pores. Les membranes asymétriques, contrairement aux membranes symétriques, sont constituées de deux couches superposées :

- une « peau » de très fine épaisseur qui est composée de petits pores et qui fait office de surface filtrante ;
- une sous-couche d'épaisseur plus importante, de texture relativement poreuse, qui joue le rôle de support mécanique à la surface filtrante.

Dans les membranes asymétriques, on peut distinguer deux sous-groupes : les membranes anisotropes et les membranes composites. Les membranes anisotropes ont la particularité d’être préparées en une seule étape à partir du même matériau. Les membranes composites sont obtenues en déposant sur un support poreux préalablement formé une mince pellicule semi-perméable de 10 à 100 nm, appelé peau. Le support poreux et la peau active sont constitués de matériaux différents, d’où le nom de membranes composites. Elles ont été développées en vue d’augmenter la perméabilité des membranes asymétriques classiques en réduisant l’épaisseur de la peau.

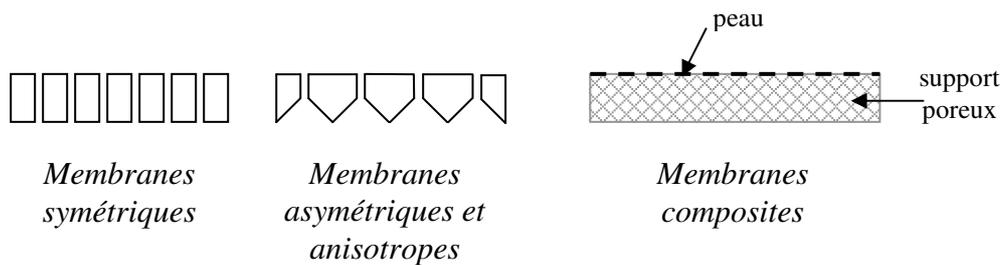


Figure I-12 : Structure schématique des membranes symétriques et asymétriques

D’un point de vue des matériaux membranaires, il existe deux grandes familles : les membranes organiques et les membranes minérales.

Les membranes organiques sont actuellement obtenues à partir de polymères organiques (acétate de cellulose, polysulfone, polyamide, etc.). Elles sont principalement asymétriques et sont fabriquées à partir de méthodes dites de *séparation de phases*.

Les membranes minérales ou inorganiques sont asymétriques. La peau filtrante est en général constituée d’un oxyde métallique, alors que le support poreux peut être en carbone, ou en alumine. Elles sont mises en forme par un procédé de *frittage*, c’est-à-dire par agglomération de poudres calibrées sous les actions conjuguées de la pression et de la chaleur.

### *Configuration des modules*

Les membranes sont mises en œuvre sous différentes formes [8, 9] :

- les *modules plans* : les membranes sont souvent rectangulaires ou circulaires (disques). Ce système aisément modulable est particulièrement adapté aux applications à faible pression. Il peut être utilisé en mode frontal ou tangentiel ; la compacité qui est le rapport de surface filtrante au volume du module varie de 100 à 400 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>.

- les *modules spiralés* : les feuilles de membranes planes et les éléments intercalaires de drainage et de support forment une cellule unique enroulée autour d'un tube central perforé. L'ensemble est installé dans un carter cylindrique sous pression. Les modules spiralés ont généralement une capacité de débit élevée et le remplacement des modules est facile. En revanche, ils sont sensibles au colmatage et difficiles à nettoyer (grande compacité : 300 à 1000 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>).
- les *modules tubulaires* : dans cette configuration, la membrane est déposée sur la surface interne de tubes supports poreux, qui sont assemblés en faisceaux, chaque faisceau constituant un module. La filtration est effectuée de l'intérieur vers l'extérieur. Ce système autorise une vitesse de circulation de liquide dans le cas de la filtration tangentielle et, grâce à la résistance mécanique élevée des membranes, il permet de traiter des fluides visqueux ou chargés (compacité : 10 à 300 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>).
- les *modules à fibres creuses* : les fibres creuses, généralement à structure asymétrique, ont un diamètre intérieur de 25 à 1500 μm et un diamètre extérieur de 50 à 2000 μm. Ces modules peuvent être constitués de quelques milliers à plusieurs millions de fibres creuses. Leur compacité varie de 1000 à 10000 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>. Ces fibres creuses sont obtenues par des procédés de filage analogues à ceux utilisés dans l'industrie textile. Le passage du fluide à traiter a lieu soit de l'intérieur (peau membrane interne) vers l'extérieur, soit de l'extérieur vers l'intérieur (peau membrane externe).

### 3 Choix de média filtrants en fonction de la taille des particules et du fonctionnement d'une opération de filtration

Ces dernières années, l'industrie a été en mesure de produire de manière efficace et maîtrisée des milieux divisés de plus en plus fins, exploitant ainsi des propriétés de réactivité, connues de longue date mais difficiles à mettre en œuvre à cause de barrières théoriques et technologiques. Cette évolution récente a entraîné des besoins en nouveaux média filtrants et l'apparition de nouvelles technologies. Pour pouvoir filtrer des particules micro- voire nano-métriques, la filtration membranaire (ou procédé de séparation par membrane) a progressivement pris une place de choix dans la gamme des opérations unitaires du génie chimique.

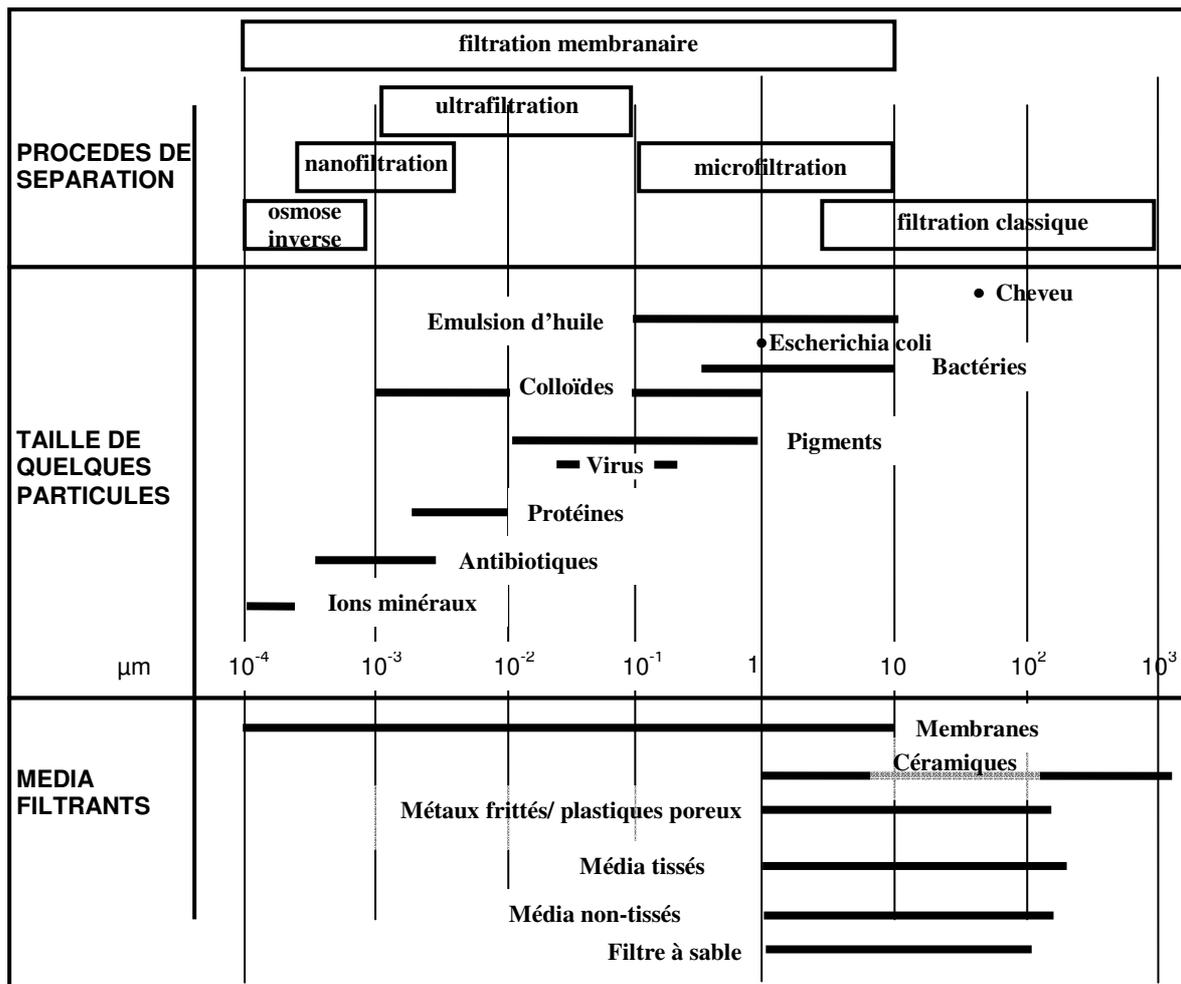


Figure I-13 : Classification des procédés de filtration

Pour la filtration membranaire, on peut considérer dans une première approche que ces procédés de séparation utilisent des membranes dont les diamètres de pores diminuent progressivement quand on passe de la microfiltration à l’ultrafiltration puis à la nanofiltration (figure I-13). Dans le cas de l’osmose inverse, la membrane utilisée n’est pas une membrane microporeuse mais une membrane dense sans porosité apparente.

De manière plus générale, la figure I-13 récapitule un ensemble de procédés de filtration qui vont de l’osmose inverse permettant de séparer des ions minéraux de l’eau, à la filtration classique ou conventionnelle (filtration sur sable) permettant de filtrer des objets dont la taille est celle du diamètre d’un cheveu.

Par ailleurs, on peut constater que de nombreux média filtrants sont susceptibles de pouvoir séparer des particules solides ayant des tailles égales ou supérieures à un micron. De plus, deux types de procédés de séparation peuvent intervenir à cette échelle : la microfiltration et la filtration classique.

On entre alors au cœur de la problématique industrielle. Compte tenu de la multitude de média filtrants existants, on peut se poser les questions suivantes pour des particules dont la taille est comprise entre 0,1 et 500  $\mu\text{m}$  :

- comment choisir un média filtrant pour réaliser une bonne séparation solide-liquide ?
- comment ces média se colmatent-ils ?

Dans la suite de ce chapitre, nous allons définir et décrire les phénomènes de colmatage que l’on rencontre lors de la filtration de particules qui ont des tailles de l’ordre ou supérieur au micron.

***Dans le paragraphe qui suit, nous nous restreindrons à la filtration frontale à pression constante, qui représente les conditions opératoires utilisées dans ces travaux de thèse.***

## 4 Description des phénomènes de colmatage

Au cours d’une opération de filtration à différence de pression  $\Delta P$  constante, on observe souvent une diminution du flux de filtrat au cours du temps qui est due :

- soit à un phénomène de construction d’un gâteau de filtration ;
- soit à un phénomène de diminution de porosité du média filtrant.

### 4.1 Définition du colmatage

Dans le cadre de cette thèse, il est essentiel de définir, à partir des phénomènes responsables de la diminution de flux de perméat, ceux qui participent au colmatage du média filtrant.

Les phénomènes qui font intervenir des mécanismes de capture de particules dans le média filtrant seront appelés *colmatage*. On peut citer, entre autres, les phénomènes d’adsorption, de blocage de surface, et de capture de particules en profondeur.

Le terme de colmatage de média étant défini, il s’agit, à présent de distinguer les différentes localisations du colmatage, et les types de colmatage (réversible, irréversible).

### 4.2 Observations du colmatage

#### 4.2.1 Cas d’un liquide pur

En l’absence de particules, toute augmentation de la pression  $\Delta P$  engendre une augmentation proportionnelle du flux de filtrat.

A ce stade de l’étude, nous allons définir une caractéristique du média filtrant : la perméabilité hydraulique ( $k_m$ ). Elle correspond à la capacité d’un média à filtrer un liquide (exempt de particules colmatantes), sous une pression donnée. Elle dépend des caractéristiques intrinsèques du média filtrant (épaisseur, nombre de pores par unité de surface, taille des pores...). De manière générale, elle est déterminée expérimentalement par la mesure du flux obtenu par filtration de filtrat clair.

#### 4.2.2 Cas d’une suspension à traiter

La première limitation au transfert provient de la modification du média filtrant dont les propriétés filtrantes initiales (cf. figure I-14 - cas du liquide pur (1)) peuvent évoluer par simple contact avec le fluide à traiter avant même que la filtration n’ait commencé.

Cette modification des propriétés filtrantes provient majoritairement d’interactions fortes entre les espèces du fluide et le matériau membranaire. Il s’agit du phénomène d’**adsorption** [10, 11]. Il implique généralement des macromolécules telles que des protéines ou des polysaccharides qui s’adsorbent à la surface de la membrane jusqu’à l’intérieur des pores.

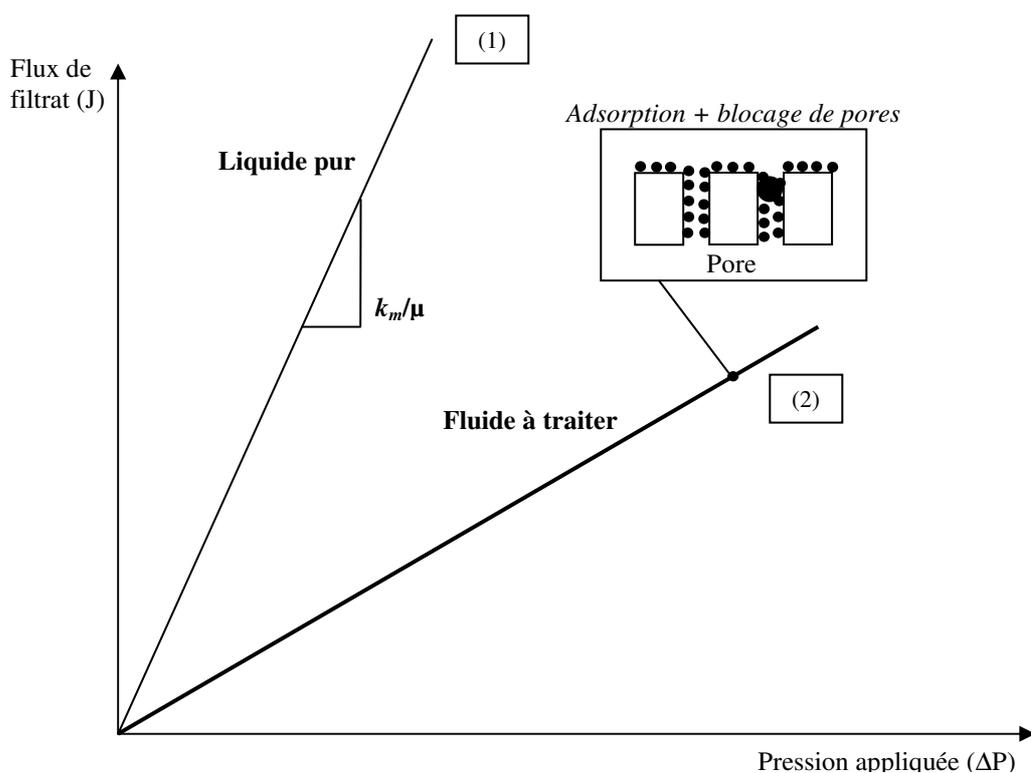


Figure I-14 : Evolution du flux de perméat en fonction de la pression appliquée dans les cas d’un liquide pur et d’un fluide à traiter

Pendant l’opération de filtration, les constituants du fluide peuvent être piégés à l’intérieur des pores du média ; cela a pour effet une *réduction de la taille des pores* ainsi qu’une *baisse du nombre de pores* efficaces au transfert, dans le cas où l’on modélise le média filtrant comme un réseau de pores capillaires, parallèles entre eux. Ce phénomène est souvent nommé **blocage de pores**. Il est largement dépendant de la taille relative des pores et des particules ainsi que des conditions hydrodynamiques.

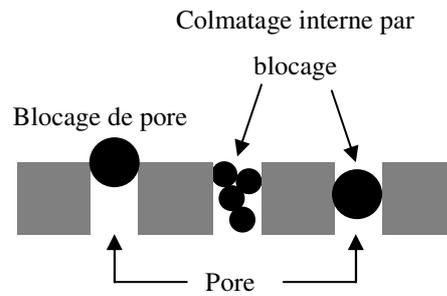


Figure I-15 : Schéma de blocage de pore

*Les mécanismes d'adsorption et de blocage de pores conduisent à une augmentation de la résistance hydraulique du média filtrant.*

### 4.3 Colmatage réversible/irréversible

D'un point de vue industriel, il est important de connaître la réversibilité du colmatage d'un média filtrant. A ce sujet, une définition simple peut être donnée : un *colmatage* est qualifié de *réversible* s'il disparaît lorsque la force de transfert (ici, la pression appliquée  $\Delta P$ ) est annulée, toutes autres conditions étant égales par ailleurs.

Au cours d'une opération de filtration, la plupart des phénomènes de colmatage sont *irréversibles* ; c'est-à-dire que lorsqu'on annule la force de transfert, le média filtrant ne retrouve pas ses propriétés d'origine. Ceci est dû à l'accumulation de matière à l'intérieur des pores ou en surface du filtre. Afin d'essayer de retrouver les propriétés de filtration initiales du média, il est nécessaire de recourir à un nettoyage mécanique (rétrolavage ou contre-pression) ou chimique (acide – base).

## 5 Modélisation des phénomènes de colmatage et de formation du gâteau de filtration

### 5.1 Ecoulement à travers un milieu poreux

La nature de l’écoulement dans une conduite est caractérisée par un nombre adimensionnel qui est le nombre de Reynolds  $Re$  :

$$Re = \frac{\rho D J}{\mu} \quad (1.1)$$

où,  $\rho$  : masse volumique du fluide ( $\text{kg.m}^{-3}$ )  
 $D$  : diamètre de la conduite (m)  
 $J$  : la densité de flux ou vitesse du fluide à travers le média poreux ( $\text{m.s}^{-1}$ )  
 $\mu$  : viscosité dynamique du fluide (Pa.s)

Dans le cas d’un milieu poreux caractérisé par un diamètre moyen de pore  $d_{pore}$ , le nombre de Reynolds sera calculé à partir de l’équation (I.1), en remplaçant  $D$  par  $d_{pore}$ .

#### 5.1.1 Loi de Darcy

En 1856, la relation fondamentale entre la perte de charge et le débit de liquide qui passe à travers un lit de particules solides a été établie par Darcy [12], pour un régime laminaire (correspondant à un nombre de Reynolds  $Re < 1$ ). Elle permet de modéliser l’écoulement d’un fluide dans un média poreux. Le liquide passant à travers l’espace ouvert entre les particules, c’est-à-dire, les pores ou les vides dans le lit, Darcy découvre que la perte de charge  $\Delta P_c$  est directement proportionnelle à la vitesse d’écoulement du fluide. La constante de proportionnalité est la perméabilité  $k_m$  du réseau poreux à une constante près (l’épaisseur  $L_m$  de ce réseau poreux). La perméabilité caractérise la capacité d’un liquide à s’écouler à travers un milieu poreux. Les facteurs qui influencent la perméabilité sont la taille des particules du média poreux et la porosité  $\varepsilon_m$ .

Pour un écoulement de fluide à travers un média poreux, la densité de flux de perméat,  $J$ , s’exprimera de la manière suivante :

$$J = \frac{\Delta P_c}{\mu \cdot R_m} \quad (1.2)$$

avec  $R_m = \frac{L_m}{k_m}$

où  $\Delta P_c$  est la perte de charge (Pa)  
 $L_m$ , l’épaisseur du média poreux (m)

$\mu$ , la viscosité du liquide (Pa.s)  
 $k_m$ , la perméabilité du média poreux ( $m^2$ )  
 $R_m$ , la résistance hydraulique du milieu poreux ( $m^{-1}$ ).

### 5.1.2 Loi d’Ergun

Lorsque la vitesse du fluide  $J$  est grande (c’est-à-dire pour un nombre de Reynolds  $Re$  compris entre 1 et 10), il est nécessaire d’introduire un terme quadratique en fonction de la vitesse pour tenir compte des effets inertiels dans l’équation de Darcy. Dans ce cas, la perte de charge  $\Delta P_c$  s’exprime suivant la loi d’Ergun [13] :

$$\Delta P_c = R_m \cdot \mu \cdot J + I \cdot \rho \cdot J^2 \quad (1.3)$$

où  $I$  (-) est un coefficient prenant en compte les effets inertiels ;  
 $R_m$  ( $m^{-1}$ ) représente la résistance hydraulique du média poreux.

### 5.1.3 Equation de Kozeny-Carman

En 1927, Kozeny suppose qu’un milieu poreux peut être représenté par un ensemble de capillaires droits (*modèle capillaire*) – la section pouvant varier d’un capillaire à un autre. Contrairement à la loi de Darcy qui considère le milieu isotrope, les travaux de Kozeny tiennent compte du fait que la structure du pore puisse avoir des détails propres qui peuvent être modélisés par une géométrie simplifiée. A partir des travaux de Kozeny, Carman développe l’équation dite de *Kozeny-Carman* [14] qui permet de calculer la perméabilité d’un milieu poreux  $k_m$ , connaissant sa porosité  $\varepsilon_m$ , ainsi que la surface spécifique  $S_v$  des particules :

$$k_m = \frac{\varepsilon_m^3}{K(1-\varepsilon_m)^2 S_v^2} \quad (1.4)$$

où,  $S_v$  est la surface spécifique des particules par unité de volume ( $m^{-1}$ )  
et  $K$ , la constante de Kozeny-Carman.

La surface spécifique  $S_v$  s’exprime usuellement par :

$$S_v = \frac{6f_H}{d_p} \quad (1.5)$$

où,  $f_H$  est le facteur de forme de Herwood qui représente l’écart à la sphéricité de la particule ( $f_H = 1$  pour une sphère) et  $d_p$  est le diamètre moyen de particule (en m).

Le modèle de *Kozeny-Carman* n’est applicable que si les interactions physico-chimiques solutés – média filtrants sont négligeables. Il permet de prédire la perte de charge  $\Delta P_c$ , pour des valeurs de porosité  $\varepsilon_m$  comprises entre 0,2 et 0,7. Notons que la relation de Kozeny-Carman s’écarte nettement des résultats expérimentaux lorsque  $\varepsilon_m$  devient supérieure à 0,7.

## 5.2 Modélisation d’un processus de formation d’un dépôt

Le dépôt de particules solides sur un média filtrant est un phénomène commun en filtration sur support lorsqu’on est en présence d’une quantité non négligeable de particules dont la taille est supérieure à celle des pores du média filtrant. Il est généralement accepté que la formation d’un gâteau se fait par un mécanisme de pontage au-dessus des pores de surface du média filtrant.

La description mathématique du processus utilise la loi de Darcy et un modèle de résistances en série. La résistance globale  $R$  s’écrit comme la somme de deux résistances :

$$R = R_m + R_d \quad (1.6)$$

$R_m$  et  $R_d$  sont respectivement la résistance du média filtrant et la résistance du dépôt.

avec  $R_d = \frac{L_d}{k_d}$  ;  $L_d$  est l’épaisseur du dépôt et  $k_d$  sa perméabilité.

En combinant les équations (I.2) et (I.6), le flux traversant le dépôt et le média filtrant a pour expression :

$$J = \frac{\Delta P}{\mu \cdot (R_m + R_d)} \quad (1.7)$$

Pendant la filtration, l’épaisseur du gâteau ( $L_d$ ) augmente ; ceci est dû au dépôt de particules solides à la surface du média filtrant. Cette augmentation est accompagnée de changements, notamment, de la vitesse du fluide en écoulement et de la différence de pression à travers le dépôt.

Dans le cas d’un gâteau *incompressible*, la porosité  $\varepsilon_d$  du dépôt (ou gâteau) étant constante, la concentration dans le gâteau ( $1-\varepsilon_d$ ) reste elle aussi constante ; ainsi, pour chaque unité de volume de suspension filtrée, le volume du gâteau augmente d’une quantité uniforme et constante.

De plus, la perméabilité du gâteau ( $k_d$ ), la concentration en particules solides dans le gâteau ( $1-\varepsilon_d$ ) et la densité du solide ( $\rho_s$ ) sont aussi considérées comme constantes pour un gâteau incompressible. Ces termes peuvent être remplacés par une seule constante appelée, la résistance spécifique, notée  $\alpha$  (en  $\text{m.kg}^{-1}$ ) :

$$\alpha = \frac{1}{k_d \cdot (1-\varepsilon_d) \cdot \rho_s} \quad (1.8)$$

Or, par analogie avec l’expression (I.4) de la perméabilité du média poreux  $k_m$ , la perméabilité du dépôt s’exprime par :

$$k_d = \frac{\varepsilon_d^3}{K(1-\varepsilon_d)^2 S_v^2} \quad (1.9)$$

En combinant les équations (I.8), (I.9) et (I.5), on obtient une relation exprimant  $\alpha$  en fonction de la porosité du dépôt  $\varepsilon_d$ , de la masse volumique des particules  $\rho_s$ , du diamètre moyen de particule  $d_p$  et du facteur de forme  $f_H$  :

$$\alpha = \frac{K \cdot (1 - \varepsilon_d)}{\varepsilon_d^3 \cdot \rho_s} \cdot \frac{36 f_H^2}{d_p^2} \quad (I.10)$$

La constante  $K$  de Kozeny-Carman a été déterminée de manière empirique et est souvent prise égale à 5.

L'équation (I.10) devient :

$$\alpha = \frac{180 f_H^2 \cdot (1 - \varepsilon_d)}{\varepsilon_d^3 \cdot \rho_s \cdot d_p^2} \quad (I.11)$$

Par ailleurs, on peut aussi définir la résistance spécifique comme le rapport entre la résistance du dépôt,  $R_d$ , et la masse sèche  $M_d$  de solides déposés par unité de surface filtrante :

$$\alpha = \frac{R_d}{M_d} \quad (I.12)$$

La résistance spécifique,  $\alpha$ , est donc un paramètre qui caractérise le gâteau de filtration supposé incompressible.

Pour un gâteau compressible, la résistance spécifique augmente avec la pression  $\Delta P$ , que l'on représente souvent selon une loi phénoménologique [15] :

$$\frac{\alpha}{\alpha_0} = \left( \frac{\Delta P}{\Delta P_0} \right)^s \quad (I.13)$$

où,  $s$  représente le degré de compressibilité du gâteau.

### 5.2.1 Cas de la migration des fines dans un gâteau

Si la suspension contient, en plus des grosses particules, des fines en proportion non négligeable, celles-ci se déplacent dans la masse du gâteau préalablement déposé et modifient considérablement la perméabilité.

Ce phénomène de migration de fines est apparenté à la filtration dans la masse puisque ces fines particules pourront venir plus ou moins colmater le reste du gâteau.

Si le support (toile filtrante, par exemple) a une texture suffisamment serrée, les fines seront bloquées à son niveau et on observe donc, au-dessus du support, une zone plus riche en fines particules que dans le reste du gâteau, et dont l'épaisseur est croissante. Cette zone très résistante à l'écoulement entraîne alors une forte résistance spécifique de l'ensemble du gâteau.

En revanche, si le support a une texture plus ouverte, les fines pourront le traverser plus ou moins complètement, ce qui se traduit d'une part par un colmatage progressif du support, donc une augmentation progressive de sa résistance à l'écoulement, et d'autre part par un filtrat imparfaitement clair.

On peut aussi concevoir que la pression de filtration, en écrasant plus ou moins le gâteau, modifie considérablement les dimensions des pores et influe donc énormément sur les possibilités de migration des fines : ainsi, des migrations observées sous basses pressions pourront être presque inexistantes sous des pressions plus élevées.

De manière générale, on traite la migration des fines à travers le gâteau comme un problème de filtration en profondeur.

### 5.3 Les modèles classiques de blocage en filtration

#### 5.3.1 Mécanismes de capture

Les principaux mécanismes de capture mis en jeu lors du colmatage d'un média filtrant sont les suivants :

- action directe du tamisage au niveau des pores ou à la surface du gâteau ;
- interception directe ;
- diffusion brownienne dans le média filtrant ;
- inertie.

Dans la filtration de liquides contenant des particules de taille supérieure à 0,5  $\mu\text{m}$ , les mécanismes dominants sont l'effet de tamisage et l'interception directe. Le média filtrant, quant à lui, peut être considéré comme une « barrière » avec une structure de pores interconnectés que les particules peuvent traverser si elles ne sont pas capturées.

#### 5.3.2 Lois de blocage et de filtration sur gâteau

Hermia [16] a revu les lois de colmatage en filtration frontale (*blocage complet*, *blocage intermédiaire* (partiel), *blocage standard* (progressif) et *formation d'un dépôt* à la surface du média (filtration sur gâteau)) développées à l'origine par Hermans et Bredée [17, 18]. Il a aussi reformulé ces mécanismes de blocage pour des fluides non-newtoniens en filtration frontale, dont le comportement rhéologique suit une loi puissance, en réalisant des travaux basés sur ceux de Shirato *et al.* [19].

Les opérations de clarification de suspensions très diluées peuvent être décrites par quatre mécanismes (cf. figure I-16) :

- l'obturation pure des pores du média (a)

- l'obturation partielle des pores (mécanisme intermédiaire) (b)
- la formation d'un dépôt à la surface du média filtrant (c)
- le dépôt progressif à l'intérieur des pores qui se rétrécissent au fur et à mesure de la filtration (d)

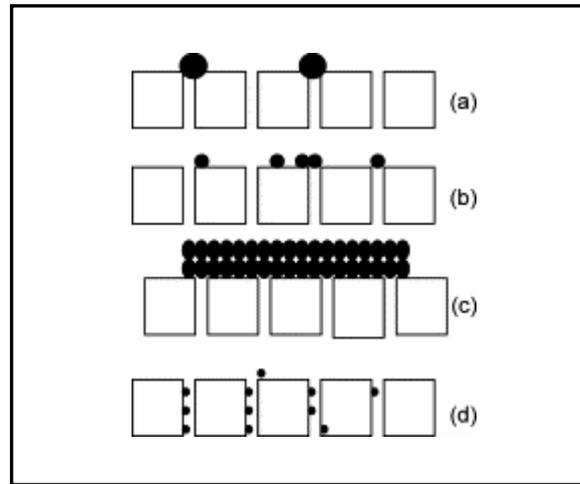


Figure I-16 : Mécanismes de filtration

Seuls les mécanismes (a), (b) et (d) décrivent le colmatage du média filtrant.

#### 5.3.2.1 Filtration avec blocage total des pores (diminution du nombre de pores)

Ce modèle suppose que chaque particule retenue à la surface de la membrane bloque totalement un pore sans superposition de particules (cf. figure I-16 (a)). Si l'on considère encore un milieu filtrant constitué de pores parallèles, le passage d'un volume  $V$  de filtrat correspond à une surface bloquée égale à  $K_A V$ , où  $K_A$  représente l'aire de média bloqué par unité de volume total de filtrat (en  $m^{-1}$ ).

La surface du média ouverte à l'écoulement se réduit au cours du temps et passe alors de  $A_0$  au temps initial de filtration à  $A$  au temps  $t$ , tel que  $A = A_0 - K_A V$ .

#### 5.3.2.2 Filtration avec blocage intermédiaire (diminution du nombre de pores et formation de dépôt)

Dans le modèle de blocage intermédiaire (cf. figure I-16 (b)), on suppose que les particules ont une probabilité inférieure à l'unité de bloquer un pore (blocage de pore complet) ; elles peuvent aussi se déposer dans une zone déjà colmatée (filtration sur gâteau).

#### 5.3.2.3 Filtration sur gâteau (construction d'un gâteau)

Dans ce modèle (cf. figure I-16 (c)), on suppose que l'épaisseur du gâteau augmente avec le temps ; ceci est dû au dépôt de particules (avec empilement) à la surface du média filtrant,

déjà décrit dans le paragraphe 5.2. La filtration sur gâteau a souvent lieu après des étapes telles que celles décrites précédemment.

#### 5.3.2.4 Filtration avec blocage standard (diminution de la taille des pores)

Ce modèle suppose le recouvrement progressif et uniforme des pores par le dépôt de particules qui sont plus petites que la taille du pore (cf. figure I-16 (d)). Ceci entraîne la diminution de la taille des pores de la membrane. Par ailleurs, dans ce modèle, l’écoulement est modélisé par l’équation de Hagen-Poiseuille, c’est-à-dire, un réseau de pores de forme cylindrique et de même diamètre. Cette loi est souvent utilisée pour définir un mécanisme de colmatage en profondeur dans les procédés utilisant des membranes.

Le tableau I-4 récapitule les expressions du flux normalisé  $\frac{J}{J_0}$  en fonction du temps  $t$ , ainsi que des évolutions linéaires correspondantes.

Tableau I-4 : Equations régissant les différentes lois de filtration

Loi de filtration	$J/J_0$	Forme linéaire
<b>Filtration avec blocage total des pores</b>	$e^{-K_A u_0 t}$	$Q = Q_0 - K_A u_0 V$ (I.14)
<b>Filtration avec blocage intermédiaire</b>	$\frac{1}{1 + K_A u_0 t}$	$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_0} + \frac{K_A}{A_0} t$ (I.15)
<b>Filtration sur gâteau</b>	$\frac{1}{\sqrt{1 + 2K_C u_0 t}}$	$\frac{t}{V} = \frac{K_C}{2u_0 \cdot A_0^2} V + \frac{1}{Q_0}$ (I.16)
<b>Filtration avec blocage standard</b>	$\frac{1}{(1 + K_B u_0 t)^2}$	$\frac{t}{V} = \frac{K_B}{A_0} t + \frac{1}{Q_0}$ (I.17)

où,  $K_B$  est la diminution de l’aire de section droite du pore par unité de volume total de filtrat (en  $m^{-1}$ ) ;

$K_A$  est l’aire de média bloqué par unité de volume total de filtrat (en  $m^{-1}$ ) ;

$1/K_C$  représente le volume total de filtrat par unité de surface filtrante (qui coïncide avec l’aire de gâteau déposé) ( $K_C$  en  $m^{-1}$ ) ;

$u_0 (=J_0)$  est la vitesse moyenne initiale du filtrat ( $m.s^{-1}$ ) ;

$A_0$  est la surface filtrante propre du média ( $m^2$ ) ;

$Q_0$  est le débit volumique initial de filtrat (en  $m^3.s^{-1}$ ), tel  $Q_0 = u_0 \times A_0$  ;

$R_{m,0}$  est la résistance hydraulique du média propre ( $m^{-1}$ )

La figure I-17 illustre des simulations du flux normalisé  $J/J_0$  en fonction du temps  $t$ , pour les quatre lois de filtration. On observe le caractère non discriminant de ces lois lorsqu'on essaie de décrire une courbe de filtration sous cette forme ( $J/J_0 = f(t)$ ). Les valeurs choisies pour la simulation sont les suivantes :

- $K_A = 4 \text{ m}^{-1}$  (Blocage complet)
- $K_B = 2,7 \text{ m}^{-1}$  (Blocage standard)
- $K_A = 7,3 \text{ m}^{-1}$  (Blocage intermédiaire)
- $K_C = 13 \text{ m}^{-1}$  (Filtration sur gâteau)
- $J_0 = 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ .

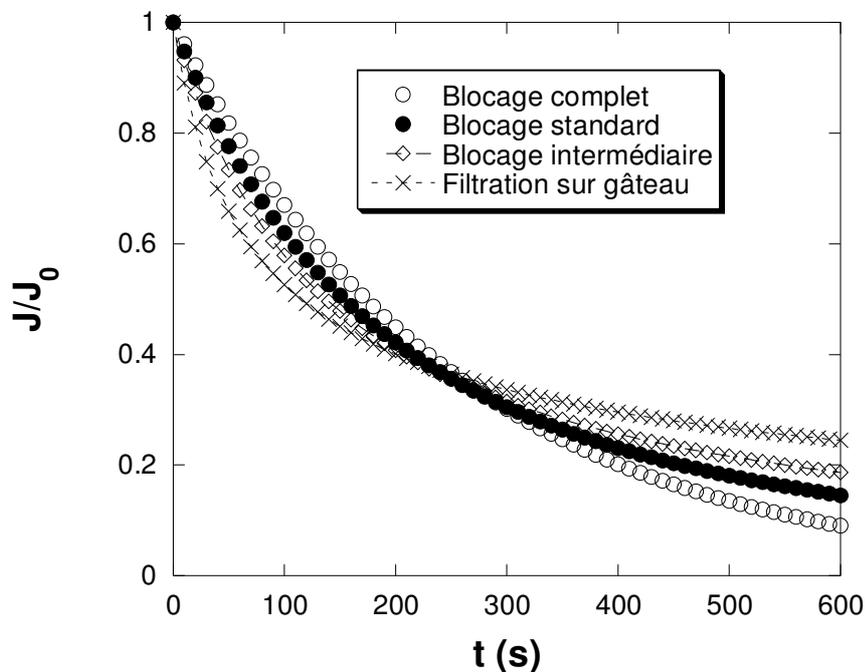


Figure I-17 : Simulation des lois de blocage et de filtration sur gâteau :  $J/J_0 = f(t)$

### 5.3.3 Résistance hydraulique modifiée et forme caractéristique

Ces modèles peuvent être formulés aussi, en termes de résistances hydrauliques de média filtrant modifiées pour les modèles de blocage :

- pour le modèle de blocage standard :

$$R_m = R_{m,0} (1 + K_B u_0 t)^2 \quad (I.18)$$

- pour le modèle de blocage complet :

$$R_m = R_{m,0} \cdot \exp(K_A u_0 t) \quad (I.19)$$

Pour le modèle de filtration sur gâteau, on raisonne en terme de résistance totale  $R$ , égale à la somme des résistances  $R_m$  et  $R_d$  :

$$R = R_{m,0} (1 + 2K_C u_0 t)^{0,5} \quad (1.20)$$

Par ailleurs, les quatre lois de filtration vues dans les paragraphes précédents (cf. § 5.3.2.1 à 5.3.2.1) peuvent être décrites par une forme caractéristique commune :

$$\frac{d^2 t}{dV^2} = k \cdot \left( \frac{dt}{dV} \right)^n \quad (1.21)$$

La forme caractéristique provient de la dérivation des expressions du flux de perméat ( $J(t)$ ) en fonction du temps (cf. tableau I-4) :

$$\frac{dt}{dV} = \frac{1}{J \cdot A} \quad (1.22)$$

$$\frac{d^2 t}{dV^2} = - \frac{1}{J^3 \cdot A^2} \frac{dJ}{dt} \quad (1.23)$$

Cette équation offre la possibilité de représenter les quatre modèles de colmatage dans un système de coordonnées unique. En effet, si on utilise la représentation en échelle logarithmique, la pente obtenue donne directement la valeur de  $n$ . D’après le tableau I-5, on peut voir que  $n$  diminue de 2 à 0, lorsqu’on passe des blocages complet ( $n = 2$ ), standard ( $n = 1,5$ ), puis intermédiaire ( $n = 1$ ) et enfin à la filtration sur gâteau ( $n = 0$ ). La détermination de  $k$  (ordonnée à l’origine en échelle log-log) permet d’évaluer les paramètres caractéristiques du modèle de colmatage retenu.

Tableau I-5 : Paramètres des lois de filtration à pression constante

Lois de filtration	$k$	$n$
<i>Blocage complet</i>	$K_A \cdot u_0$	2
<i>Blocage standard</i>	$(2K_B / A_0^{1/2}) \cdot u_0^{1/2}$	1,5
<i>Blocage intermédiaire</i>	$K_A / A_0$	1
<i>Formation de gâteau</i>	$K_C / (u_0 \cdot A_0^2)$	0
<i>Sédimentation</i>		3

## 6 Analyse critique sur l’utilisation des lois de blocage en filtration frontale

Les procédés de filtration sont gérés par la coexistence de différents mécanismes dont les contributions respectives dépendent de la nature du média filtrant, des conditions opératoires et des caractéristiques du fluide. Si individuellement, chacun des mécanismes apparaît relativement bien décrit, la modélisation de leur coexistence et des interactions fait encore l’objet de nombreuses investigations face à la nécessité de prévoir la performance globale de l’opération.

Les travaux qui seront abordés dans cette partie traitent surtout de la filtration sur membranes, domaine dans lequel ont été utilisées les lois de blocage de Hermia [16] ces vingt dernières années. Pourtant ces lois ont déjà été exploitées dans les années 1950 pour la filtration de particules ayant des tailles comprises entre 1 et 10  $\mu\text{m}$  [20, 21] sur des média tissés.

### 6.1 Colmatage interne du média

Les modèles utilisés en filtration et présentés dans le paragraphe §5.3, peuvent être classés en deux catégories : ceux caractérisant le *colmatage* du média filtrant et ceux caractérisant la formation de dépôt.

A la vue des expressions des résistances théoriques (cf. équations (I.18), (I.19) et (I.20)), on peut dégager des tendances :

- si la résistance totale  $R$  augmente avec une pente qui augmente avec le temps, alors la diminution de flux de perméat peut être décrit par un des modèles caractérisant le colmatage du média filtrant (blocage standard ou blocage complet) ;
- en revanche, si la résistance totale  $R$  augmente avec une pente qui diminue au cours du temps, alors la diminution de flux de perméat peut être modélisée par le mécanisme de formation de dépôt.

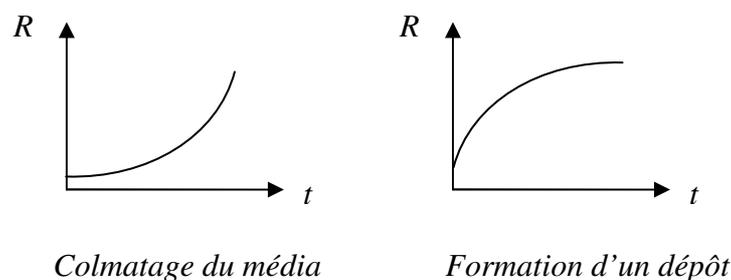


Figure I-18 : Allure des courbes  $R(t)$  selon le mécanisme de filtration

Tracey et Davis [22] ont essayé d’élucider les mécanismes de colmatage mis en jeu lors de la filtration de solutions de protéines sur des membranes de microfiltration. La plupart des études menées sur ce sujet avaient été réalisées en l’absence de force convective, par une simple mise en contact de la solution de protéines avec la peau de la membrane. L’adsorption de protéine en monocouche provoque une augmentation de la résistance de membrane de microfiltration qui est relativement faible. Cependant, la diminution de flux pour des membranes de microfiltration sous des conditions dynamiques est beaucoup plus élevée que ce qui est observé en adsorption statique. Afin de tenter d’expliquer cette différence, les auteurs ont alors essayé de se focaliser sur le colmatage interne du média qui peut être modélisé soit par le *modèle de blocage standard* (diminution de la taille du pore), soit par le *modèle de blocage de pore complet* (diminution du nombre de pores).

Ils ont utilisé, pour essayer de mieux comprendre les différentes étapes du colmatage par des protéines, la méthode qui consiste à tracer la résistance hydraulique totale calculée à partir de la loi de Darcy  $\left( R = \frac{\mu \cdot J}{\Delta P} \right)$  en fonction du temps  $t$ . De cette manière, Tracey et Davis ont pu discriminer entre les deux types de processus (colmatage du média ou formation d’un dépôt de surface). En revanche, lorsque la résistance totale  $R$  augmente avec une pente qui augmente avec le temps, les deux modèles (blocage standard et blocage complet) décrivaient bien la phase de colmatage des membranes de microfiltration. Ceci peut être expliqué par des photos MEB (Microscope Electronique à Balayage) qui ont révélé la présence de pores dont le diamètre rétrécissait avec le temps et une diminution de la densité de pores (qui se traduit par le blocage de pores).

La méthode qui consiste à suivre la résistance hydraulique totale,  $R$ , au cours du temps semble être un outil intéressant permettant de différencier les phénomènes de colmatage de média filtrant des phénomènes relatifs à la construction d’un dépôt de surface. Cependant, elle ne sera pas utilisée dans ce travail de thèse car elle ne permet pas de discriminer un mécanisme de colmatage en profondeur d’un mécanisme de colmatage de type surface.

## 6.2 Caractère non discriminant des modèles de blocage

Il est à noter que les lois de blocage que nous avons vu dans la partie 5.3 de ce chapitre ont été développées par Hermans et Bredée [17, 18] en 1935 pour la filtration utilisant des média tissés. Des auteurs (Gonsalves, 1950 [21] ; Grace, 1956 [20]) ont réalisé une analyse critique de ces lois de blocage, pour la filtration de particules sphériques ( $1 < d_p < 10 \mu\text{m}$ ) sur des

média tissés dont le diamètre ( $d_{pore}$ ) de pore moyen était de l’ordre de 150  $\mu\text{m}$ . La représentation des données de filtration  $V(t)$  (suivi du volume  $V$  de filtrat avec le temps  $t$  de filtration) suivant les formes linéaires du tableau I-4 a montré une succession de régimes de filtration (loi de blocage standard, suivie d’une loi de filtration sur gâteau).

Les différents modèles de blocage sont capables de bien décrire une courbe de filtration lorsqu’on est en présence d’un seul régime. Cependant, il arrive que ces mêmes modèles aient un caractère non discriminant vis-à-vis de certains mécanismes de colmatage.

Holdich et Zhang [23] ont étudié le colmatage interne de membranes microporeuses (dont le diamètre de pore nominal est de 1,2  $\mu\text{m}$ ) avec des suspensions diluées de latex.

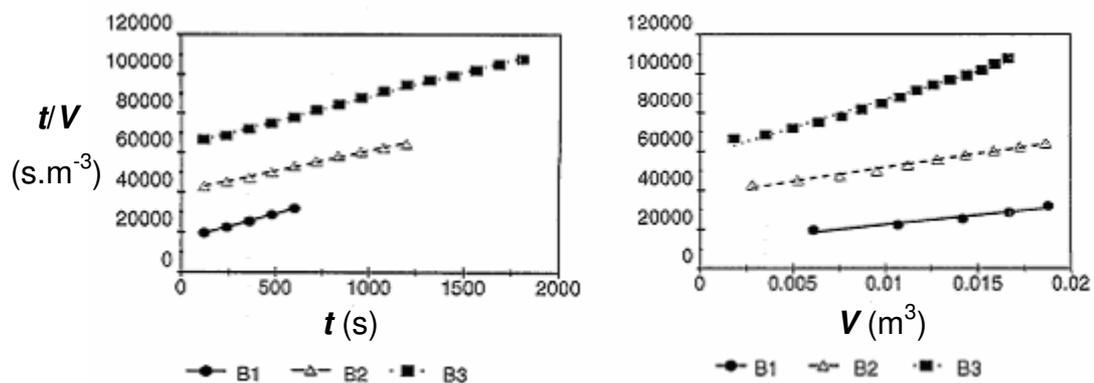


Figure I-19 : Données expérimentales traitées selon le modèle de blocage standard  $t/V=f(t)$  ; selon le modèle de filtration sur gâteau  $t/V=f(V)$  [23]

La figure I-19 montre des données expérimentales représentées selon les modèles de blocage standard ( $\frac{t}{V} = f(t)$ ) et de filtration sur gâteau ( $\frac{t}{V} = f(V)$ ).

Les deux modèles, ici considérés, donnent une droite avec un bon coefficient de corrélation. On en déduit alors que le modèle permettant de décrire le colmatage interne peut aussi bien être le modèle de filtration sur gâteau que celui de blocage standard. Des photos MEB de ces membranes colmatées n’ont pas révélé la formation d’un gâteau. Le fait qu’on puisse appliquer l’équation de filtration sur gâteau à des systèmes pour lesquels la formation d’un dépôt est improbable a déjà été remarqué à plusieurs occasions [20, 24] en filtration frontale. Cela signifie seulement que la résistance à l’écoulement observée est proportionnelle à la quantité de matière amenée.

Par ailleurs, Jacob et al. [25] ont montré que le comportement de membranes de microfiltration vis-à-vis du colmatage ne peut pas être décrit, sur toute la durée de filtration, par un seul des modèles de blocage développés par Hermia [16]. La figure I-20 montre que le modèle de filtration sur gâteau décrit bien la courbe de filtration pour  $t > 5000$  s. Cependant, il semble peu probable qu’il y ait formation d’un dépôt car la rétention des protéines est pratiquement nulle même à  $t > 5000$  s.

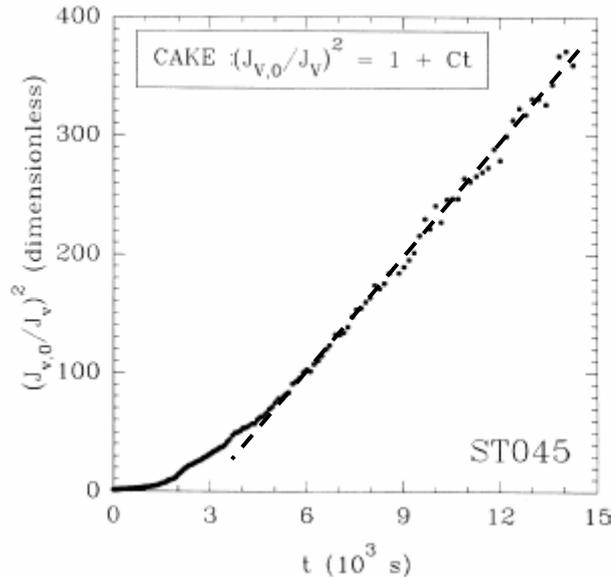


Figure I-20 : Application du modèle de filtration sur gâteau pour la filtration de protéines BSA ( $1 \text{ g.L}^{-1}$ ) à 10 kPa sur une membrane  $0,45\mu\text{m}$  [25]

De ces deux exemples, nous pouvons souligner deux limitations de ces approches : le premier est qu’un modèle puisse être utilisé pour représenter une courbe de filtration mais peu performant pour décrire la physique des phénomènes ; le second est qu’un seul modèle est rarement capable de décrire une courbe entière de filtration.

### 6.3 Utilisation de la représentation $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$

Hermans et Bredée [17, 18] sont à l’origine de la forme caractéristique  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$ , développée pour des expériences de filtration frontale à pression  $\Delta P$  constante. En choisissant ce type de représentation ( $\frac{dt}{dV}$  en abscisse et  $\frac{d^2t}{dV^2}$  en ordonnée), on ne prédéfinit pas tel ou tel modèle :

-  $dt/dV$  représente l’inverse du débit volumique  $Q$  ou la résistance à l’écoulement  $R$ , à un facteur de proportionnalité près ;

-  $d^2t/dV^2$  représente alors la variation de la résistance  $R$  avec le volume de perméat  $V$ .

Bowen *et al.* [26] ont utilisé ce type de représentation pour identifier les étapes de blocage de la membrane responsables de la diminution du flux lors de la filtration de protéines à travers des membranes de microfiltration (diamètre moyen de pores allant de 0,1 à 1 $\mu$ m). Comme vu précédemment, dans le paragraphe § 5.3.3, la détermination de la valeur de l’exposant  $n$  permet d’identifier le mécanisme de colmatage, lorsque  $n$  prend les valeurs 2 ; 1,5 ; 1 ou 0. Dans le cas de microfiltration de molécules de BSA, la valeur du paramètre  $n$  varie au cours d’une opération de filtration entre 1,5 et 2 ; ce qui signifie que le colmatage peut être décrit soit par un modèle de blocage standard (rétrécissement de pore), soit par un modèle de blocage complet (blocage de pore) soit par la succession des deux ou encore la combinaison des deux. A des pressions élevées, les auteurs ont des courbes qui montrent une succession de mécanismes peu attendue : un mécanisme de blocage complet, suivi d’un mécanisme de blocage standard, et encore un mécanisme de blocage complet. Il semble donc difficile de mettre en valeur un seul phénomène de colmatage lorsqu’il y a coexistence de plusieurs phénomènes.

Ho et Zydney [27] ont étudié la filtration de solutions d’albumine de sérum bovin (BSA) sur des membranes de microfiltration en polycarbonate de type « track etched » ; ce sont des membranes constituées d’un réseau de pores parallèles cylindriques de même taille. Ils ont exploité les données expérimentales  $V(t)$  suivant le système de coordonnées  $dt/dV - d^2t/dV^2$ .

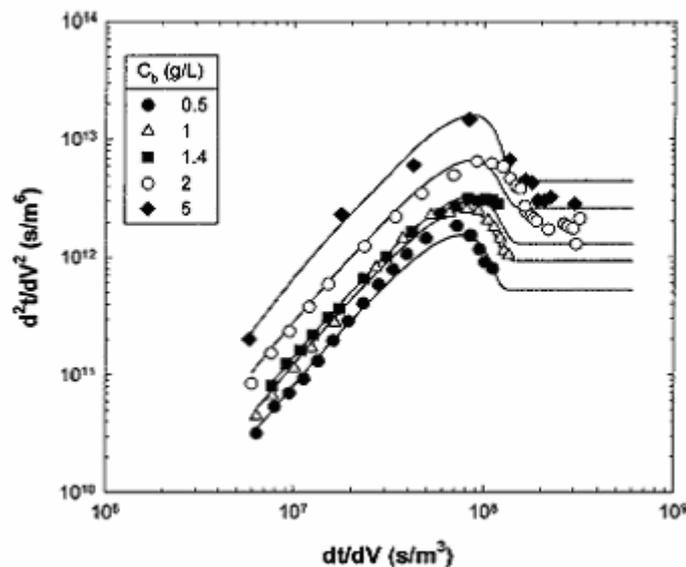


Figure I-21 : Représentation selon l’équation caractéristique  $d^2t/dV^2 = f(dt/dV)$  des expériences de filtration de solutions de BSA à différentes concentrations ; les courbes en trait plein proviennent d’un modèle. [27]

Sur la figure I-21, pour les faibles valeurs de  $dt/dV$ , ce qui correspond aux premiers instants de la filtration, les points expérimentaux sont alignés sur une droite de pente  $n = 2$ . Ils passent ensuite par un maximum et sur une droite de pente négative. Ce type d'évolution a déjà été observé par Bowen *et al.* [26]. En revanche, pour les concentrations les plus élevées (2 et 5  $\text{g.L}^{-1}$ ), la courbe expérimentale décrit une phase de plateau en fin de filtration ( $n \approx 0$ ).

Plus récemment, Kennedy *et al.* [28] ont étudié l'effet de la coagulation par  $\text{FeCl}_3$  des eaux de surface sur les mécanismes de colmatage en ultrafiltration (UF) frontale.

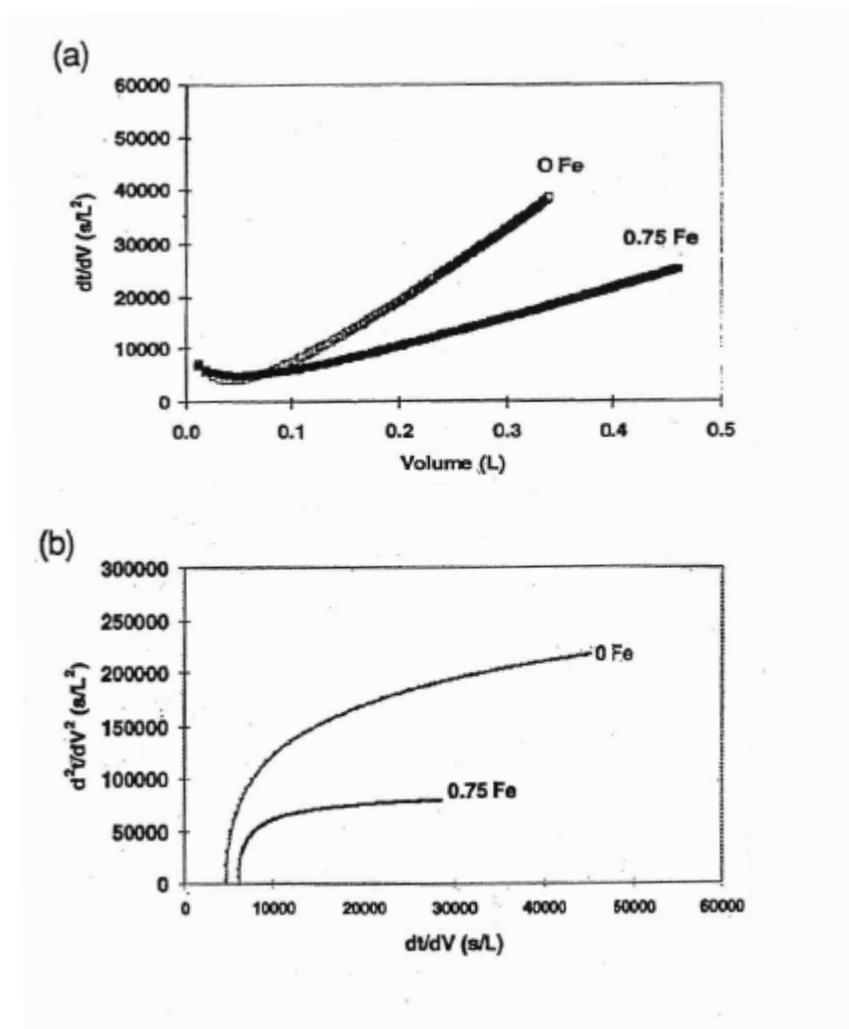


Figure I-22 : (a) Variation de la résistance du média filtrant avec le volume de perméat cumulé pour une eau coagulée (0,75 Fe) et non coagulée (0 Fe) ; et (b) courbes caractéristiques de (a)  $d^2t/dV^2$  en fonction de  $dt/dV$  à  $\Delta P = 1,5$  bar [28]

Pour ce faire, ils ont utilisé le même mode de représentation que les auteurs précédents, et ils ont observé que  $n$  diminuait rapidement d'une valeur supérieure à 2 à une valeur proche de 0 dans les dix à vingt premières minutes de filtration (figure I-22). Mais, il ne leur a pas été possible de faire une distinction entre les différents mécanismes de blocage : complet ( $n = 2$ ),

standard ( $n = 1,5$ ) et intermédiaire ( $n = 1$ ) car ces derniers avaient une forte tendance à se superposer et la transition d’un type de blocage à un autre était continue et rapide.

Si on considère les larges distributions de tailles de particules présentes dans les eaux de surface et de tailles de pore des membranes d’ultrafiltration, on peut comprendre que les mécanismes de blocage et de filtration sur gâteau puissent avoir lieu simultanément dès le début de la filtration.

## 6.4 Discussion sur d’autres modèles de colmatage

### 6.4.1 Extension et combinaison des lois de Hermia

Le fait que deux ou plusieurs mécanismes de colmatage puissent avoir lieu de manière simultanée nous amène aux travaux de Ho et Zydney [27]. Sur la figure I-21, pour chaque courbe expérimentale (représentée par les points non liés), une courbe issue d’un modèle mathématique est aussi tracée (en trait plein). Ces auteurs ont développé un modèle qui prend en compte un colmatage initial dû au bouchage de pores et un colmatage ultérieur dû à la croissance d’un dépôt de protéines (BSA) au dessus des régions initialement bouchées. Contrairement à la plupart des modèles développés antérieurement, Ho et Zydney ont supposé qu’un écoulement était possible à travers les régions de la membrane initialement bloquées par les premières couches du dépôt. En effet, si on prend en compte la connectivité entre les pores d’une membrane [29], la structure de cette dernière rend possible un écoulement autour d’un agrégat de protéine initialement déposé sur la surface de la membrane. Ainsi, l’agrégat perturbe seulement l’écoulement du fluide sur une petite distance de pénétration dans la membrane. Par ailleurs, dans le modèle, la formation du gâteau est supposée avoir lieu en même temps que le recouvrement (ou le blocage) de surface de la partie encore ouverte à l’écoulement de la membrane (surface non colmatée).

Ce modèle prend aussi en compte une inhomogénéité de l’épaisseur de la couche de dépôt provenant du blocage des pores de surface qui est un phénomène dépendant du temps. Il fournit aussi une *bonne transition du régime de blocage de pores au régime de dépôt* sans avoir recours à différentes formulations mathématiques pour décrire ces deux phénomènes.

#### Modèle mathématique

*Solution complète* (qui prend en compte la variation spatiale du dépôt) :

$$Q = Q_0 \left[ \exp\left(-\frac{\beta' \Delta PC}{\mu R_m} t\right) + \int_0^t \frac{\beta' \Delta PC}{\mu (R_m + R_p')} \times \exp\left(-\frac{\beta' \Delta PC}{\mu R_m} t_p\right) dt_p \right] \quad (1.24)$$

avec,

$$R_m + R_p' = (R_m + R_{p0}') \sqrt{1 + \frac{2f'R'\Delta PC}{\mu(R_m + R_{p0}')^2}(t - t_p)} \quad (1.25)$$

*Solution approximée* (dépôt homogène et uniforme) :

$$Q = Q_0 \left[ \exp\left(-\frac{\beta'\Delta PC}{\mu R_m} t\right) + \frac{R_m}{R_m + R_p'} \times \left(1 - \exp\left(-\frac{\beta'\Delta PC}{\mu R_m} t\right)\right) \right] \quad (1.26)$$

avec,

$$R_m + R_p' = (R_m + R_{p0}') \sqrt{1 + \frac{2f'R'\Delta PC}{\mu(R_m + R_{p0}')^2} t} \quad (1.27)$$

Les trois paramètres du modèle sont :

- $\beta'$  le taux de bouchage de pore ;
- $R_{p0}'$  la résistance initiale du dépôt de protéine ;
- $f'R'$  où  $f'$  est la fraction de protéine qui contribue à la formation du dépôt de protéine et  $R'$ , sa résistance spécifique.

Bien que ces paramètres aient été identifiés par la méthode des moindres carrés, ils ont une signification physique. De plus, chacun de ces paramètres aurait pu être estimé à partir de mesures indépendantes basées sur les caractéristiques physiques des agrégats de protéine et du dépôt résultant.

Ce modèle a été largement appliqué à la filtration de protéines, comme la BSA, le lysozyme, la pepsine, la myoglobine et l’immunoglobuline G, sur des membranes en polycarbonate « track-etched » [30]. Pour chaque système étudié, Palacio *et al.* [30] ont trouvé une bonne corrélation entre le modèle mathématique et les données expérimentales. Par ailleurs, le modèle a été aussi utilisé dans le domaine du traitement de l’eau [31]. L’objectif était de mieux comprendre l’évolution du colmatage au cours du temps lorsqu’on filtre des matières organiques naturelles, telles que les substances humiques.

Le modèle mathématique de Ho & Zydney (2000) [27] a été appliqué à des filtrations sur des membranes en polycarbonate « track-etched ». Ces membranes étant constituées d’un réseau de pores parallèles cylindriques de même taille, et en supposant que seuls les agrégats présents (de taille plus grosse que le diamètre de pore) dans la solution de protéine peuvent participer au colmatage et qu’il n’y a pas d’interactions physico-chimiques significatives entre la membrane et les protéines, il est évident que le colmatage interne ne soit pas, dans ces conditions et hypothèses, le phénomène limitant ou dominant.

Ho et Zydney ont été les seuls auteurs, identifiés, à proposer un modèle mathématique combinant deux mécanismes de colmatage capable de décrire aussi bien les périodes où chacun des mécanismes est dominant que la transition d’un mécanisme à l’autre.

#### 6.4.2 Modèles probabilistes

Afin de comprendre le phénomène de blocage, des modèles de type probabiliste ont été développés mais requièrent une connaissance fine du média filtrant (distribution des tailles de pore) et de la suspension (distribution granulométrique des particules). Dans ce paragraphe, nous discutons d’un modèle basé sur la probabilité de blocage d’un pore par une particule de taille similaire.

Kosvintsev *et al.* [32] ont, pour leur part, développé un modèle permettant de décrire la (ou les) étape(s) de blocage de pore pour la microfiltration de particules monodisperses de latex ( $\sim 0,45\mu\text{m}$ ) sur des membranes de type « track etched » avec des pores de taille similaire  $\sim 0,4\mu\text{m}$ , en mode frontal, en terme de volume de perméat  $V$  en fonction du temps  $t$ .

$$V = \frac{1}{\gamma \cdot n_p \cdot \varphi} \ln \left( 1 + \gamma \cdot n_p \cdot \varphi \cdot \frac{dV}{dt} \Big|_0^t \right) \quad (1.28)$$

où,

$n_p$  est le nombre de particules par unité de volume ;

$\varphi$  le rapport entre l’aire d’influence au-dessus d’un pore sur l’aire du pore lui-même,  $\varphi \geq 1$  ;

$\gamma$  est le rapport d’aire du pore sur la surface filtrante  $A$  tel que  $\gamma = \frac{\pi \cdot d_{pore}^2}{4A}$ .

Ce modèle prend en compte les distributions de tailles de particule et de tailles de pore et repose sur la probabilité de blocage de pore. Considérons une surface  $A$  de membrane avec un seul pore de diamètre  $d_{pore}$ . La probabilité qu’une particule positionnée de manière aléatoire loin de la surface de membrane soit projetée dans l’aire du pore est le rapport d’aire  $\gamma$ , qui a été défini au-dessus. En supposant que les forces hydrodynamiques et de surface provenant de l’interaction entre la particule et le pore ont pour effet d’augmenter la probabilité de blocage de pore par un facteur  $\varphi > 1$ , qui peut être interprété comme une augmentation de l’aire de

pore effective, la probabilité de blocage de pore devient  $\varphi \cdot \gamma = \varphi \cdot \frac{\pi \cdot d_{pore}^2}{4A}$ .  $\varphi$  est indépendant

des tailles de pore et de particule.

Afin de s’affranchir de l’influence de la pression transmembranaire et de la concentration, les auteurs ont défini des variables adimensionnelles :

$$V^* = \gamma \cdot n_p \cdot V \quad (1.29)$$

et

$$t^* = \gamma \cdot n_p \cdot \frac{dt}{dV} \Big|_0 \cdot t \quad (I.30)$$

La forme réduite de l’équation (I.28) s’écrit de la manière suivante :

$$V^* = \frac{1}{\varphi} \cdot \ln(1 + \varphi \cdot t^*) \quad (I.31)$$

Cette manière de décrire le volume de perméat  $V$  en fonction du temps  $t$  diffère de la formulation du mécanisme de blocage de pore par Hermia, qui prévoit une dépendance exponentielle et non logarithmique.

L’originalité de ce modèle repose sur le paramètre  $\varphi$  et sa signification physique. Il est possible d’évaluer  $\varphi$ , en minimisant l’écart entre le modèle (Eq. (I.31)) et les courbes expérimentales. Les membranes utilisées ont un caractère asymétrique car les pores ont des ouvertures différentes selon que la suspension rencontre l’une ou l’autre face de la membrane (cf. figure I-23).

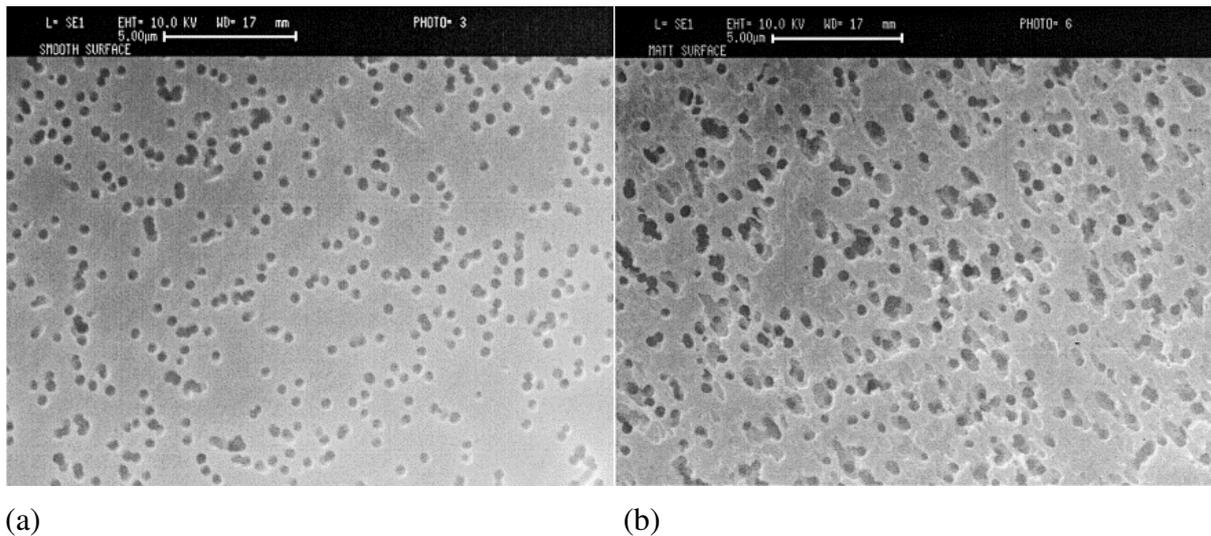


Figure I-23 : Photos MEB de la surface filtrante (a), et de l’envers (b) de la membrane [32]

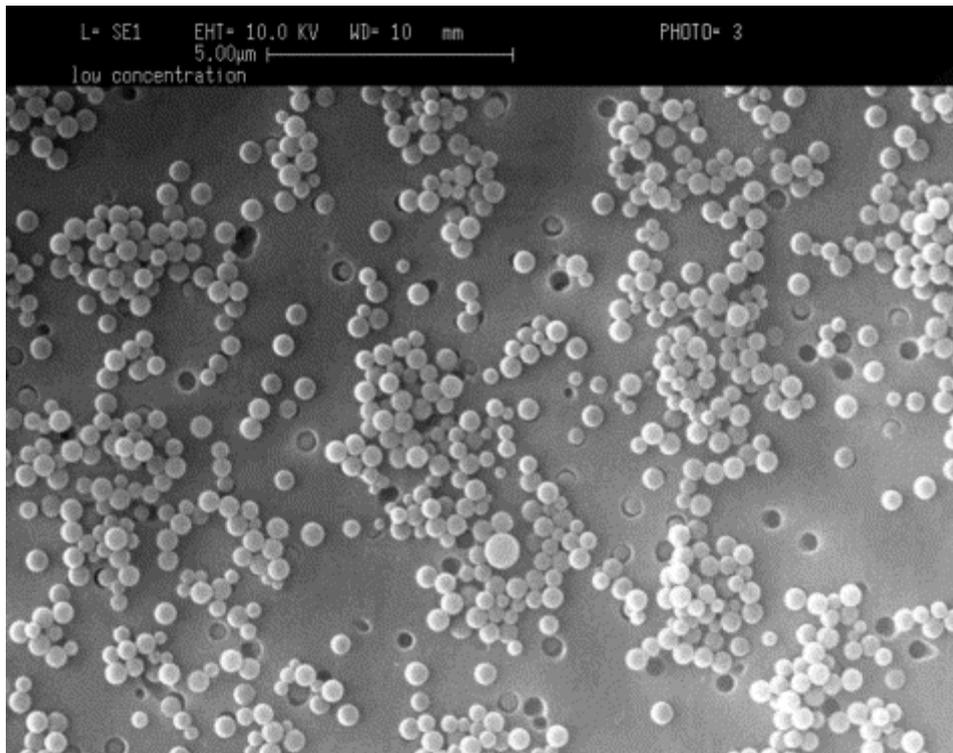


Figure I-24 : Photo MEB de la surface de membrane à la fin du régime de filtration dominé par le blocage de pore [32]

Le paramètre  $\varphi$  est égal à 3 pour la membrane utilisée à l'endroit (une photographie (figure I-24) prise au MEB révèle un rapport de trois particules pour un pore bloqué), et égal à 1,1 pour l'envers de la membrane (qui présentent des ouvertures de pore plus grandes). Le paramètre  $\varphi$  diminue alors lorsque le diamètre de pore augmente, ce qui tend à diminuer la région d'influence d'un pore pour une même suspension.

## Conclusion

Le marché des tissés et des non-tissés offre un très grand choix de média filtrants. Les fabricants donnent peu d’informations exploitables et il s’avère difficile de faire un choix entre plusieurs média à partir d’une connaissance limitée de leurs caractéristiques (pouvoir de rétention (cf. figure I-3), perméabilité à l’air).

Par ailleurs la réponse d’un système de filtration en fonctionnement à un mécanisme de colmatage est peu spécifique, si bien qu’il est extrêmement difficile de déduire les mécanismes mis en jeu de la simple observation des variations des paramètres opératoires (diminution du flux  $J$  de filtrat au cours du temps, pour une filtration à pression constante).

Il est aussi important de souligner la multiplicité des origines du colmatage et de leurs combinaisons ; ce qui engendre naturellement une multiplicité d’effets et de conséquences. Si on fait l’inverse et que l’on part de la simple observation de la diminution du flux de perméat, on peut comprendre la complexité de l’enjeu qui est de remonter aux origines du colmatage.

Les phénomènes responsables de la diminution du flux au cours du temps lors d’une filtration à pression constante peuvent être classés en deux catégories principales : ceux qui participent à la formation du gâteau de filtration et ceux qui contribuent au colmatage du média.

Le colmatage du média est décrit par deux modèles, blocage standard et blocage complet, qui ont été développés sur des bases physiques (blocage standard  $\equiv$  réduction du diamètre de pore et blocage complet  $\equiv$  blocage de pore).

Cet état de l’art a mis en évidence le fait qu’il existe toujours des lacunes au niveau de la modélisation du flux de perméat en fonction du temps de filtration, lorsqu’il y a colmatage. De réelles difficultés sont rencontrées pour identifier et exprimer la coexistence de plusieurs mécanismes de colmatage, notamment pour le phénomène de colmatage interne (qui a pour conséquence de réduire la porosité du média filtrant).

De ce constat, mes travaux de thèse ont consisté à développer une méthodologie (un modèle phénoménologique et des procédures expérimentales) basée sur une approche macroscopique – et la plus générique possible – faisant intervenir trois principales limitations de flux (dépôt de surface, blocage de surface et colmatage en profondeur). Cette approche a pour objectif d’identifier et de qualifier en amont les principaux mécanismes de colmatage qui ont lieu

pendant une opération de filtration. Des paramètres phénoménologiques auront pour objectif de caractériser la formation de dépôt, mais aussi le colmatage du média. Ces paramètres, étant macroscopiques, doivent prendre en compte les interactions particules – média, ainsi que l’influence des conditions opératoires.

La détermination, puis la comparaison des paramètres de colmatage du média doivent aider à faire un choix entre plusieurs média.

## Chapitre II. Approche phénoménologique

### Chapitre d'équation 2 Section 1

Il s'agit, dans ce chapitre, de présenter l'approche phénoménologique qui a été développée afin de répondre à la problématique industrielle.

Les deux principaux objectifs sont d'une part d'identifier les mécanismes de colmatage mis en jeu lors d'une opération de filtration et d'autre part, de caractériser chacun de ces mécanismes afin de pouvoir comparer plusieurs expériences de filtration entre elles, lorsqu'un choix de conditions opératoires ou entre plusieurs média filtrants s'impose.

Notre approche repose sur un modèle phénoménologique de type boîte grise, dont les hypothèses et les équations sont détaillées en fin de chapitre. En effet, nous avons exploité conjointement des lois physiques décrivant la diminution du flux de perméat et des données expérimentales dans le but de décrire au mieux le comportement observé au cours d'une opération de filtration.

# 1 Etapes de colmatage et de formation de gâteau

## 1.1 Colmatage du média

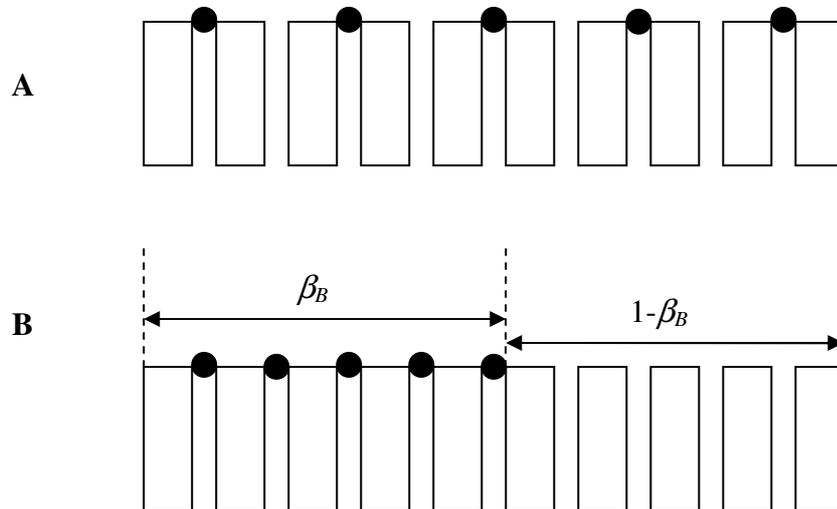


Figure II-1 : Surface du média colmaté par le mécanisme de blocage

Sur la figure II-1, le schéma A représente une surface de média uniformément bloquée. Le schéma B est équivalent au schéma A, mais on a séparé la surface du média en deux zones : une partie bloquée ( $\beta_B$ ) et une partie ouverte à l'écoulement ( $1 - \beta_B$ ).

Avant l'apparition des premières couches formant le gâteau, le blocage du média filtrant a pour effet de réduire la surface ouverte à l'écoulement par un facteur  $1 - \beta_B$ .

Le flux  $J_o$  passant à travers la surface ouverte à l'écoulement (cf. figure II-2) s'exprime de la manière suivante :

$$J_o = \frac{\Delta P}{\mu \cdot R_m} \quad (\text{II.1})$$

Le flux  $J$  observé en aval du média filtrant bloqué est égal à :

$$J = J_o \times (1 - \beta_B) \quad (\text{II.2})$$

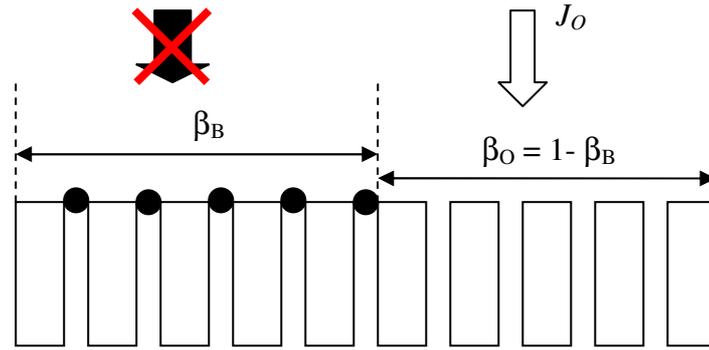


Figure II-2 : Représentation du flux à travers un média bloqué

En injectant l'équation (II.1) dans l'équation (II.2), on obtient une expression de  $J$  en fonction de  $R_m$  et de  $\beta_B$  :

$$J = \frac{\Delta P}{\mu \cdot R_m} \times (1 - \beta_B) = \frac{\Delta P}{\mu \cdot \left( \frac{R_m}{1 - \beta_B} \right)} = \frac{\Delta P}{\mu \cdot R_{mB}} \quad (\text{II.3})$$

D'après l'équation (II.3), la résistance du média colmaté par le mécanisme de blocage, et noté  $R_{mB}$ , s'exprime suivant :

$$R_{mB} = \frac{R_m}{1 - \beta_B} \quad (\text{II.4})$$

## 1.2 Formation du gâteau de filtration

La première couche de particules qui forment le gâteau de filtration peut être schématisée par la figure II-3. Les particules vont se déposer de manière préférentielle sur la fraction de surface non colmatée ( $1 - \beta_B$ ). Cette phase est transitoire, et le gâteau occupe très rapidement la totalité de la surface géométrique du média filtrant (fraction de surface occupée par le gâteau,  $\beta_S = 1$ ) (cf. figure II-4).

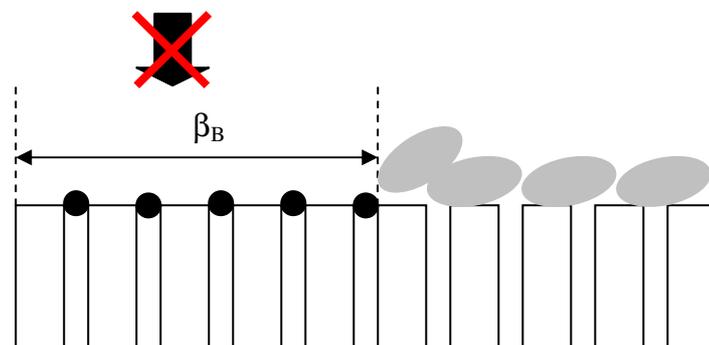


Figure II-3 : Formation de la première couche de particules

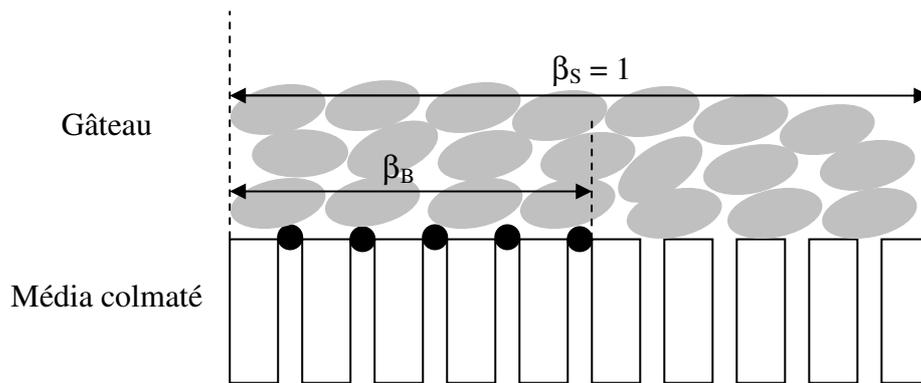


Figure II-4 : Formation du gâteau de filtration

Lorsque le dépôt apparaît à la surface du média filtrant, le flux de perméat est décrit de manière générique suivant le modèle des résistances en série :

$$J = \frac{\Delta P}{\mu \cdot (R_m + R_d)} \quad (\text{II.5})$$

Cependant, on a une modification de l'écoulement dans le gâteau au-dessus d'un média colmaté qui se traduit par l'expression suivante :

$$J = \frac{\Delta P}{\mu \cdot (R_{mB} + R_d)} = \frac{\Delta P}{\mu \cdot \left( \frac{R_m}{1 - \beta_B} + R_d \right)} \quad (\text{II.6})$$

Dans le paragraphe qui suit, nous allons aborder les bases et les hypothèses de l'approche développée.

## 2 Bases et hypothèses de l'approche développée

Les lois de blocage et de filtration, revues par Hermia [16] en 1982, sont exploitées dans cette approche phénoménologique, afin de permettre l'identification du ou des mécanismes de colmatage dominants. De nombreux travaux portant sur la compréhension du colmatage ont utilisé une seule loi de colmatage ou encore une combinaison de ces lois, pour décrire la totalité de la courbe de filtration, sans pour autant s'imposer des contraintes visant un accord physique minimum.

### *Hypothèses de l'approche*

Notre approche est basée sur l'évolution du flux de filtrat. Nous sommes conscients que cette hypothèse peut être limitante. En effet, en l'absence de flux convectif, il est possible d'avoir de fortes interactions physico-chimiques entre les particules de la suspension et le matériau du média filtrant. En filtration membranaire, la plupart des études sur l'adsorption de protéines BSA sur des membranes de MF [33-35] ont trouvé une adsorption en monocouche sur la paroi interne des pores. Mais, cette adsorption en monocouche n'a qu'un faible effet sur le flux en MF. En effet, pour une membrane de MF ( $d_{pore} = 0,2 - 1 \mu\text{m}$ ), la réduction de flux due à l'adsorption en monocouche d'une protéine de  $60 \text{ \AA}$  est seulement de 2-12% [36]. De plus, pour des diamètres de pore supérieurs à 1 micron, le phénomène d'adsorption de solutés ou de macromolécules devient secondaire, voire négligeable en regard du poids qu'il exerce sur la diminution du flux de filtrat à pression constante, en filtration frontale. De ce fait, les phénomènes d'adsorption qui apparaissent en l'absence de flux convectif, seront négligés et nous ne considérerons que les phénomènes de colmatage qui ont lieu sous flux convectif de matière.

Afin de garder une certaine clarté dans nos propos, nous allons définir les notions de *phénomène* et de *mécanisme* de colmatage. Il existe une multitude de phénomènes de colmatage, comme le phénomène d'adsorption, de polarisation de concentration, de capture de particules à l'intérieur ou à la surface du média filtrant... Tous ces phénomènes conduisent au même effet : une diminution de flux de perméat, lorsqu'on opère à pression constante.

En revanche, un mécanisme de colmatage décrit plutôt le lien entre le phénomène de colmatage et la diminution de flux, à partir d'un concept physique simple.

Prenons l'exemple de la capture de particules par effet de tamisage. La figure II-5 montre que ce phénomène peut entraîner soit une réduction de la surface filtrante (en bloquant partiellement ou totalement l'entrée des pores de la membrane), soit une réduction du volume poreux (par diminution du rayon des pores). De ce constat, le colmatage par capture de

particules peut être décrit soit par un mécanisme de blocage de pore (blocage complet), soit par un mécanisme de rétrécissement de pore (blocage standard).

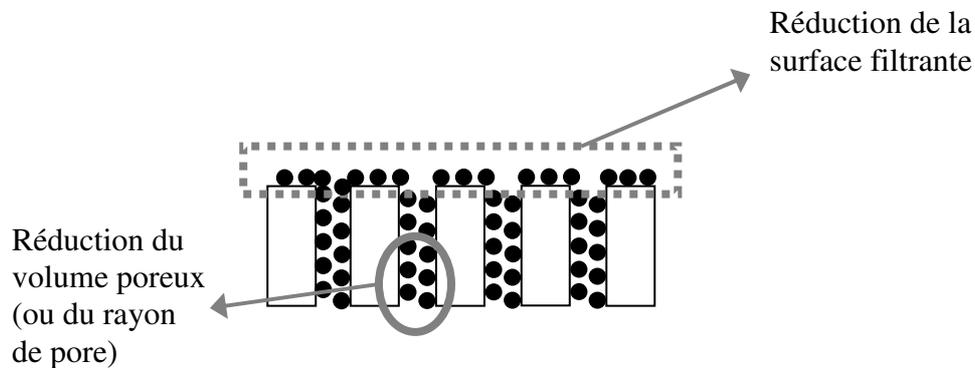


Figure II-5 : Phénomène de capture de particules

Dans le chapitre précédent, nous avons vu que l'utilisation de l'équation  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$ , par la détermination de la valeur de  $n$ , permet de déterminer les mécanismes de colmatage dominants apparents qui se succèdent au cours d'une opération de filtration (cette méthode d'identification de mécanismes de colmatage sera illustrée dans le chapitre III). Il est important de s'arrêter sur les qualificatifs « dominants apparents », car le mécanisme identifié, bien que dominant, est le résultat de plusieurs phénomènes de colmatage. Enfin, dans le cadre de nos hypothèses, une limitation de notre approche est de ne considérer que les mécanismes identifiés par des lois de blocage connues ( $n = 0 ; 1 ; 1,5$  ou  $2$ ).

### 3 Exigences de l'approche

Une des exigences de la problématique est la conception d'outils méthodologiques les plus génériques possible pour pouvoir traiter plusieurs types de filtration, tester rapidement divers couples « média filtrant – suspension » et réaliser des études en usines ou en hall pilotes. Nous avons donc choisi de traiter le colmatage selon une approche macroscopique et globale. Cela impose d'utiliser un jeu restreint de paramètres macroscopiques comme la mesure du flux de perméat et de se passer, dans la mesure du possible, d'informations dites de niveau « microscopique » sur la suspension à traiter (forme des particules, distribution granulométrique, potentiel zêta, pH...), et sur le média filtrant (épaisseur, diamètre de pore, structure, porosité).

Par ailleurs, une contrainte que nous nous sommes imposés est de raisonner sur des phénomènes et des mécanismes physiques bien définis, en laissant pour des études ultérieures, l'approfondissement de tel ou tel mécanisme.

## 4 Modèle phénoménologique

Un modèle basé sur une approche phénoménologique a été développé en tant qu'outil d'identification et de caractérisation du colmatage.

### 4.1 Concept

En s'appuyant sur l'analyse bibliographique faite dans le chapitre I, nous avons choisi de classer les phénomènes qui ont pour effet de faire baisser le flux, suivant trois limitations de flux principales (qui sont les plus importantes du point de vue de la perméabilité) :

- (a) la formation de dépôt de surface (S)
- (b) la réduction de surface filtrante (B)
- (c) la réduction de porosité du média filtrant (P)

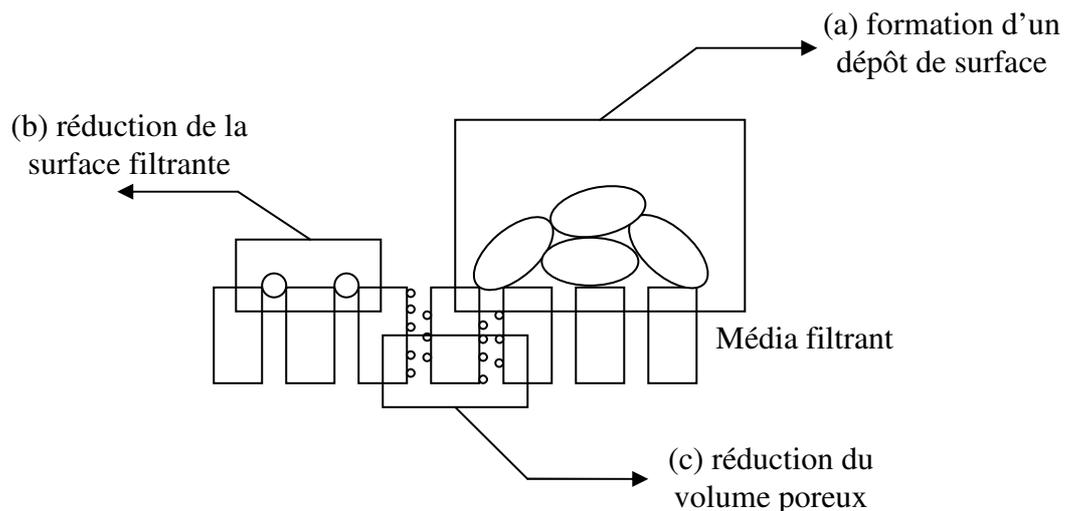


Figure II-6 : Illustration du colmatage d'un média filtrant

La formation de dépôt de surface ne sera pas considérée comme un colmatage du média filtrant. En revanche, les limitations de flux (b) et (c) représentent de manière schématique les deux voies principales par lesquelles le média peut se colmater (cf. figure II-6).

### 4.2 Equations du modèle

A présent, nous allons voir les équations permettant de décrire les trois limitations de flux considérées. Toutes les équations développées dans la suite de ce chapitre ont été établies

pour une opération de filtration en mode frontal. Le dépôt (lorsqu'il a lieu) occupe toute la surface du média filtrant et l'écoulement du fluide sera modélisé par l'équation de Darcy et par une description des résistances en série.

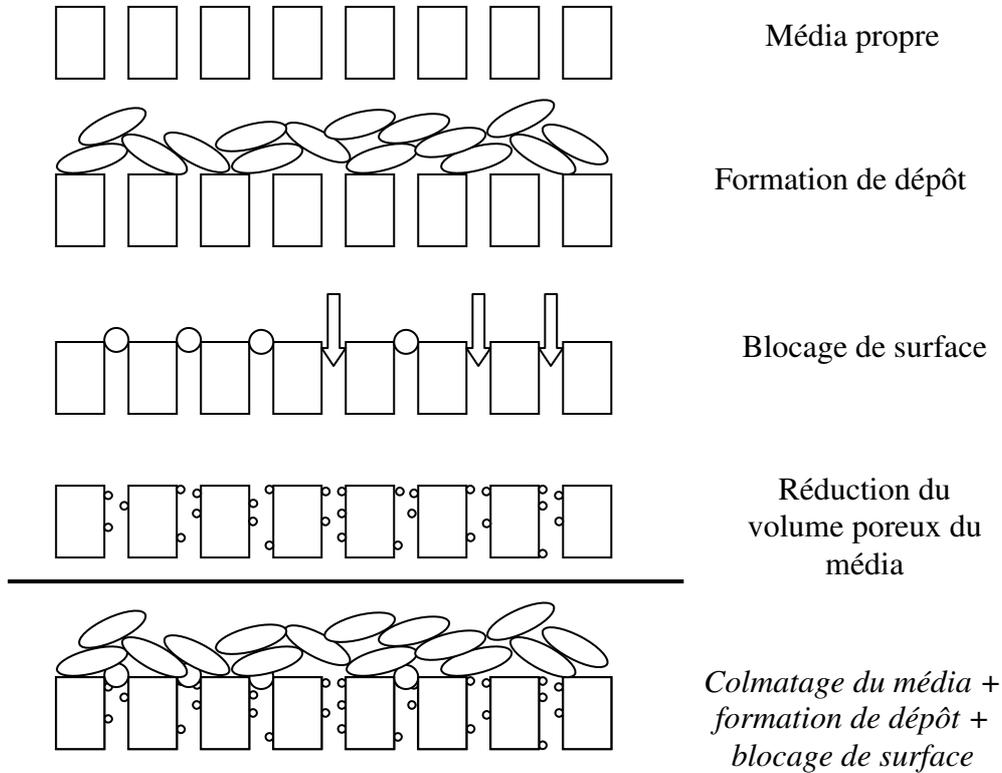


Figure II-7 : Représentation des trois limitations de flux considérées dans notre approche

#### 4.2.1 Notion de probabilité de capture de particules

En filtration en profondeur, on définit une efficacité de capture  $\lambda$  pour un média filtrant vis-à-vis des particules à retenir au sein de la masse poreuse :

$$\lambda = \frac{N_{in} - N_{out}}{N_{in}} = \frac{C_{in} - C_{out}}{C_{in}} \quad (II.7)$$

$N_{in}$  et  $N_{out}$  sont respectivement le nombre de particules entrant et sortant du média filtrant.

$C_{in}$  et  $C_{out}$  sont respectivement la concentration massique en particules à l'entrée et en sortie du média filtrant.

Le processus d'arrêt des particules est analogue à celui d'une réaction d'ordre un en cinétique chimique. L'efficacité de capture  $\lambda$  est indépendante de la concentration, mais dépend, en revanche, du nombre de particules déjà retenues, donc de la rétention  $\sigma$ , et on peut écrire :

$$\lambda = \lambda_0 \cdot F(\sigma) \quad (II.8)$$

avec  $\lambda_0$  efficacité de capture initiale,

$F(\sigma)$  fonction de rétention.

Dans la plupart des clarifications industrielles, les particules ont des dimensions comprises entre 3 et 30  $\mu\text{m}$ . Les phénomènes de surface et de volume interviennent alors simultanément. On propose habituellement, pour le paramètre d'efficacité de capture initiale  $\lambda_0$ , la formule suivante :

$$\lambda_0 = \frac{k_1}{u_0^{\xi_1} \cdot \mu^{\xi_2} \cdot d_g^{\xi_3}} \quad (\text{II.9})$$

où  $u_0$  vitesse du fluide à travers un lit de grains propre (en  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

$\mu$  est la viscosité dynamique de la suspension (en Pa.s)

$d_g$  est le diamètre moyen des grains du lit (en m)

$k_1, \xi_1, \xi_2$  et  $\xi_3$  sont des constantes.

L'efficacité de capture  $\lambda$  évolue avec le temps : on observe, expérimentalement, que  $\lambda$  diminue au fur et à mesure que le média se colmate. Ceci traduit vraisemblablement le fait que les sites de rétention des particules se saturent progressivement. La rétention atteint alors une valeur maximale, notée  $\sigma_M$ , lorsque tous ces sites sont saturés et que l'efficacité du filtre  $\lambda$  devient nulle. La forme mathématique la plus simple de la fonction  $F(\sigma)$  est une loi de décroissance linéaire :

$$F(\sigma) = 1 - \frac{\sigma}{\sigma_M} \quad (\text{II.10})$$

Ceci signifie que l'efficacité de capture  $\lambda$  est, à chaque instant, proportionnelle au nombre de sites encore libres (on se rapproche des hypothèses posées pour l'adsorption de type Langmuir). Mais la fonction  $F(\sigma)$  peut être décrite par d'autres formules mathématiques.

Cette probabilité de capture (ou efficacité de capture  $\lambda$ ) constituent une caractéristique intrinsèque du couple « média filtrant– suspension » et permet de prendre en compte la diversité et la variabilité des espèces filtrées d'une part, et la diversité des média filtrants (géométrie, nature du matériau) d'autre part.

Par analogie avec la filtration en profondeur, nous avons généralisé cette notion de probabilité de capture à l'ensemble des mécanismes susceptibles d'intervenir dans le processus de diminution du flux de perméat, à pression constante.

Dans cette configuration, on peut alors définir des probabilités de capture, notées  $\eta_i$ ,  $i = \text{B, P, S}$ , pour chacune des limitations de flux retenues. Nous faisons l'hypothèse que cette probabilité de capture est constante. Ce sont en fait des probabilités de capture moyennes car

en théorie une probabilité de capture évolue au cours du temps jusqu'à atteindre une valeur nulle, lorsqu'il n'y a plus de sites de rétention de particules disponibles ou que le mécanisme cesse d'être dominant.

On définit alors une probabilité de capture de particules comme la proportion de particules qui participent réellement à une catégorie de colmatage (dépôt de surface, réduction de surface filtrante, réduction du volume poreux du média) par rapport à celles qui auraient pu y participer.

Prenons l'exemple du blocage de surface. Si  $C_B$  est la quantité de particules potentiellement bloquantes par unité de volume de perméat, alors  $\eta_B \cdot C_B$  est la quantité de particules bloquantes qui vont réellement participer au mécanisme de blocage de pore, par unité de volume de perméat. En effet, une particule peut se déposer soit dans un pore, soit sur la surface du média, soit ne pas se déposer du tout.

## 4.2.2 Réduction de surface filtrante

### 4.2.2.1 Paramètres-clés du modèle caractérisant le blocage de surface

Nous avons défini un taux de recouvrement de surface bloquée, noté  $\beta_B$ , afin de caractériser la fraction de média concernée par le blocage de surface. Ce paramètre a la possibilité d'évoluer au cours du temps. En effet, en début de filtration, la surface du média étant propre, on a  $\beta_B = 0$ . Le mécanisme de blocage de pore est directement illustré par ce paramètre car il a pour conséquence de réduire la surface filtrante.  $\beta_B = 1$  correspond au cas limite où la surface du média est totalement bloquée (et donc le flux est nul).

Le mécanisme de blocage de surface est modélisé par une réduction de surface filtrante :

$$A = A_0 \cdot (1 - \beta_B) \quad (\text{II.11})$$

En terme de débit volumique, l'équation (II.11) donne :

$$Q = Q_0 \cdot (1 - \beta_B) \quad (\text{II.12})$$

L'équation (II.12) n'est valable que pour un régime de blocage seul.

Soit  $C_B$  la masse de particules potentiellement bloquantes par unité de volume de perméat.  $\eta_B \cdot C_B$  est la quantité de particules bloquantes qui vont réellement participer au mécanisme de blocage de pore, par unité de volume de perméat.

$\eta_B \cdot C_B \cdot J$  représente la masse de particules bloquantes qui ont effectivement participé au mécanisme de blocage par unité de temps et par unité de surface filtrante.

Considérons, à présent, le rapport  $A_B/m_B$  qui est la surface bloquée par unité de masse de particules bloquantes. Ce rapport est supposé constant pour une opération donnée.

Ainsi,  $\eta_B \cdot C_B \cdot J \cdot A_B / m_B$  représente la surface bloquée par unité de temps et par unité de surface filtrante. Cette quantité correspond, en fait, au taux de recouvrement de surface  $\beta_B$ .

$$\frac{d\beta_B}{dt} = \eta_B \cdot C_B \cdot \frac{A_B}{m_B} \cdot J \quad (\text{II.13})$$

On pose, ensuite,  $\eta_B^* = \eta_B \cdot C_B \cdot \frac{A_B}{m_B}$ ,  $\eta_B^*$  est le paramètre qui lie phénoménologiquement la vitesse de filtration à la vitesse de blocage de surface.

$$\frac{d\beta_B}{dt} = \eta_B^* \cdot J \quad (\text{II.14})$$

Notre approche étant basée sur le suivi du flux de perméat  $J$ , et donc du volume de perméat  $V$ , nous allons voir la dépendance de  $\beta_B$  en fonction de  $V$ .

On peut exprimer le flux  $J$  comme :

$$J = \frac{1}{A_0} \cdot \frac{dV}{dt} \quad (\text{II.15})$$

Si on combine les équations (II.14) et (II.15), on obtient :

$$d\beta_B = \frac{\eta_B^*}{A_0} \cdot dV \quad (\text{II.16})$$

En intégrant entre  $V = 0$  ;  $\beta_B = 0$  et  $V = V$  ;  $\beta_B = \beta_B$ , on obtient l'expression reliant  $\beta_B$  à  $V$  :

$$\beta_B = \frac{\eta_B^*}{A_0} \cdot V \quad (\text{II.17})$$

#### 4.2.2.2 Equation reliant la résistance du média bloqué $R_{mB}$ à $\eta_B^*$

Dans le modèle utilisant une description en série des phénomènes (§ 1.2), la résistance du média bloqué est exprimée suivant :

$$R_{mB} = \frac{R_m}{1 - \beta_B} \quad (\text{II.18})$$

L'équation (II.4), reliant  $R_{mB}$  à  $\beta_B$ , devient :

$$R_{mB} = \frac{R_m}{1 - \frac{\eta_B^*}{A_0} \cdot V} = R_m \cdot \left( 1 - \frac{\eta_B^*}{A_0} \cdot V \right)^{-1} \quad (\text{II.19})$$

#### 4.2.2.3 Equation linéaire permettant de déterminer le paramètre global $\eta_B^*$

En combinant les équations (II.12) et (II.17), on obtient une relation linéaire entre  $Q$  et  $V$ , qui sert pour la détermination du paramètre  $\eta_B^*$  :

$$Q = Q_0 - Q_0 \cdot \frac{\eta_B^*}{A_0} \times V \quad (\text{II.20})$$

Ainsi, le tracé de  $Q$  en fonction de  $V$  prévoit d'obtenir une droite lorsqu'on a un régime de blocage de pore, et la détermination de la pente de (II.20) permet d'évaluer  $\eta_B^*$ .

#### 4.2.2.4 Expression reliant $\frac{d^2t}{dV^2}$ en fonction de $\frac{dt}{dV}$

L'inverse de l'équation (II.20) donne une relation entre  $\frac{dt}{dV}$  et  $V$  :

$$\frac{dt}{dV} = \frac{1}{Q_0 - Q_0 \cdot \frac{\eta_B^*}{A_0} \times V} \quad (\text{II.21})$$

Puis, en dérivant l'équation (II.21) par rapport à  $V$ , on obtient :

$$\frac{d^2t}{dV^2} = \frac{Q_0 \cdot \frac{\eta_B^*}{A_0}}{\left( Q_0 - Q_0 \cdot \frac{\eta_B^*}{A_0} \times V \right)^2} \quad (\text{II.22})$$

La combinaison des équations (II.21) et (II.22) donne une relation entre  $\frac{d^2t}{dV^2}$  et  $\frac{dt}{dV}$  :

$$\frac{d^2t}{dV^2} = Q_0 \cdot \frac{\eta_B^*}{A_0} \cdot \left( \frac{dt}{dV} \right)^2 \quad (\text{II.23})$$

### 4.2.3 Réduction du volume poreux

Le colmatage en profondeur résulte de l'accumulation de matière à l'intérieur du média filtrant (c'est-à-dire, des particules qui peuvent traverser la structure poreuse). Ce type de colmatage peut être modélisé par l'intermédiaire de la résistance du média, noté  $R_m$ . En effet, cette accumulation de matière a pour conséquence d'augmenter cette résistance.

Le colmatage en profondeur peut être décrit par le mécanisme de blocage standard. Ce modèle fait intervenir un écoulement de type Poiseuille dans un réseau de pores cylindriques. Il fait aussi l'hypothèse que les espèces colmatantes se déposent uniformément le long de la paroi du pore, entraînant alors la réduction du rayon de pore.

#### 4.2.3.1 Paramètres-clés du modèle caractérisant le colmatage en profondeur

Le mécanisme de blocage standard suppose la variation du volume du pore (et indirectement du rayon) comme égale à la variation du volume de perméat due à la rétention des particules dans le pore.

Si on reprend les équations développées par Hermia [16] pour le modèle de blocage standard, l'hypothèse précédente s'écrit :

$$N_{pore}(-2\pi a da)L = C_v \cdot dV \quad (II.24)$$

$N_{pore}$  est le nombre de pores cylindriques,  $a$  le rayon de pore,  $L$  sa longueur,  $C_v$  le volume de particules déposées le long de la paroi du pore par unité de volume de filtrat.

Si on intègre l'équation (II.24) en prenant  $a = a_0$  à  $V = 0$ , on obtient une relation entre le rayon de pore  $a$  et le volume  $V$  de perméat :

$$N_{pore}\pi(a_0^2 - a^2)L = C_v \cdot V \quad (II.25)$$

D'après l'équation de Poiseuille, le débit volumique au travers du média propre est :

$$Q_0 = N_{pore} \left( \frac{\pi \cdot a_0^4}{8 \cdot L} \right) \cdot \frac{\Delta P}{\mu} \quad (II.26)$$

L'équation (II.26) montre que  $Q$  est proportionnel à  $a^4$ . On peut alors établir les rapports suivants :

$$\frac{Q}{Q_0} = \left( \frac{a}{a_0} \right)^4 \Rightarrow \left( \frac{Q}{Q_0} \right)^{1/2} = \left( \frac{a}{a_0} \right)^2 \quad (II.27)$$

L'équation (II.25) peut être réécrite sous la forme suivante :

$$1 - \left( \frac{a}{a_0} \right)^2 = \frac{C_v \cdot V}{N_{pore} \cdot L \cdot (\pi a_0^2)} \quad (II.25')$$

En combinant les équations (II.25') et (II.27), une relation linéaire entre  $Q^{1/2}$  et  $V$  est obtenue :

$$\left( \frac{Q}{Q_0} \right)^{1/2} = 1 - \frac{C_v \cdot V}{N_{pore} \cdot L \cdot (\pi \cdot a_0^2)} \quad (II.28)$$

On peut poser  $\eta_p^* = \frac{C_v}{N_{pore} \cdot L \cdot (\pi \cdot a_0^2)}$

$N_{pore} \cdot L \cdot (\pi \cdot a_0^2)$  représente le volume poreux du média filtrant propre considéré comme un réseau de pores cylindriques.

Par analogie avec les paramètres utilisés pour la précédente limitation de flux, on pose

$$C_v = \eta_p \frac{C_p}{\rho_p}.$$

$C_P$  est la masse de particules susceptibles de se déposer à l'intérieur de la structure poreuse, par unité de volume de perméat.  $\frac{C_P}{\rho_P}$  représente alors le volume de ces mêmes espèces, par unité de volume de perméat.  $\eta_P$  étant la probabilité de capture des particules traversant le média filtrant.,  $\eta_P \frac{C_P}{\rho_P}$  représente alors le volume en espèces qui vont réellement se déposer dans la matrice poreuse du média, par unité de volume de perméat.

Par ailleurs, si on ne fait aucune hypothèse sur la structure du média, on peut écrire le volume poreux d'un média propre comme égal à  $A \cdot L_m \cdot \varepsilon_m$ .  $L_m$  et  $\varepsilon_m$  représentent respectivement l'épaisseur et la porosité du média filtrant.

De là, il est possible de poser  $\eta_P^* = \frac{\eta_P \frac{C_P}{\rho_P}}{A \cdot L_m \cdot \varepsilon_m}$ .

L'équation (II.28) devient :

$$\left( \frac{Q}{Q_0} \right)^{1/2} = 1 - \eta_P^* \cdot V \quad (\text{II.29})$$

#### 4.2.3.2 Equation reliant la résistance du média bloqué $R_m$ à $\eta_P^*$

La loi de Darcy montrant que le débit volumique  $Q$  est proportionnel à l'inverse de la résistance du média  $R_m$ , on peut établir un rapport entre ces deux paramètres à  $t = 0$  et  $t = t$  :

$$\frac{Q}{Q_0} = \frac{R_{m,0}}{R_m} \quad (\text{II.30})$$

En remplaçant le rapport des débits volumiques par le rapport des résistances hydrauliques dans l'équation (II.29), le colmatage en profondeur peut s'exprimer, en termes de résistances hydrauliques, de la manière suivante :

$$R_m = \frac{R_{m,0}}{(1 - \eta_P^* \cdot V)^2} \quad (\text{II.31})$$

#### 4.2.3.3 Equation linéaire permettant de déterminer le paramètre global $\eta_P^*$

Si on intègre l'équation (II.29) en fonction du temps  $t$ , on a aussi une expression linéaire permettant de déterminer la paramètre global  $\eta_P^*$  :

$$\frac{t}{V} = \frac{1}{Q_0} + \eta_P^* \cdot t \quad (\text{II.32})$$

#### 4.2.3.4 Expression reliant $\frac{d^2t}{dV^2}$ en fonction de $\frac{dt}{dV}$

Si on prend l'inverse de l'équation (II.29), on a une relation entre  $\frac{dt}{dV}$  et  $V$  :

$$\frac{dt}{dV} = \frac{1}{Q_0 \cdot (1 - \eta_p^* \cdot V)^2} \quad (\text{II.33})$$

En dérivant l'équation (II.33) par rapport à  $V$ , on obtient l'expression suivante :

$$\frac{d^2t}{dV^2} = \frac{1}{Q_0} \times \frac{2\eta_p^*}{(1 - \eta_p^* \cdot V)^3} \quad (\text{II.34})$$

En combinant les équations (II.33) et (II.34), on obtient une relation entre  $\frac{d^2t}{dV^2}$  et  $\frac{dt}{dV}$  :

$$\frac{d^2t}{dV^2} = 2\eta_p^* \cdot Q_0^{1/2} \cdot \left( \frac{dt}{dV} \right)^{3/2} \quad (\text{II.35})$$

## 4.2.4 Formation d'un gâteau

### 4.2.4.1 Paramètres-clés du modèle caractérisant le dépôt de surface

Dans le cas de la formation d'un dépôt, le flux de matière vers le média filtrant est décrit par l'équation (II.36), à travers l'évolution de la masse déposée,  $M_d$ , sur le média, par unité d'aire de surface filtrante, en fonction du temps.

$$\frac{dM_d}{dt} = \eta_s \cdot C_s \cdot J \quad (\text{II.36})$$

$C_s$  représente la masse de particules pouvant participer à la formation de dépôt, par unité de volume de perméat. Une expression permet de relier  $C_s$  à  $C$ , la concentration de la suspension ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) :

$$C_s = \frac{C \cdot \rho_s \cdot (1 - \varepsilon_d)}{\rho_s \cdot (1 - \varepsilon_d) - C} \quad (\text{II.37})$$

Pour des suspensions fortement diluées ( $C \ll \rho_s \cdot (1 - \varepsilon_d)$ ), on peut assimiler  $C_s$  à la concentration  $C$  de la suspension. Mais pour des milieux concentrés, il est nécessaire d'utiliser l'équation (II.37) pour calculer  $C_s$ .

En filtration classique, toutes les particules amenées vers le média filtrant participent au mécanisme de formation de gâteau ( $\eta_s = 1$ ). Dans le cas des particules qui n'auraient pas la

même vitesse que le liquide, on peut avoir  $\eta_s > 1$ , pour la sédimentation ou  $\eta_s < 1$ , pour la rétrodiffusion.

Tableau II-1 : Valeur de  $\eta_s$  selon le mécanisme mis en jeu

	$\eta_s$
<i>Filtration classique</i>	$\eta_s = 1$
<i>Sédimentation</i>	$\eta_s > 1$
<i>Rétrodiffusion</i>	$\eta_s < 1$

$\eta_s \cdot C_s$  est la masse de particules qui font effectivement partie du dépôt, par unité de volume de perméat.

La résistance hydraulique associée à ce dépôt, notée  $R_d$ , est reliée à la masse déposée  $M_d$  par la résistance spécifique du dépôt, notée  $\alpha$ , suivant la relation :

$$R_d(t) = \alpha \times M_d(t) \quad (\text{II.38})$$

En dérivant l'équation (II.38) par rapport à  $t$  et en y injectant l'équation (II.36), on obtient l'évolution de la résistance hydraulique du dépôt,  $R_d$ , en fonction du flux de perméat  $J$  :

$$\frac{dR_d}{dt} = \eta_s \cdot C_s \cdot \alpha \cdot J \quad (\text{II.39})$$

On pose  $\eta_s^* = \eta_s \cdot \alpha \cdot C_s$ . Comme précédemment, on notera  $\eta_s^*$  le paramètre phénoménologique qui lie la vitesse de filtration à la vitesse de formation du gâteau.

Le paramètre global  $\eta_s^*$  caractérise la dynamique de l'opération du point de vue de la formation du gâteau.

#### 4.2.4.2 Equation reliant la résistance du média bloqué $R_d$ à $\eta_s^*$

A partir de l'équation (II.39), on a la relation entre  $R_d$  et  $\eta_s^*$  :

$$\frac{dR_d}{dt} = \eta_s^* \cdot J \quad (\text{II.40})$$

Si on injecte (II.15)  $\left( J = \frac{1}{A} \cdot \frac{dV}{dt} \right)$  dans l'équation précédente, on obtient :

$$dR_d = \frac{\eta_s^*}{A} \cdot dV \quad (\text{II.41})$$

En intégrant entre  $V = 0 ; R_d = 0$  et  $V = V ; R_d = R_d$ ,

$$R_d = \frac{\eta_s^*}{A} \cdot V \quad (\text{II.42})$$

L'équation (II.42) traduit l'hypothèse que la résistance reliée au dépôt,  $R_d$ , est directement proportionnelle au volume de perméat  $V$ .

#### 4.2.4.3 Equation linéaire permettant de déterminer le paramètre global $\eta_s^*$

En combinant les équation (II.15) et (II.5), on obtient une relation entre le temps  $t$ , le volume de perméat  $V$  et les résistances hydrauliques  $R_m$  et  $R_d$  :

$$\frac{dt}{dV} = \frac{\mu}{A \cdot \Delta P} \cdot (R_m + R_d) \quad (\text{II.43})$$

Si on injecte (II.42) dans l'équation (II.43), on obtient :

$$\frac{dt}{dV} = \frac{\mu \cdot R_m}{A \cdot \Delta P} + \frac{\mu \cdot \eta_s^*}{A^2 \cdot \Delta P} \cdot V \quad (\text{II.44})$$

L'équation (II.44) permet de déterminer le paramètre cinétique global  $\eta_s^*$ , lorsque le tracé de  $\frac{dt}{dV}$  en fonction de  $V$  donne une droite.

#### 4.2.4.4 Expression reliant $\frac{d^2t}{dV^2}$ en fonction de $\frac{dt}{dV}$

Enfin, si on dérive (II.44) par rapport à  $V$ , on obtient :

$$\frac{d^2t}{dV^2} = \frac{\mu \cdot \eta_s^*}{A^2 \cdot \Delta P} \cdot \left( \frac{dt}{dV} \right)^0 \quad (\text{II.45})$$

### 4.3 « Récapitulatif »

#### 4.3.1 Probabilité de capture de particules et coefficients de colmatage

Rappelons que nous avons défini des probabilités de capture moyennes de particules ( $\eta_i$ ), qui ont pour objectif de prendre en compte la diversité et la variabilité des espèces filtrées d'une part, et la diversité des média filtrants (géométrie, nature du matériau) d'autre part.

Par ailleurs, nous avons défini des coefficients de colmatage ( $\eta_i^*$ ) qui constituent, par la suite, les caractéristiques du couple « média – suspension ». En effet, ces coefficients varient selon les conditions opératoires appliquées et le type de média utilisé et la nature des espèces filtrées.

Après avoir développé toutes les équations modélisant les trois limitations de flux, nous pouvons dresser un récapitulatif des expressions des coefficients de colmatage  $\eta_i^*$ .

Tableau II-2 : Récapitulatif des coefficients cinétiques de colmatage et leur expression

Limitation de flux	Coefficients globaux de colmatage $\eta_i^*$	Expression de $\eta_i^*$	Expression de $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$
Formation de gâteau	$\eta_S^*$	$\eta_S \cdot C_S \cdot \alpha$	$\frac{d^2t}{dV^2} = \frac{\mu \cdot \eta_S^*}{A^2 \cdot \Delta P} \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^0$ (II.45)
Blocage de surface	$\eta_B^*$	$\eta_B \cdot C_B \cdot \frac{A_B}{m_B}$	$\frac{d^2t}{dV^2} = Q_0 \cdot \frac{\eta_B^*}{A} \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^2$ (II.23)
Réduction du volume poreux	$\eta_P^*$	$\frac{\eta_P \cdot C_P}{\rho_P \cdot A \cdot L_m \cdot \epsilon_m}$	$\frac{d^2t}{dV^2} = 2\eta_P^* \cdot Q_0^{1/2} \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^{3/2}$ (II.35)

#### 4.3.2 Résistances hydrauliques liées aux $\eta_i^*$

Résistance hydraulique liée au blocage de surface (B) :

$$R_{mB} = R_{m,0} \cdot \left(1 - \frac{\eta_B^*}{A} \cdot V\right)^{-1}$$

Résistance hydraulique liée au dépôt de surface (S) :

$$R_d = \frac{\eta_S^*}{A} \cdot V$$

Résistance hydraulique liée au colmatage en profondeur (P) :

$$R_m = R_{m,0} \cdot \left(1 - \eta_P^* \cdot V\right)^{-2}$$

#### 4.3.3 Equations permettant la détermination des $\eta_i^*$

Tableau II-3 : Equations modélisant les trois limitations de flux considérées

Limitation de flux	Forme linéaire	Equation
Formation de dépôt	$\frac{dt}{dV} = f(V)$	$\frac{dt}{dV} = \frac{\mu \cdot R_m}{A \cdot \Delta P} + \frac{\mu \cdot \eta_S^*}{A^2 \cdot \Delta P} \cdot V$
Blocage de surface	$Q = f(V)$	$Q = Q_0 - Q_0 \cdot \frac{\eta_B^*}{A} \times V$
Réduction du volume poreux	$Q^{1/2} = f(V)$ $\frac{t}{V} = f(t)$	$\left(\frac{Q}{Q_0}\right)^{1/2} = 1 - \eta_P^* \cdot V$ $\frac{t}{V} = \frac{1}{Q_0} + \eta_P^* \cdot t$

## 5 Classification des paramètres-clés en différents niveaux

Les phénomènes de colmatage sont le résultat de nombreuses interactions physiques, chimiques, mécaniques, à plusieurs échelles. Entrer dans la complexité de ces mécanismes multiplie les données nécessaires sur les média, les conditions de procédés et les composants d'un fluide. Au niveau d'un procédé ou d'une usine, il n'est pas toujours clair s'il est systématiquement nécessaire de déterminer tous les paramètres accessibles, ni de savoir si on en fera un bon usage à des fins de conception ou d'optimisation.

Notre démarche a donc été ici régulée par l'économie des paramètres. Nous avons cherché à tirer tout le parti possible des paramètres de base (appelés niveau 0 dans le tableau II-4) avant de déterminer quels paramètres de niveaux plus fins sont nécessaires et comment ils interviennent.

Par analogie avec l'équation (II.8) ( $\lambda = \lambda_0 \cdot F(\sigma)$ ) pour la filtration en profondeur, les coefficients de colmatage  $\eta_i^*$  sont de même niveaux que le paramètre d'efficacité de capture  $\lambda$  (terme de gauche de l'équation (II.8)), tandis que les probabilités de capture  $\eta_i$  intrinsèques à chacune des limitations de flux peuvent être assimilées à la fonction de rétention  $F(\sigma)$ , apparaissant dans le terme de droite de l'équation (II.8) et dont l'expression est donnée par l'équation (II.10). Le terme  $\lambda_0$  est fonction des paramètres caractérisant le fluide et le média filtrant (cf. équation (II.9)).

Tableau II-4 : Classification des paramètres du modèle en différents niveaux

	<i>Niveau 0</i>	<i>Niveau 1</i>	Niveau 2	Niveau 3
Conditions opératoires	$\Delta P, T$			
Suspension	$C$		$d_p$	
Média filtrant	$A, R_{m0}$		$d_{\text{pore}}$	
Perméat	$V(t) ; \mu$			
Dépôt de surface		$\eta_s^*$	$\eta_s, \alpha, C_s$	$R_d(t)$
Blocage de surface		$\beta_B$ $\eta_B^*$	$\eta_B, C_B, A_B/m_B$	
Colmatage interne		$\eta_P^*$	$\eta_P, C_P, \rho_P, \epsilon_m,$ $L_m$	$R_m(t)$

Le tableau II-4 propose une classification des données plus ou moins accessibles sur le média filtrant, la suspension et des conditions opératoires. Le niveau 0 comprend les paramètres de base, facilement mesurable, tels que la pression et la température ou encore le suivi du volume de perméat au cours du temps. Le niveau 2 regroupe des paramètres mesurables mais qui nécessitent des appareils et des techniques de mesure plus fines que pour les paramètres du niveau 0. Enfin, dans le niveau 3, on a deux paramètres  $R_m$  et  $R_d$  qui peuvent être connus a posteriori mais dont le suivi au cours du temps est très difficile à mettre en œuvre. Enfin les paramètres macroscopiques de notre modèle  $\eta_i^*$  sont classés dans la niveau 1 du tableau II-4. Ils intègrent la complexité des paramètres de niveaux plus fins (2 et 3) ; cependant il n'existe pas encore d'outils de métrologie adaptés pour les mesurer, à l'inverse de certains paramètres de niveau 2 (par exemple,  $d_p$  (analyse granulométrique) et  $d_{pore}$  (méthode du point de bulle)). Il s'agira dans le chapitre suivant d'exposer la méthodologie qui consiste à déterminer les paramètres macroscopiques  $\eta_i^*$  de notre modèle phénoménologique.

## Conclusion

Pour tenter de résoudre la difficulté de la problématique industrielle, qui réside dans le fait de modéliser des phénomènes complexes par une approche macroscopique et la plus générique possible, nous proposons l'utilisation de coefficients de colmatage  $\eta_i^*$ , qui prennent en compte de manière implicite cette complexité résultant de l'interaction entre le média filtrant et les particules à filtrer.

L'approche a été développée sur la base d'une description des phénomènes en série (filtration frontale). Nous avons considéré trois limitations de flux qui sont décrites par des mécanismes simples mais physiques (blocage de surface, réduction de la porosité du média, formation d'un gâteau). Le développement d'équations pour ces trois catégories a montré que lorsqu'un de ces trois régimes est pur, le paramètre  $n$  de l'équation  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$  prend une valeur caractéristique ( $n = 2$ , pour le blocage de surface ;  $n = 1,5$ , pour la réduction de porosité du média filtrant ;  $n = 0$  pour la formation d'un dépôt).

Afin de pouvoir décrire une courbe de filtration, il est nécessaire de déterminer les paramètres  $\eta_i^*$  par des méthodes expérimentales. La méthodologie développée conjointement avec ce modèle fera l'objet du chapitre suivant.

## Chapitre III. Matériels et éléments de méthodologie

### Chapitre d'équation 3 Section 1

Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons le dispositif expérimental qui a été utilisé pour la mise au point des outils méthodologiques. Le fluide étudié est une suspension de bentonite. Le choix de cette suspension est apparu judicieux pour tester notre méthodologie car c'est un système dont le comportement en filtration est réputé connu au laboratoire [37, 38]. Les média filtrants testés, ici, sont des membranes de microfiltration.

Il s'agit, dans ce chapitre, de présenter les méthodes qui permettent d'accéder aux paramètres phénoménologiques (les paramètres globaux  $\eta_i^*$  et le taux de recouvrement de surface bloquée final  $\beta_{B,f}$ ) du modèle développé au chapitre précédent.

Nous abordons, dans un premier temps, les méthodes de traitement de données qui ont été appliquées dans ces travaux de thèse.

Nous traitons ensuite de la méthodologie basée sur la représentation de  $\frac{d^2t}{dV^2}$  en fonction de

$\frac{dt}{dV}$  qui permet d'identifier des mécanismes dominants. Nous verrons comment cette étape permet de délimiter la zone correspondant au mécanisme contrôlant le régime de filtration, et ensuite, par quelle méthode les paramètres du modèle ( $\eta_i^*$  et  $\beta_{B,f}$ ) seront déterminés.

L'identification de mécanismes dominants nous a amenés à modéliser la courbe de filtration expérimentale comme la succession de régimes de filtration purs. Ceci sera présenté et résumé sous forme d'un organigramme en fin de chapitre.

# 1 Matériels

Dans cette partie, nous allons présenter le dispositif expérimental en général, puis les caractéristiques de la cellule de filtration. Nous nous intéresserons, ensuite, à la suspension à filtrer et aux différents types de média filtrant qui seront utilisés pour qualifier les outils méthodologiques.

## 1.1 Dispositif expérimental

Un réservoir de 10 L pressurisé par de l'air, contenant la suspension à filtrer à la concentration désirée, alimente la cellule de filtration. La pression appliquée de part et d'autre de la membrane nous permet d'obtenir un liquide clair appelé filtrat ou perméat. La balance électronique (Explorer, Ohaus) mesure la masse de perméat et un système d'acquisition de données en ligne (Labview, National Instruments) enregistre l'évolution de la masse de perméat au cours du temps.

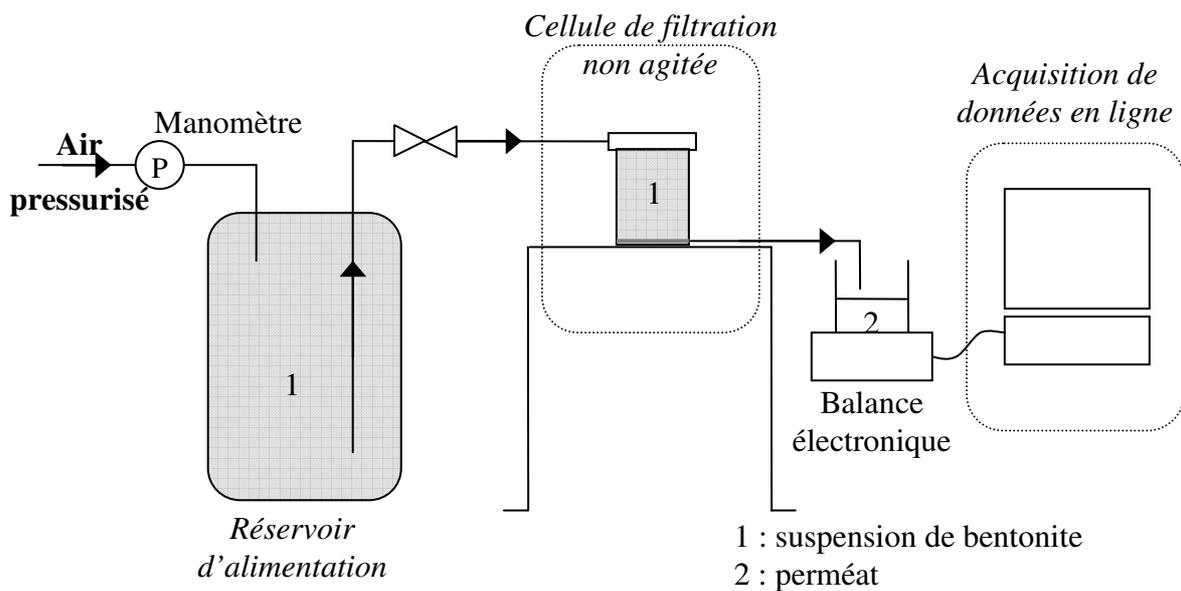


Figure III-1 : Dispositif expérimental

## 1.2 Cellule de filtration

La cellule de filtration est une cellule Amicon, commercialisée par Millipore, dont la section de filtration circulaire est de 44,5 mm de diamètre. L'aire de membrane effective est de 13,4 cm<sup>2</sup> et le volume maximal de suspension que peut contenir cette cellule est de 50 ml.

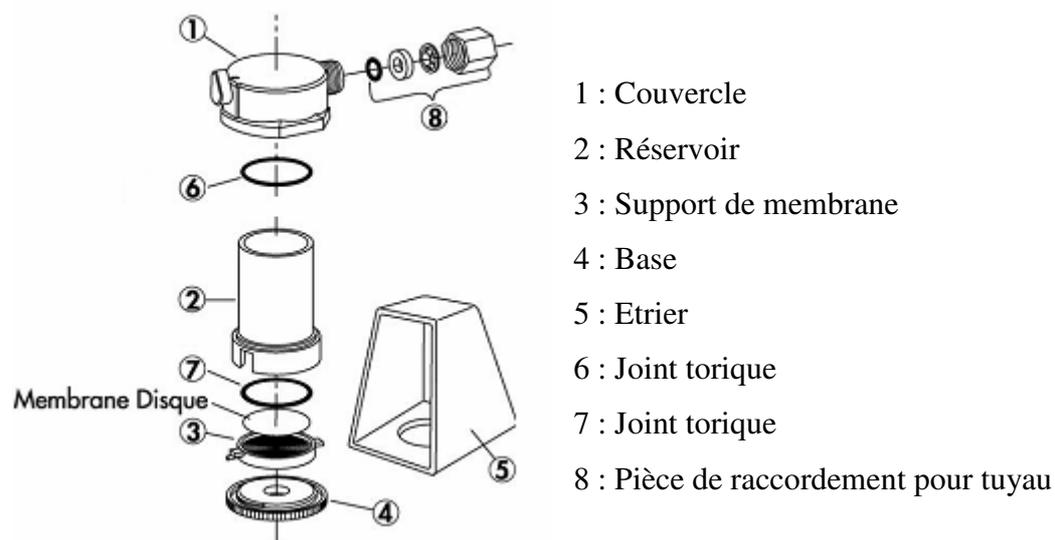


Figure III-2 : Composants de la cellule de filtration Amicon 8050 (Millipore)

## 1.3 Membranes de microfiltration

Quatre membranes ont été testées dans cette étude. Les membranes ayant les plus petits diamètres de pore nominaux (0,2 et 0,8  $\mu\text{m}$ ) sont en acétate de cellulose et commercialisées par Schleicher & Schuell. Les deux autres membranes ayant des diamètres de pore nominaux supérieurs au micron sont en esters de cellulose et commercialisées sous le nom de MF-Millipore™ par Millipore. Le tableau III-1 donne quelques caractéristiques des membranes de microfiltration provenant des fiches techniques des fabricants.

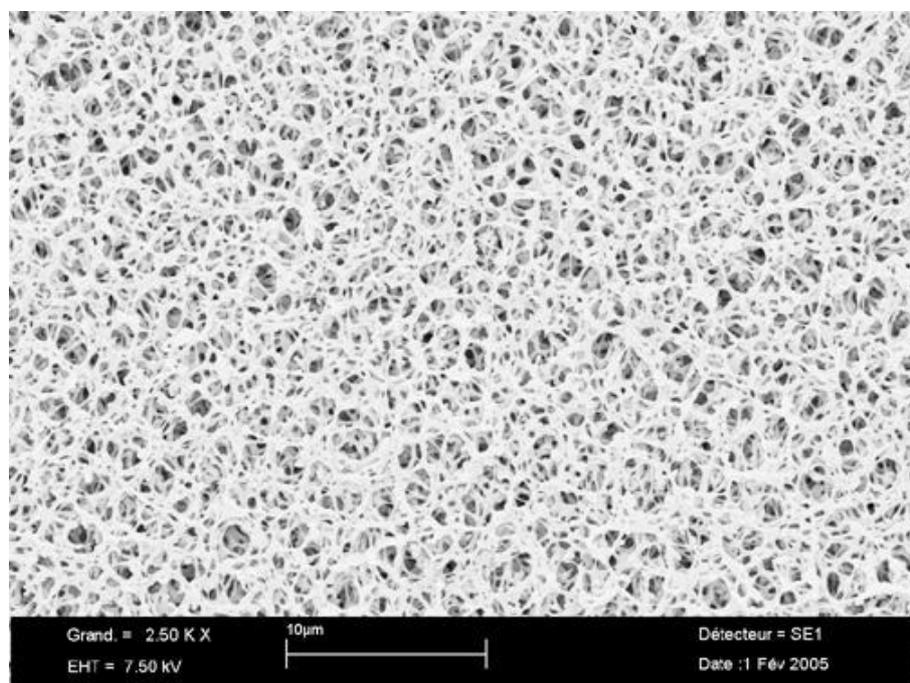
Tableau III-1 : Caractéristiques des membranes de microfiltration

Diamètre de pore nominal ( $\mu\text{m}$ )	Distribution <sup>1</sup> de diamètre de pores ( $\mu\text{m}$ )	Epaisseur ( $\mu\text{m}$ )	Perméabilité à l'eau ( $\text{L.h}^{-1}.\text{m}^{-2}.\text{bar}^{-1}$ )	Point de bulle (bar)	Porosité (%)
0,2*	0,05 – 2 ( $d_{\text{pore}}$ ) <sub>moy.</sub> = 0,36	115	$13.10^3$	3,7	-
0,8*	0,1 – 4 ( $d_{\text{pore}}$ ) <sub>moy.</sub> = 0,74	140	$113.10^3$	1,5	-
5**	0,5 – 5 ( $d_{\text{pore}}$ ) <sub>moy.</sub> = 2	135	$387.10^3$	0,55	84
8**	0,5 – 20 ( $d_{\text{pore}}$ ) <sub>moy.</sub> = 2,5	135	$413.10^3$	0,42	84

\* Schleicher &amp; Schuell

\*\* Millipore

Les figures III-3 à III-6 sont des images MEB des membranes de microfiltration, au même agrandissement. Ce sont des membranes qui ont une structure spongieuse, loin des membranes de type track-etched dont les pores sont cylindriques. En ce qui concerne les membranes 5 et 8 $\mu\text{m}$ , il n'y a pas de différence notable entre les deux média mais on peut remarquer la présence de pores dont la taille est inférieure au diamètre de pore nominal indiqué par le fabricant.

Figure III-3 : Membrane 0,2 $\mu\text{m}$  (2500 $\times$ )

<sup>1</sup> Distribution de taille de pores évaluée au laboratoire par un porosimètre à mercure AutoPore IV 9500 V1.05, Micromeritics®.

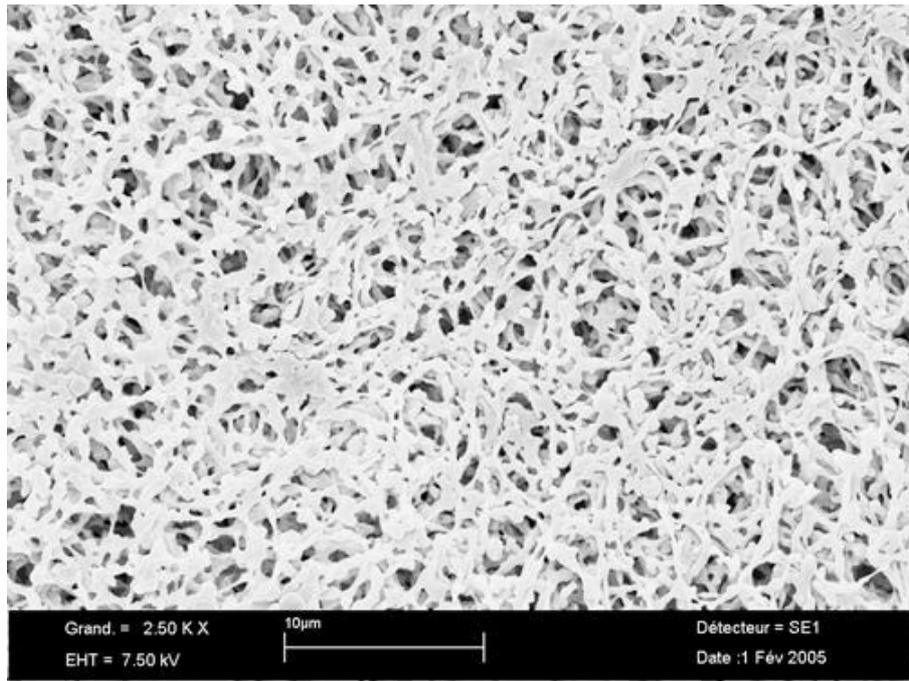


Figure III-4 : Membrane 0,8μm (2500×)

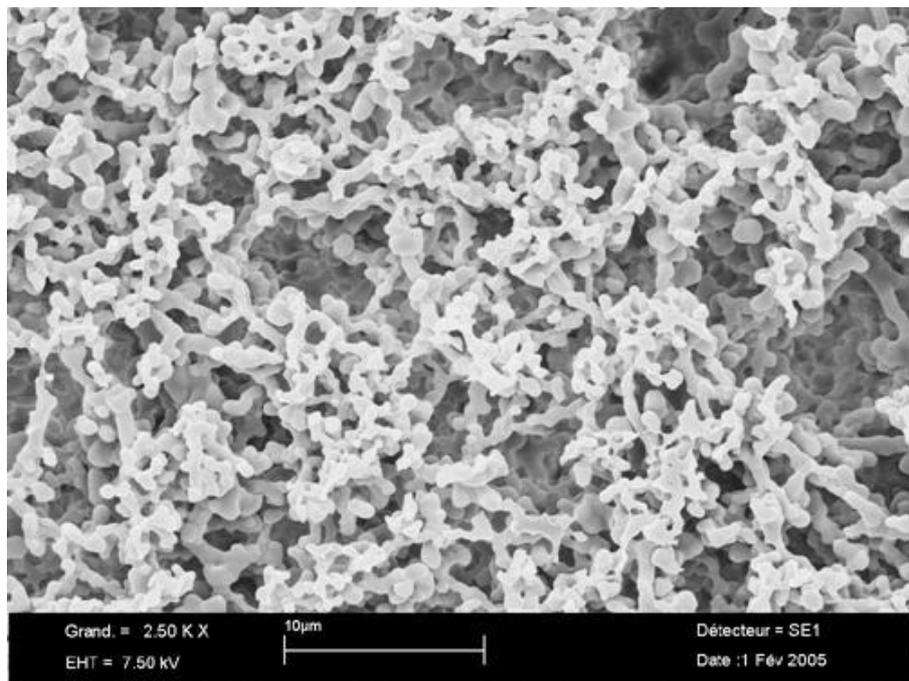
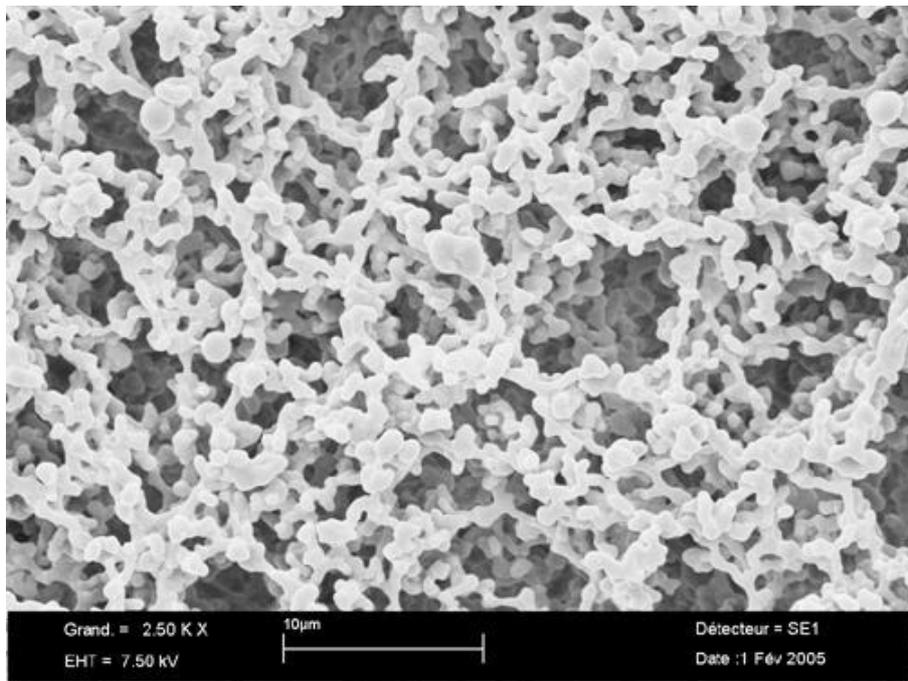


Figure III-5 : Membrane 5μm (2500×)

Figure III-6 : Membrane 8 $\mu\text{m}$  (2500 $\times$ )

A partir des valeurs de perméabilité des membranes du tableau III-1, il est possible de tracer l'évolution du flux  $J_0$  à travers la membrane propre en fonction du diamètre moyen de pore, noté  $d_{pore}$ , du média filtrant.

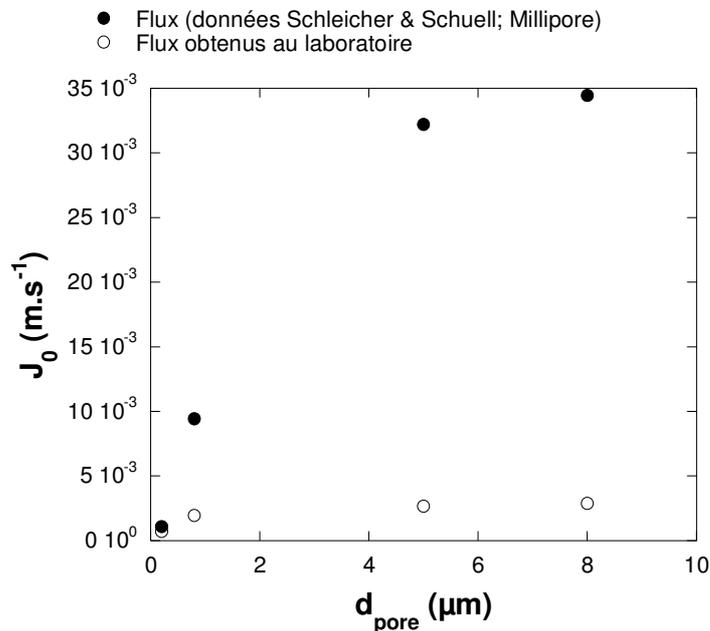


Figure III-7 : Flux  $J$  à travers la membrane propre pour les quatre membranes de microfiltration ( $\Delta P = 0,3$  bar)

La figure III-7 montre qu'il y a une différence d'un ordre de grandeur entre les valeurs de flux calculées à partir des données du fabricant et celles mesurées grâce à la méthode du flux à

l'eau pour une pression imposée de 0,3 bar, notamment pour les membranes 0,8, 5 et 8  $\mu\text{m}$ . Cela laisse à penser que la résistance générée par la cellule Amicon (de l'ordre de  $3.10^9 \text{ m}^{-1}$ , déterminée expérimentalement par la méthode du « flux à l'eau » en appliquant la relation d'Ergun) soit assez importante pour masquer une partie de la résistance hydraulique de ces membranes de microfiltration. Ceci expliquerait le fait que les flux mesurés au laboratoire et représentés sur la figure III-7 soient nivelés. Mais cela ne remettra pas en cause nos résultats concernant la caractérisation des mécanismes de blocage et de formation de dépôt, puisque les flux obtenus lorsqu'on atteint ces régimes sont d'un ordre de grandeur plus faibles que les flux mesurés à travers la membrane propre, mais nécessitera, par la suite une adaptation du dispositif expérimental.

## 1.4 Suspension

La bentonite est une argile brute dont le diamètre moyen pondéré est de 50  $\mu\text{m}$  environ (cf. Fig. III-8). Un protocole de préparation d'une suspension a été développé au laboratoire afin d'éliminer les risques de décantation car notre objectif est d'étudier uniquement la filtration. Au final, on obtient une suspension stable, dont la distribution en taille des particules est bimodale (un premier pic centré autour de 700 nm et un second pic autour de 2500 nm).

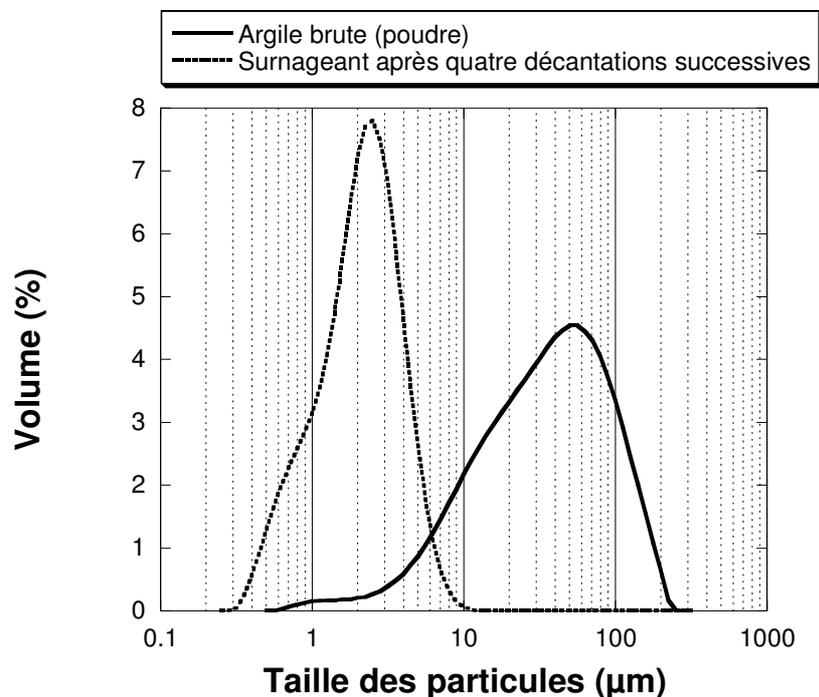


Figure III-8 : Distribution granulométrique en volume de l'argile brute (sous forme de poudre) et du surnageant après décantation.

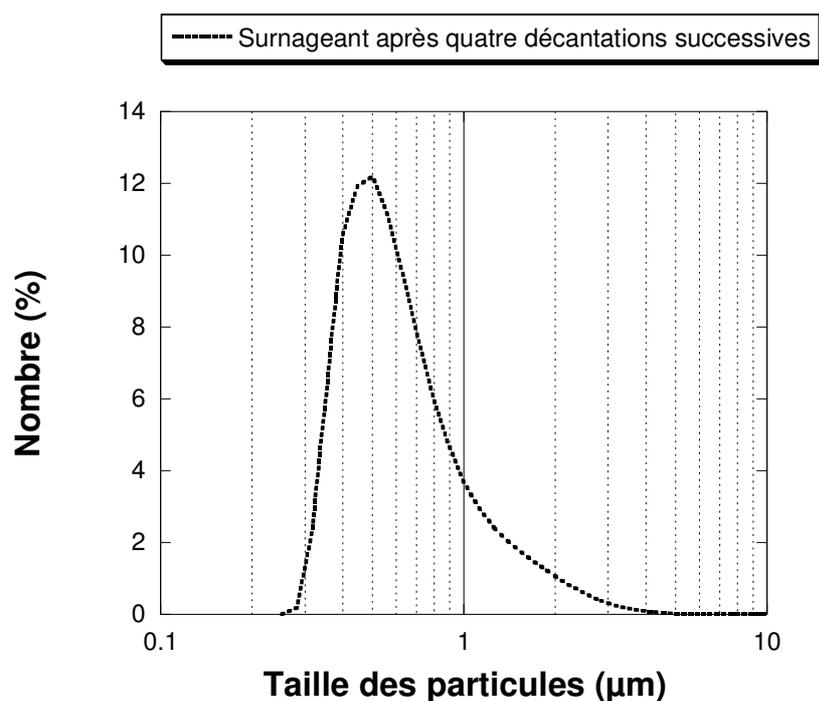


Figure III-9 : Distribution granulométrique en nombre du surnageant de la suspension d'argile (bentonite) brute après décantation.

Une distribution granulométrique en nombre des particules présentes dans la suspension décantée de bentonite (cf. Fig. III-9) montre un pic centré autour de 500 nm et un diamètre  $d(0,5)$  de 600 nm. On remarque que le pic centré autour de 2500 nm observé sur la figure III-8 a disparu ; cette fraction de particules dont la taille est supérieure au micron est négligeable lorsqu'on considère une distribution en nombre.

#### 1.4.1 Protocole de préparation d'une suspension stable de bentonite

L'argile brute est dispersée dans le solvant pendant 15 heures à raison de 30 g d'argile pour 1 kg de solvant (eau osmosée contenant  $1 \text{ mg.L}^{-1}$  de  $\text{NaN}_3$  pour éviter une contamination biologique). Cette suspension est ensuite décantée 4 heures. Après la décantation, on récupère la partie surnageante que l'on soumet à une nouvelle décantation. Cette procédure est répétée (généralement quatre fois) jusqu'à l'obtention d'une suspension stable, ce qui correspond à une partie décantée négligeable au bout de 4 heures. La suspension mère alors obtenue a une concentration de  $19 \text{ g.L}^{-1}$ . Les suspensions qui seront par la suite filtrées, sont préparées à partir de cette suspension mère. Le solvant utilisé est de l'eau osmosée.

### 1.4.2 Structure d'une particule de bentonite

#### PARTICULE DE BENTONITE

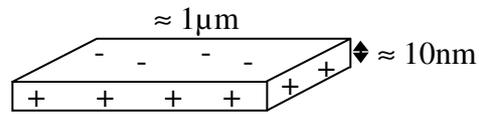


Figure III-10 : Schéma d'une particule de bentonite [37]

Les particules de bentonite sont des plaquettes (cf. figure III-10) dont l'ordre de grandeur de la face basale est le micromètre et dont le rapport dimension basale/épaisseur est de 100 environ. Cette plaquette est chargée négativement sur sa face basale, tandis que les bords sont chargés positivement.

## 2 Acquisition et gestion des données expérimentales

### 2.1 Acquisition des données expérimentales

Le type de données expérimentales nécessaire pour alimenter notre modèle est le suivi du volume de perméat  $V$  au cours du temps  $t$ .

Un logiciel d'acquisition en ligne de données expérimentales a été développé sous Labview (National Instruments) au laboratoire. Bien qu'il soit possible de faire une acquisition toutes les secondes, nous avons choisi un temps entre deux acquisitions de 5 secondes, au vu du temps de réponse de la balance (Explorer, Ohaus) qui est de 3 secondes.

### 2.2 Traitement des données expérimentales

#### 2.2.1 Lissage de données expérimentales

La représentation graphique de l'équation  $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$  nécessite l'utilisation de méthodes de lissage et de dérivation. Cette étape est importante car il faut trouver un juste équilibre entre lissage et dérivation. En effet, tout le problème réside dans le fait que la dérivation de points expérimentaux peut amplifier le bruit du signal brut et que le lissage, même s'il diminue le bruit, entraîne une perte d'information du signal.

A ce propos, un traitement des données brutes est effectué en utilisant la méthode de « filtrage » de la moyenne mobile sur cinq points (chaque point ayant le même poids).

Dans le cas d'une courbe de filtration, la fonction  $V(t)$  est une fonction monotone croissante sans présence a priori de pics. La méthode de la moyenne mobile sur cinq points semble tout à fait appropriée pour le lissage des données expérimentales brutes.

De plus, la méthode de la moyenne mobile a l'avantage d'être simple à mettre en œuvre : un filtre 'numérique' se déplace sur les données brutes acquises et calcule la moyenne sur quelques données qui précèdent et qui suivent celle du centre du filtre. Le tableau III-2 donne l'algorithme de cette méthode sur cinq points. Si le lissage d'une courbe expérimentale n'est pas suffisant, rien n'empêche de recommencer un nouveau lissage à partir des valeurs précédemment lissées.

Tableau III-2 : Algorithme de la méthode de la moyenne glissante sur cinq points

<i>Données brutes</i>	<i>Données lissées</i>
$f(x_0)$	$g(x_0) = f(x_0)$
$f(x_1)$	$g(x_1) = \frac{f(x_0) + f(x_1) + f(x_2)}{3}$
$f(x_2)$	$g(x_2) = \frac{f(x_0) + f(x_1) + f(x_2) + f(x_3) + f(x_4)}{5}$
$f(x_3)$	$g(x_3) = \frac{f(x_1) + f(x_2) + f(x_3) + f(x_4) + f(x_5)}{5}$
$f(x_4)$	
$f(x_{n-4})$	
$f(x_{n-3})$	$g(x_{n-3}) = \frac{f(x_{n-1}) + f(x_{n-2}) + f(x_{n-3}) + f(x_{n-4}) + f(x_{n-5})}{5}$
$f(x_{n-2})$	$g(x_{n-2}) = \frac{f(x_n) + f(x_{n-1}) + f(x_{n-2}) + f(x_{n-3}) + f(x_{n-4})}{5}$
$f(x_{n-1})$	$g(x_{n-1}) = \frac{f(x_n) + f(x_{n-1}) + f(x_{n-2})}{3}$
$f(x_n)$	$g(x_n) = f(x_n)$

### 2.2.2 Méthode de dérivation

La méthode des différences finies [39] centrées, avant et arrière est utilisée afin de dériver numériquement la fonction  $V(t)$ .

pour  $t_0 < t < t_f$

$$\left(\frac{\partial f}{\partial x}\right)_i = \frac{f(x_i + h) - f(x_i - h)}{2h} + O(h^2) \quad \text{différence finie centrée} \quad (\text{III.1})$$

pour  $t = t_0$

$$\left(\frac{\partial f}{\partial x}\right)_i = \frac{-f(x_i + 2h) + 4 \times f(x_i + h) - 3 \times f(x_i)}{2h} + O(h^2) \quad \text{différence finie avant} \quad (\text{III.2})$$

pour  $t = t_f$

$$\left(\frac{\partial f}{\partial x}\right)_i = \frac{3 \times f(x_i) - 4 \times f(x_i - h) + f(x_i - 2h)}{2h} + O(h^2) \quad \text{différence finie arrière} \quad (\text{III.3})$$

### 2.2.3 Choix d'un pas de temps ( $h$ ) optimal pour la dérivation

Le choix d'un pas de temps optimal est assez difficile car la dynamique des phénomènes n'est pas la même sur la durée d'une filtration. En effet, en début de filtration on a une forte variation de  $V(t)$  lorsqu'il y a peu de colmatage. En fin de filtration, la fonction  $V(t)$  est toujours croissante mais augmente de façon très lente. Nous avons testé plusieurs pas de temps ( $h$ ) allant de 5 s à 120 s. Nous sommes arrivés à la conclusion que pour étudier des phénomènes à dynamique rapide (comme le blocage de pore), nous utiliserions un pas de temps faible ( $h = 5 ; 10$  s) et pour des dynamiques plus lentes (comme la filtration sur gâteau), nous utiliserions un pas de temps plus grand ( $h = 60 ; 120$  s).

Une alternative à la problématique du choix du pas de temps serait l'utilisation d'un pas de volume  $\Delta V$  de perméat. Dans un premier temps, nous pensions faire une acquisition de données en ligne selon un  $\Delta V$ . Cela a pour avantage d'accumuler un maximum de points en début de filtration, puis de moins en moins de points lorsque la variation du volume de perméat devient plus lente. La mise en œuvre de cette acquisition fut compliquée et abandonnée car l'échange de données entre la balance électronique et l'ordinateur nécessitait une communication rapide, un échange en moins d'une seconde qui est inférieur au temps de réponse de la balance (3 s). Dans un second temps, comme l'acquisition de données selon un  $\Delta V$  n'a pas été possible, nous avons essayé d'échantillonner les données acquises  $V(t)$  selon un pas de volume  $\Delta V$ . Cette étape a été testée en utilisant la fonction *interp1* du logiciel Matlab® qui permet de faire de l'interpolation de données. Cependant, cela ne nous dispensait pas de tester plusieurs pas de volume suivant la dynamique des phénomènes de colmatage. Pour s'affranchir de l'étape Matlab®, nous avons préféré garder un traitement de données classique selon un pas de temps.

### 3 Identification des mécanismes de colmatage dominants apparents

#### 3.1 Utilisation de la représentation $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$

##### 3.1.1 Expressions de $\frac{d^2t}{dV^2}$ et de $\frac{dt}{dV}$ à partir de la fonction $v(t)$

Les dérivées première et seconde de  $t$  en fonction de  $V$  semblent faciles à calculer à partir d'une fonction  $t(V)$ . Dans notre cas, nous avons une fonction  $V(t)$  selon un pas de temps constant. Il est donc important d'avoir des expressions de  $\frac{d^2t}{dV^2}$  et de  $\frac{dt}{dV}$  en fonction des

dérivées première et seconde de  $V$  en fonction de  $t$ , c'est-à-dire respectivement,  $\frac{dV}{dt}(=Q)$  et  $\frac{d^2V}{dt^2}\left(=\frac{dQ}{dt}\right)$ .

- Expression de  $\frac{dt}{dV}$

La dérivée première de  $V$  en fonction de  $t$ ,  $\frac{dV}{dt}$ , est obtenue directement en appliquant la méthode des différences finies, et  $\frac{dt}{dV}$  est l'inverse de  $\frac{dV}{dt}$  :

$$\frac{dt}{dV} = \left(\frac{dV}{dt}\right)^{-1} = \frac{1}{Q} \quad (\text{III.4})$$

où  $Q = \frac{dV}{dt}$ , le débit volumique

- Expression de  $\frac{d^2t}{dV^2}$

Si on dérive l'équation (III.4) par rapport à  $V$ , on obtient une expression de  $\frac{d^2t}{dV^2}$  en fonction de  $Q$  :

$$\frac{d^2t}{dV^2} = \frac{d}{dV} \left( \frac{dt}{dV} \right) = \frac{d}{dV} \left( \frac{1}{Q} \right) = -\frac{1}{Q^2} \frac{dQ}{dV} \quad (\text{III.5})$$

Or,

$$\frac{dQ}{dV} = \frac{dt}{dV} \left( \frac{dQ}{dt} \right) = \frac{1}{Q} \left( \frac{dQ}{dt} \right) \quad (\text{III.6})$$

En combinant les équations (III.5) et (III.6), on obtient :

$$\frac{d^2t}{dV^2} = -\frac{1}{Q^3} \cdot \frac{dQ}{dt} \quad (\text{III.7})$$

### 3.1.2 Représentation graphique des modèles de blocage et de filtration sur

gâteau suivant 
$$\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$$

Dans le chapitre *Etat de l'art*, la détermination de la valeur de  $n$  de l'expression

$$\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$$

permet d'identifier un type de mécanisme de filtration. Le tableau I-5 fait un récapitulatif des différents mécanismes de filtration reconsidérés par Hermia [16], ainsi que la valeur de  $n$  qui leur est associée.

Si la baisse de flux de perméat au cours d'une filtration est due à un seul mécanisme, la

représentation  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$  donne une seule pente (cf. Fig. III-11 (b)).

Chaque mécanisme décrit bien une diminution de flux ( $\frac{J}{J_0} = f(t)$ ) au cours du temps. Il est

cependant difficile de discriminer entre les quatre modèles proposés sur la figure III-11 (a).

En revanche, ces mêmes données représentées dans le système de coordonnées  $\left(\frac{dt}{dV}; \frac{d^2t}{dV^2}\right)$ ,

en échelle log-log, présentent des pentes bien spécifiques (cf. figure III-11 (b)).

Très souvent, la diminution de flux au cours du temps est due à plusieurs phénomènes de colmatage. Dans ce cas, on ne peut qu'identifier un (ou plusieurs) mécanisme(s) de colmatage dominant(s) apparent(s). Ce mécanisme de colmatage dominant apparent est le mécanisme qui aura le plus de poids parmi d'autres et qui contrôlera temporairement la dynamique du système.

Il est aussi possible d'avoir une représentation avec une succession de plusieurs pentes. Cela veut dire que nous avons une succession de plusieurs mécanismes dominants apparents de colmatage. Dans le cas où la pente prend une autre valeur que celles données précédemment (cf. tableau I-5), nous n'avons pas à disposition de modèles physiques pour décrire la baisse de flux : il peut y avoir combinaison de plusieurs mécanismes ou bien un mécanisme complexe encore non répertorié.

Il en est de même, lorsque  $n$  prend une valeur négative : la partie de la courbe correspondante ne sera pas exploitée. D'après les travaux de Ho & Zydney [27], une valeur de  $n$  négative représente la transition de deux mécanismes de colmatage, qui sont le blocage de pore ( $n = 2$ ) et la formation de gâteau ( $n = 0$ ).

Ces choix permettent de bien identifier sur des bases physiques, les principaux mécanismes de filtration. A ce jour, les seules pentes exploitables sont celles qui ont une valeur correspondant à 2 ; 1,5 ; 1 et 0.

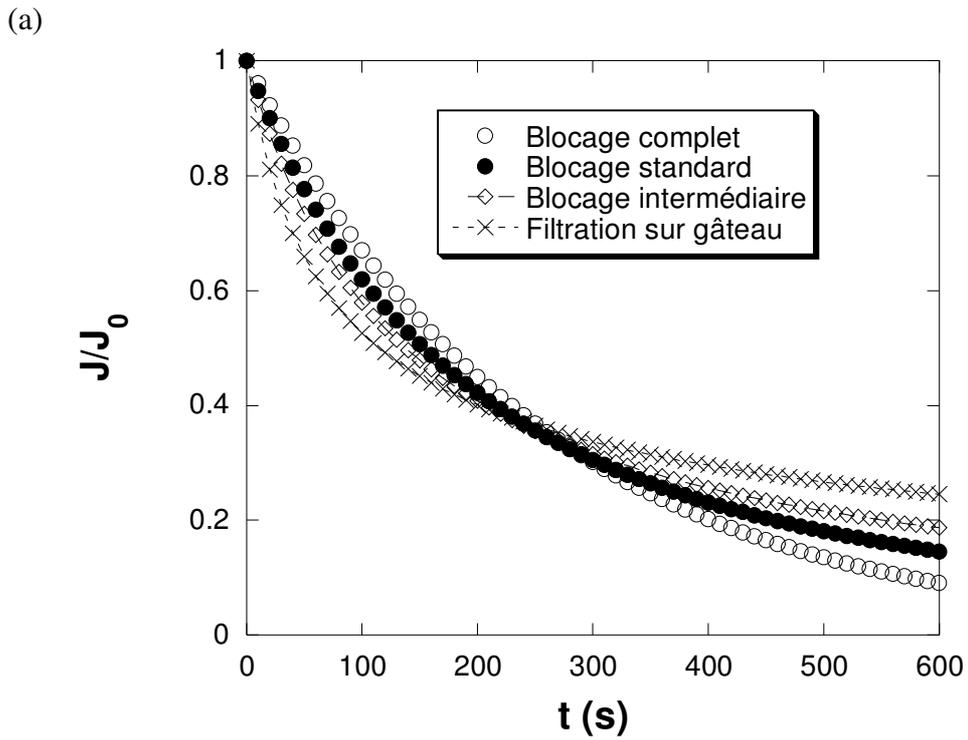
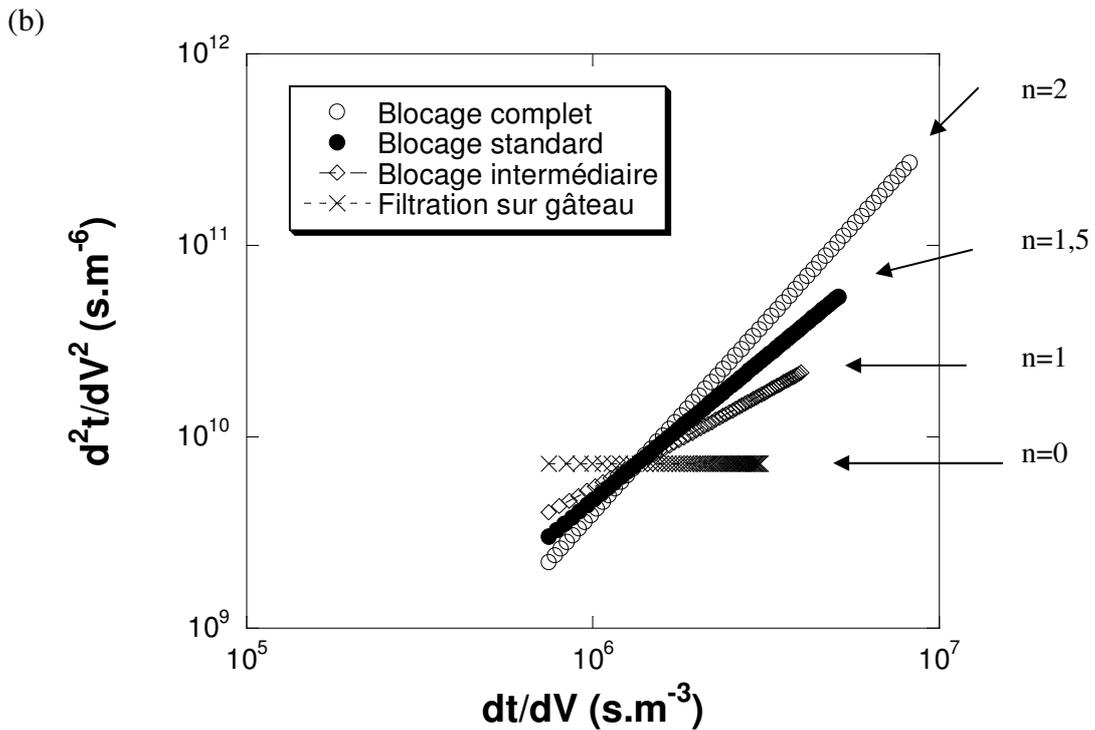


Figure III-11 : Mécanismes de blocage suivant (a)  $J/J_0 = f(t)$  et (b)  $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$



### 3.1.3 Détermination de la plage expérimentale exploitable pour un mécanisme de colmatage identifié

L'intérêt de la représentation  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$  réside dans le fait qu'elle permet aussi à l'utilisateur de déterminer la zone (plage de données expérimentales) qui correspond au mécanisme contrôlant la baisse de flux de perméat.

Pour illustrer la détermination de cette plage de points expérimentaux, nous allons exploiter les données expérimentales issues de la filtration d'une suspension de bentonite de concentration  $10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  à travers une membrane dont le diamètre de pore moyen est de  $5\mu\text{m}$ , sous une pression transmembranaire de 0,3 bar.

A partir de la courbe de filtration expérimentale (Fig. III-12 (a)), il est possible de tracer  $\frac{d^2t}{dV^2}$  en fonction de  $\frac{dt}{dV}$  (Fig. III-12 (b)). Cette représentation permet de connaître les mécanismes

mis en jeu lors d'une expérience de filtration par l'identification de la valeur de la pente  $n$ . Les points expérimentaux qui sont alignés sur une même pente sont exploités pour la détermination des paramètres-clés correspondant au mécanisme préalablement identifié.

On peut à présent identifier sur la courbe de filtration  $V(t)$  (Fig. III-12 (a)) les parties correspondant aux différents régimes de filtration. A la vue de ces graphes, il est alors possible de décomposer une courbe de filtration comme une succession de régimes purs et de transitions.

Une de nos hypothèses sera d'ignorer ces transitions, et de rapprocher les droites 1 et 2 de la figure III-12 (a).

Même si en réalité des phénomènes de colmatage ont lieu de manière simultanée, en pratique nous considérerons une succession de régimes purs, chacun décrit par un mécanisme physique. Cela entraîne un décalage dans le temps des équations développées dans le chapitre II pour les trois limitations de flux considérées (cf. tableau II-3 du chapitre II).

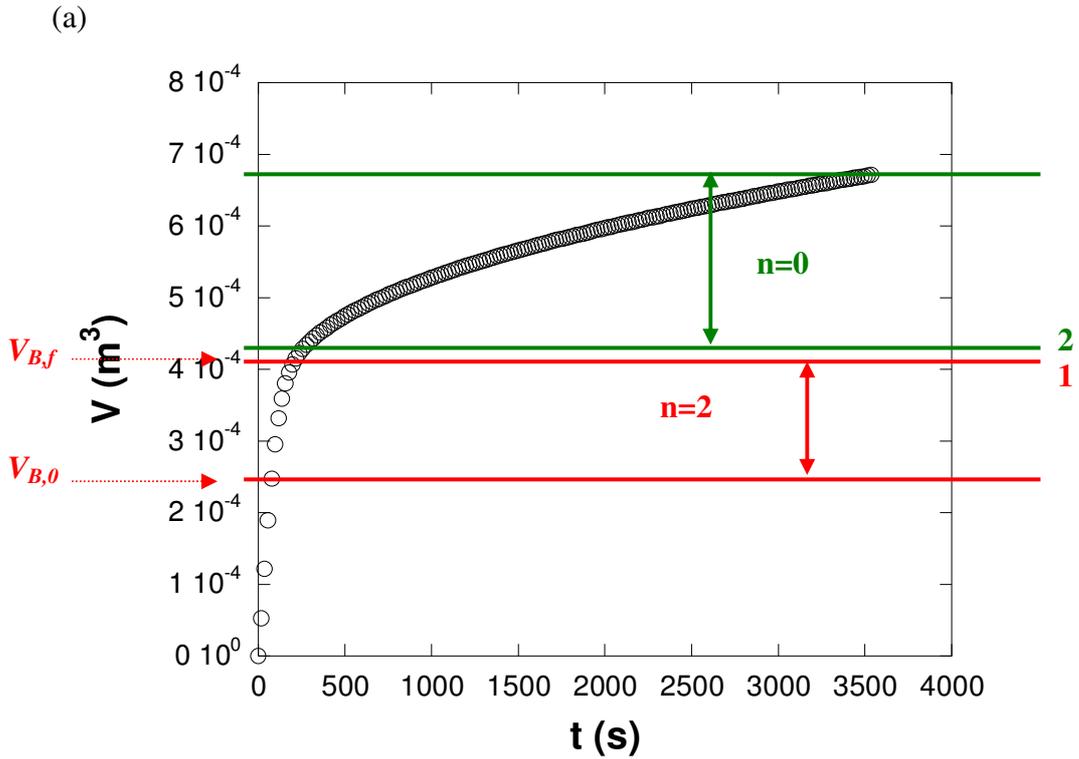
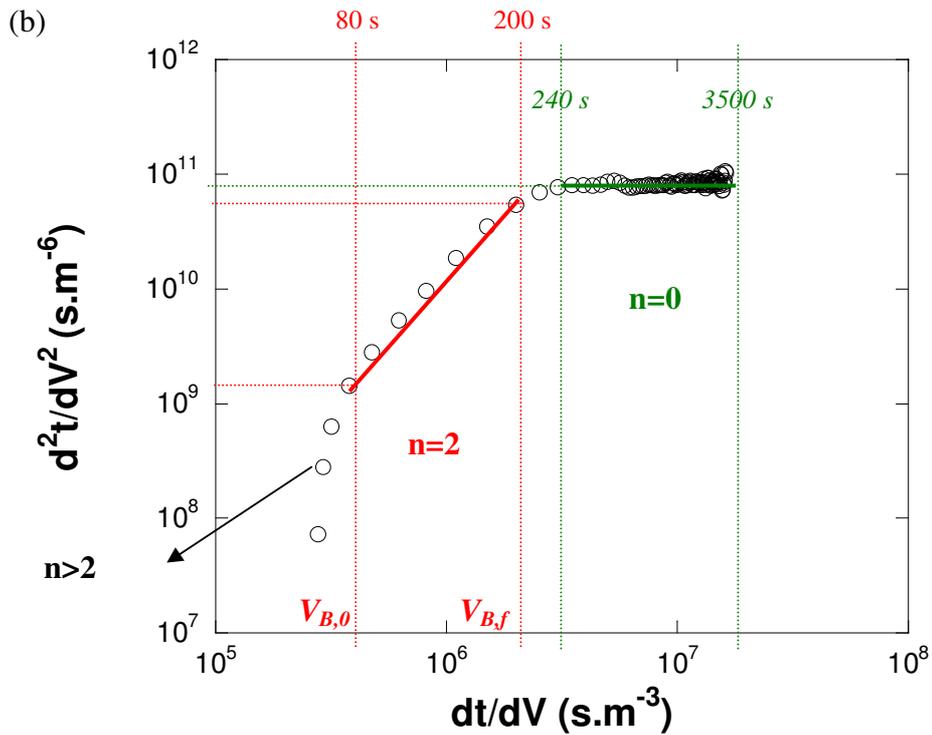


Figure III-12 :  $5\mu\text{m}$  @  $10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  ; 0,3 bar suivant (a)  $V(t)$  et (b)  $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$



De manière générale, deux types de mécanismes peuvent se succéder : le blocage de pore ( $n = 2$ ) suivi de la filtration sur gâteau ( $n = 0$ ). Sur la figure III-12, la succession de ces deux mécanismes est précédée d'un phénomène de colmatage qualifié par une valeur de  $n > 2$ . Lorsque le blocage de pore devient dominant, une certaine quantité de perméat a déjà été filtrée, notée  $V_{B,0}$ , pour laquelle correspond un débit de filtration  $Q_{B,0} \neq Q_0$ . Après l'étape de

blocage de pore, la résistance de média encrassé et bloqué s'exprime suivant  $R_{mB,f} = \frac{R_{mB,0}}{1 - \beta_{B,f}}$ .

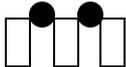
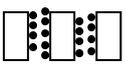
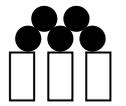
Le volume, à partir duquel le mécanisme de filtration sur gâteau devient dominant et exerce un poids plus important sur la diminution de flux que le blocage de pore, sera noté  $V_{S,0}$ . En revanche, si le blocage de pore a lieu dès le début de filtration, toujours dans la configuration de mécanismes successifs, on aura  $V_{B,0} = 0$  et  $Q_{B,0} = Q_0$ , qui entraîne alors  $R_{mB,0} = R_{m,0}$ . La

résistance du média en fin de blocage sera notée  $R_{mB,f} = \frac{R_{m,0}}{1 - \beta_{B,f}}$ .

## 4 Détermination des paramètres-clés caractérisant le colmatage

D'après le tableau III-3, la représentation de  $\frac{d^2t}{dV^2}$  en fonction de  $\frac{dt}{dV}$  est potentiellement intéressante sur deux plans : l'identification des mécanismes dominants apparents par la détermination de  $n$  et l'évaluation des paramètres phénoménologiques  $\eta_i^*$  par la détermination de  $k$ .

Tableau III-3 : Expression des constantes  $k$  et  $n$  dans  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$

<i>Mécanisme décrivant une baisse de flux</i>	$k$	$n$	
Blocage complet	$\frac{Q_{B,0}}{A} \cdot \eta_B^*$	2	
Blocage standard	$2 \cdot \eta_P^* \cdot Q_{P,0}^{1/2}$	1,5	
Filtration sur gâteau	$\frac{\mu \cdot \eta_S^*}{A^2 \cdot \Delta P}$	0	

Pour les figures III-13 et III-14, les points expérimentaux dérivés proviennent de la filtration d'une suspension de bentonite  $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  à une pression de filtration de 0,3 bar.

Dans la mesure où on connaît les valeurs de  $n$  a priori, la détermination de  $k$  (ordonnée à l'origine) sera beaucoup plus sensible que celle de  $n$  (pente), à la manière de traiter les résultats, c'est-à-dire au choix du pas de temps ( $h$ ) dans la méthode de différenciation.

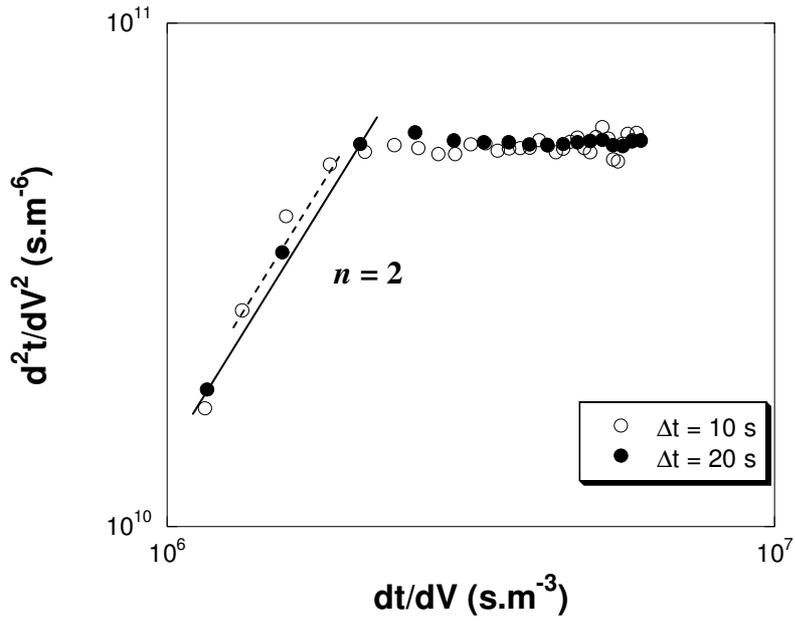


Figure III-13 :  $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$  pour une membrane à 0,2  $\mu\text{m}$ ,  $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$

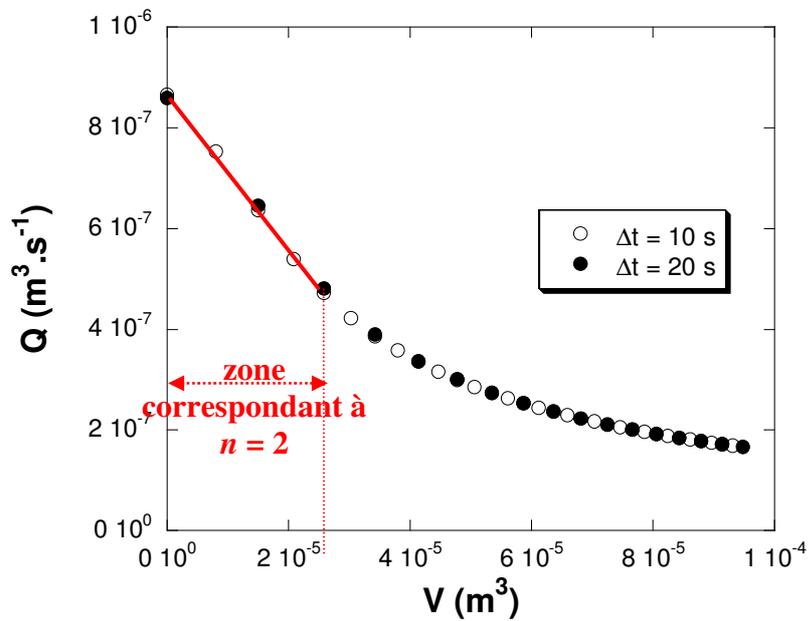


Figure III-14 :  $Q = f(V)$  pour une membrane à 0,2 $\mu\text{m}$ ,  $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$

Par exemple, si on considère la figure III-13, les deux courbes  $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$  pour les pas de temps 10 s et 20 s se superposent plutôt bien. Les points expérimentaux décrivant le mécanisme de blocage de pore sont bien alignés sur une droite de pente 2 en échelle log-log. En revanche, l'ordonnée à l'origine varie du simple au double pour ces deux pas de temps (cf. tableau III-4).

Tableau III-4 : Variation de  $\eta_B^*$  en fonction du pas de temps  $h$  utilisé suivant deux méthodes

	$h = 5 \text{ s}$	$h = 10 \text{ s}$	$h = 20 \text{ s}$
$V_{B,0} \text{ (m}^3\text{)}$	0	$8,1 \cdot 10^{-6}$	0
$Q_{B,0} \text{ (m}^3 \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$	$9,5 \cdot 10^{-7}$	$7,5 \cdot 10^{-7}$	$8,6 \cdot 10^{-7}$
$k$	$15,1 \cdot 10^{-2}$	$1,4 \cdot 10^{-2}$	$3,66 \cdot 10^{-2}$
$n$	1,9	2,0	1,9
$\eta_B^* \text{ (m}^{-1}\text{) calculé à partir de } k$	<b>212</b>	<b>25</b>	<b>57</b>
Pente de $Q = f(V)$	$-2,4 \cdot 10^4$	$-2,2 \cdot 10^4$	$-1,7 \cdot 10^4$
$\eta_B^* \text{ (m}^{-1}\text{) calculé à partir de } \frac{Q}{Q_{B,0}} = f(V - V_{B,0})$	<b>32</b>	<b>30</b>	<b>23</b>

D'après le tableau III-3, le paramètre de colmatage  $\eta_B^*$ , étant proportionnel à  $k$ , prend des valeurs très différentes selon le pas de temps utilisé.

En revanche, la valeur de  $\eta_B^*$  déterminée à partir de la pente de la forme linéaire  $Q = f(V)$ ,

qui est égale à  $-\frac{Q_{B,0}}{A} \cdot \eta_B^*$ , présente moins de fluctuations lorsque le pas de temps varie (cf.

figure III-14 et tableau III-4).

Tableau III-5 : Formes linéaires des trois limitations de flux en tenant compte d'un décalage dans le temps.

Limitation de flux	Forme linéaire	Equation
Filtration sur gâteau	$\frac{dt}{dV} = f(V)$	$\frac{dt}{dV} = \frac{\mu \cdot R_m}{A \cdot \Delta P} + \frac{\mu \cdot \eta_s^*}{A^2 \cdot \Delta P} \cdot (V - V_{s,0})$
Blocage de surface	$Q = f(V)$	$Q = Q_{B,0} - Q_{B,0} \cdot \frac{\eta_B^*}{A} \cdot (V - V_{B,0})$
Réduction du volume poreux	$Q^{1/2} = f(V)$	$\left(\frac{Q}{Q_{P,0}}\right)^{1/2} = 1 - \eta_P^* \cdot (V - V_{P,0})$

Dans l'équation de la filtration sur gâteau du tableau III-5,  $R_m$  représente la résistance du média, colmaté ou non, avant que le mécanisme de filtration sur gâteau devienne dominant. Pour rappel, lorsque le mécanisme de filtration sur gâteau est précédé d'un mécanisme de blocage, comme dans le cas de l'exemple présenté dans la figure III-12, on a

$$R_m = R_{mB,f} = \frac{R_{mB,0}}{1 - \beta_{B,f}}$$

Par conséquent, nous utiliserons la forme linéaire et *intégrée* de  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$  pour chaque mécanisme identifié afin de déterminer les paramètres phénoménologiques  $\eta_i^*$  et  $\beta_{B,f}$  (fraction finale de surface bloquée) (cf. tableau III-5).

#### 4.1 Blocage de pore ou « blocage complet »

Comme illustré sur la figure III-12, la plage de points expérimentaux correspondant au régime de blocage de pore a pu être déterminée. En passant par la forme intégrée du modèle, c'est-à-dire  $Q = f(V)$ , il nous est possible à présent de déterminer la valeur de  $\eta_B^*$ .

La méthode est illustrée par la figure III-15 (b), en ne considérant que les points alignés sur la droite en pointillé. En traçant le débit volumique  $Q$  en fonction de  $V$  (cf. tableau III-5), la valeur de la pente nous donne directement la valeur de  $\eta_B^*$ , connaissant  $Q_{B,0}$  (la valeur du débit volumique, lorsque le mécanisme de blocage débute) et la surface  $A$  de la membrane.

Rappelons que les termes  $V_{B,0}$  et  $Q_{B,0}$  sont utilisés dans le cas où le régime de blocage de pore n'aurait pas lieu dès le début de la filtration, c'est-à-dire, lorsque  $V_{B,0} \neq 0$  et  $Q_{B,0} \neq Q_0$ .

## 4.2 Formation d'un dépôt ou « filtration sur gâteau »

La forme linéaire de la filtration sur gâteau ( $\frac{dt}{dV} = f(V)$ ) permet de déterminer deux paramètres globaux (cf. tableau III-5) qui sont  $\eta_s^*$  et  $\beta_{B,f}$  via  $R_m$ . L'utilisation de ce modèle ne sera appliquée qu'aux points expérimentaux, préalablement déterminés, correspondant au régime de filtration sur gâteau (cf. figure III-15 (a)), à partir de  $V = V_{S,0}$ . En traçant  $\frac{dt}{dV}$  en fonction de  $V - V_{S,0}$ , la valeur de la pente nous donne la valeur de  $\eta_s^*$ , les paramètres comme la viscosité  $\mu$  du perméat, la pression  $\Delta P$  et la surface  $A$  de la membrane étant connus.

La valeur de l'ordonnée à l'origine nous permet d'évaluer  $R_m$ . Or,  $R_m$  est la résistance de la membrane colmatée, dont l'expression est la suivante :  $R_m = \frac{R_{mB,0}}{1 - \beta_{B,f}}$ .

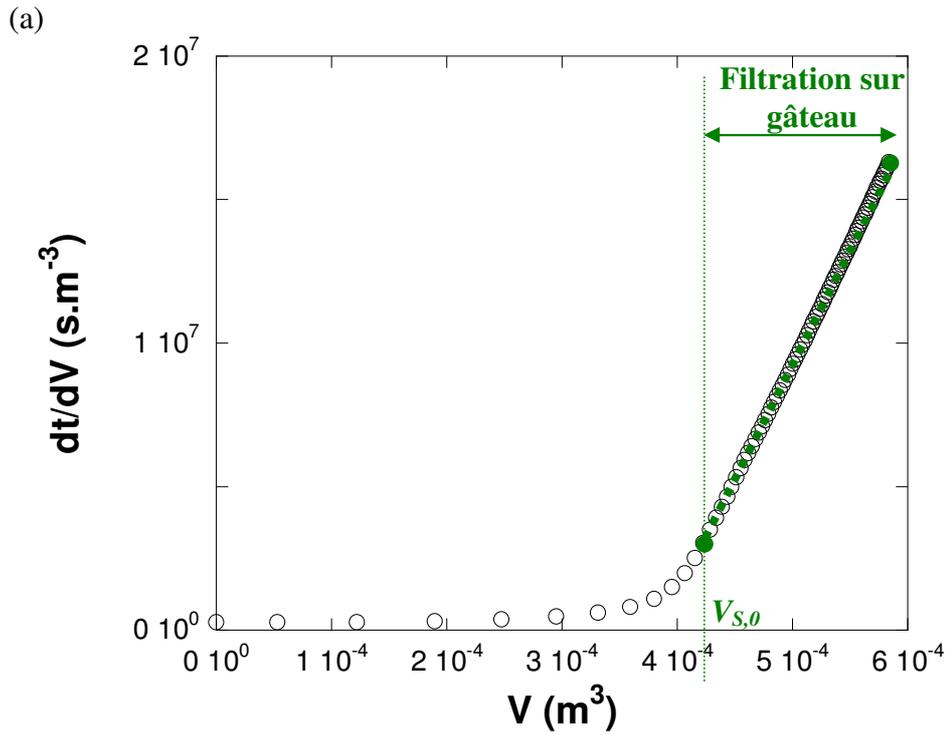
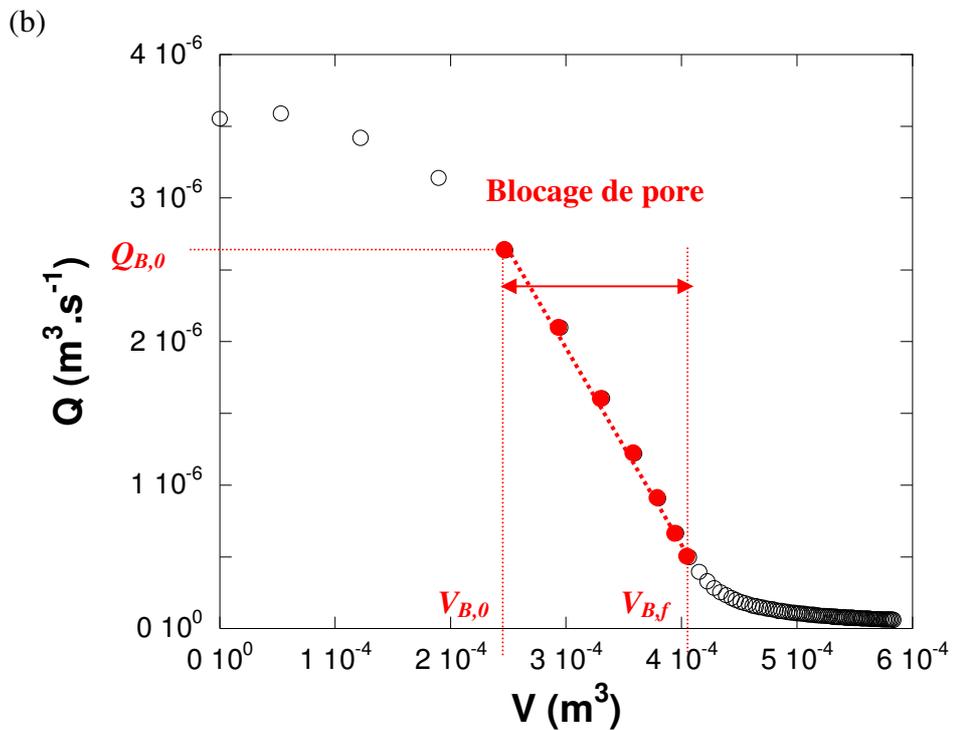


Figure III-15 : Plage de points exploitables pour les mécanismes de filtration sur gâteau (a) et de blocage de pore (b)



## 5 Description d'une courbe expérimentale de filtration

Notre méthodologie est fondée d'une part sur l'identification des mécanismes dominants apparents et d'autre part sur sa capacité à décrire une courbe expérimentale de filtration.

La première partie a été abordée dans les paragraphes précédents. Nous allons ici traiter de la seconde partie.

### 5.1 Approximation par des mécanismes de colmatage successifs

Dans l'approche développée, nous faisons l'hypothèse qu'une courbe de filtration peut être découpée en une succession de mécanismes dominants apparents. Le qualificatif « apparent » insiste sur le fait que nous sommes conscients que plusieurs phénomènes de colmatage puissent avoir lieu de manière simultanée mais nous supposons qu'il y aura un mécanisme de colmatage qui dominera à certains moments et de ce fait masquera les autres. Par ailleurs, nous ne décrivons pas les transitions entre deux mécanismes dominants qui peuvent être en compétition ou avoir le même poids.

### 5.2 Modélisation de la courbe de filtration

La courbe de filtration est décrite par l'évolution du volume de perméat  $V$  en fonction du temps de filtration  $t$ . Elle sera modélisée par une succession de mécanismes dominants apparents, chacun décrit par un seul mécanisme de colmatage.

La représentation de  $\frac{d^2t}{dV^2}$  en fonction de  $\frac{dt}{dV}$  permet de connaître les zones correspondants aux différents mécanismes dominants. Dans le cas des expériences de filtration de bentonite, la succession des mécanismes reste classique : la forte diminution de flux de perméation est due en majeure partie au blocage de pore de surface puis suivie d'une formation d'un dépôt couvrant la totalité de la surface filtrante. Dans le cas où le rapport  $\frac{d_p}{d_{pore}} < 1$ , le blocage de pore est précédé d'une étape au cours de laquelle une certaine quantité de matière se dépose à l'intérieur du média, et qui va permettre le bouchage des pores puis la formation du dépôt.

### 5.3 Exemple de reconstruction de la courbe de filtration

Considérons le cas où nous avons trois régimes de filtration cas où  $\frac{d_p}{d_{pore}} < 1$  :

- une diminution du flux de perméation notable pour  $n > 2$  (Etape I)
- une diminution du flux due au blocage de pore ( $n = 2$ ) (Etape II)
- une diminution du flux due à la formation du dépôt de surface ( $n = 0$ ) (Etape III)

Dans le cas où  $\frac{d_p}{d_{pore}} \geq 1$ , nous n'aurons que les étapes II et III. Il est possible de n'avoir que

l'étape III ( $n = 0$ ) lorsque  $d_p \gg d_{pore}$ .

### 5.3.1 Etape I

Nous sommes dans le cas où  $n > 2$ . Nous avons choisi de décrire cette partie de courbe comme si le débit restait constant.

Pour contre balancer le fait que dans cette phase le flux diminue, on ne va pas prendre le débit égal à celui obtenu sur média propre,  $Q_0$ , mais la moyenne des débits entre le début de la filtration ( $Q_0$ ) et le début du blocage de surface ( $Q_{B,0}$ ), c'est-à-dire  $Q = \frac{Q_0 + Q_{B,0}}{2}$ . Cette

portion de courbe sera calculée grâce à l'expression :

$$V_{calc.}(t) = \left( \frac{Q_0 + Q_{B,0}}{2} \right) \times t \quad (III.8)$$

Cette étape permet juste de raccorder la valeur du volume de perméat calculé par (III.8) à celle du volume de perméat,  $V_{B,0}$ , à partir duquel le blocage de pore devient le mécanisme dominant.

### 5.3.2 Etape II

Le régime de colmatage prédominant est le blocage de pore ( $n = 2$ ). A partir des équations régissant le blocage de pore, la portion de courbe correspondant à ce régime de colmatage sera décrite par l'expression :

$$V_{calc.}(t) = V_{B,0} + \frac{A}{\eta_B^*} \left( 1 - \exp \left( -\eta_B^* \times \frac{Q_{B,0}}{A} \times (t - t_{B,0}) \right) \right) \quad (III.9)$$

### 5.3.3 Etape III

Le régime de colmatage est dominé par la filtration sur gâteau ( $n = 0$ ) et sera décrite par l'expression suivante :

$$V_{calc.}(t) = V_{S,0} + \frac{A}{\eta_S^*} \left( \left( R_m^2 + 2 \frac{\eta_S^* \Delta P}{\mu} (t - t_{S,0}) \right)^{1/2} - R_m \right) \quad (III.10)$$

$$\text{avec } R_m = \frac{\Delta P \times A}{\mu \times Q_{B,0}} \cdot \frac{1}{1 - \beta_{B,f}}$$

### 5.3.4 Les transitions entre deux régimes de filtration

Dans cette approche, nous avons choisi de ne pas décrire les transitions entre les régimes de filtration. En revanche, nous avons remplacé ces transitions par des éléments de régimes purs, et défini des critères permettant de passer d'un régime à un autre.

La figure III-16 illustre les transitions entre les différentes étapes de filtration.

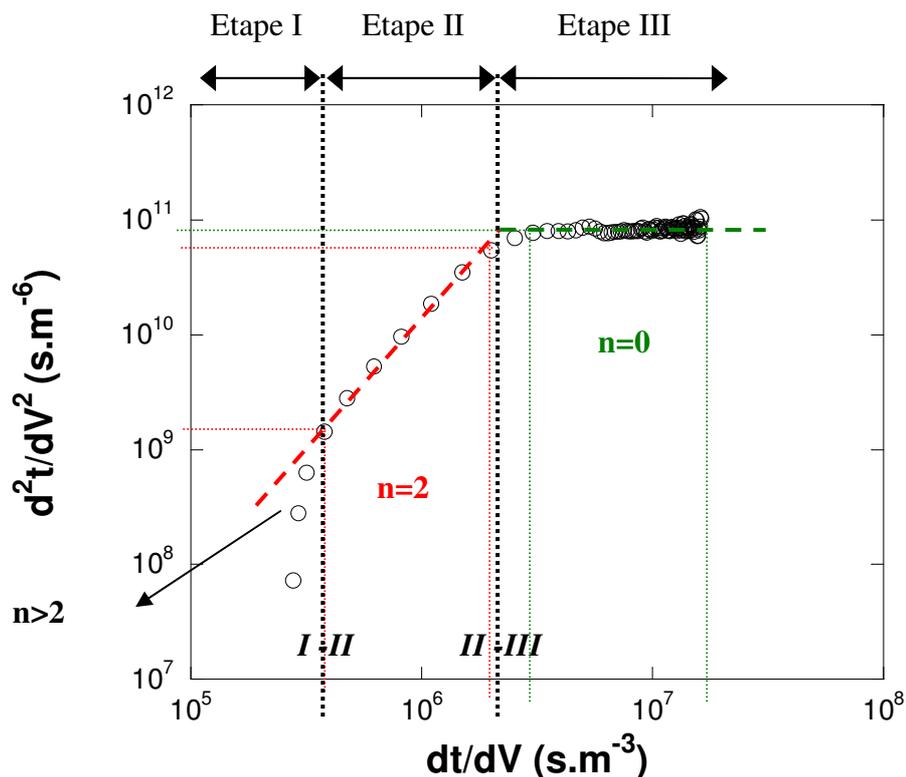


Figure III-16 : Représentation des transitions entre deux régimes de filtration

- Transition I-II

On passe de l'étape I à l'étape II, lorsque  $V_{calc.}(t) = V_{B,0}$ .

- Transition II-III

On passe de l'étape II à l'étape III, lorsqu'on atteint la valeur de  $\frac{dt}{dV}$  correspondant à l'intersection entre les deux pentes ( $n = 2$ ) et ( $n = 0$ ) (cf. fig. III-16).

Enfin, la figure III-17 résume la méthodologie sous forme d'un organigramme.

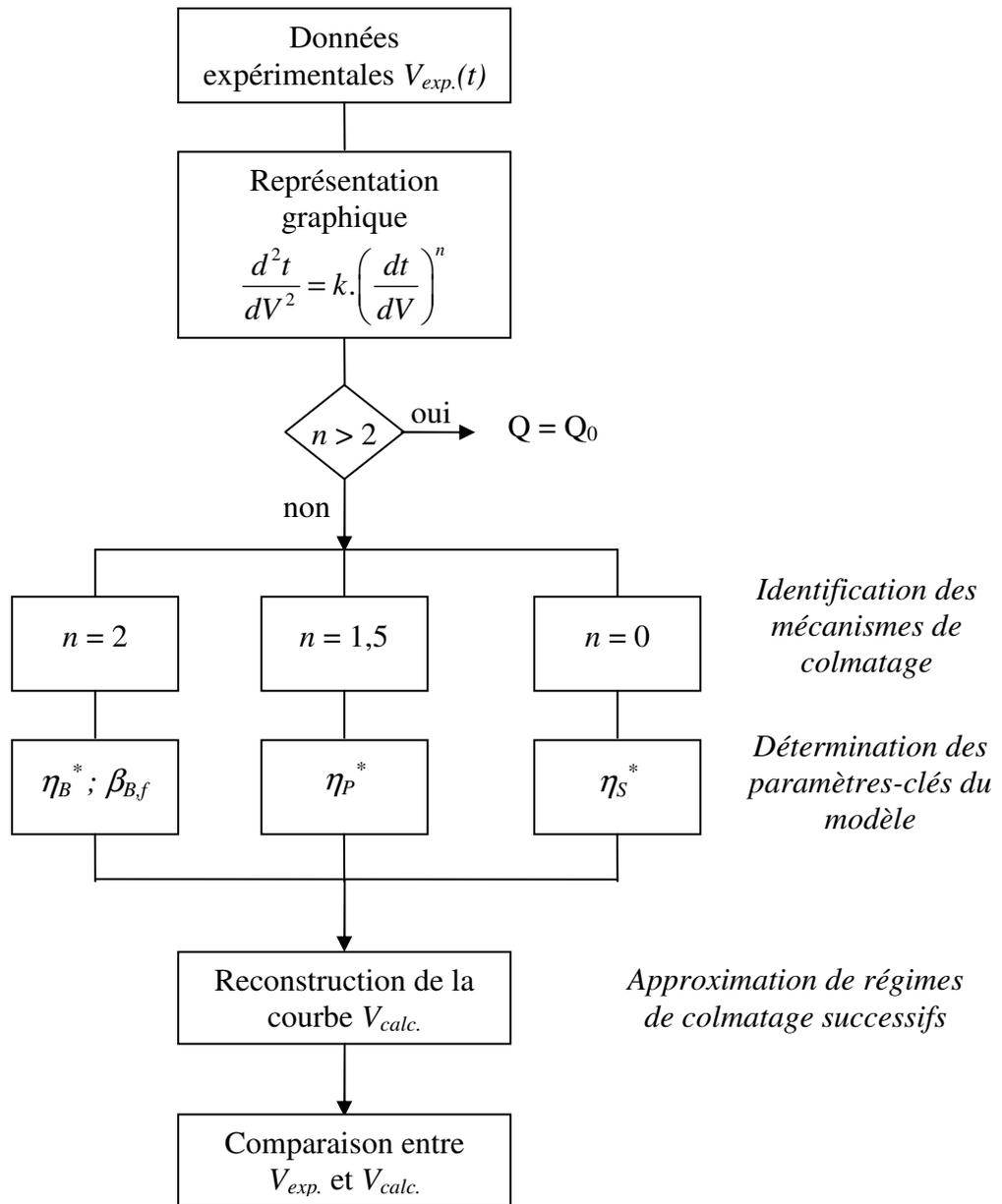


Figure III-17 : Organigramme résumant la méthodologie

## Conclusion

En début de ce chapitre, nous avons vu que les résistances de membrane propre mesurées au laboratoire étaient surestimées par rapport aux valeurs obtenues à partir des données du fabricant (Millipore et Schleicher & Schuell), notamment pour les membranes 5 et 8  $\mu\text{m}$ . Cependant, le « design » de la cellule Amicon n'affecte pas les résultats concernant les mécanismes de blocage et de filtration sur gâteau, car les résistances obtenues pendant ces deux régimes sont 10 à 100 fois plus importantes que les résistances de média propre.

La méthodologie développée dans ce chapitre permet de décrire une filtration par une succession de régimes purs. On identifie les mécanismes dominants successifs par la détermination de la valeur de  $n$  de l'équation  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$ . En revanche, bien que fonction des paramètres phénoménologiques du modèle, le paramètre  $k$  ne permet pas de les évaluer de manière fiable. En effet, nous avons vu que  $k$  était très sensible au pas de temps utilisé dans la méthode des différences finies.

Par conséquent, nous nous sommes orientés vers les formes linéaires et intégrées de l'équation  $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$  correspondant aux limitations de flux considérées dans cette approche. Ces équations étant aussi fonction des paramètres phénoménologiques, il nous a été possible de déterminer les valeurs de ces paramètres, alors peu sensibles à la variation du pas de temps car les variables des formes linéaires nécessitent au mieux une dérivation des données expérimentales.

Enfin, nous proposons de reconstruire une courbe expérimentale de filtration en utilisant une approximation des mécanismes dominants successifs.

Dans le chapitre suivant, nous allons appliquer cette méthodologie pour la filtration de suspension de bentonite sur des membranes de microfiltration, dont le dispositif expérimental a été décrit en début de ce chapitre.

## Chapitre IV. Résultats et Discussion sur la bentonite

### Chapitre d'équation 4 Section 1

Ce chapitre est consacré à la qualification de notre méthodologie. Cette étude a été réalisée à partir d'une suspension de bentonite et de membranes de microfiltration, caractérisées par un diamètre de pore moyen allant de 0,2 à 8  $\mu\text{m}$ . Cette partie consistera à évaluer la capacité de notre méthodologie à reconstruire et décrire une courbe de filtration  $V(t)$  pour les quatre membranes.

Dans la seconde partie de ce chapitre, nous analyserons les paramètres phénoménologiques ( $\eta_i^*$  et  $\beta_{B,f}$ ) en fonction de la concentration de la suspension, de la pression appliquée ou du média filtrant choisi.

Enfin, une discussion permet de dégager les limites et les verrous de notre méthode.

# 1 Reconstruction d'une courbe de filtration

Avant de commencer l'analyse des paramètres du modèle, nous nous sommes intéressés à la reconstruction de la courbe de filtration  $V(t)$  suivant la méthodologie décrite dans le chapitre III. Pour rappel, nous faisons l'approximation de régimes de filtration successifs, en négligeant les transitions entre chaque régime. Nous allons voir, dans ce paragraphe, l'impact d'une telle approximation : notre méthodologie permet-elle de bien décrire une courbe de filtration ?

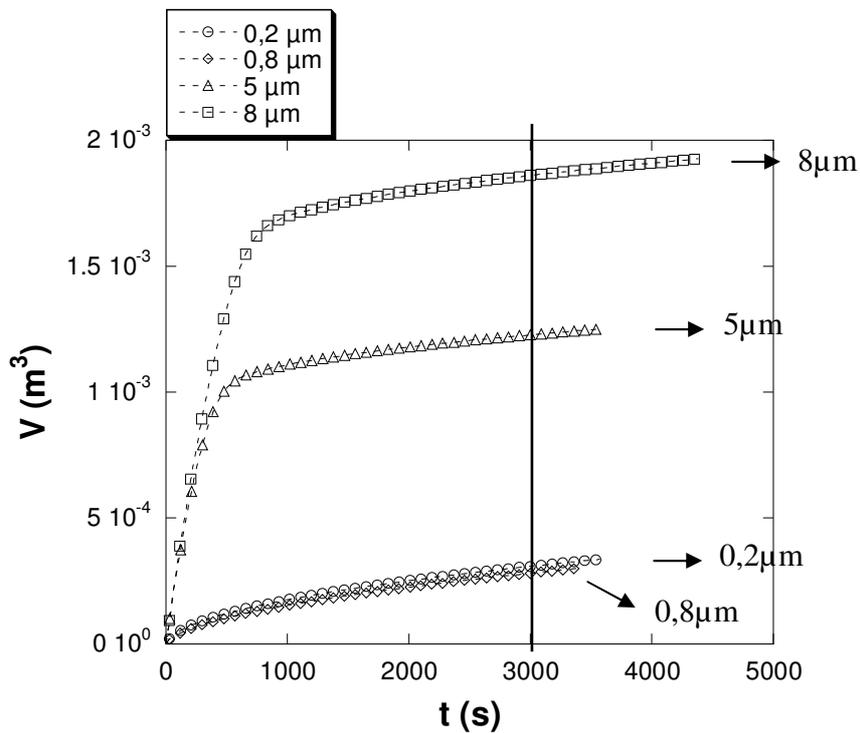


Figure IV-1 : Superposition des courbes de filtration des quatre membranes pour les conditions opératoires suivantes ( $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$ )

Pour les mêmes conditions opératoires, c'est-à-dire, même concentration de la suspension et même pression appliquée, les courbes de filtrations obtenues sont très différentes en hauteur mais très similaires en forme, lorsqu'on passe d'une membrane dont le diamètre de pore moyen est de  $0,2 \mu\text{m}$  à une membrane de  $8 \mu\text{m}$ .

Nous avons appliqué la méthodologie qui consiste à identifier (par la représentation de

$$\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left( \frac{dt}{dV} \right)^n$$

et la détermination de la valeur de  $n$ ) et à caractériser, par l'intermédiaire des paramètres du modèle phénoménologique, les mécanismes responsables de la diminution

de flux de perméat. Le tableau IV-1 récapitule les paramètres caractérisant les deux principales limitations de flux qui ont lieu au cours de la filtration d'une suspension de bentonite à travers de membranes de microfiltration.

Tableau IV-1 : Paramètres du modèle des quatre membranes testées pour des conditions opératoires fixées ( $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$ )

	<b>0,2 <math>\mu\text{m}</math></b>	<b>0,8 <math>\mu\text{m}</math></b>	<b>5 <math>\mu\text{m}</math></b>	<b>8 <math>\mu\text{m}</math></b>
$Q_0 \text{ (m}^3 \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$	$9,7 \cdot 10^{-7}$	$3,0 \cdot 10^{-6}$	$3,7 \cdot 10^{-6}$	$3,9 \cdot 10^{-6}$
$R_{m,0} \text{ (m}^{-1}\text{)}$	$4,66 \cdot 10^{10}$	$1,60 \cdot 10^{10}$	$1,22 \cdot 10^{10}$	$1,14 \cdot 10^{10}$
$Q_{B,0} \text{ (m}^3 \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$	$9,6 \cdot 10^{-7}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$1,1 \cdot 10^{-6}$	$1,2 \cdot 10^{-6}$
$R_{mB,0} \text{ (m}^{-1}\text{)}$	$4,74 \cdot 10^{10}$	$3,18 \cdot 10^{10}$	$3,83 \cdot 10^{10}$	$3,73 \cdot 10^{10}$
$V_{B,0} \text{ (m}^3\text{)}$	0	0	$945 \cdot 10^{-6}$	$1511 \cdot 10^{-6}$
$\eta_B^* \text{ (m}^{-1}\text{)}$	<b>32</b>	<b>67</b>	<b>9,5</b>	<b>6,6</b>
$\beta_{B,f}$	<b>32%</b>	<b>81%</b>	<b>87%</b>	<b>89%</b>
$V_{S,0} \text{ (m}^3\text{)}$	$25,8 \cdot 10^{-6}$	$28,2 \cdot 10^{-6}$	$1077 \cdot 10^{-6}$	$1723 \cdot 10^{-6}$
$\eta_S^* \text{ (m}^{-2}\text{)}$	<b><math>3,81 \cdot 10^{12}</math></b>	<b><math>3,80 \cdot 10^{12}</math></b>	<b><math>5,83 \cdot 10^{12}</math></b>	<b><math>4,40 \cdot 10^{12}</math></b>

D'après le tableau IV-1, on peut constater que les paramètres du modèle ( $\eta_i^*$  et  $\beta_{B,f}$ ) sont différents lorsqu'on change de membrane, plus spécialement les paramètres de blocage.

Les figures IV-2 à IV-5 montrent les courbes reconstruites par la méthodologie et les courbes expérimentales pour les quatre membranes.

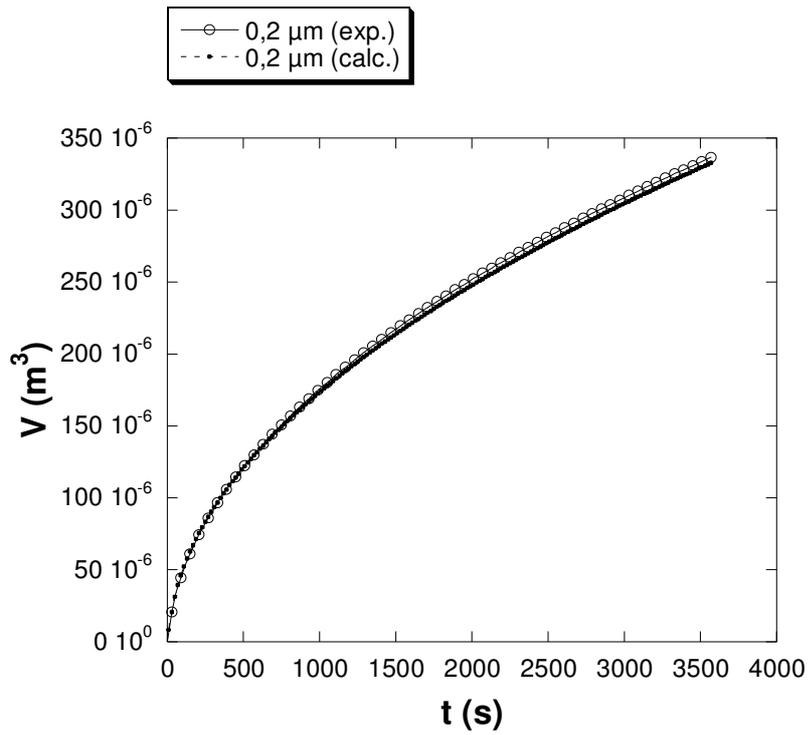


Figure IV-2 : Membrane  $0,2 \mu\text{m}$  ;  $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  et  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$

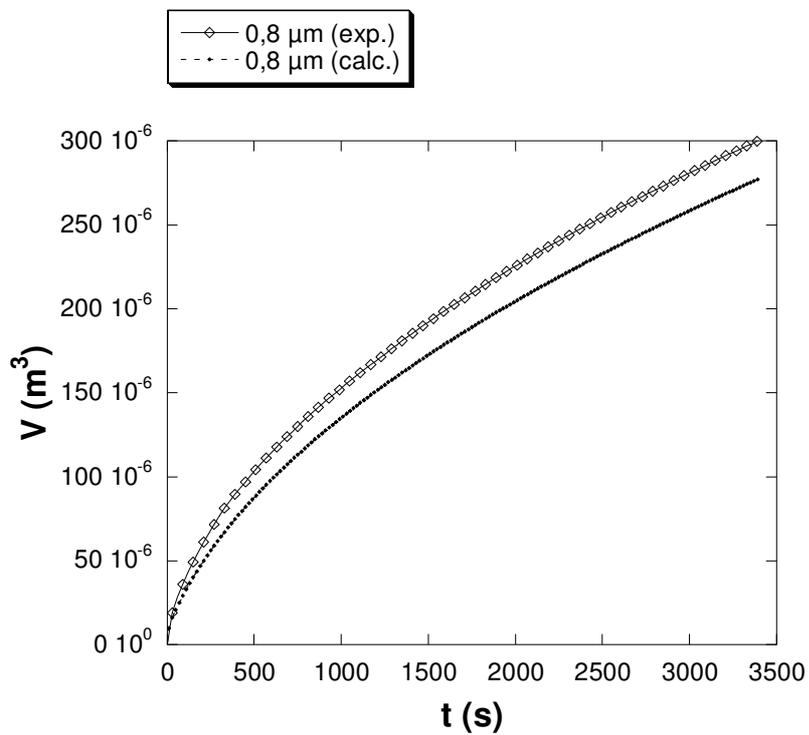


Figure IV-3 : Membrane  $0,8 \mu\text{m}$  ;  $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  et  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$

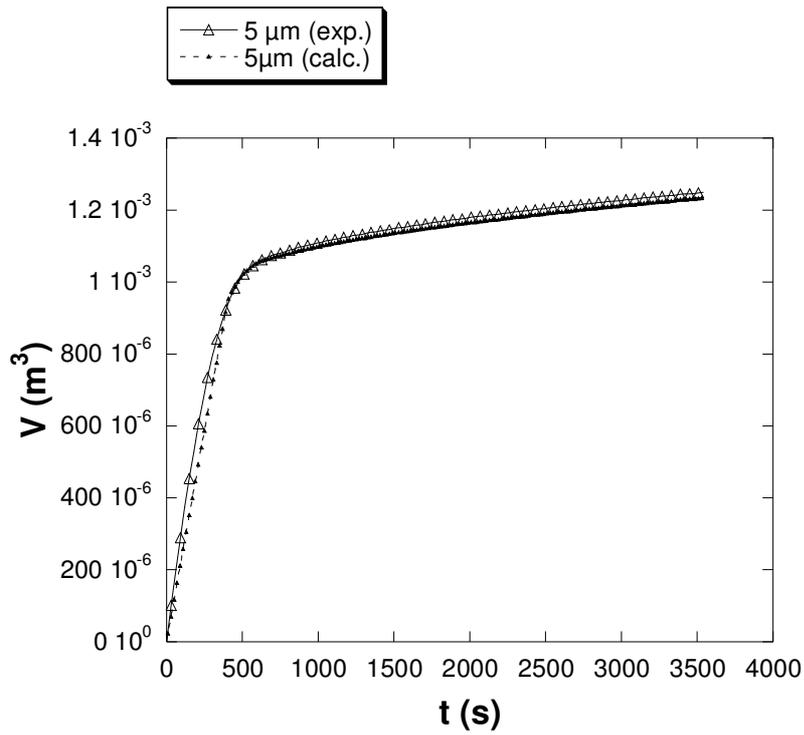


Figure IV-4 : Membrane  $5 \mu\text{m}$  ;  $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  et  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$

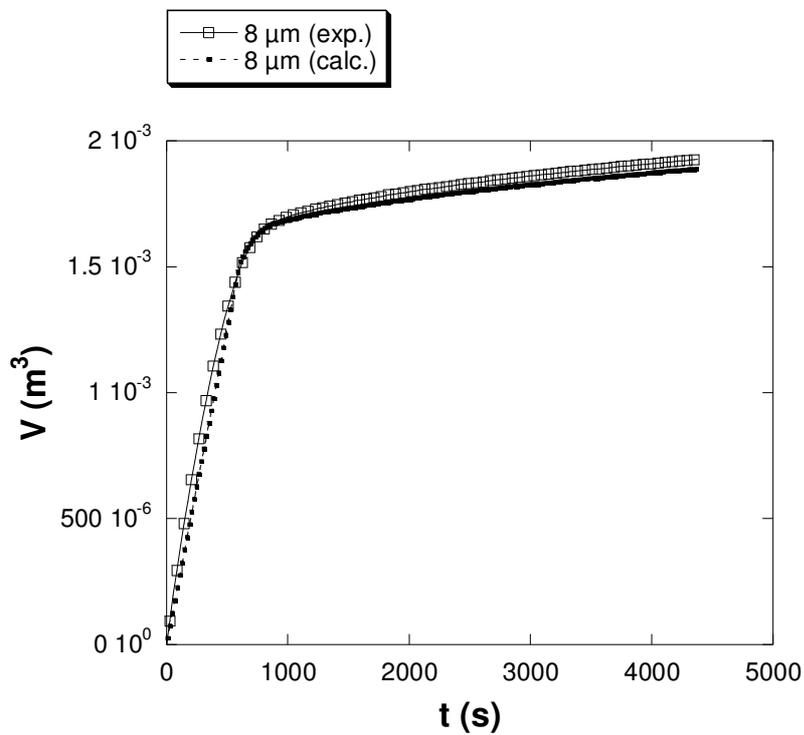


Figure IV-5 : Membrane  $8 \mu\text{m}$  ;  $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  et  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$

Le fait de négliger les transitions, et de représenter une courbe de filtration par une succession de régimes purs de mécanismes qui ont des bases physiques, n'affecte pas le résultat général du calcul. En effet, sur les quatre figures précédentes, la méthodologie permet de bien décrire la courbe expérimentale de filtration. De plus, les paramètres phénoménologiques qui étaient validés qualitativement le sont maintenant quantitativement.

## 2 Influence des paramètres opératoires sur la variation des paramètres phénoménologiques

Dans le paragraphe précédent, nous avons reconstruit les courbes de filtration à partir des paramètres de niveaux 0 ( $V, t, \mu, A, \Delta P$ ) et 1 ( $\eta_i^*$ , ( $i = P, B$  ou  $S$ ) et  $\beta_{B,f}$ ) (cf. tableau IV-2).

Tableau IV-2 : Classification des paramètres du modèle en différents niveaux

	Niveau 0	Niveau 1	Niveau 2	Niveau 3
Conditions opératoires	$\Delta P, T$			
Suspension	$C$		$d_p$	
Média filtrant	$A, R_{m,0}$		$d_{pore}$	
Perméat	$V(t); \mu$			
Dépôt de surface		$\eta_S^*$	$\eta_S, \alpha, C_S$	$R_d(t)$
Blocage de surface		$\beta_B$	$\eta_B, C_B, A_B/m_B$	
Colmatage interne		$\eta_B^*$	$\eta_P, C_P, \rho_P, \epsilon_m,$	$R_m(t)$
		$\eta_P^*$	$L_m$	

Dans cette partie, nous allons étudier les relations des paramètres phénoménologiques ( $\eta_i^*$  et  $\beta_B$ ) dits de niveau 1 avec les paramètres de niveaux 0 et 2.

Pour rappel, les relations entre les paramètres du modèle, de niveau 1, et les paramètres de niveau 2, qualifiant le système « suspension – média filtrant » sont, par hypothèse :

- pour la filtration sur gâteau 
$$\eta_S^* = \eta_S \cdot C_S \cdot \alpha \quad (IV.1)$$

- pour le blocage de surface 
$$\eta_B^* = \eta_B \cdot C_B \cdot \frac{A_B}{m_B} \quad (IV.2)$$

- pour le colmatage en profondeur 
$$\eta_P^* = \frac{\eta_P \cdot \frac{C_P}{\rho_P}}{A \cdot \delta_m \cdot \epsilon_m} \quad (IV.3)$$

### 2.1 Effet de la concentration

Il s'agit, dans ce paragraphe, d'étudier l'effet de la concentration de la suspension ( $C$ ) sur les paramètres de blocage ( $\eta_B^*$ ,  $\beta_{B,f}$ ) et de formation de dépôt ( $\eta_S^*$ ). La pression de filtration  $\Delta P$ , pour cette série d'essais, a été fixée à 0,3 bar.

### 2.1.1 Paramètre caractérisant le dépôt de surface : $\eta_s^*$

La figure IV-6 montre la variation du paramètre  $\eta_s^*$  caractérisant le dépôt avec la concentration  $C$  de la suspension, pour les quatre membranes considérées. Les quatre courbes se superposent bien et il est possible d'établir une corrélation générale, selon une loi puissance, entre le paramètre  $\eta_s^*$  et la concentration  $C$ , pour un dépôt formé à partir de particules de bentonite, dans la gamme de concentration étudiée ( $10^{-3}$  à  $10 \text{ g.L}^{-1}$ ) :

$$\eta_s^* = 7,15 \cdot 10^{14} \times C^{1,1} \quad (\text{IV.4})$$

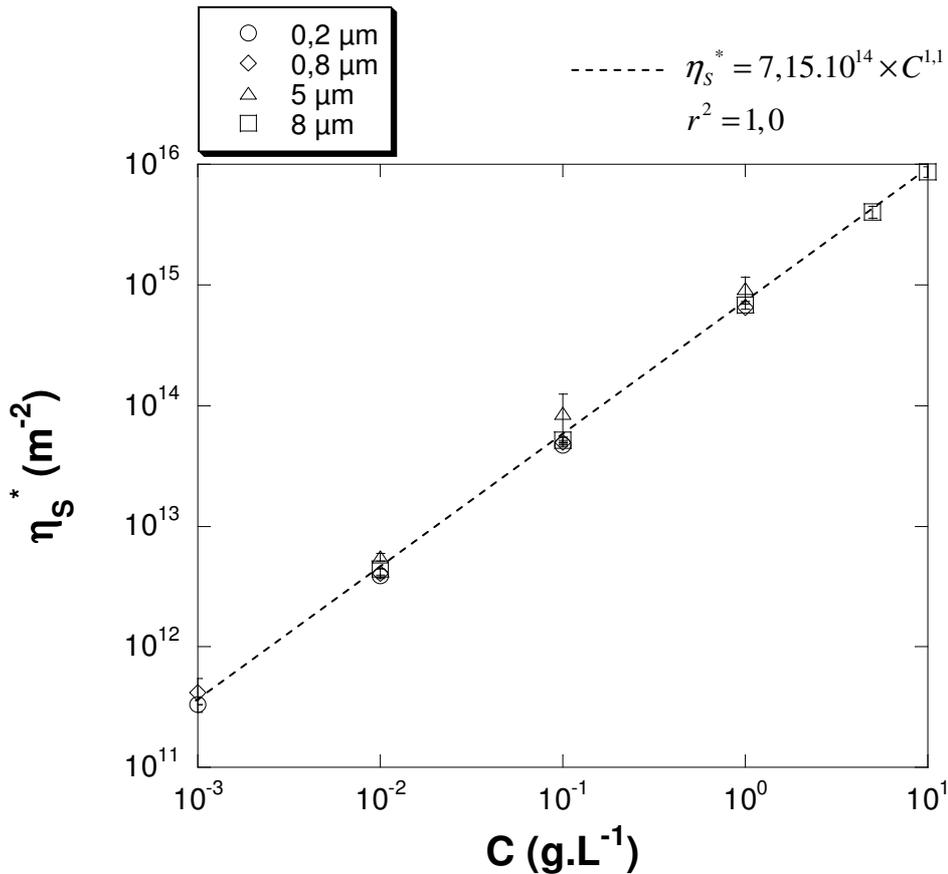


Figure IV-6 : Effet de la concentration sur le paramètre  $\eta_s^*$  caractérisant le dépôt de surface ( $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$ )

L'hypothèse de la dépendance linéaire du paramètre  $\eta_s^*$  avec  $C$ , que nous avons supposée, n'est pas exactement vérifiée, car l'exposant de la concentration  $C$  est de 1,1 au lieu de 1.

Dans la gamme de concentration étudiée ( $C = 10^{-3} - 10 \text{ g.L}^{-1}$ ), on a  $C_s \approx C$  (cf. relation (II.37) du chapitre II).

On peut alors modifier l'expression de  $\eta_s^*$  suivant :

$$\eta_s^* = \eta_s \cdot C_s^{1,1} \cdot \alpha \quad (\text{IV.5})$$

Tableau IV-3 : Récapitulatif des valeurs de  $\eta_s^*$  déterminées à partir de points expérimentaux et calculées par la corrélation (IV.4)

$C$ (g.L <sup>-1</sup> )	$\eta_s^*$ (m <sup>-2</sup> ) – expériences				$\eta_s^*$ (m <sup>-2</sup> ) - corrélation
	0,2 $\mu m$	0,8 $\mu m$	5 $\mu m$	8 $\mu m$	
10				8,71.10 <sup>15</sup>	9,00.10 <sup>15</sup>
5				4,03.10 <sup>15</sup>	4,20.10 <sup>15</sup>
1		6,50.10 <sup>14</sup>	9,31.10 <sup>14</sup>	6,81.10 <sup>14</sup>	7,15.10 <sup>14</sup>
10 <sup>-1</sup>	4,67.10 <sup>13</sup>	4,99.10 <sup>13</sup>	8,68.10 <sup>13</sup>	5,19.10 <sup>13</sup>	5,68.10 <sup>13</sup>
10 <sup>-2</sup>	3,87.10 <sup>12</sup>	4,06.10 <sup>12</sup>	5,56.10 <sup>12</sup>	4,40.10 <sup>12</sup>	4,51.10 <sup>12</sup>
10 <sup>-3</sup>	3,30.10 <sup>11</sup>	4,15.10 <sup>11</sup>			3,58.10 <sup>11</sup>

Le tableau IV-3 donne un récapitulatif des données de la figure IV-6 ( $\eta_s^*$  en fonction de  $C$  pour les quatre membranes), ainsi que la valeur de  $\eta_s^*$  obtenue par l'équation (IV.4) pour les concentrations testées, quelle que soit la membrane utilisée.

### 2.1.2 Paramètre caractérisant le blocage de surface : $\eta_B^*$

En ce qui concerne le mécanisme de blocage de pore, le paramètre  $\eta_B^*$  augmente avec la concentration  $C$  de la suspension. A l'inverse de la figure IV-6 où les droites pour chacune des quatre membranes se superposent, les courbes de la figure IV-7 sont différentes au niveau de leur forme : ceci indique que la valeur du paramètre  $\eta_B^*$  est influencée par le média.

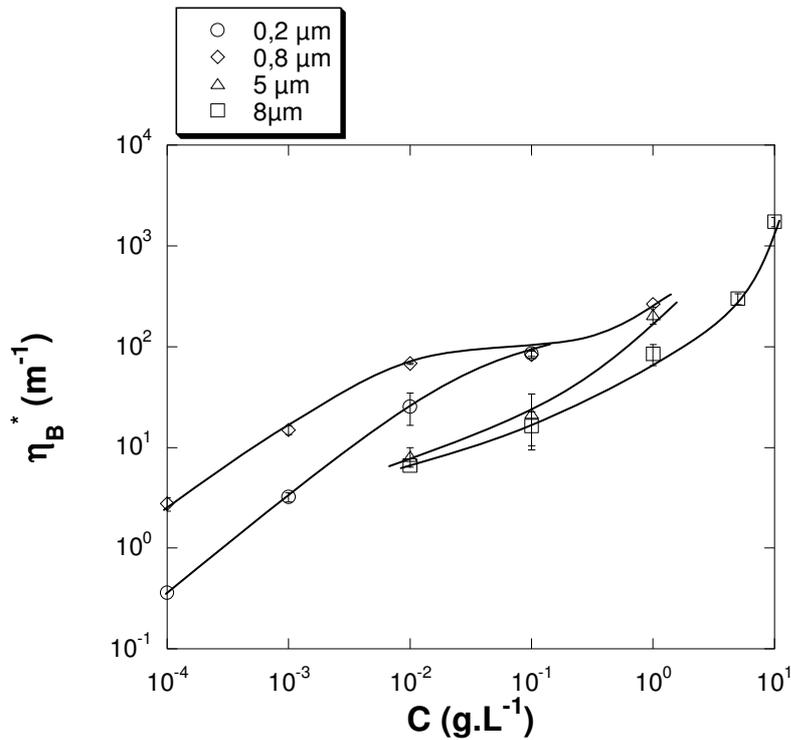


Figure IV-7 : Effet de la concentration sur le paramètre  $\eta_B^*$  caractérisant le blocage de surface ( $\Delta P = 0,3$  bar)

De la même manière que pour le paramètre  $\eta_s^*$  caractérisant le dépôt de surface, nous avons essayé d'établir une corrélation entre  $\eta_B^*$  et  $C$ , pour le blocage de surface. Nous avons aussi supposé une dépendance linéaire entre  $\eta_B^*$  et  $C$ , suivant l'expression (IV.2).

La figure IV-8 montre la droite issue de la régression non linéaire suivant une loi puissance de type  $y = a \cdot x^b$ , à partir des valeurs de  $\eta_B^*$  déterminées pour différentes concentrations, et pour différentes membranes.

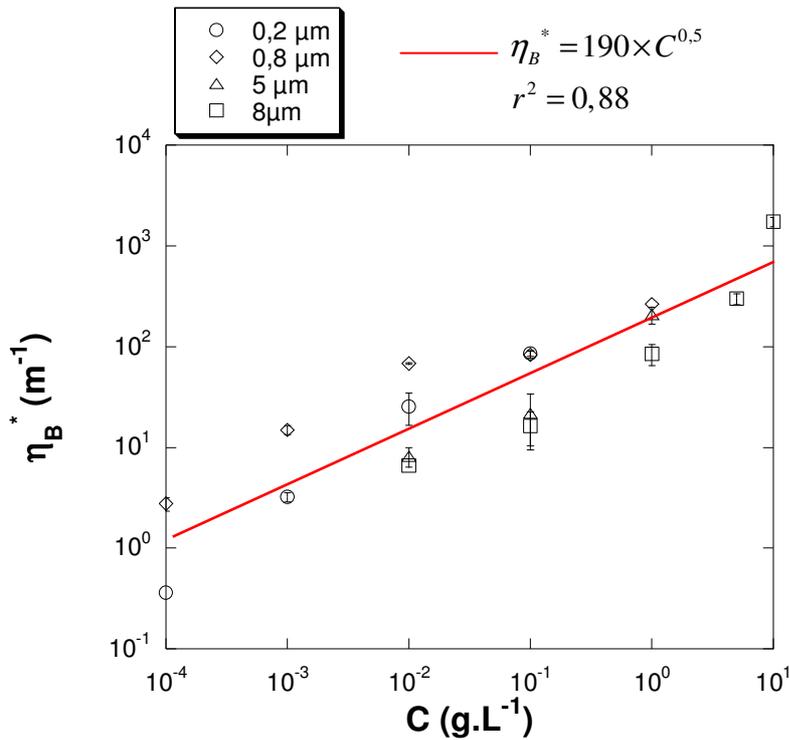


Figure IV-8 : Corrélation (loi puissance) entre  $\eta_B^*$  et la concentration  $C$

Cette corrélation, loin d'être excellente, permet d'établir une relation entre  $\eta_B^*$  et la concentration  $C$  :

$$\eta_B^* = 190 \times C^{0,5} \quad (\text{IV.6})$$

Les valeurs du paramètre  $\eta_B^*$  calculées à partir de la corrélation (IV.6) sont beaucoup moins pertinentes que pour  $\eta_S^*$ , ceci est dû au fait que l'hypothèse du paramètre phénoménologique  $\eta_B^*$  proportionnel à la concentration  $C$  n'est pas vérifiée et qu'il y a interaction entre les particules et la surface du média filtrant (quand on double le nombre de particules susceptibles de bloquer la surface de la membrane, la valeur de  $\eta_B^*$  n'est pas doublée (il y a en quelque sorte une gêne stérique entre particules à l'entrée d'un pore)). Par ailleurs, si on considère les valeurs du paramètre caractérisant le blocage pour  $C = 10^{-1} \text{ g.L}^{-1}$ , on observe deux comportements différents selon le type de média filtrants : les membranes (0,2 et 0,8  $\mu\text{m}$ ,  $d_{pore} \leq d_p$ ) pour lesquelles  $\eta_B^* \approx 85 \text{ m}^{-1}$  et les membranes (5 et 8  $\mu\text{m}$ ,  $d_{pore} > d_p$ ) pour lesquelles on a  $\eta_B^* \approx 20 \text{ m}^{-1}$ .

### 2.1.3 Fraction de surface occupée par le blocage de surface : $\beta_B$

La variation de la fraction de surface bloquée au moment du changement de régime, notée  $\beta_{B,f}$ , en fonction de la concentration  $C$  de la suspension a été représentée graphiquement pour les quatre membranes sur la figure IV-9. Lorsque la concentration augmente, on peut s'attendre à ce que le nombre de particules bloquantes augmente aussi pour un même nombre de pores à bloquer.

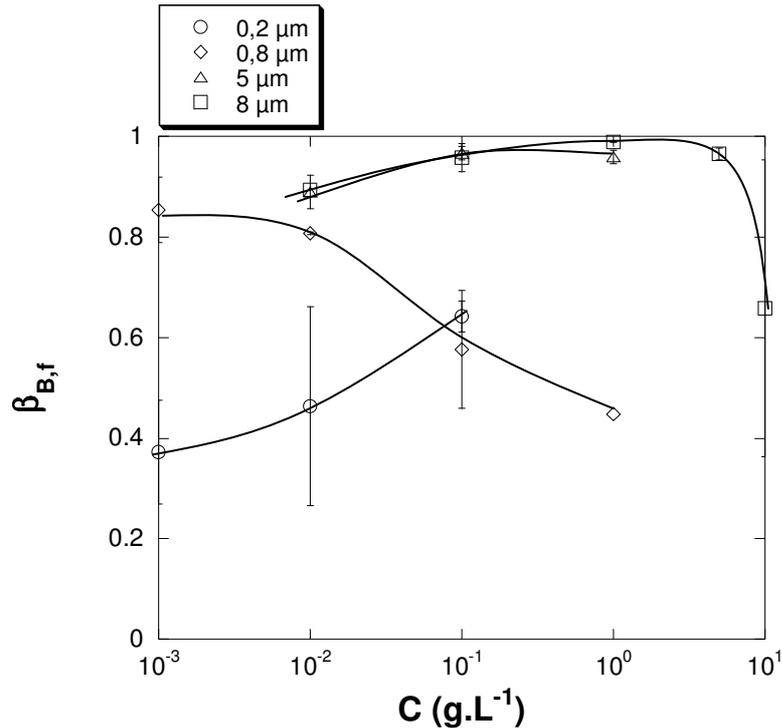


Figure IV-9 : Evolution de la fraction de surface bloquée en fin de régime de blocage de pore  $\beta_{B,f}$  avec la concentration  $C$  de la suspension ( $\Delta P = 0,3$  bar)

$d_p \approx d_{pore}$  : cas de la membrane 0,8  $\mu\text{m}$

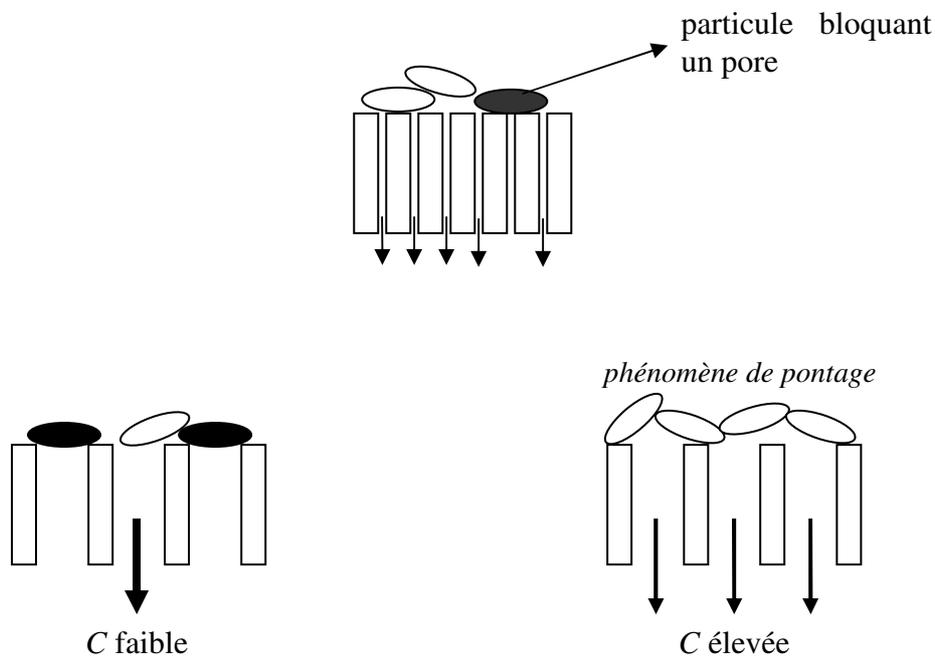
Pour des concentrations faibles ( $C < 10^{-1}$  g.L<sup>-1</sup>), on remarque que la surface bloquée finale de la membrane 0,8  $\mu\text{m}$  est supérieure à celle de la membrane 0,2  $\mu\text{m}$ . Pour ces faibles concentrations, si on considère la membrane 0,8  $\mu\text{m}$ , nous sommes dans le cas où une particule bloque un pore car  $d_p \approx d_{pore}$ . En revanche, pour la membrane 0,2  $\mu\text{m}$ , la surface projetée d'une particule recouvre plusieurs pores mais elle ne va pas nécessairement tous les bloquer.

La fraction finale de surface bloquée,  $\beta_{B,f}$ , diminue avec la concentration  $C$  de la suspension (cf. figure IV-9). On peut considérer qu'un nombre croissant de particules arrivant en même temps à la surface du média filtrant a pour conséquence d'augmenter le phénomène de

pontage au-dessus d'un pore, au lieu de le boucher, et donc de diminuer la surface de membrane bloquée finale (effet protecteur).

$d_p > d_{pore}$  : cas de la membrane 0,2  $\mu\text{m}$

La fraction finale de surface bloquée augmente avec la concentration  $C$  de la suspension. Lorsque le diamètre de particule est bien plus grand que le diamètre de pore de la membrane, un dépôt est rapidement formé et la surface de la membrane est moins affectée par le blocage de surface que les autres membranes pour lesquelles  $d_p \leq d_{pore}$ . Comme une concentration élevée a pour effet d'augmenter le nombre de particules bloquantes pour un même volume de suspension, cela a aussi pour conséquence d'augmenter  $\beta_{B,f}$ , la valeur finale de la surface concernée par le blocage de pore.



$d_p < d_{pore}$  : cas des membranes 5 et 8  $\mu\text{m}$

Pour des concentrations comprises entre  $10^{-2}$  et  $1 \text{ g.L}^{-1}$ , le taux de recouvrement de surface final,  $\beta_{B,f}$ , a une allure croissante lorsque la concentration  $C$  de la suspension augmente. Pour ces deux membranes, la valeur de la surface finale bloquée est élevée – plus de 80% de la surface totale de la membrane est bloquée. Les figures III-5 et III-6 (cf. chapitre III) montrent la présence de plus petits pores, qui ont des dimensions d'un ordre de grandeur proche de la taille moyenne d'une particule de bentonite, et qui se bouchent plus facilement qu'un pore de diamètre 5 ou 8  $\mu\text{m}$ .

Pour la membrane 8  $\mu\text{m}$ , pour des concentrations  $C > 1 \text{ g.L}^{-1}$ ,  $\beta_{B,f}$  diminue avec la concentration, probablement pour les mêmes raisons que celles évoquées pour la membrane 0,8  $\mu\text{m}$  (gêne stérique et phénomène de pontage au-dessus d'un pore (effet d'agglomération)).

## 2.2 Effet de la pression

L'effet de la pression transmembranaire sur le colmatage a été étudié sur une gamme allant de 0,03 à 1,2 bar. Dans cette étude, deux membranes seront considérées :

- membrane 0,2  $\mu\text{m}$  et  $C = 0,1 \text{ g.L}^{-1}$  ;
- membrane 8  $\mu\text{m}$  et  $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ .

### 2.2.1 Paramètre caractérisant le dépôt de surface : $\eta_s^*$

Il s'agit ici d'étudier l'évolution du paramètre  $\eta_s^*$  avec la pression transmembranaire  $\Delta P$ .

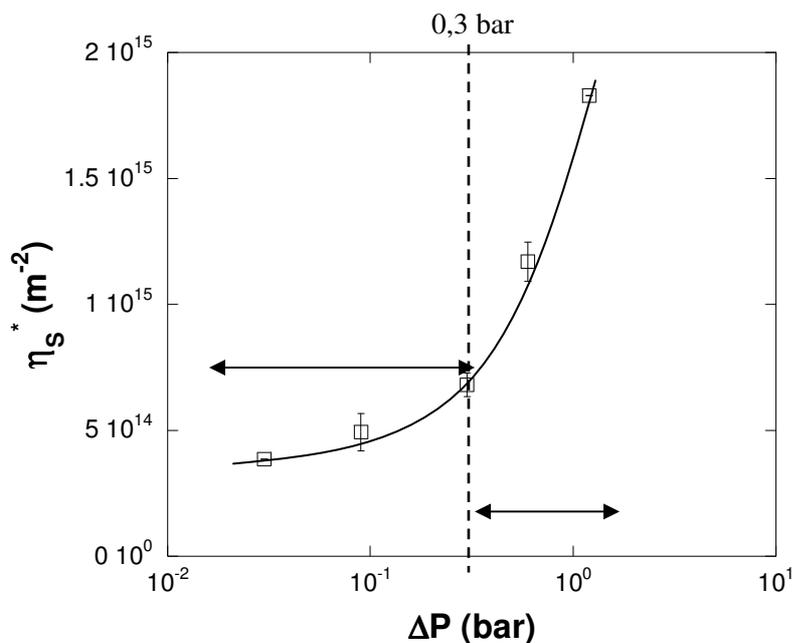


Figure IV-10 : Effet de la pression sur le paramètre  $\eta_s^*$  caractérisant le dépôt de surface pour la membrane 8  $\mu\text{m}$  et  $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$

Sur la figure IV-10, on observe une augmentation de  $\eta_s^*$  avec la pression  $\Delta P$ .

D'après les équations développées dans le modèle phénoménologique, nous faisons l'hypothèse que  $\eta_s^*$  est directement proportionnel à la résistance spécifique du dépôt, notée  $\alpha$  :

$$\eta_s^* = \eta_s \cdot C_s \cdot \alpha \quad (\text{IV.1})$$

Pour un gâteau compressible, il est connu que la résistance spécifique augmente avec la pression transmembranaire, que l'on représente souvent selon une loi de type puissance qui a été déterminée de manière empirique (cf. équation (I.13) ; chapitre I) :

$$\frac{\alpha}{\alpha_0} = \left( \frac{\Delta P}{\Delta P_0} \right)^s \quad (I.13)$$

Comme  $\eta_s^*$  augmente avec la pression  $\Delta P$ , on déduit alors que le dépôt de bentonite est compressible sur la gamme de pression étudiée.

Sur la figure IV-10, on peut définir deux zones : pour des pressions supérieures à 0,3 bar, le dépôt présente des propriétés de compressibilité très remarquables, tandis que pour des pressions inférieures à 0,3 bar, le dépôt de bentonite est moins sujet aux forces de compression. Il semblerait qu'il y ait une pression seuil à partir de laquelle la compressibilité du dépôt devient significative.

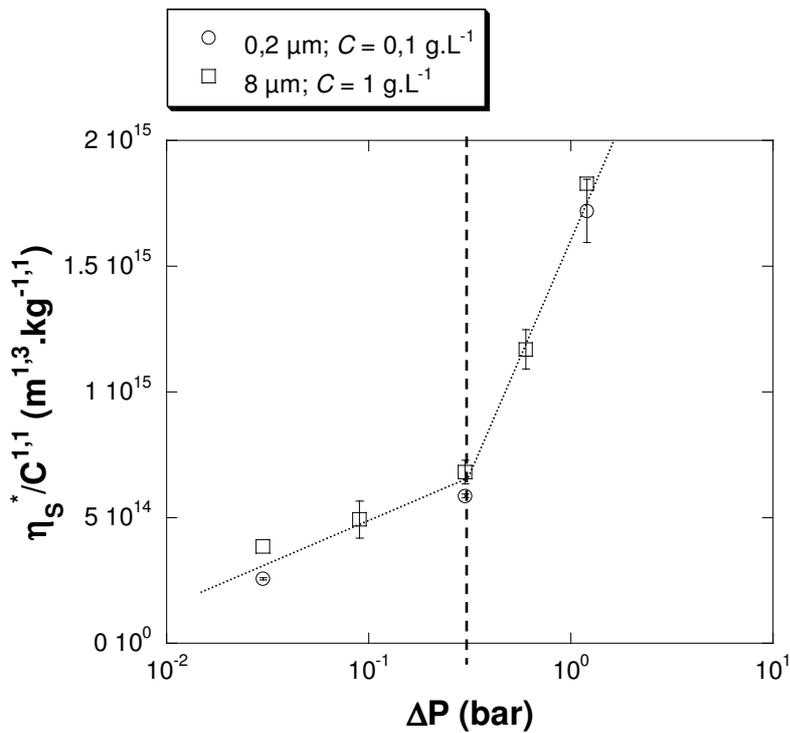


Figure IV-11 : Effet de la pression transmembranaire  $\Delta P$  sur le paramètre  $\eta_s^*$  caractérisant le dépôt normalisé par la concentration ( $\circ$  : 0,2  $\mu\text{m}$  et  $C = 0,1 \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\square$  : 8  $\mu\text{m}$  et  $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ )

Nous avons réalisé des expériences avec deux membranes de microfiltration (0,2 et 8  $\mu\text{m}$ ) mais à des concentrations différentes ( $C = 0,1 \text{ g.L}^{-1}$  pour 0,2  $\mu\text{m}$  ;  $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$  pour 8  $\mu\text{m}$ ).

Etant donné la relation établie entre le paramètre  $\eta_S^*$  et la concentration  $C$  (cf. Eq. (IV.4), § 2.1.1), le paramètre  $\eta_S^*$  a été divisé par la concentration  $C$  à la puissance 1,1, afin de comparer les deux membranes. La figure IV-11 montre l'influence de la pression  $\Delta P$  sur la formation du dépôt. Les deux courbes suivent des tendances très proches (deux pentes avec un point de cassure à 0,3 bar). Ces résultats confirment qu'on détermine bien un paramètre intrinsèque ( $\eta_S^*$ ) à la construction du dépôt de bentonite, indépendamment du média filtrant utilisé et de la concentration de la suspension.

### 2.2.2 Paramètre caractérisant le blocage de surface : $\eta_B^*$

#### a) membrane 8 $\mu\text{m}$ ( $\square$ )

Si on considère les expériences menées sur la membrane 8  $\mu\text{m}$  avec une suspension de bentonite de concentration  $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ , le paramètre  $\eta_B^*$  caractérisant le blocage de surface présente une valeur élevée ( $1500 \text{ m}^{-1}$ ) à faible pression imposée et des valeurs beaucoup plus faibles (d'un facteur 10) à des pressions 40 fois plus grandes.

La figure IV-12 montre que les particules de bentonite ont une forte propension à « boucher » les pores du média à faible vitesse de filtration, c'est-à-dire à faible pression transmembranaire imposée.

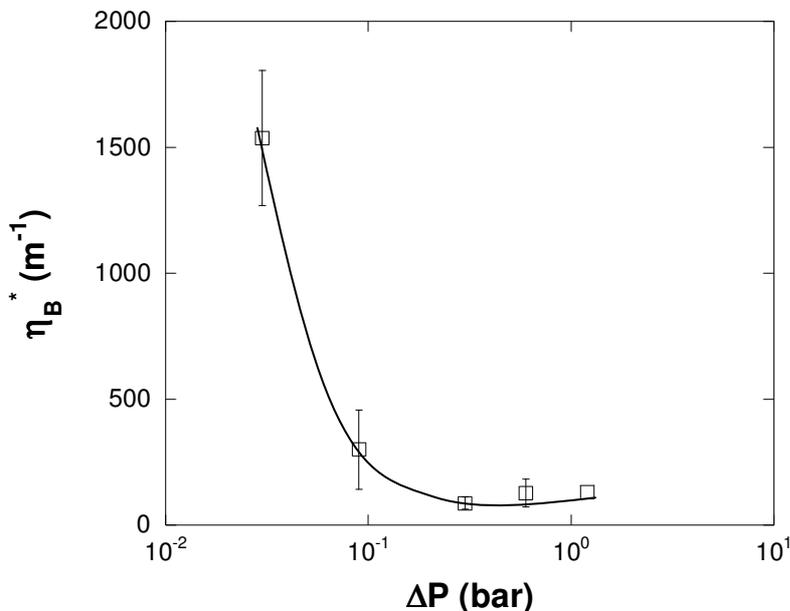


Figure IV-12 : Effet de la pression transmembranaire  $\Delta P$  sur le paramètre  $\eta_B^*$  caractérisant le blocage de surface (membrane 8  $\mu\text{m}$  et  $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ )

Le paramètre  $\eta_B^*$  diminue de 1500 à 300  $\text{m}^{-1}$  lorsque la pression augmente de 0,03 à 0,09 bar, puis se stabilise à des pressions supérieures à 0,09 bar. Pour expliquer cette tendance, il semble important de rappeler la définition de ( $\eta_B^*$ ) :

$$\eta_B^* = \eta_B \cdot C_B \cdot \frac{A_B}{m_B}$$

Selon nos hypothèses, pour une même concentration et un même couple ( $d_p$  ;  $d_{pore}$ ), les paramètres  $C_B$  et  $\frac{A_B}{m_B}$  devraient rester constants. L'évolution de  $\eta_B^*$  en fonction de la pression

$\Delta P$  peut être expliquée par une variation du paramètre  $\eta_B$ . Or  $\eta_B$  est la probabilité qu'une particule (classée comme bloquante) bloque effectivement une fraction de la surface filtrante du média. Ainsi, plus la vitesse de filtration augmente (via  $\Delta P$ ), et plus la probabilité ( $\eta_B$ ) qu'une particule soit arrêtée à la surface du média est faible.

b) membrane 0,2  $\mu\text{m}$  (○)

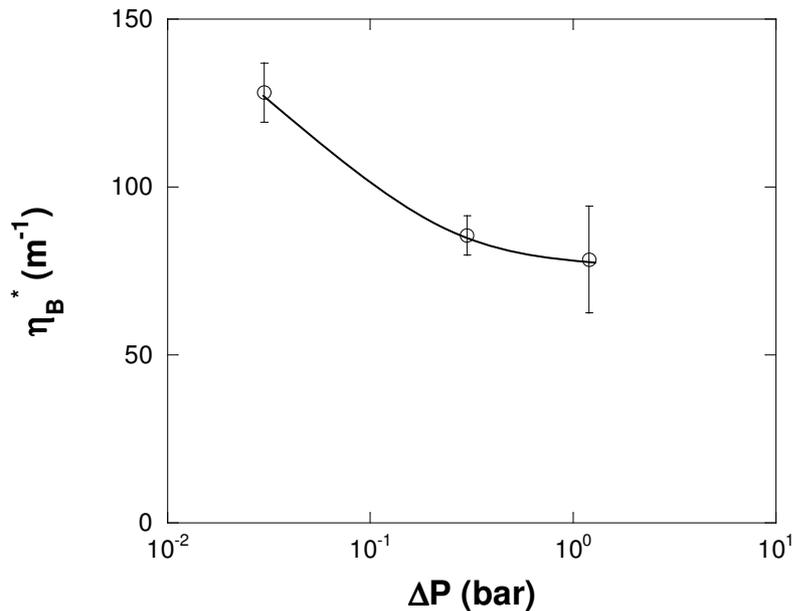


Figure IV-13 : Effet de la pression transmembranaire  $\Delta P$  sur le paramètre  $\eta_B^*$  caractérisant le blocage de surface (membrane 0,2  $\mu\text{m}$  et  $C = 0,1 \text{ g.L}^{-1}$ )

Pour la membrane 0,2  $\mu\text{m}$  (cf. figure IV-13), le paramètre  $\eta_B^*$  présente la même tendance vis-à-vis de la pression que pour la membrane 8  $\mu\text{m}$ . Mais le diamètre moyen des particules de

bentonite étant 4 fois plus grand que le diamètre de pore de la membrane ( $d_{pore} = 0,2 \mu\text{m}$ ), la pression et donc la vitesse de filtration a moins d'influence sur ce système que pour le système « bentonite – membrane  $8 \mu\text{m}$  », du point de vue du blocage.

c) contrainte de cisaillement dans un pore

Afin d'essayer d'expliquer les tendances observées pour les membranes  $0,2$  et  $8 \mu\text{m}$  (cf. Figs IV-12 et IV-13), nous considérons la contrainte de cisaillement à l'entrée d'un pore qui peut avoir pour effet d'« arracher » des particules susceptibles de s'accrocher à des sites de capture de la membrane.

Nous allons supposer un pore à géométrie cylindrique. La contrainte de cisaillement,  $\tau_w$ , à l'entrée de ce pore est fonction du diamètre du pore  $d_{pore}$ , de la vitesse d'écoulement du fluide  $\bar{v}$  à l'intérieur de ce pore, de la viscosité  $\mu$  et de la masse volumique  $\rho$  du fluide qui s'écoule.

Calcul de la vitesse  $\bar{v}$  d'écoulement dans un pore

Soit  $Q_0$  le débit volumique obtenu à travers une membrane propre pour une pression de filtration appliquée donnée. Soit  $A$  la surface de la membrane ( $A = 13,4 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2$ ). Nous prendrons la porosité de surface  $\varepsilon_s$  d'une membrane égale à 80% (cf. tableau III-1 du chapitre III).

Connaissant le diamètre moyen d'un pore, on peut calculer l'aire de section droite de ce pore égale à  $\frac{\pi \cdot d_{pore}^2}{4}$ . A partir de là, il est possible de calculer le nombre  $N_{pore}$  théorique de pores

dans une membrane :

$$N_{pore} = \frac{A \times \varepsilon_s}{\pi \cdot \frac{d_{pore}^2}{4}} \quad (\text{IV.7})$$

La vitesse d'écoulement  $\bar{v}$  dans un pore de la membrane est obtenue en divisant le débit volumique  $Q_0$  par le nombre de pore  $N_{pore}$  et par l'aire de section droite d'un pore, ce qui revient à diviser par la quantité  $A \times \varepsilon_s$  :

$$\bar{v} = \frac{Q_0}{A \times \varepsilon_s} \quad (\text{IV.8})$$

Calcul du nombre de Reynolds  $Re$

Le nombre de Reynolds  $Re$  dans un pore s'exprime suivant :

$$Re = \frac{\rho \cdot \bar{v} \cdot d_{pore}}{\mu} \quad (IV.9)$$

Contrainte de cisaillement  $\tau_w$ , en régime laminaire

Le facteur de friction  $f$  a pour expression :

$$f = \frac{4 \cdot \tau_w}{\frac{1}{2} \rho \cdot \bar{v}^2} \quad (IV.10)$$

Or en régime laminaire,

$$f = \frac{64}{Re} \quad (IV.11)$$

En combinant les équations (IV.10) et (IV.11), on obtient la relation suivante :

$$\frac{8}{Re} = \frac{\tau_w}{\rho \cdot \bar{v}^2} \quad (IV.12)$$

Enfin, en combinant les équations (IV.9) et (IV.12), on obtient une expression de  $\tau_w$  :

$$\tau_w = \frac{8\mu\bar{v}}{d_{pore}} \quad (IV.13)$$

Tableau IV-4 : Contrainte de cisaillement  $\tau_w$  pour les deux membranes (0,2 et 8  $\mu\text{m}$ ) en début de régime de blocage

$d_{pore} (\mu\text{m})$	$\Delta P (\text{Pa})$	$Q_{B,0} (\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1})$	$\bar{v} (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	$Re$	$\tau_w (\text{Pa})$
0,2	120000	$5,45 \cdot 10^{-7}$	$5,08 \cdot 10^{-4}$	$1,02 \cdot 10^{-4}$	20
	30000	$3,67 \cdot 10^{-7}$	$3,42 \cdot 10^{-4}$	$6,84 \cdot 10^{-5}$	14
	3000	$4,51 \cdot 10^{-8}$	$4,20 \cdot 10^{-5}$	$8,40 \cdot 10^{-6}$	1,7
8	120000	$3,01 \cdot 10^{-6}$	$2,81 \cdot 10^{-3}$	$2,25 \cdot 10^{-2}$	2,8
	60000	$2,48 \cdot 10^{-6}$	$2,31 \cdot 10^{-3}$	$1,85 \cdot 10^{-2}$	2,3
	30000	$1,83 \cdot 10^{-6}$	$1,70 \cdot 10^{-3}$	$1,36 \cdot 10^{-2}$	1,7
	9000	$8,02 \cdot 10^{-7}$	$7,48 \cdot 10^{-4}$	$5,98 \cdot 10^{-3}$	0,75
	3000	$9,47 \cdot 10^{-8}$	$8,83 \cdot 10^{-5}$	$7,07 \cdot 10^{-4}$	0,09

D'après le tableau IV-4, on remarque que plus la pression de filtration est élevée et plus la contrainte de cisaillement en début de régime de blocage est grande, pour un type de membrane.

Nous allons, à présent, représenter la variation de  $\eta_B^*$  en fonction de la contrainte de cisaillement,  $\tau_w$ , estimée pour les membranes 0,2  $\mu\text{m}$  et 8  $\mu\text{m}$  (cf. figure IV-14).

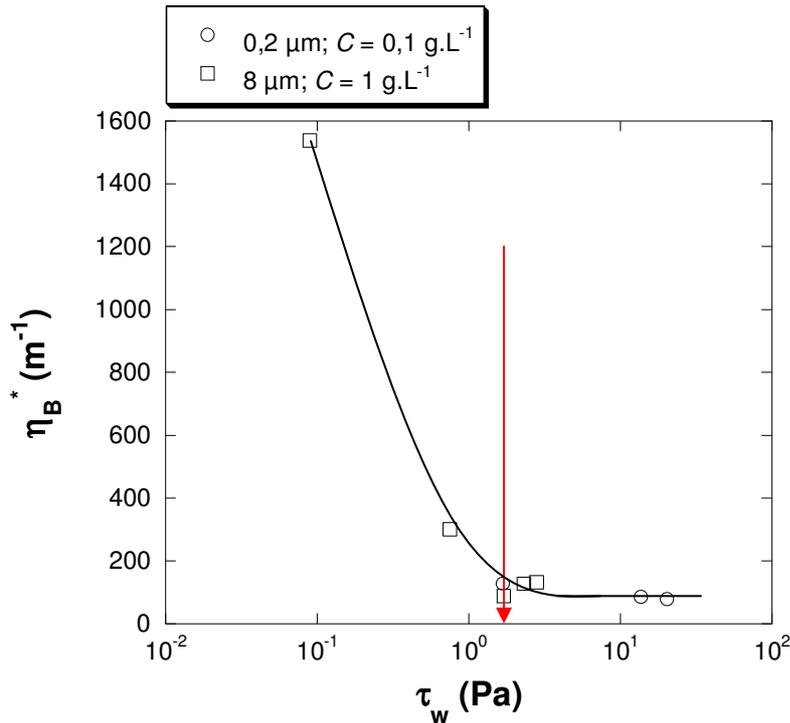


Figure IV-14 : Evolution du paramètre  $\eta_B^*$  en fonction de la contrainte de cisaillement  $\tau_w$  ( $\circ$ ) 0,2  $\mu\text{m}$  ; ( $\square$ ) 8  $\mu\text{m}$ .

D'après la figure IV-14, on remarque que lorsque la contrainte de cisaillement pariétale est faible, le paramètre de blocage  $\eta_B^*$  a une valeur élevée, et inversement. Ceci est en accord avec le fait que plus le cisaillement à l'entrée d'un pore est important et plus le risque qu'une particule se décroche de la surface est grand. De plus, la figure IV-14 montre qu'à partir d'une certaine valeur de contrainte seuil de cisaillement ( $\tau_w = 2 \text{ Pa}$ ), la valeur de  $\eta_B^*$  diminue encore lorsque le cisaillement augmente mais en des proportions moindres. Les points pour 0,2  $\mu\text{m}$  et 8  $\mu\text{m}$  sont dans la même gamme, ce qui suggère qu'ils caractérisent le même phénomène. La contrainte de cisaillement pariétale nous donne alors des pistes sur la physique du colmatage d'un média filtrant.

### 2.2.3 Fraction de surface occupée par le blocage de surface : $\beta_B$

Considérons, à présent, la surface de membrane bloquée en fin de régime de blocage de surface, notée  $\beta_{B,f}$ . L'évolution de ce paramètre avec la pression transmembranaire est représentée sur la figure IV-15 pour les deux membranes 0,2 et 8  $\mu\text{m}$ .

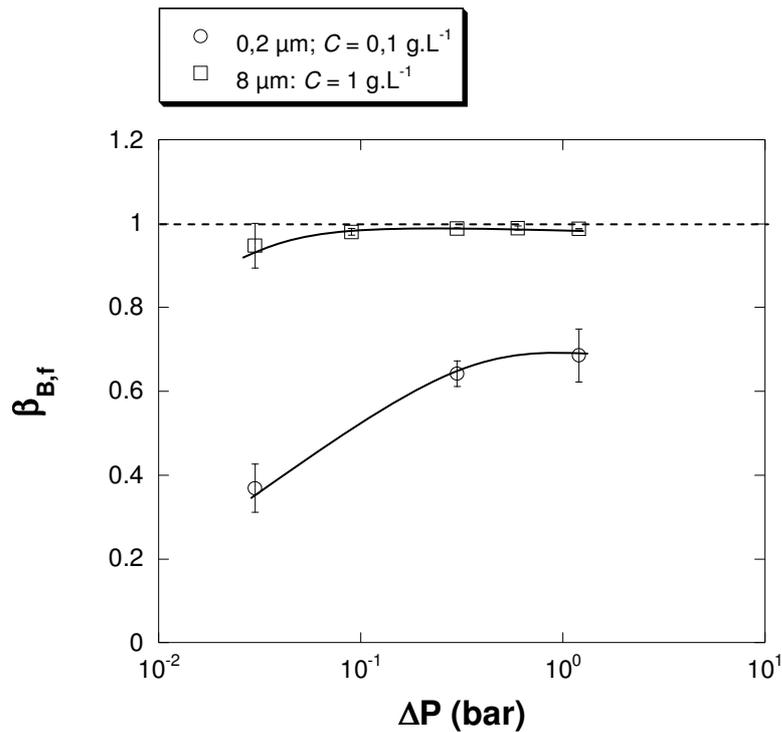


Figure IV-15 : Evolution de la fraction finale de surface bloquée ( $\beta_{B,f}$ ) avec la pression de filtration  $\Delta P$  ( $\circ$  :  $0,2 \mu\text{m}$  et  $C = 0,1 \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\square$  :  $8 \mu\text{m}$  et  $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ )

La tendance générale pour ces deux membranes est une augmentation du taux de recouvrement de surface final  $\beta_{B,f}$  avec la pression transmembranaire.

Pour la membrane  $8 \mu\text{m}$ , le paramètre  $\beta_{B,f}$  évolue peu lorsque la pression transmembranaire augmente :  $\beta_{B,f}$  varie de 95% à 99% lorsque la pression passe de 0,03 à 1,2 bar. Cela indique que la surface filtrante est fortement réduite (il ne reste plus que 1% de surface de membrane ouverte à l'écoulement), lorsque le gâteau commence à se construire. On pouvait déjà pressentir que la membrane  $8 \mu\text{m}$  était plutôt à proscrire pour la filtration de cette suspension, car le diamètre moyen des particules étant environ dix fois plus petit que la taille moyenne d'un pore, une quantité non négligeable de particules se retrouvera dans le perméat, tout du moins en début de filtration. Etant donné que nous avons poussé la filtration jusqu'à atteindre un régime de filtration sur gâteau, la membrane a été sûrement colmatée en profondeur par passage et capture de particules dans la masse poreuse, avant d'être bloquée en surface.

Les deux membranes étudiées dans ce paragraphe ont été choisies pour avoir les deux situations où  $d_p > d_{pore}$ , (membrane  $0,2 \mu\text{m}$ ) et  $d_p < d_{pore}$  (membrane  $8 \mu\text{m}$ ).

Nous allons tenter d'expliquer pourquoi le paramètre de surface  $\beta_{B,f}$ , pour la membrane  $8 \mu\text{m}$ , atteint un maximum asymptotique proche de 99%. Sur la photographie MEB (cf. Fig. III-6 du

chapitre III) de la membrane 8  $\mu\text{m}$ , on observe des pores de petite taille (de l'ordre du micron) et des pores dont la taille est approximativement 10  $\mu\text{m}$ . Les pores de petite taille nécessitent peu de particules bloquantes pour être bouchés. En revanche, il semble logique que, pour les pores de plus grande taille, il soit nécessaire de capturer des particules d'abord en profondeur avant de bloquer l'entrée de ces pores et donc la surface de la membrane. De plus, le régime de construction d'un gâteau de filtration ne pourra avoir lieu tant que la quasi-totalité de la surface du média n'est pas bouchée, c'est-à-dire lorsque  $\beta_{Bf}$  tend vers 1.

## 2.2.4 Estimation de la quantité de matière capturée avant et pendant le régime de blocage

Afin d'évaluer la masse de particules capturée dans le média filtrant pendant la phase que nous identifierons comme un régime de blocage, il faut déterminer le volume de perméat passé pour les quatre membranes.

### 2.2.4.1 Quantité de matière capturée $M_s$ avant le régime de blocage ( $n > 2$ )

Pour les membranes 5 et 8  $\mu\text{m}$ , on a une phase précédant le régime de blocage ( $n > 2$ ), au cours de laquelle s'est écoulé un certain volume de perméat. Pendant cette phase, le média commence à se colmater mais notre système d'acquisition de données ne permet pas de suivre et de caractériser cette période où  $n > 2$ .

Dans le cas des membranes 0,2 et 0,8  $\mu\text{m}$ , cette période ( $n > 2$ ) n'a pas été observée pour les conditions opératoires testées. En revanche, pour les membranes 5 et 8  $\mu\text{m}$ , sur toute la période  $n > 2$ , on peut déterminer le volume de perméat passé, qui est égal à  $V_{B,0}$ , puisque  $V_{B,0}$  correspond au volume filtré lorsque débute le régime de blocage ( $n = 2$ ).

*Calcul de  $M_s$  et d'un nombre de couches de particules équivalent*

Pour évaluer  $M_s$ , on suppose une rétention totale des particules à l'intérieur du média filtrant.

$$M_s = C \times V_{B,0} \quad (\text{IV.14})$$

L'équation (IV.14) revient à supposer que la probabilité de capture  $\eta_B$  est égale à 1.

A partir de  $M_s$ , on peut estimer une épaisseur de dépôt équivalente  $Z$  :

$$Z = \frac{M_s}{A \cdot (1 - \varepsilon_d) \cdot \rho_s} \quad (\text{IV.15})$$

La surface filtrante  $A$  est 13,4  $\text{cm}^2$  et la masse volumique<sup>2</sup> des particules de bentonite est  $\rho_s = 2300 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ .

<sup>2</sup> Pour mesurer la masse volumique des particules de bentonite, ces dernières ont été dispersées dans de l'heptane.

Cette épaisseur  $Z$  peut être convertie en un nombre de couches de particules déposées, en divisant  $Z$  par le diamètre moyen de particules ( $d_p = 0,6 \mu\text{m}$ ). Les valeurs du tableau IV-5 sont calculées en supposant une porosité  $\varepsilon_d$  égale à 0,4.

Tableau IV-5 : Masse de particules capturées avant le régime de blocage ( $n > 2$ ) pour la membrane  $8 \mu\text{m}$  ( $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ )

$\Delta P$ (bar)	$V_{B,0}$ ( $\text{m}^3$ )	$M_s$ (kg)	$Z$ ( $\mu\text{m}$ )	Nombre couches particules
1,2	$8,44.10^{-5}$	$8,44.10^{-5}$	46	76
0,6	$3,32.10^{-5}$	$3,32.10^{-5}$	18	30
0,3	$4,60.10^{-6}$	$4,60.10^{-6}$	2,5	4
0,09	$4,67.10^{-6}$	$4,67.10^{-6}$	2,5	4
0,03	$9,95.10^{-7}$	$9,95.10^{-7}$	0,54	1

D'après le tableau IV-5, on remarque que plus la pression de filtration est élevée, et plus la quantité de matière nécessaire pour amorcer une phase de blocage ( $n = 2$ ) de la membrane  $8 \mu\text{m}$  est importante. En effet, pour une pression  $\Delta P = 1,2 \text{ bar}$ , l'épaisseur équivalente de dépôt formé représente 34% de l'épaisseur du média filtrant (qui est de  $135 \mu\text{m}$ ), ce qui représente un colmatage du média non négligeable. Pour des pressions égales ou inférieures à 0,3 bar, le colmatage du média existe mais en proportions moindres, puisque l'épaisseur  $Z$  calculée représente moins de 2% de l'épaisseur de la membrane. Pour les pressions  $\Delta P = 1,2$  et 0,6 bar, le nombre de couches de particules nécessaire, calculé à partir de  $Z$  et de  $d_p$ , est étonnamment élevé. L'équation (IV.14) suppose que pendant la phase  $n > 2$ , toutes les particules amenées à la membrane par flux convectif sont retenues dans la masse poreuse du média (c'est-à-dire,  $\eta_B = 1$ ). La masse de particules réellement capturées est sûrement plus faible que la valeur théoriquement calculée ( $M_s$  – tableau IV-5).

Sur la figure IV-14, on voit que le paramètre de blocage  $\eta_B^*$  est très faible pour des flux élevés : il y a donc de bonnes chances pour que les deux premières lignes (correspondant aux pressions 1,2 et 0,6 bar) du tableau IV-5 soient fausses.

Tableau IV-6 : Masse déposée avant le régime de blocage ( $n > 2$ ) pour la membrane 0,2  $\mu\text{m}$   
( $C = 0,1 \text{ g.L}^{-1}$ )

$\Delta P$ (bar)	$V_{B,0}$ ( $\text{m}^3$ )	$M_s$ (kg)	$Z$ ( $\mu\text{m}$ )	Nombre couches particules
1,2	0	0	0	0
0,3	0	0	0	0
0,03	$1,47.10^{-6}$	$1,47.10^{-7}$	0,08	0

Le tableau IV-6 montre que pour la membrane 0,2  $\mu\text{m}$ , cette phase précédant le régime de blocage est, soit inexistante, soit négligeable car même pour la pression de 0,03 bar, l'épaisseur équivalente  $Z$  ne représente que 0,1% de l'épaisseur totale (égale à 115  $\mu\text{m}$ ) de la membrane 0,2  $\mu\text{m}$ .

#### 2.2.4.2 Quantité de matière déposée $M_s$ pendant le régime de blocage ( $n = 2$ )

De la même manière que précédemment, nous avons calculé la masse déposée et le nombre de couches de particules correspondant à la période de blocage ( $n = 2$ ). On rappelle, ici, que le volume filtré correspondant est  $V_{B,f} - V_{B,0}$ .

Tableau IV-7 : Masse déposée pendant le régime de blocage ( $n = 2$ ) pour la membrane 8  $\mu\text{m}$   
( $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ )

$\Delta P$ (bar)	$V_{B,f} - V_{B,0}$ ( $\text{m}^3$ )	$M_s$ (kg)	$Z$ ( $\mu\text{m}$ )	Nombre couches particules
1,2	$9,90.10^{-6}$	$9,90.10^{-6}$	5,4	9
0,6	$1,12.10^{-5}$	$1,12.10^{-5}$	6,1	10
0,3	$1,61.10^{-5}$	$1,61.10^{-5}$	8,7	15
0,09	$6,05.10^{-6}$	$6,05.10^{-6}$	3,3	5
0,03	$7,35.10^{-7}$	$7,35.10^{-7}$	0,40	1

Pour la membrane 8  $\mu\text{m}$ , pour des pressions  $\Delta P \geq 0,3$  bar, une dizaine de couches de particules se sont déposées pendant le régime de blocage. Dans le paragraphe 2.2.2 (Fig. IV-14), nous avons mis en évidence une contrainte de cisaillement dite seuil,  $\tau_w = 2$  Pa. Au-delà de cette contrainte seuil, le paramètre  $\eta_B^*$  varie peu : cela expliquerait que le nombre de couches estimé pendant la phase de blocage soit sensiblement le même pour la gamme de pressions 0,3 – 1,2 bar. Le fait que la valeur du paramètre  $\eta_B^*$  soit faible pour cette gamme de pression (cf. figure IV-14) indique que la probabilité de capture  $\eta_B$  soit bien inférieure à 1, et que la masse de particules capturées estimée par l'équation (IV.14) soit fautive (dans le sens

de la surestimation) pour les pressions comprises entre 0,3 et 1,2 bar. Pour des pressions de filtration correspondant à une contrainte de cisaillement inférieure à 2 Pa, le nombre de couches de déposées diminue pour atteindre une valeur de une couche déposée pour  $\Delta P = 0,03$  bar.

Tableau IV-8 : Masse déposée pendant le régime de blocage ( $n = 2$ ) pour la membrane 0,2  $\mu\text{m}$  ( $C = 0,1 \text{ g.L}^{-1}$ )

$\Delta P$ (bar)	$V_{B,f} - V_{B,0}$ ( $\text{m}^3$ )	$M_s$ (kg)	$Z$ ( $\mu\text{m}$ )	Nombre couches particules
1,2	$9,02 \cdot 10^{-6}$	$9,02 \cdot 10^{-7}$	0,49	1
0,3	$9,71 \cdot 10^{-6}$	$9,71 \cdot 10^{-7}$	0,53	1
0,03	$2,47 \cdot 10^{-6}$	$2,47 \cdot 10^{-7}$	0,13	0

Pour les pressions ( $\Delta P = 0,3 ; 1,2$  bar), le blocage de la membrane 0,2  $\mu\text{m}$  se fait sous forme d'une monocouche de particules. Pour la pression la plus faible ( $\Delta P = 0,03$  bar), la quantité de matière déposée est inférieure à une monocouche.

On constate donc que la phase que nous attribuons à un colmatage de surface correspond à la capture d'une quantité de matière équivalente à une couche de particule, ce qui est très cohérent.

### 2.2.5 Vérification du modèle

D'après les équations du modèle phénoménologique, il est possible d'évaluer directement  $\beta_{B,f}$  à partir des valeurs de  $\eta_B^*$  et de  $V_{B,f} - V_{B,0}$ , par la relation :

$$\beta_{B,f} = \frac{\eta_B^*}{A} \cdot (V_{B,f} - V_{B,0}) \quad (\text{IV.16})$$

$V_{B,0}$  et  $V_{B,f}$  correspondent respectivement au premier et au dernier point de la plage expérimentale, pour laquelle le régime de blocage de surface est dominant.

La figure IV-16 montre l'évolution de la quantité  $V_{B,f} - V_{B,0}$  en fonction de la pression  $\Delta P$  pour les deux membranes 0,2  $\mu\text{m}$  et 8  $\mu\text{m}$ .

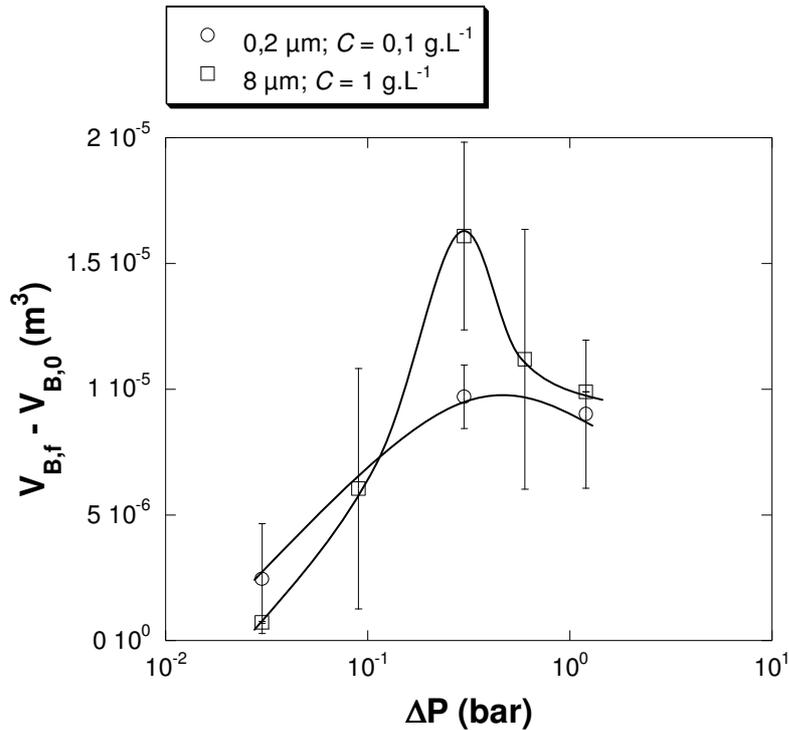


Figure IV-16 : Evolution du volume filtré ( $V_{B,f} - V_{B,0}$ ) pendant le régime de blocage de surface en fonction de  $\Delta P$  (○ : 0,2  $\mu\text{m}$  et  $C = 0,1 \text{ g.L}^{-1}$  ; □ : 8  $\mu\text{m}$  et  $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ )

Nous avons donc calculé  $\beta_{B,f}$  pour les deux membranes 0,2  $\mu\text{m}$  et 8  $\mu\text{m}$  selon l'équation (IV.16), à partir des valeurs du paramètre  $\eta_B^*$  (Fig. IV-12 pour la membrane 8  $\mu\text{m}$  et Fig. IV-13 pour la membrane 0,2  $\mu\text{m}$ ) et de la quantité  $V_{B,f} - V_{B,0}$  (cf. figure IV-16). Les valeurs de  $\beta_{B,f}$  ainsi calculées sont proches des valeurs déterminées par la méthodologie (cf. figure IV-17). Il y a donc un bon accord entre les paramètres déterminés ( $\eta_B^*$  et  $V_{B,f} - V_{B,0}$ ) sur la plage de points expérimentaux où le régime de blocage de surface est dominant et le paramètre  $\beta_{B,f}$  déterminé à partir des points expérimentaux décrivant le régime de filtration sur gâteau. On peut déduire de ce résultat que le fait de négliger les transitions n'est pas pénalisant pour décrire les phénomènes de colmatage.

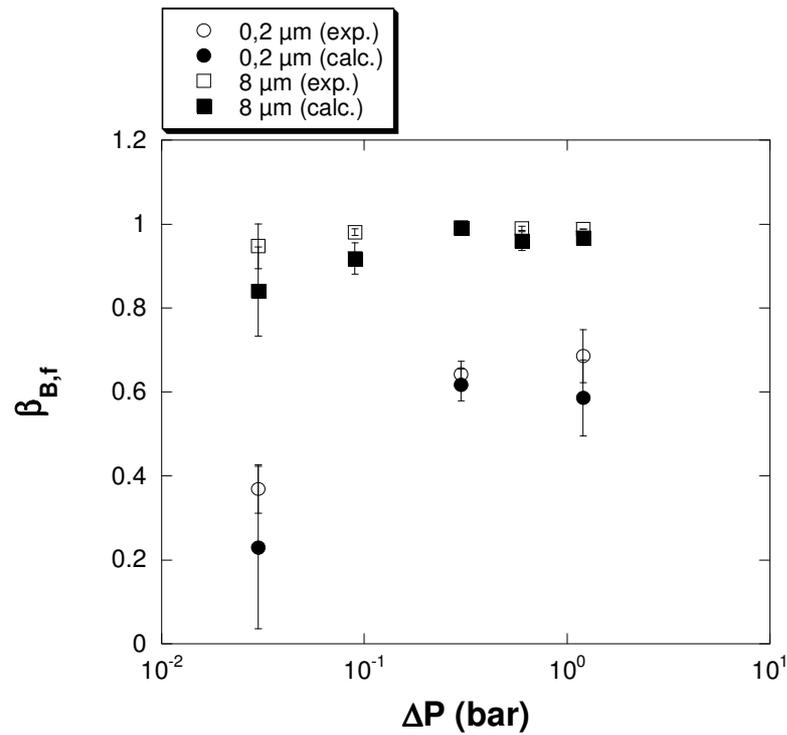


Figure IV-17 : Comparaison des valeurs de  $\beta_{B,f}$  déterminées par la méthodologie et calculées à partir de  $\eta_B^*$  et  $V_{B,f} - V_{B,0}$  ( $\circ$  : 0,2  $\mu\text{m}$  et  $C = 0,1 \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\square$  : 8  $\mu\text{m}$  et  $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ )

De même, on peut aussi recalculer la valeur de fraction de surface bloquée finale ( $\beta_{B,f}$ ), pour la série d'expériences qui visait à étudier l'influence de la concentration  $C$  de la suspension (§ 2.1).

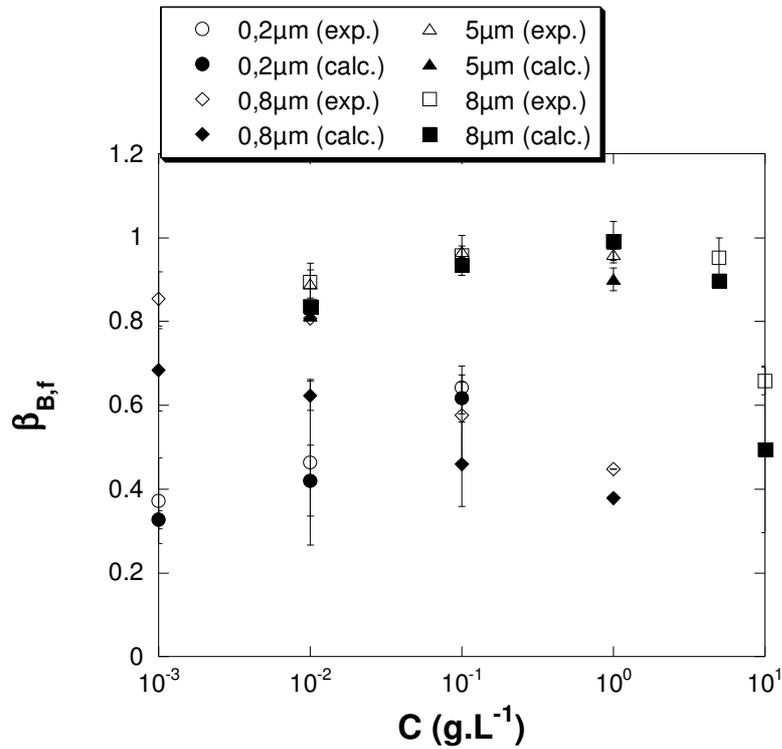


Figure IV-18 : Comparaison des valeurs de  $\beta_{B,f}$  déterminées par la méthodologie et calculées à partir de  $\eta_B^*$  et  $V_{B,f} - V_{B,0}$  provenant de la série d'expériences pour laquelle l'influence de la concentration a été étudiée ( $\Delta P = 0,3$  bar)

Sur la figure IV-18, on remarque aussi qu'il y a une bonne adéquation entre les paramètres déterminés ( $\eta_B^*$  et  $V_{B,f} - V_{B,0}$ ) sur la plage de points expérimentaux où le régime de blocage de surface est dominant et le paramètre  $\beta_{B,f}$  déterminé à partir des points expérimentaux décrivant le régime de filtration sur gâteau.

On en déduit alors que les hypothèses du modèle concernant les équations décrivant le blocage de pore et la méthode pour la détermination des paramètres  $\eta_B^*$  et  $\beta_{B,f}$  sont robustes.

### 2.3 Effet du diamètre de pore

Il s'agit, ici, de voir l'influence du média filtrant sur les paramètres de colmatage. Les média filtrants testés sont les quatre membranes de microfiltration (0,2 ; 0,8 ; 5 et 8 μm). Les conditions opératoires sont les suivantes : une pression de filtration fixée à 0,3 bar et une concentration de suspension  $C = 10^{-2}$  g.L<sup>-1</sup>.

### 2.3.1 Paramètre caractérisant le dépôt de surface : $\eta_S^*$

Dans le paragraphe 2.1.1, l'influence de la concentration sur le paramètre  $\eta_S^*$  a été étudiée pour les quatre membranes de microfiltration (cf. figure IV-6). Les courbes correspondant à chacune des membranes se superposent et une corrélation entre  $\eta_S^*$  et la concentration  $C$  a pu être établie, pour les quatre membranes testées. De ce constat, on déduit que le paramètre  $\eta_S^*$  est une caractéristique intrinsèque du dépôt, quels que soient le média utilisé et la concentration de la suspension.

### 2.3.2 Paramètre caractérisant le blocage de surface : $\eta_B^*$

Dans le paragraphe 2.1.2, nous avons déjà observé des variations différentes du paramètre  $\eta_B^*$  avec la concentration  $C$  lorsqu'on change de média filtrant, c'est-à-dire de diamètre de pore.

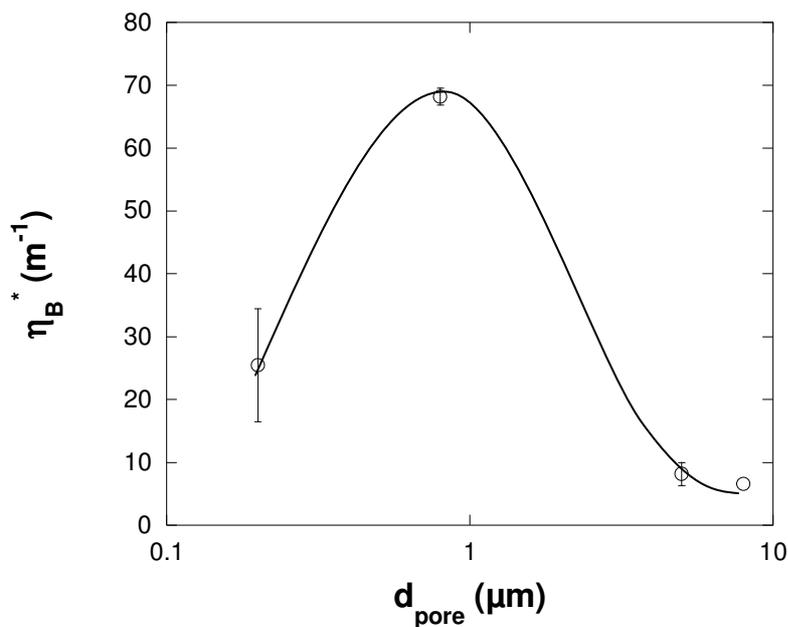


Figure IV-19 : Evolution du paramètre  $\eta_B^*$  en fonction du diamètre de pore,  $d_{pore}$  ( $C = 10^{-2}$  g.L<sup>-1</sup> ;  $\Delta P = 0,3$  bar)

La figure IV-19 est intéressante car elle montre un maximum pour le cas de la membrane 0,8  $\mu\text{m}$  où  $d_{pore} \approx d_p$ . Cela confirme, ce que l'on pouvait pressentir intuitivement, qu'on puisse avoir un maximum de colmatage de média par blocage si on utilise un média dont le diamètre de pore est proche du diamètre moyen de particules à filtrer. Il nous a semblé intéressant de comparer qualitativement la figure IV-19 (ci-dessus) à la répartition granulométrique de la

suspension de bentonite stable obtenue après plusieurs décantations successives (cf. figure III-9 du chapitre III). D'après la figure III-9, on remarque que  $C_B$  (cf. équation (IV.2)  $\left(\eta_B^* = \eta_B \cdot C_B \cdot \frac{A_B}{m_B}\right)$ ), quantité de particules susceptibles de boucher des pores de diamètre  $d_{pore}$ , est plus faible pour  $d_{pore} = 0,2 \mu\text{m}$  que pour la membrane  $d_{pore} = 0,8 \mu\text{m}$ . Ainsi, on pourrait interpréter la courbe de la figure IV-19 comme la variation de  $C_B$  dans la définition de  $\eta_B^*$  : en effet, la concentration en particules susceptibles d'obstruer le pore moyen varie lorsqu'on met en face de la suspension des membranes différentes.

### 2.3.3 Fraction de surface occupée par le blocage de surface : $\beta_B$

La figure IV-20 montre l'évolution de la fraction de surface bloquée en fin de période de blocage de surface avec le diamètre de pore. Cette fraction de surface bloquée augmente avec le diamètre de pore.

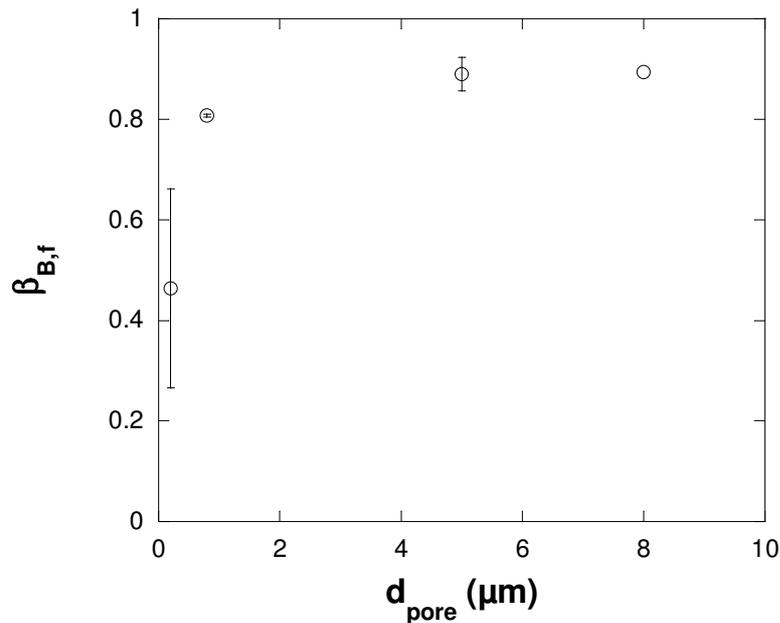


Figure IV-20 : Evolution du paramètre de surface  $\beta_{B,f}$  en fonction du flux  $J$  ( $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$ )

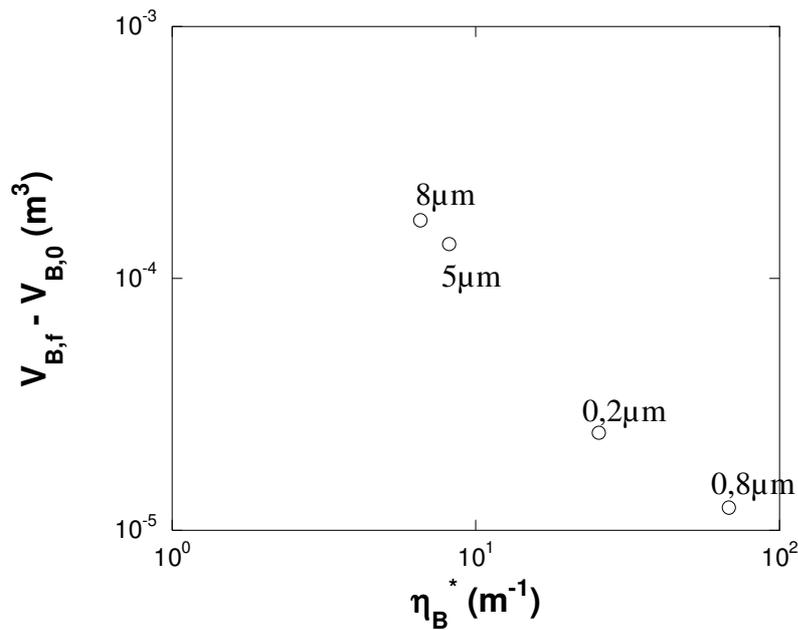


Figure IV-21 : Evolution de la quantité  $V_{B,f} - V_{B,0}$  en fonction du paramètre de blocage  $\eta_B^*$  ( $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$ )

Là encore, nous allons considérer le volume de perméat passé pendant la période de blocage. Ainsi, on peut noter sur la figure IV-21 que cette quantité  $V_{B,f} - V_{B,0}$  est faible lorsqu'on travaille avec des petits pores (0,2 et 0,8  $\mu\text{m}$ ). Pour les plus grands diamètres de pore, le volume de perméat,  $V_{B,f} - V_{B,0}$ , est jusqu'à dix fois plus élevé. On retrouve le fait que lorsqu'on a des diamètres de pore plus grands que le diamètre moyen de particule, il est nécessaire de filtrer un plus grand volume de perméat avant que le gâteau ne puisse se former : un flux plus grand peut être observé transitoirement mais une perte de production importante est à prévoir pendant la phase de blocage ( $n = 2$ ) (voir aussi la figure IV-15).

Corrélativement, lorsque la production de gâteau domine effectivement, le taux de blocage  $\beta_{B,f}$  du média filtrant est d'autant plus élevé que le diamètre de pore est grand (cf. figure IV-20).

Du point de vue du procédé, le gâteau va donc se construire sur des média de résistance

$$\left[ R_{mB,f} = \frac{R_m}{1 - \beta_{B,f}} \right] : \text{c'est donc une grandeur clé du procédé.}$$

### 3 Discussion

Pour la filtration de suspension de bentonite sur des membranes de microfiltration, les deux régimes de colmatage successifs identifiés sont le blocage de surface du média et la formation de dépôt.

#### 3.1 Formation de dépôt

Le mécanisme de formation de dépôt n'est pas considéré, ici comme un colmatage du média. Cependant, la résistance générée par le gâteau de filtration représente une limitation de flux et par conséquent affecte la productivité du procédé. Nous avons vu dans ce chapitre que le paramètre  $\eta_s^*$  est bien une caractéristique intrinsèque du dépôt, puisqu'il présente les mêmes variations avec la concentration de la suspension et avec la pression de filtration, indépendamment du média filtrant utilisé (ici, des membranes).

Les deux paramètres caractérisant le régime de blocage de surface du média sont :  $\eta_B^*$ , le paramètre de blocage de surface et  $\beta_{B,f}$ , la fraction finale de surface de média bloquée.

#### 3.2 Blocage de surface

Le paramètre de colmatage,  $\eta_B^*$ , indique la propension d'une particule à bloquer la surface d'un média filtrant, tandis que le paramètre de surface  $\beta_B$  qualifie l'état de la surface du média, et  $\beta_{B,f}$  l'état de la surface du média à la fin du régime de blocage. Ces deux paramètres sont liés mais ne présentent pas forcément la même variation face au changement d'un paramètre opératoire ou de système.

L'effet du diamètre de pore sur le paramètre  $\eta_B^*$  nous a montré qu'il faut évidemment éviter de prendre un média ayant un diamètre de pore moyen proche du diamètre moyen des particules de la suspension (cf. figure IV-19). La connaissance de la répartition granulométrique de la suspension à filtrer permet d'éviter certains choix de média qui pourraient a priori mener à un blocage sévère du média, mais la décision ne peut se faire sur la seule base de  $\eta_B^*$ .

En ce qui concerne l'effet de la concentration de la suspension sur le paramètre  $\eta_B^*$ , toute augmentation de la concentration entraîne une augmentation de la valeur de  $\eta_B^*$  (cf. Fig. IV-

7). Mais, la concentration de la suspension étant souvent imposée par le procédé, elle ne peut que rarement être diluée.

Compte tenu du fait que l'on cherche à minimiser la grandeur  $\left[ R_{mB,f} = \frac{R_m}{1 - \beta_{B,f}} \right]$ , il faut rechercher un taux de blocage de surface de média faible,  $\beta_{B,f}$  dépendant de  $\eta_B^*$  et de  $(V_{B,f} - V_{B,0})$ .

Les figures IV-22 et IV-23 montrent comment comparer les différents essais rapportés dans ce chapitre : le paramètre de blocage  $\eta_B^*$  le plus faible n'est pas nécessairement le plus avantageux.

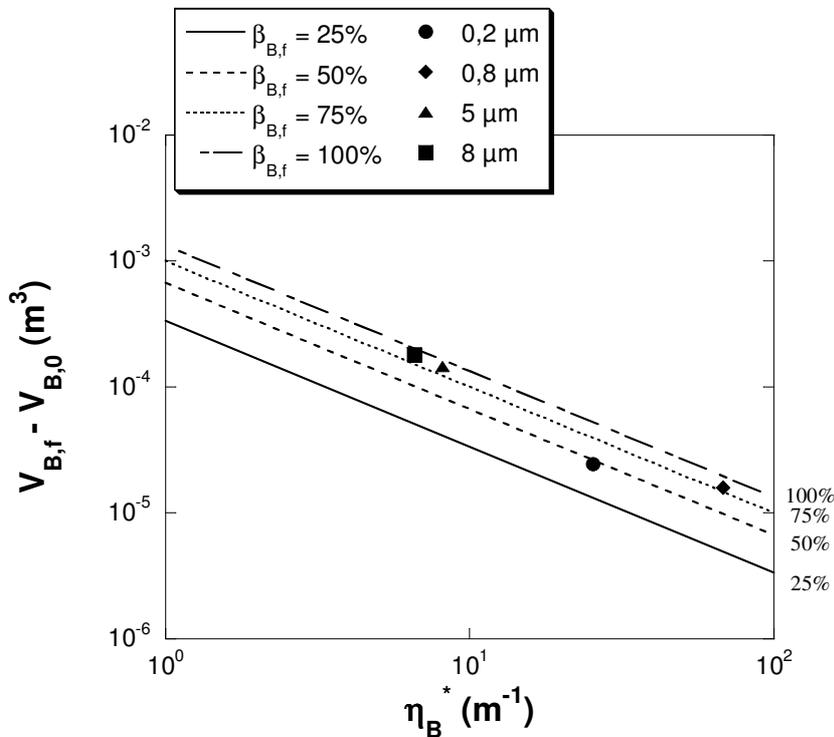


Figure IV-22 : Fraction de surface bloquée,  $\beta_{B,f}$ , du média suivant les valeurs de  $\eta_B^*$  et de  $V_{B,f} - V_{B,0}$  ( $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  ;  $\Delta P = 0,3 \text{ bar}$ )

Sur la figure IV-22, nous avons porté les points correspondants à la série d'expériences réalisées avec une suspension de concentration  $C = 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$  et une pression de 0,3 bar pour les quatre membranes testées. On remarque que seule la membrane 0,2  $\mu\text{m}$  présente encore une surface filtrante ouverte à l'écoulement de 50%, au début de la formation du gâteau. Les

trois autres membranes subissent un colmatage sévère par blocage de surface puisque plus de 80% de la surface filtrante est condamnée et ne participe plus à l'écoulement.

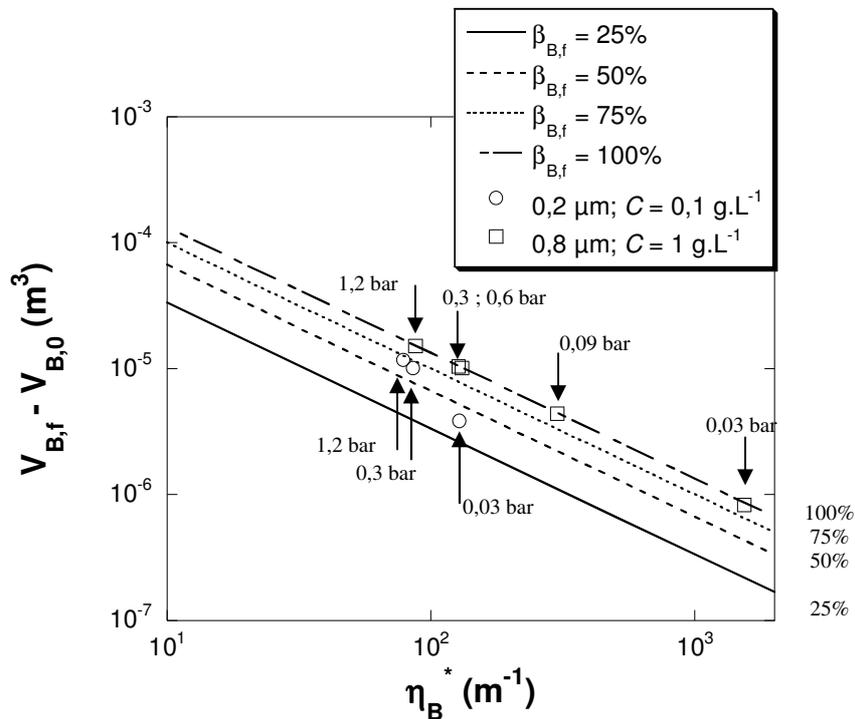


Figure IV-23 : Fraction de surface bloquée,  $\beta_{B,f}$ , du média suivant les valeurs de  $\eta_B^*$  et de  $V_{B,f} - V_{B,0}$

Sur la figure IV-23, nous avons porté les points correspondants à la série d'expériences pour laquelle l'effet de la pression de filtration a été étudié. On visualise bien que quelle que soit la pression appliquée, pour la membrane 8  $\mu\text{m}$ , la surface finale bloquée est bien supérieure à 75%. Dans tous ces cas, le média 8  $\mu\text{m}$  subit un colmatage sévère par blocage de surface.

Pour la membrane 0,2  $\mu\text{m}$ , le point à 0,03 bar semble particulièrement avantageux, car il permet de commencer la production de gâteau avec un média filtrant en très bon état.

Rappelons que la résistance  $R_{mB,f}$  du média colmaté à la fin de la phase de blocage a pour expression :

$$R_{mB,f} = \frac{R_{m,0}}{1 - \beta_{B,f}} \quad (\text{IV.17})$$

Tableau IV-9 : Abaque permettant de connaître la résistance  $R_{mB,f}$  à partir des paramètres  $\beta_{B,f}$  et  $R_{m,0}$

$\beta_{B,f}$	$1 - \beta_{B,f}$	$1/(1 - \beta_{B,f})$
25%	75%	1,33
50%	50%	2
75%	25%	4
80%	20%	5
85%	15%	7
90%	10%	10
95%	5%	20
98%	2%	50
99%	1%	100
99,50%	0,50%	200
99,95%	0,05%	2000

Le tableau IV-9 montre que le facteur multiplicatif de  $R_{m,0}$  dans l'équation (IV.17) a une allure hyperbolique, due à la fonction  $1/(1 - \beta_{B,f})$ . On peut aussi remarquer qu'une fraction de surface bloquée à 99%, en valeur absolue, est peu différente de 99,95%, mais en terme d'augmentation de valeur de résistance de média bloqué,  $R_{mB,f}$  est 200 fois plus grand.

## Conclusion

La méthodologie consistant à reconstruire une courbe de filtration en supposant l'existence de régimes de filtration successifs a donné de bons résultats. Les paramètres du modèle retenus sont bien des caractéristiques de phénomènes physiques, et les modèles simples utilisés s'en trouvent qualifiés.

Concernant la variation de ces paramètres avec la concentration, il a été possible d'établir des corrélations reliant les paramètres du modèle à la concentration. Dans le modèle développé, nous avons supposé une relation linéaire entre le paramètre  $\eta_s^*$  caractérisant le gâteau et la concentration  $C$ ; la même dépendance linéaire avait été supposée pour le paramètre caractérisant le blocage  $\eta_B^*$ . Cependant, la corrélation établie sur la base d'expériences a révélé une dépendance non pas linéaire mais suivant une loi puissance pour le dépôt. Pour le mécanisme de blocage, nous avons aussi essayé d'établir une corrélation simple, suivant une loi puissance, mais peu satisfaisante car l'évolution de  $\eta_B^*$  en fonction de la concentration est spécifique à un type de membrane.

Afin d'expliquer l'effet de la pression sur le paramètre  $\eta_B^*$  caractérisant le blocage, nous avons calculé la contrainte de cisaillement à l'entrée du pore de la membrane. La représentation  $\eta_B^*$  en fonction du taux de cisaillement permet d'homogénéiser les deux tendances ( $\eta_B^*$  en fonction de  $\Delta P$  pour les membranes 0,2 et 8  $\mu\text{m}$ ). Dans le cas où la contrainte de cisaillement est faible, le paramètre  $\eta_B^*$  est élevé et inversement. Une contrainte de cisaillement faible a donc peu d'effet sur le décollement d'une particule qui s'est accrochée à la paroi de la membrane.

Concernant la phase de filtration sur gâteau, nous avons pu montrer que le dépôt formé de particules de bentonite présentait les mêmes caractéristiques (même  $\eta_s^*$ , toute condition opératoire égale par ailleurs), quelle que soit la membrane utilisée. L'étude de la variation du paramètre  $\eta_s^*$  avec la pression a, par ailleurs, montré l'existence d'une pression seuil de filtration (0,3 bar), au-delà de laquelle la compressibilité du dépôt de bentonite est importante.

Le paramètre  $\eta_B^*$  caractérisant le blocage dépend logiquement des caractéristiques du média filtrant et du fluide : il présente notamment un maximum pour une membrane dont le diamètre de pore moyen est proche de la taille moyenne de particules de la suspension.

Enfin, dans la partie discussion, nous avons vu que  $\left[ R_{mB,f} = \frac{R_{m,0}}{1 - \beta_{B,f}} \right]$  était une grandeur clé

du procédé. Afin de maintenir un certain niveau de productivité (en régime de filtration sur gâteau), il est nécessaire d'avoir une résistance de média colmaté la plus faible possible. On cherche donc à minimiser le taux de blocage  $\beta_{B,f}$ , tout en ayant une résistance hydraulique  $R_{m,0}$  de média propre la plus faible. Dans cette étude, nous avons vu que les taux de blocage les plus faibles étaient obtenus pour la membrane 0,2  $\mu\text{m}$ , qui a cependant la résistance hydraulique de média propre la plus élevée des quatre membranes.

En résumé, un bon média filtrant sera celui pour lequel on aura le meilleur compromis entre un taux de blocage de surface faible et une résistance de média peu élevée.



# Chapitre V. Résultats et Discussion sur la silice précipitée

## Chapitre d'équation 5 Section 1

Le fait que la cellule Amicon génère une importante résistance à l'écoulement nous a amené à construire une nouvelle cellule de filtration pour la transposition de la méthodologie au cas industriel qui utilise des toiles de filtration ayant une faible résistance hydraulique.

Le chapitre précédent avait pour objectif de qualifier la méthodologie. Nous avons vu comment les paramètres du modèle qualifiant les mécanismes responsables de la baisse de flux au cours de la filtration pouvaient varier lorsqu'on changeait les paramètres opératoires, tels que la pression ou la concentration de la suspension.

Dans ce chapitre, nous allons appliquer l'approche développée et explicitée dans le chapitre précédent, sur un cas industriel, la filtration sur toiles de suspensions de silice précipitée, et par la suite, essayer de proposer des premiers éléments d'interprétation.

L'objectif à terme serait de mettre en place des lignes directrices de conduite du procédé afin de pouvoir anticiper une difficulté dans la gestion du colmatage à partir d'essais laboratoire et de faire des simulations à partir des paramètres phénoménologiques préalablement déterminés sur deux ou trois cycles de filtration pour estimer le colmatage d'un média filtrant au bout d'un nombre de cycles plus élevé.

# 1 Objectifs de l'étude

Rhodia Silices fabrique des silices précipitées à l'état de poudre, dont le procédé de fabrication fait intervenir une étape de filtration. Comme on va le voir dans cette première partie, cette étape joue un rôle important, ce qui motive le travail mené au cours de cette thèse.

Les matières premières utilisées pour la fabrication de la silice précipitée amorphe sont le sable ( $\text{SiO}_2$ ) et le carbonate de sodium. La synthèse de la silice précipitée amorphe s'effectue en cinq grandes étapes réalisées en discontinu. On peut les décrire de façon simple par le schéma de la figure V-1.

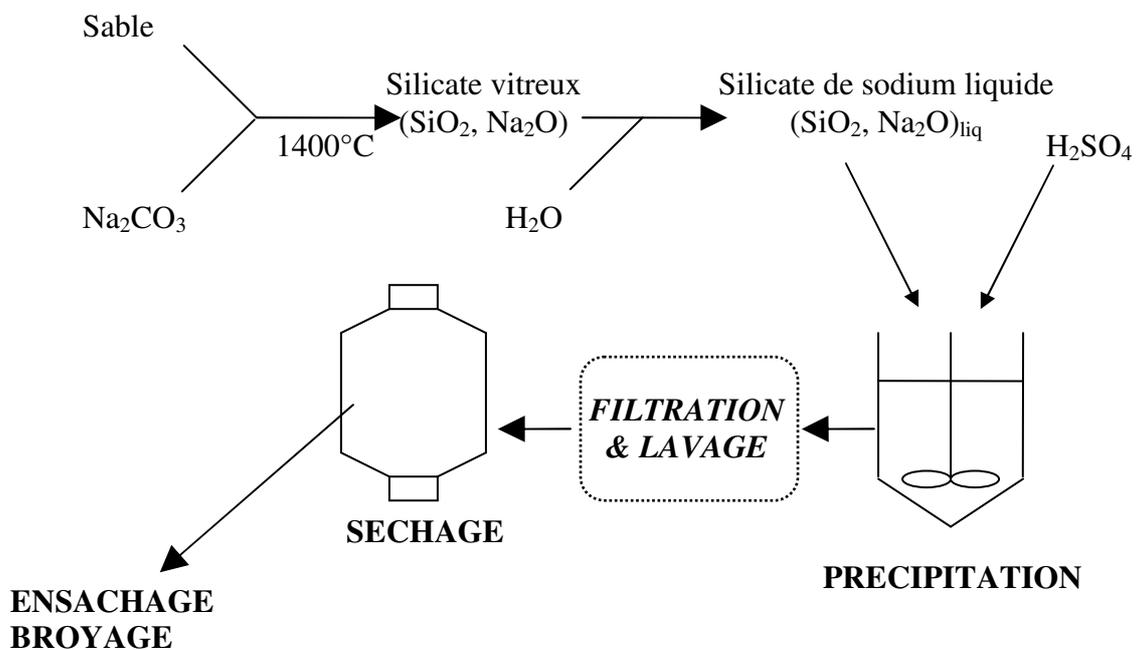
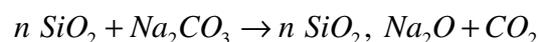


Figure V-1 : Schéma de principe de fabrication de la silice précipitée amorphe

## a) Obtention du silicate vitreux

On procède à la fusion alcaline du sable avec du carbonate de sodium dans un four de type verrier à haute température ( $1400^\circ\text{C}$ ). La réaction chimique mise en jeu ici est :



$n = [\text{SiO}_2]/[\text{Na}_2\text{O}]$ , appelé le ratio du silicate ( $n = 3,5$ )

Le silicate vitreux, sorti en fusion du four, est coulé sur un tapis roulant où il se vitrifie rapidement et est déversé sous forme de débris dans des cuves. Après refroidissement, on obtient le silicate de sodium vitreux sous la forme de blocs translucides de couleur bleu-vert. Il est ensuite prélevé pour être utilisé dans l'étape suivante.

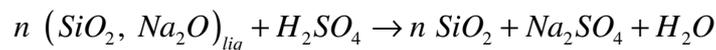
#### b) Obtention du silicate liquide

Le silicate vitreux a la propriété de se dissoudre assez facilement dans l'eau à haute température. Il est donc dissout dans des autoclaves en présence de vapeur et d'eau dans des conditions thermodynamiques bien précises. On obtient alors une solution de silicate liquide suivant la réaction suivante :



#### c) Obtention de la silice précipitée

La réaction de précipitation est la plus complexe des trois réactions chimiques présentées. Elle s'écrit pourtant de façon simple :



L'étape de précipitation met en jeu des réactions de coagulation et de polymérisation avec la création de liaisons Si-O-Si.

#### d) Filtration - Lavage

La bouillie réactionnelle obtenue après précipitation est ensuite filtrée afin d'éliminer l'eau et la majeure partie des sulfates formés par lavage du gâteau de filtration. *Notre étude traitera essentiellement de l'étape de filtration de la bouillie réactionnelle.*

#### e) Séchage

Le gâteau de filtration subit ensuite une étape de séchage : on obtient une silice séchée amorphe qui présente différentes granulométries en fonction des procédés de fabrication et des conditions de séchage.

A l'état non broyé, la silice est sous forme de poudre ou de micro-perles. Certaines poudres sont broyées présentant par la suite des granulométries très fines en vue d'applications spécifiques.

L'étape de *filtration* de la bouillie réactionnelle à travers une toile de filtration est importante car elle permet de récupérer le produit d'intérêt sous forme d'un gâteau de silice précipitée. Le procédé étant discontinu, on assiste, au bout de plusieurs cycles de filtration, au colmatage de la toile de filtration. Les enjeux associés aux phénomènes de colmatage se situent dans le coût des média à remplacer et les manques à produire résultant des arrêts nécessaires à leur remplacement.

Pour la présente étude, deux types de silice, que nous nommerons ZA et ZB, ont été considérés car elles sont issues de conditions de production a priori différentes.

Les deux produits sont séparés sur le même filtre à l'aide de deux média différents, qui seront également étudiés.

La représentativité des investigations au laboratoire par rapport à l'usine est incertaine du fait de l'existence connue d'une évolution significative de la bouillie en 24 h (accroissement de la résistance spécifique du gâteau, mûrissement, évolution du pH). Il est impossible d'envisager d'assurer au laboratoire un traitement des bouillies sous des délais inférieurs à 24 h. Ce que l'on espère avant tout c'est un comportement qualitatif relatif analogue avec des suspensions fraîches pour les deux types de silice au cours de tests labo. Une première phase de prise en main du produit s'est effectuée au laboratoire sur des suspensions ZA et ZB prélevées à l'usine de Rhodia Silices, expédiées par transporteur à Toulouse et stockées à 6°C.

Une seconde phase a consisté à travailler sur une suspension ZA fraîchement produite, ce qui a nécessité de réaliser une campagne d'expériences directement sur le site de production de Rhodia Silices à Collonges-au-Mont-d'Or.

## 2 Matériels

### 2.1 Dispositif expérimental

Hormis la cellule de filtration, le dispositif expérimental reste le même que celui décrit dans le paragraphe 1.1 du chapitre III. Le réservoir d'alimentation a été posé sur une table d'agitation (150 tours.min<sup>-1</sup>) car la suspension de silice a une forte tendance à sédimenter.

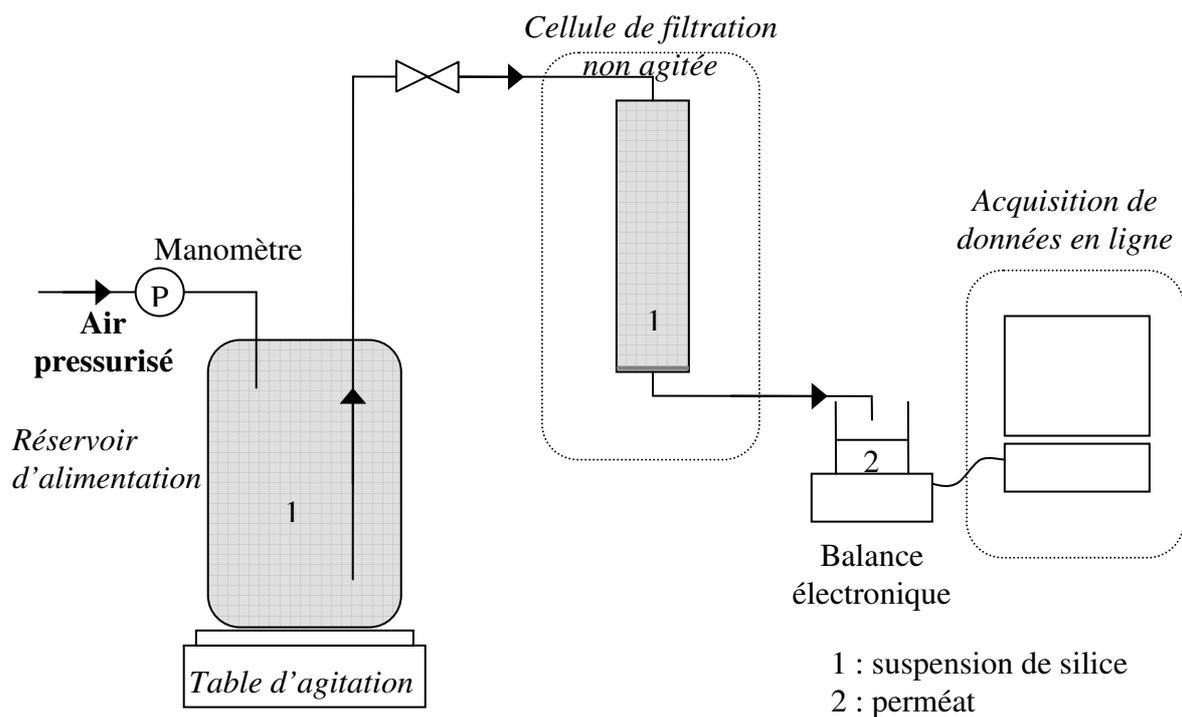


Figure V-2 : Dispositif expérimental

### 2.2 Cellule de filtration

L'utilisation de toiles (média tissés), ayant une résistance hydraulique assez faible, nécessite un système de filtration qui génère une perte de charge négligeable par rapport à celle du média filtrant. En effet, dans le cas où la perte de charge due au dispositif expérimental n'est plus négligeable devant celle d'une toile de filtration, la perméabilité mesurée n'est pas celle de la toile.

Par rapport au dispositif expérimental (cf. chapitre III) utilisé lors de la qualification de la méthodologie, la cellule de filtration Amicon (Millipore) a été remplacée afin de pouvoir utiliser des toiles de filtration.

Elle a été conçue sur la base de plans de cellules utilisées chez Rhodia et construite au laboratoire par Jean-Pierre Lafaille et Patrick Colombiès. On s'est attaché à garder une petite surface filtrante (environ 20 cm<sup>2</sup>) mais une hauteur de cellule plus importante (30 cm) afin d'avoir la capacité de former des hauteurs de gâteau assez importantes. Les entrée et sortie de la cellule de filtration font un cm de diamètre afin de générer le moins de perte de charge possible.

*Mesure de la perte de charge due au dispositif expérimental*

Nous avons déterminé la résistance hydraulique liée au dispositif expérimental sans toile filtrante en mesurant le flux en sortie lorsqu'on applique une pression à l'entrée du réservoir (cf. tableau V-1).

Tableau V-1 : Valeurs de flux en sortie du dispositif expérimental à différentes pressions

$\Delta P$ (Pa)	$J$ (m.s <sup>-1</sup> )
100 000	6,58.10 <sup>-2</sup>
50 000	4,59.10 <sup>-2</sup>
13 000	2,16.10 <sup>-2</sup>

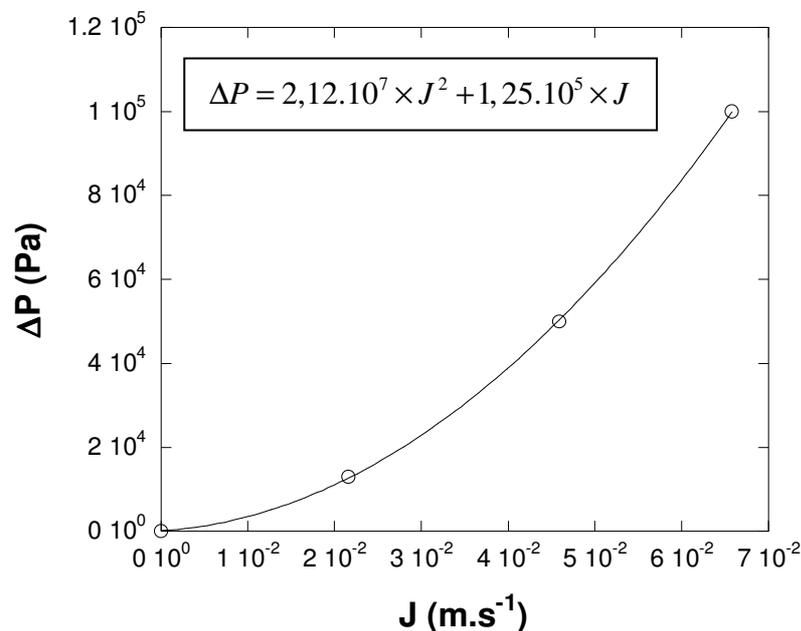


Figure V-3 : Pression en fonction du flux pour le dispositif expérimental sans toile

La figure V-3 montre une dépendance non linéaire entre la pression de filtration et le flux en sortie, probablement liée à la perte de charge créée par des élargissements et rétrécissements de conduite dans le dispositif expérimental. La loi de Darcy ne s'appliquant que pour un

écoulement laminaire (relation linéaire entre  $\Delta P$  et  $J$ ), il n'est donc pas possible d'évaluer, par cette loi, la résistance de notre système. La loi d'Ergun [13] s'écrit, quant à elle, comme la somme de deux termes : la loi de Darcy pour un écoulement laminaire et un terme pour le régime turbulent en  $J^2$  (cf. équation (I.3) du chapitre I § 5.1.2) :

$$\Delta P_c = R_m \cdot \mu \cdot J + I \cdot \rho \cdot J^2 \quad (1.3)$$

où  $I$  (-) est un coefficient d'inertie ;

$R_m$  ( $m^{-1}$ ) représente la résistance à l'écoulement visqueux.

Afin de déterminer la résistance  $R_{système}$  due au dispositif expérimental, on fait passer un polynôme d'ordre 2 passant par 0 (du type  $y = ax^2 + bx$ ) par les points expérimentaux ( $J$  ;  $\Delta P$ ) de la figure V-3 :  $\Delta P = 2,12 \cdot 10^7 \times J^2 + 1,25 \cdot 10^5 \times J$ .

On en déduit alors que :

$$R_{système} \cdot \mu = 1,25 \cdot 10^5 \text{ Pa.s.m}^{-1}$$

D'où, la résistance du système est :

$$R_{système} = 1,38 \cdot 10^8 \text{ m}^{-1}$$

avec  $\mu(T) = 9,04 \cdot 10^{-4} \text{ Pa.s}$  à  $T = 24,4 \text{ }^\circ\text{C}$

## 2.3 Toiles de filtration

Deux toiles ont été utilisées pour la filtration de la suspension de silice. Ces deux média filtrants sont des tissés monofilaments, avec une armure *satén*, en polypropylène provenant de fournisseurs différents (non cités pour des raisons de confidentialité). Nous les appellerons FT et MS. Seule la toile FT a subi un calandrage qui a pour effet de rendre la surface plus lisse.

D'après les photographies prises au microscope électronique à balayage (Figs V-4 et V-5), les deux toiles présentent des structures très différentes. On peut remarquer que la toile FT a un tissage plus serré que la toile MS.

Tableau V-2 : Caractéristiques des toiles de filtration

<i>Toile</i>	<i>FT</i>	<i>MS</i>
Épaisseur ( $\mu\text{m}$ ) <sup>3</sup>	560	430
Espacement entre deux fils ( $\mu\text{m}$ )	10	5
Diamètre moyen de pore ( $\mu\text{m}$ )	30	100

<sup>3</sup> Données provenant de photos MEB de la coupe transversale des toiles

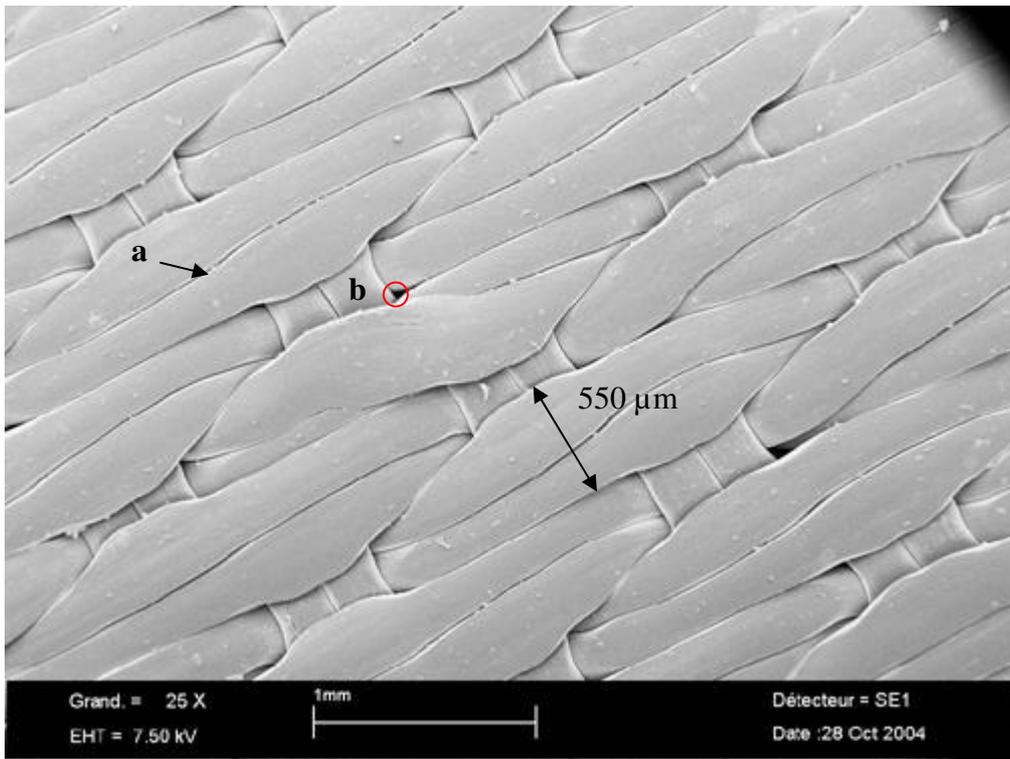


Figure V-4 : Photo MEB de la toile FT (× 25)

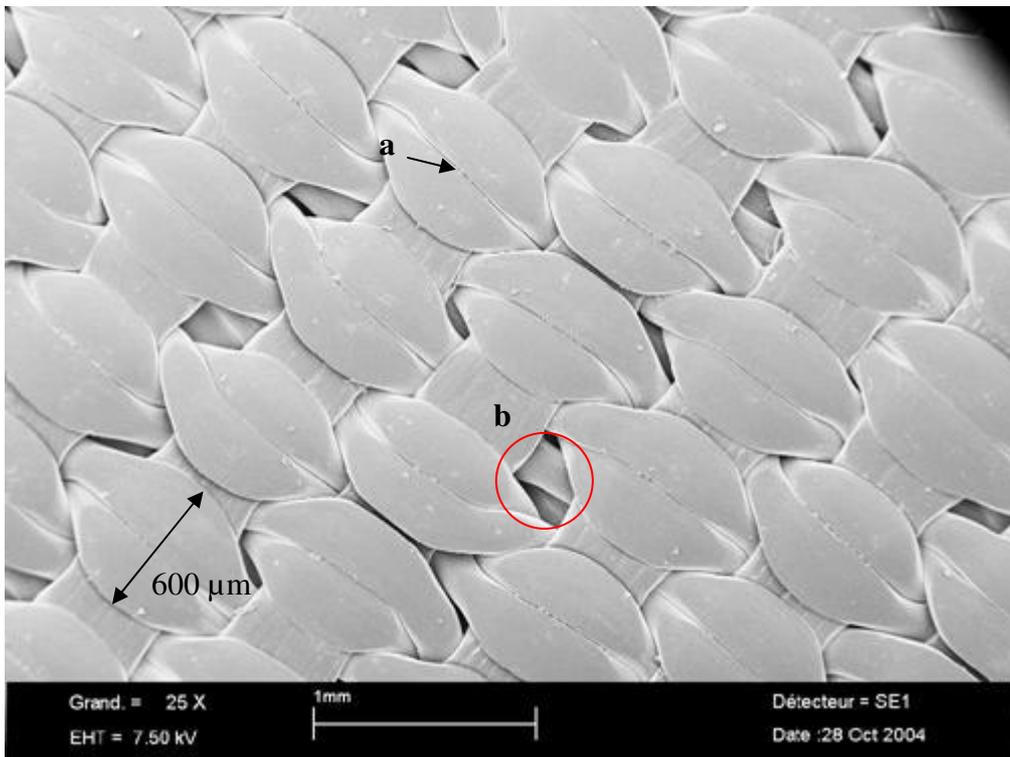


Figure V-5 : Photo MEB de la toile MS (× 25)

Légende :     a : espacement entre deux fils  
              b : diamètre moyen d'un pore

**Mesure de la résistance hydraulique d'une toile**

Toile FT (figure V-4)

D'après la figure V-6 et la régression suivant un polynôme d'ordre 2, l'utilisation de l'équation (I.3) permet d'évaluer la résistance du système avec la toile FT qui est :

$$R = 7,52 \cdot 10^8 \text{ m}^{-1}, \text{ avec } \mu(T) = 8,95 \cdot 10^{-4} \text{ Pa.s à } T = 24,8 \text{ °C}$$

On en déduit alors la résistance de la toile FT par l'expression :

$$R_{FT} = R - R_{\text{système}}$$

D'où,

$$R_{FT} = 6,14 \cdot 10^8 \text{ m}^{-1}$$

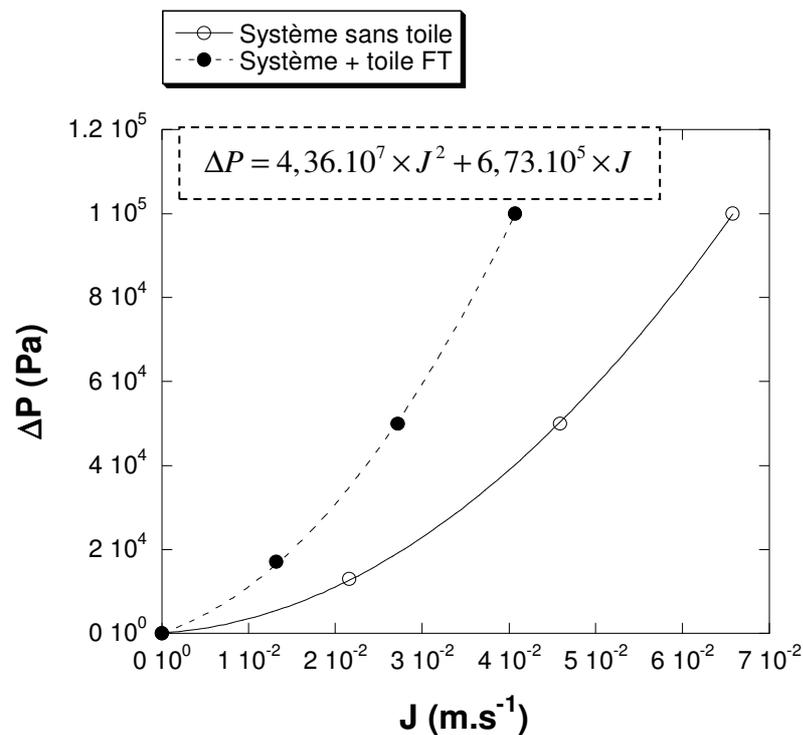


Figure V-6 : Pression en fonction du flux pour le système avec la toile FT

Toile MS (figure V-5)

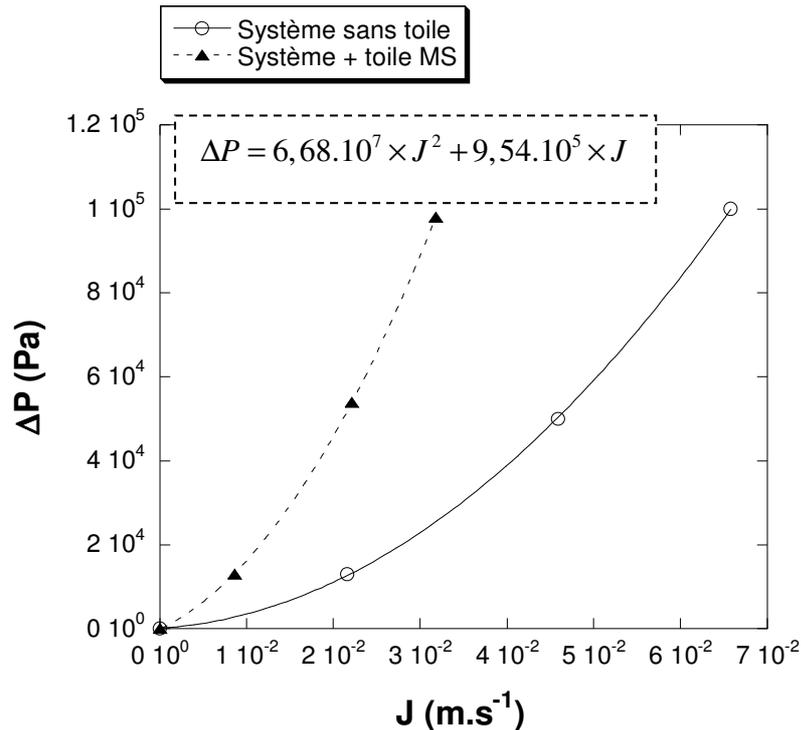


Figure V-7 : Pression en fonction du flux pour le système avec la toile MS

De manière analogue à la mesure de la résistance de la toile FT, on déduit à partir de la figure V-7, la résistance de la toile MS :

$$R_{MS} = 9,25.10^8 \text{ m}^{-1}$$

Les résistances hydrauliques des deux toiles sont du même ordre de grandeur, celle de la toile FT étant plus faible que celle de la toile MS.

## 2.4 Deux types de suspension de silice précipitée

Nous appellerons les deux types de suspension de silice étudiés : ZA et ZB.

Les deux suspensions industrielles ont la même concentration massique :

$$C = 103 \text{ g.L}^{-1}.$$

### Analyse granulométrique

La figure V-8 représente la répartition granulométrique (en volume) des particules de silice, par la technique de granulométrie laser (basée sur la diffraction de la lumière - Théorie de *Fraunhofer*). On remarque alors que ces suspensions présentent des distributions bimodales :

- les deux pics se situent à 25 et 200  $\mu\text{m}$ , pour la suspension ZA fraîche ;
- les deux pics se situent à 15 et 130  $\mu\text{m}$ , pour la suspension ZB âgée de 51 jours.

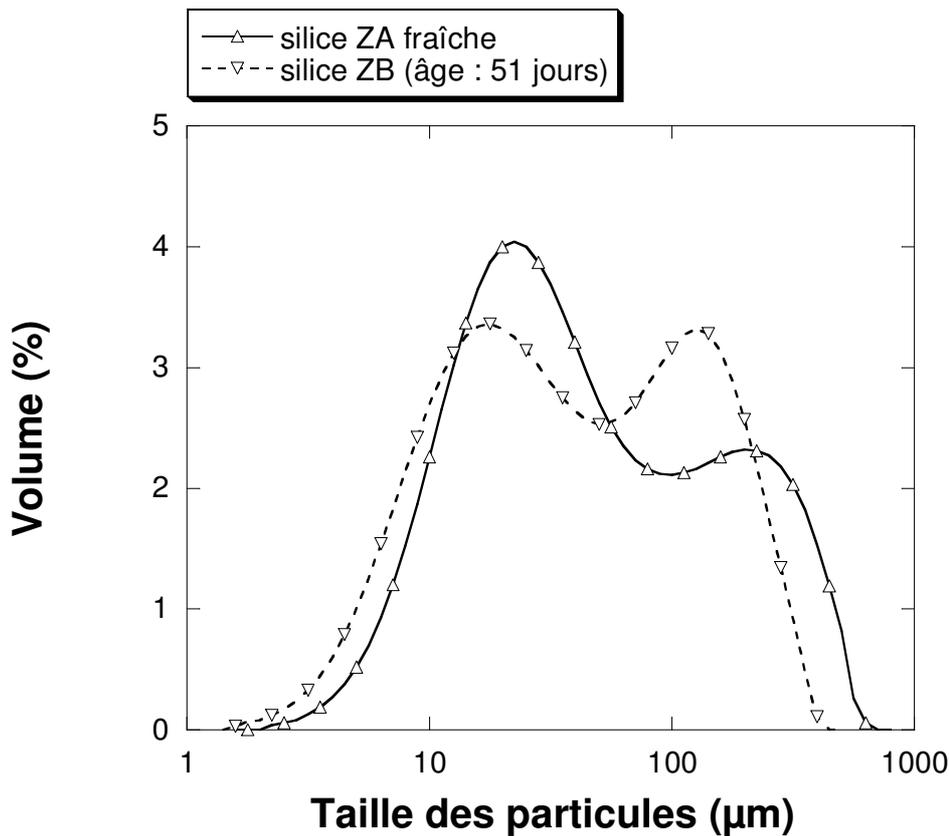


Figure V-8 : Répartition granulométrique des deux suspensions de silice (Mastersizer 2000, Malvern Instruments)

#### *Masse volumique des deux suspensions*

$$\text{ZA : } (\rho_{\text{susp.}})_{\text{ZA}} = 1070 \text{ kg.m}^{-3} ; (\rho_{\text{S}})_{\text{ZA}} = 3105 \text{ kg.m}^{-3}$$

$$\text{ZB : } (\rho_{\text{susp.}})_{\text{ZB}} = 1067 \text{ kg.m}^{-3} ; (\rho_{\text{S}})_{\text{ZB}} = 3870 \text{ kg.m}^{-3}$$

Ces valeurs indiquent que la masse volumique des particules de silice ZB est plus élevée que celle des particules ZA. Les particules de silice ZB auront donc une plus grande propension à décanter que les particules de silice ZA.

Un suivi des propriétés physico-chimiques a aussi été réalisé sur les suspensions ZA et ZB qualifiées de « vieilles », qui ont été prélevées à Collonges puis envoyées au laboratoire (cf. annexe C).

## 3 Filtration de suspensions de silice précipitée sur toiles de filtration

### 3.1 Objectifs

Cette campagne a pour but d'étudier la transposition de l'approche développée et qualifiée sur des expériences de filtration de la suspension de bentonite sur des membranes de microfiltration. Nous utiliserons la représentation en échelle log-log de  $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$  afin d'identifier les mécanismes dominants décrivant la courbe de filtration. A partir de ces mécanismes, nous déterminerons les paramètres phénoménologiques associés.

### 3.2 Protocole opératoire

Nous avons réalisé une première série d'expériences visant à répéter plusieurs fois une même expérience de filtration, mais à des jours différents. Pour chaque nouvelle filtration, un échantillon de toile propre a été découpé. Un « flux à l'eau » à travers la toile étudiée est effectué afin de mesurer la résistance de la toile propre. Ensuite, le réservoir d'alimentation est rempli d'une suspension de silice précipitée. La pression de filtration est fixée à 1 bar. On filtre jusqu'à obtenir un volume d'environ 200 mL. Lorsque l'opération est terminée, la toile est débarrassée du gâteau de silice. On la rince ensuite avec le jet d'une pissette d'eau osmosée. Enfin, un « flux à l'eau » permet d'évaluer la résistance de la toile après filtration.

### 3.3 Suspension ZA

Deux campagnes d'expériences de filtration ont été réalisées sur la suspension ZA. Une première phase de prise en main a consisté à filtrer au laboratoire la suspension envoyée par Rhodia Silices. Cette suspension, qualifiée de « vieillie », a été stockée un certain temps à froid (6°C) avant d'être filtrée à température ambiante. La seconde phase était de filtrer la suspension de silice fraîchement produite et prélevée à une température de 70°C environ, directement sur le site de Rhodia Silices à Collonges. Pour ces deux campagnes, nous avons utilisé les toiles FT et MS.

### 3.3.1 Toile FT

Pour chaque expérience, les mécanismes dominants responsables de la baisse de flux au cours du temps seront identifiés et caractérisés.

#### 3.3.1.1 Suspension « vieillie »

*Identification des mécanismes dominants apparents*

*Toile FT (âge de la suspension : 43 jours)*

La figure V-9a montre la courbe de filtration obtenue pour la filtration de silice ZA. La figure V-9b représente ces mêmes points expérimentaux suivant le système de coordonnées

$$\left( x = \frac{dt}{dV}; y = \frac{d^2t}{dV^2} \right).$$

La courbe présente trois zones pour lesquelles il a été possible d'évaluer le coefficient  $n$  de

$$\text{l'équation } \frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left( \frac{dt}{dV} \right)^n : n_1 = 2 ; n_2 = 0 ; n_3 = 0.$$

La zone correspondant à  $n_1 = 2$  représente le colmatage du média par le mécanisme de blocage. On calcule sur cette période le paramètre  $\eta_B^*$  caractérisant ce type de colmatage.

Les deux plateaux ( $n_2$  et  $n_3 = 0$ ) sont séparés par une période de transition représentée par une pente négative. On note qu'il est très difficile de discerner ces changements à la seule vue de la courbe V-9a.

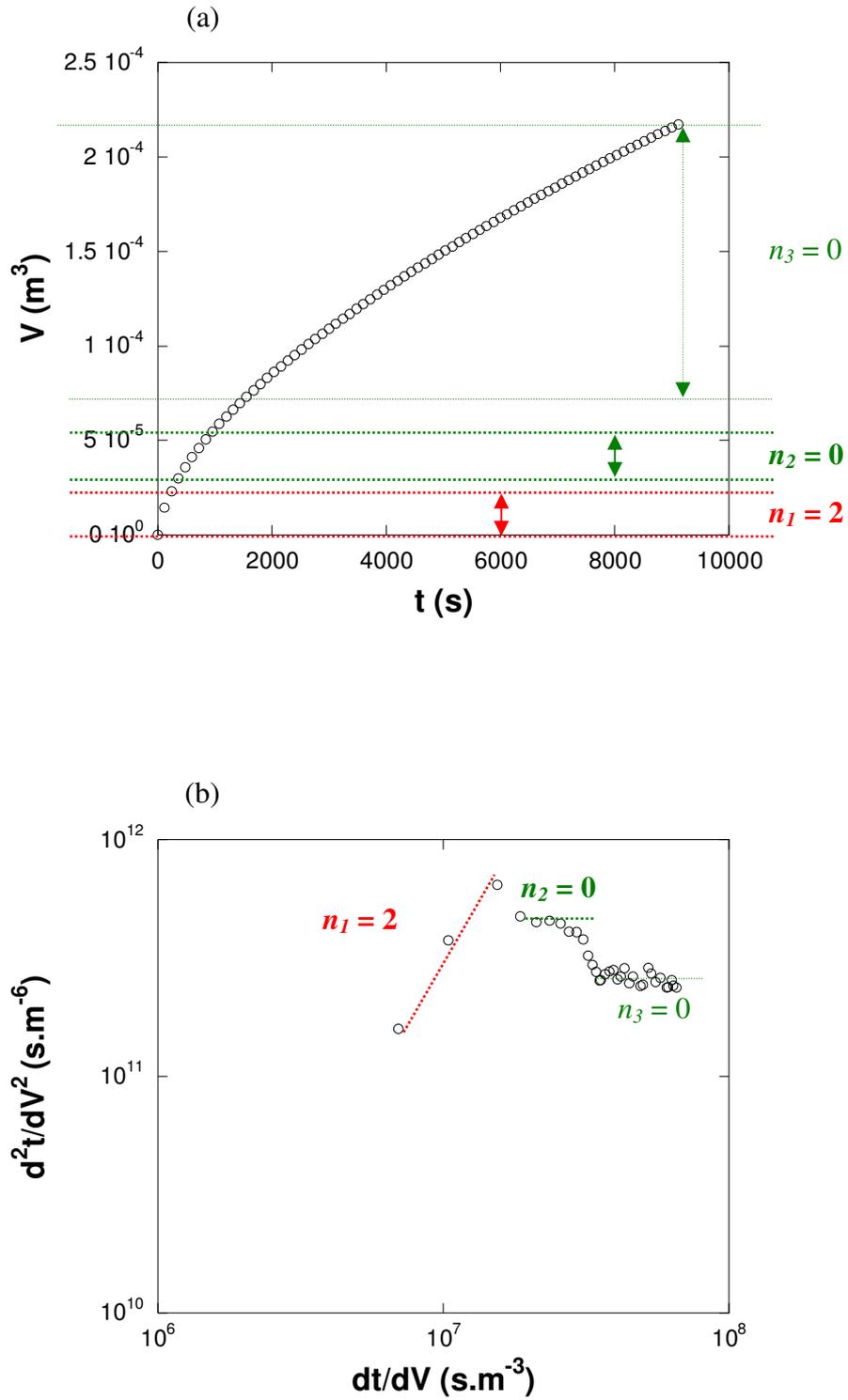


Figure V-9 : Filtration de silice ZA (âge = 43 jours) sur toile FT (a)  $V(t)$  ; (b)  $d^2t/dV^2$  en fonction de  $dt/dV$

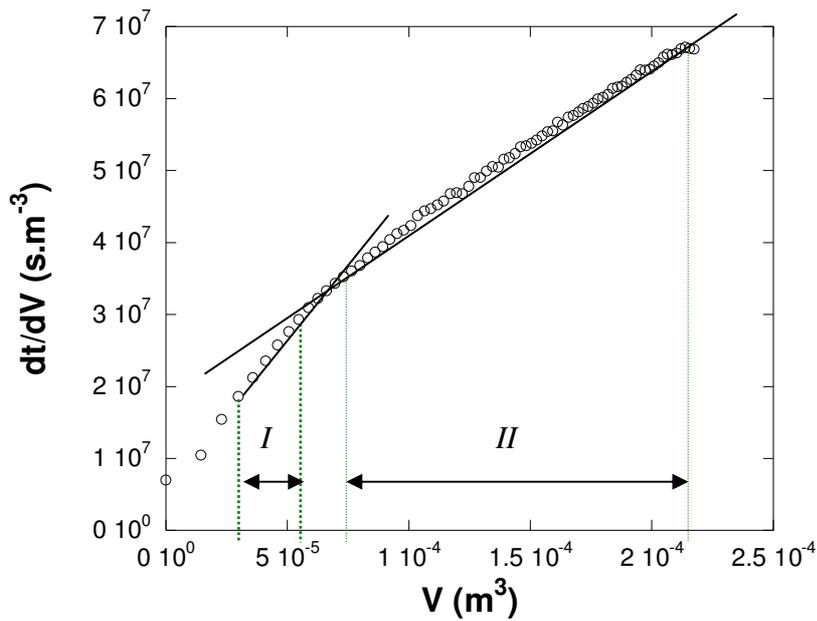


Figure V-10 :  $dt/dV$  en fonction de  $V$  pour la filtration de silice ZA (âge = 43 jours) sur toile FT

Si on considère la figure V-10 pour laquelle on a tracé les points expérimentaux suivant la forme linéaire du modèle de filtration sur gâteau (cf. tableau III-6, chapitre III §4), on obtient aussi deux pentes correspondant aux deux plateaux ( $n_2 = n_3 = 0$ ), observés sur la figure V-9b. En appliquant la méthodologie, on détermine alors la valeur du paramètre  $\eta_S^*$  sur ces deux zones. La première zone (I) présente une pente plus élevée que la seconde zone (II). Pour expliquer ce changement de pente, on peut supposer, toute chose étant égale par ailleurs, que soit la probabilité de capture,  $\eta_S$ , de particules pour le mécanisme de construction d'un gâteau était plus importante pour la zone I que pour la zone II, soit la quantité  $C_S$  de particules participant à la construction du gâteau de filtration par unité de volume de filtrat était différente, soit enfin la résistance spécifique apparente  $\alpha$  du gâteau formé a diminué entre la première et la seconde zone. A première vue, on peut suspecter un phénomène de décantation qui se superposerait à la filtration au cours de la première période où  $n_2 = 0$ , ce qui aurait pour effet d'augmenter  $\eta_{S-I}$ . Mais c'est plutôt au cours de la seconde période ( $n_3 = 0$ ) que la décantation a été observée. On écarte alors l'hypothèse d'un taux de capture  $\eta_S$  plus élevé dans la zone I que dans la zone II. La seconde hypothèse était des concentrations en particules différentes entre les deux périodes. Nous avons veillé à maintenir la suspension de silice agitée dans le réservoir d'alimentation, pour avoir une concentration en particules homogène.

Il semble alors peu probable d'avoir  $C_{S-I} > C_{S-II}$ . L'hypothèse qui nous semble la plus probable est donc celle d'un changement de résistance spécifique  $\alpha$ . Nous tenterons d'expliquer ce changement de pente dans la partie Discussion de ce chapitre.

Dès les premiers millilitres de perméat filtré, le flux de perméat chute brusquement de  $3,96.10^{-2}$  à  $1,36.10^{-4}$   $\text{m.s}^{-1}$ . On se propose d'évaluer un taux de recouvrement de surface initial, que nous noterons  $\beta_i$ , qui caractérise l'état de la surface filtrante à  $t = 0$ , c'est-à-dire l'instant où on commence à avoir les premières gouttes de filtrat (la masse de filtrat est suivie au cours du temps grâce à une balance électronique). Pour cette expérience de filtration sur la suspension « vieillie » à travers la toile FT, on a  $\beta_i = 99,66\%$ . Cette valeur est extrêmement élevée. Notre méthodologie ne nous permet pas d'identifier les phénomènes qui ont pour effet de bloquer la surface du média suivant une dynamique très rapide. On mesure, tout de même, la fin du régime de blocage par l'identification d'une zone où  $n_I = 2$ .

Il est probable que les toutes premières particules arrivant à la surface de la toile soient plaquées contre la toile et participent au colmatage du média par blocage des pores de la toile ( $n_I = 2$ ). La pente apparente ( $n_I = 2$ ) est difficile à analyser. En particulier, la dynamique de notre chaîne d'acquisition limite probablement la signification de ces points. On ne peut pas statuer sur les mécanismes qui se développent : le flux extrêmement élevé se traduit même pendant une très courte période par un apport de matière significatif.

Détermination des paramètres caractérisant les mécanismes dominants

Les expériences sur la toile FT ont été répétées trois fois à des dates différentes (figure V-11).

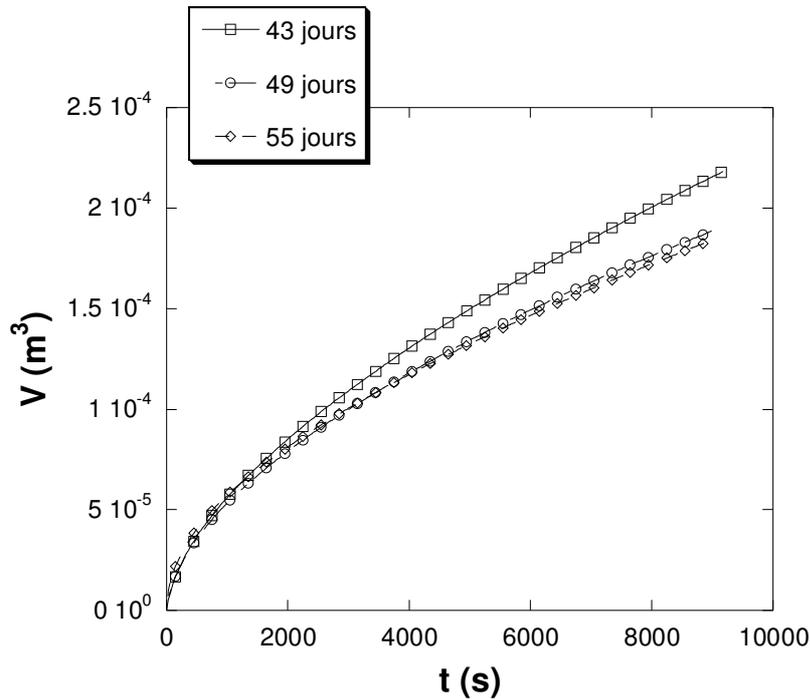


Figure V-11 : Expériences sur toile FT – volume de perméat en fonction du temps  $V(t)$

La méthodologie a été appliquée de manière à déterminer les paramètres phénoménologiques :

- paramètre de blocage  $\eta_B^*$  sur la zone  $n_I = 2$  ;
- taux de recouvrement de surface bloquée final  $\beta_{B,f}$  et paramètre caractérisant le gâteau,  $\eta_{S-I}^*$  sur la première zone où  $n_2 = 0$  ;
- paramètre caractérisant le gâteau,  $\eta_{S-II}^*$  sur la seconde zone où  $n_3 = 0$ .

Tableau V-3 : Toile FT – Blocage de pore

Age suspension	$Q_0$ ( $m^3 \cdot s^{-1}$ )	$Q_{B,0}$ ( $m^3 \cdot s^{-1}$ )	$\beta_i$	$V_{B,0}$ ( $m^3$ )	$V_{B,f}$ ( $m^3$ )	$\eta_B^*$ ( $m^{-1}$ )	$\beta_{B,f}$
<b>43 jours</b>	$7,8 \cdot 10^{-5}$	$2,3 \cdot 10^{-7}$	<b>99,70%</b>	0	$3,8 \cdot 10^{-6}$	<b>164</b>	<b>99,92%</b>
<b>49 jours</b>	$7,9 \cdot 10^{-5}$	$2,2 \cdot 10^{-7}$	<b>99,72%</b>	0	$5,3 \cdot 10^{-6}$	<b>126</b>	<b>99,88%</b>
<b>55 jours</b>	$7,8 \cdot 10^{-5}$	$5,3 \cdot 10^{-7}$	<b>99,32%</b>	0	$9,5 \cdot 10^{-6}$	<b>140</b>	<b>99,91%</b>

Tableau V-4 : Toile FT – Filtration sur gâteau

Age suspension	Gâteau I		Gâteau II	
	$V_{S,0-I} (m^3)$	$\eta_{S-I}^* (m^{-2})$	$V_{S,0-II} (m^3)$	$\eta_{S-II}^* (m^{-2})$
43 jours	$23,0 \cdot 10^{-6}$	$1,7 \cdot 10^{14}$	$111,0 \cdot 10^{-6}$	$0,9 \cdot 10^{14}$
49 jours	$11,9 \cdot 10^{-6}$	$2,2 \cdot 10^{14}$	$77,3 \cdot 10^{-6}$	$1,4 \cdot 10^{14}$
55 jours	$24,0 \cdot 10^{-6}$	$2,6 \cdot 10^{14}$	$96,2 \cdot 10^{-6}$	$1,5 \cdot 10^{14}$

Les tableaux V-3 et V-4 donnent les valeurs des paramètres du modèle des mécanismes identifiés ( $\eta_B^*$ ,  $\beta_{B,f}$ ,  $\eta_{S-I}^*$ ,  $\eta_{S-II}^*$ ) pour la toile FT. D’après le tableau V-3, le paramètre  $\eta_B^*$  varie d’une expérience à l’autre. Pour la formation du gâteau, le tableau V-4 montre que les paramètres  $\eta_{S-I}^*$  et  $\eta_{S-II}^*$  varient avec l’âge de la suspension. On remarque une reproductibilité difficile des expériences sur une suspension qualifiée de « vieillie ».

Le paramètre  $\eta_S^*$  est sensible à l’évolution de la suspension avec le temps de maturation. Le vieillissement de la suspension se traduit par une valeur de  $\eta_S^*$  plus élevée et un temps de filtration plus long pour un même volume filtré.

### 3.3.1.2 Suspension fraîche

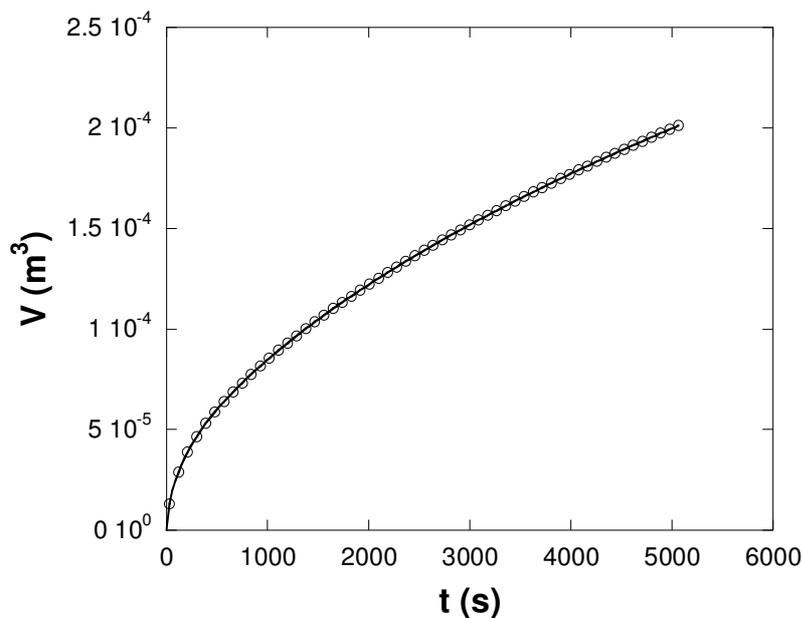


Figure V-12 : Courbe de filtration  $V(t)$  – suspension ZA fraîche sur toile FT

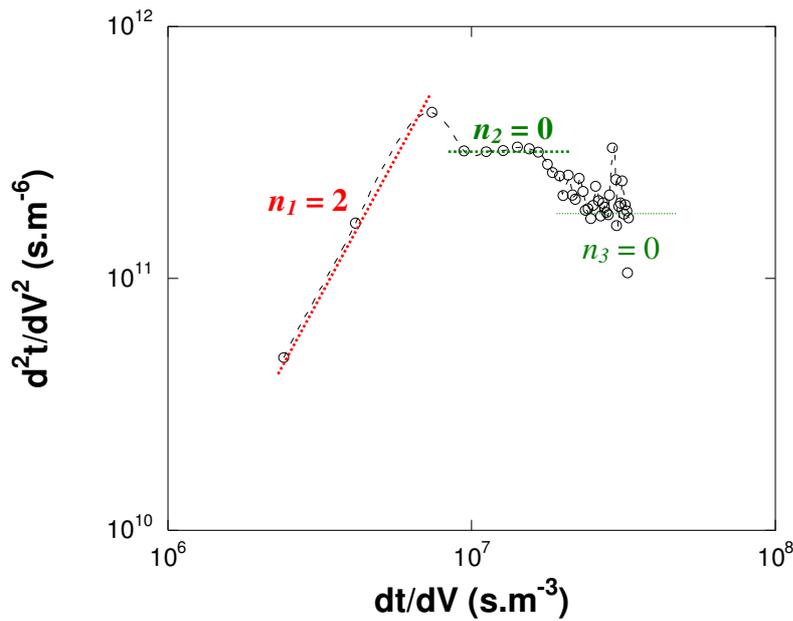


Figure V-13 :  $d^2t/dV^2$  en fonction de  $dt/dV$  – suspension ZA fraîche sur toile FT

Rappelons que la suspension de silice ZA fraîche a été prélevée directement au réacteur de précipitation, dont la température est de 70°C environ. Cette suspension a été filtrée dans les cinq minutes qui suivent le prélèvement. Si on compare les figures V-12 et V-9a, on filtre le même volume de perméat (200 mL) en 5000 s dans le cas de la suspension fraîche et en 8000 s une suspension vieille de 40 jours environ.

Sur la figure V-13, on retrouve pour la suspension fraîche la même succession de zones et dans le même ordre ( $n = 2 ; 0 ; 0$ ), que pour la suspension filtrée au laboratoire. La température moyenne de la suspension fraîche pendant l'opération de filtration était de 41°C. Nous avons corrigé les valeurs des données expérimentales  $V_{T=41^\circ C}(t)$  pour se ramener à une température de 22°C selon la relation suivante :  $V_{T=22^\circ C} = V_{T=41^\circ C} \times \frac{\mu_{(T=41^\circ C)}}{\mu_{(T=22^\circ C)}}$ . Les paramètres phénoménologiques pour la suspension fraîche ont été déterminés à partir des données corrigées  $V_{T=22^\circ C}(t)$ .

Tableau V-5 : Paramètres phénoménologiques pour la suspension fraîche ZA sur toile FT

$Q_0 (m^3.s^{-1})$	$Q_{B,0} (m^3.s^{-1})$	$\beta_i$	$\eta_B^* (m^{-1})$	$\beta_{B,f}$	$\eta_{S-I}^* (m^{-2})$	$\eta_{S-II}^* (m^{-2})$
$1,6.10^{-4}$	$4,4.10^{-7}$	<b>99,72%</b>	<b>130</b>	<b>99,95%</b>	<b><math>2,8.10^{14}</math></b>	<b><math>1,9.10^{14}</math></b>

D’après le tableau V-5, la suspension fraîche présente des coefficients de blocage  $\eta_B^*$  et de filtration sur gâteau,  $\eta_{S-I}^*$  et  $\eta_{S-II}^*$ , de même ordre de grandeur que la suspension « vieillie » : l’écart entre les durées de filtration des figures V-12 et V-9a est donc essentiellement dû à une différence de température.

*Campagne d’expériences sur site : Rhodia Silices – Collonges*

Nous avons voulu suivre le comportement en filtration d’une suspension dans les cinq jours suivant sa production.

Tableau V-6 : Evolution des paramètres du modèle avec l’âge de la suspension - Toile FT

<i>Age suspension (j)</i>	$Q_0 (m^3.s^{-1})$	$Q_{B,0} (m^3.s^{-1})$	$\beta_i$	$\eta_B^* (m^{-1})$	$\beta_{B,f}$	$\eta_{S-I}^* (m^{-2})$	$\eta_{S-II}^* (m^{-2})$
<b>0</b>	$1,56.10^{-4}$	$4,36.10^{-7}$	<b>99,72%</b>	<b>130</b>	<b>99,95%</b>	<b><math>2,8.10^{14}</math></b>	<b><math>1,9.10^{14}</math></b>
<b>2</b>	$7,22.10^{-5}$	$2,84.10^{-7}$	<b>99,61%</b>	<b>93</b>	<b>99,88%</b>	<b><math>1,6.10^{14}</math></b>	<b><math>1,0.10^{14}</math></b>
<b>5</b>	$6,05.10^{-5}$	$3,15.10^{-7}$	<b>99,48%</b>	<b>87</b>	<b>99,85%</b>	<b><math>1,9.10^{14}</math></b>	<b><math>1,7.10^{14}</math></b>

Le tableau V-6 montre que les paramètres du modèle évoluent peu avec l’âge de la suspension, mais ont tendance à diminuer avec la maturation de la suspension, dès lors que la filtration s’opère dans un délai de quelques jours.

### 3.3.2 Toile MS

Nous allons voir comment se décompose une courbe de filtration, lorsqu’on change de média filtrant. Pour chaque expérience, les mécanismes dominants responsables de la baisse de flux au cours du temps seront identifiés et caractérisés par les paramètres du modèle.

#### 3.3.2.1 Suspension « vieillie »

*Identification des mécanismes dominants apparents*

*Toile MS (âge de la suspension : 50 jours)*

Les figures V-14a et V-14b indiquent les mêmes comportements qualitativement pour la toile MS que pour la toile FT : une phase de blocage de média précède la formation d’un gâteau présentant un gradient de porosité passant assez brusquement d’une région dense proche de la surface du média filtrant à une partie moins compacte.

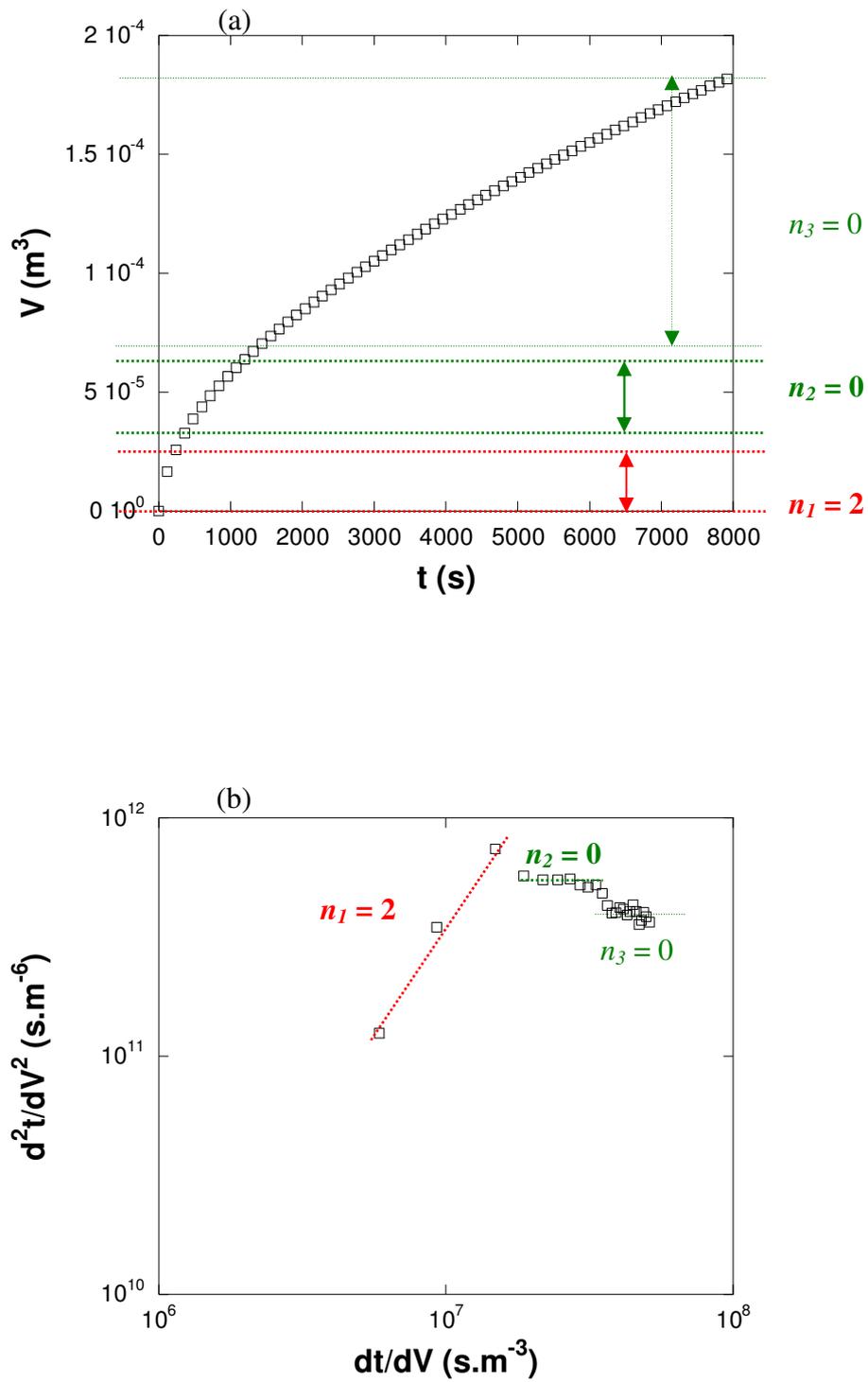


Figure V-14 : Filtration de silice ZA (âge = 50 jours) sur toile MS (a)  $V(t)$  ; (b)  $d^2t/dV^2$  en fonction de  $dt/dV$

Détermination des paramètres caractérisant les mécanismes dominants

Les expériences sur la toile MS ont été répétées trois fois à des dates différentes (figure V-15).

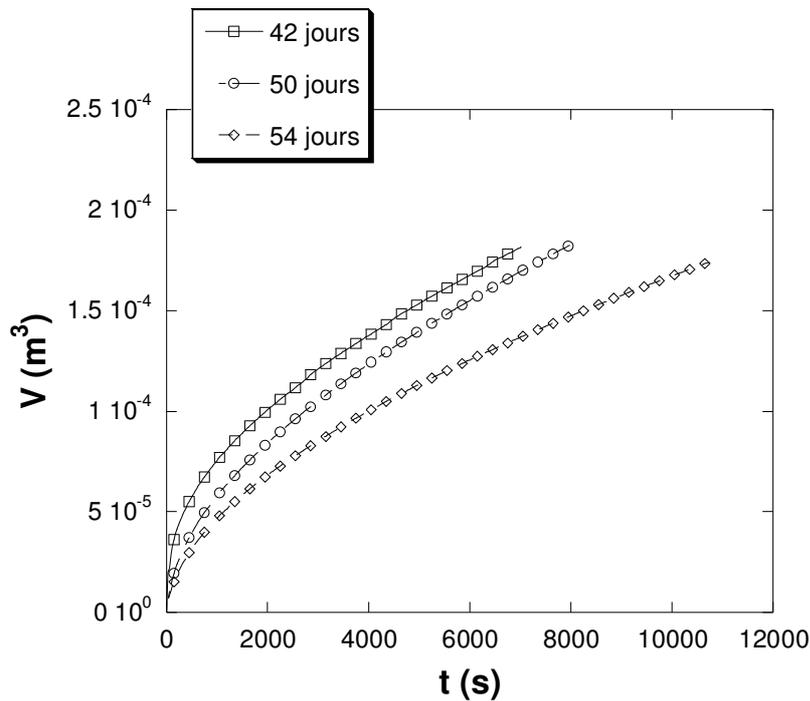


Figure V-15 : Expériences sur toile MS – volume de perméat en fonction du temps

Malgré la non – superposition des courbes de la figure V-15, les mêmes mécanismes ont pu être identifiés et dans le même ordre d'apparition.

Tableau V-7 : Toile MS – Blocage de pore

Age suspension	$Q_0 (m^3 \cdot s^{-1})$	$Q_{B,0} (m^3 \cdot s^{-1})$	$\beta_i$	$V_{B,0} (m^3)$	$V_{B,f} (m^3)$	$\eta_B^* (m^{-1})$	$\beta_{B,f}$
<b>42 jours</b>	$6,43 \cdot 10^{-5}$	$13,8 \cdot 10^{-7}$	<b>97,85 %</b>	0	$19,9 \cdot 10^{-6}$	<b>81</b>	<b>99,92 %</b>
<b>50 jours</b>	$6,73 \cdot 10^{-5}$	$2,5 \cdot 10^{-7}$	<b>99,63 %</b>	0	$7,7 \cdot 10^{-6}$	<b>98</b>	<b>99,89 %</b>
<b>54 jours</b>	$6,96 \cdot 10^{-5}$	$2,5 \cdot 10^{-7}$	<b>99,63 %</b>	0	$4,7 \cdot 10^{-6}$	<b>208</b>	<b>99,91 %</b>

Les tableaux V-7 et V-8 indiquent que le paramètre de blocage  $\eta_B^*$ , ainsi que les deux paramètres caractérisant les deux périodes de construction du gâteau ( $\eta_{S-I}^*$  ;  $\eta_{S-II}^*$ ) augmentent avec l'âge de la suspension.

Tableau V-8 : Toile MS – Filtration sur gâteau

Age suspension	Gâteau I		Gâteau II	
	$V_{S,0-I} (m^3)$	$\eta_{S-I}^* (m^{-2})$	$V_{S,0-II} (m^3)$	$\eta_{S-II}^* (m^{-2})$
42 jours	$53,6 \cdot 10^{-6}$	$2,0 \cdot 10^{14}$	$124,0 \cdot 10^{-6}$	$1,3 \cdot 10^{14}$
50 jours	$21,6 \cdot 10^{-6}$	$2,2 \cdot 10^{14}$	$90,5 \cdot 10^{-6}$	$1,5 \cdot 10^{14}$
54 jours	$17,1 \cdot 10^{-6}$	$3,2 \cdot 10^{14}$	$66,8 \cdot 10^{-6}$	$2,3 \cdot 10^{14}$

### 3.3.2.2 Suspension fraîche

Les figures V-16 et V-17 représentent respectivement la courbe de filtration expérimentale

$V(t)$  pour la suspension ZA fraîche sur toile MS, et la représentation  $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$

permettant d'identifier les zones où un type de mécanisme est dominant.

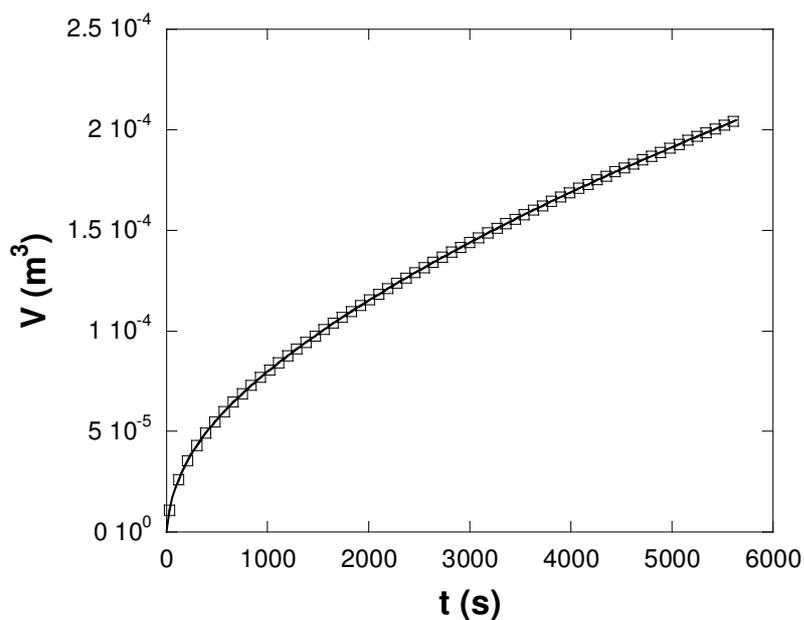


Figure V-16 : Courbe de filtration  $V(t)$  – suspension ZA fraîche sur toile MS

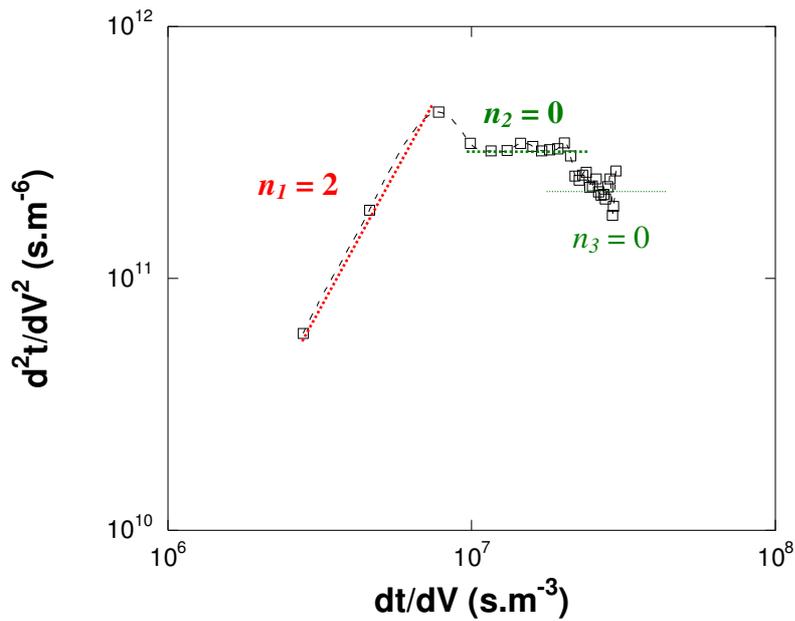


Figure V-17 :  $d^2t/dV^2$  en fonction de  $dt/dV$  - suspension ZA fraîche sur toile MS

Sur la figure V-17, on observe la même succession de zones que pour la suspension « vieille » filtrée au laboratoire ( $n = 2 ; 0 ; 0$ ).

Tableau V-9 : Paramètres phénoménologiques pour la suspension fraîche ZA sur toile MS

$Q_0 (m^3 \cdot s^{-1})$	$Q_{B,0} (m^3 \cdot s^{-1})$	$\beta_i$	$\eta_B^* (m^{-1})$	$\beta_{B,f}$	$\eta_{S-I}^* (m^{-2})$	$\eta_{S-II}^* (m^{-2})$
$1,21 \cdot 10^{-4}$	$3,1 \cdot 10^{-7}$	<b>99,74%</b>	<b>117</b>	<b>99,89%</b>	<b><math>2,9 \cdot 10^{14}</math></b>	<b><math>1,8 \cdot 10^{14}</math></b>

D'après la figure V-16, on a filtré 200 mL de perméat plus rapidement pour le cas de la suspension fraîche parce que la température de la suspension était de 70°C, au moment du prélèvement. En corrigeant la température pour s'affranchir de l'effet de la viscosité, les paramètres phénoménologiques, consignés dans le tableau V-9, sont du même ordre de grandeur que ceux déterminés pour la filtration de suspension qualifiée de « vieille » (cf. tableaux V-7 et V-8).

### 3.3.3 Comparaison des toiles FT et MS

Lors de l'étude concernant la filtration de suspensions de silice ZA sur des toiles de filtration (différentes en structure), on a montré la succession des mêmes mécanismes dominants et déterminé les paramètres phénoménologiques correspondants.

Il s'agit maintenant de comparer les valeurs de ces paramètres pour les deux toiles.

*Résistances hydrauliques avant et après filtration*

Tableau V-10 : Toile FT – Résistances avant et après filtration du média

<i>Age suspension</i>	$Q_0 (m^3 \cdot s^{-1})$	<i>Volume total filtré (<math>m^3</math>)</i>	$R_{m,0} (m^{-1})$	$R_{m,f} (m^{-1})$
<b>43 jours</b>	$7,8 \cdot 10^{-5}$	$219 \cdot 10^{-6}$	<b><math>7,5 \cdot 10^8</math></b>	<b><math>30,4 \cdot 10^8</math></b>
<b>49 jours</b>	$7,9 \cdot 10^{-5}$	$190 \cdot 10^{-6}$	<b><math>6,6 \cdot 10^8</math></b>	<b><math>40,1 \cdot 10^8</math></b>
<b>55 jours</b>	$7,8 \cdot 10^{-5}$	$185 \cdot 10^{-6}$	<b><math>6,8 \cdot 10^8</math></b>	<b><math>37,7 \cdot 10^8</math></b>

Tableau V-11 : Toile MS – Résistances avant et après filtration du média

<i>Age suspension</i>	$Q_0 (m^3 \cdot s^{-1})$	<i>Volume total filtré (<math>m^3</math>)</i>	$R_{m,0} (m^{-1})$	$R_{m,f} (m^{-1})$
<b>42 jours</b>	$6,4 \cdot 10^{-5}$	$182 \cdot 10^{-6}$	<b><math>1,0 \cdot 10^9</math></b>	<b><math>19,0 \cdot 10^9</math></b>
<b>50 jours</b>	$6,7 \cdot 10^{-5}$	$183 \cdot 10^{-6}$	<b><math>1,0 \cdot 10^9</math></b>	<b><math>8,7 \cdot 10^9</math></b>
<b>54 jours</b>	$7,0 \cdot 10^{-5}$	$174 \cdot 10^{-6}$	<b><math>0,3 \cdot 10^9</math></b>	<b><math>3,1 \cdot 10^9</math></b>

Après avoir filtré environ 200 mL, on remarque que, d'après le tableau V-10, la résistance de la toile FT a été multipliée par 5 après l'étape de filtration.

Pour la toile MS, la résistance  $R_{m,f}$  après filtration est 9 à 20 fois plus élevée que la résistance du média propre. Par ailleurs, la résistance hydraulique, pour l'expérience à 54 jours, est trois fois plus faible que celle des toiles testées précédemment. On peut supposer un défaut sur l'échantillon de toile découpée, d'origine ou qui est apparu au moment du montage de la toile dans la cellule. Dans les figures ci-après, nous tracerons l'évolution des paramètres phénoménologiques en fonction de l'âge de la suspension pour les toiles FT et MS.

Analyse du paramètre de blocage  $\eta_B^*$

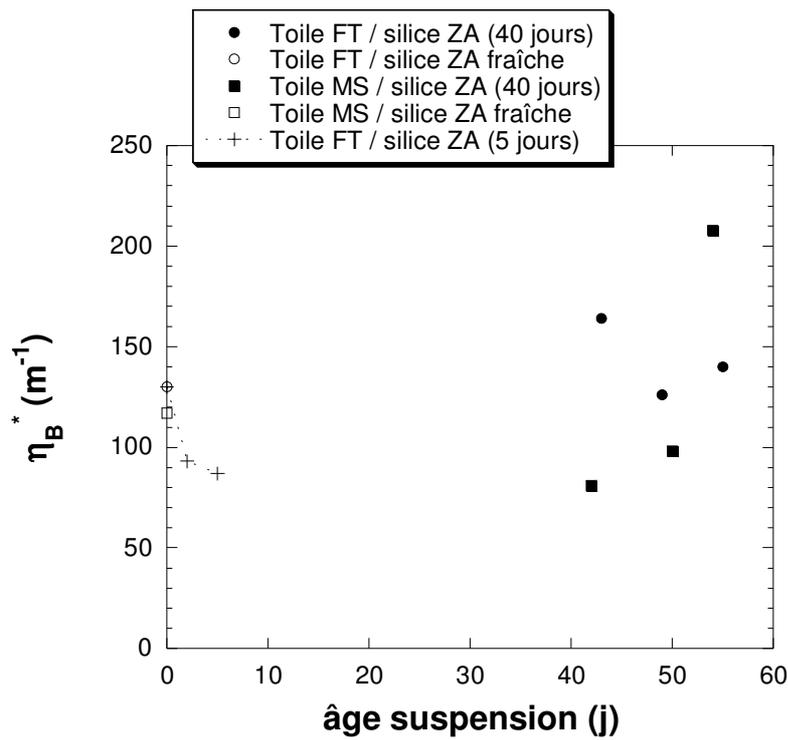


Figure V-18 : Variation du paramètre  $\eta_B^*$  en fonction de l'âge de la suspension

Analyse du taux de recouvrement de surface final  $\beta_{B,f}$

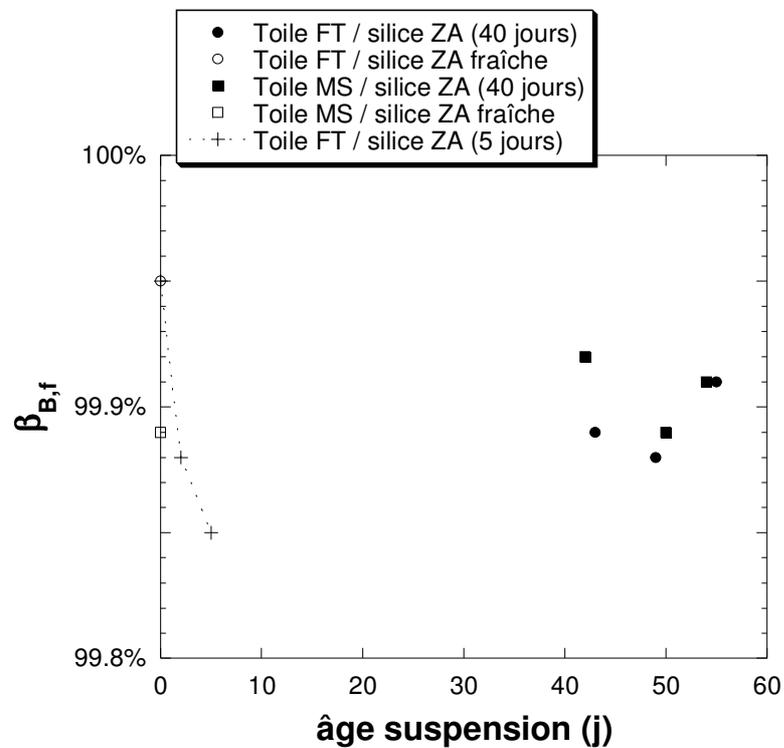


Figure V-19 : Variation de  $\beta_{B,f}$  en fonction de l'âge de la suspension

Analyse des paramètres de filtration sur gâteau ( $\eta_{S-I}^*$  et  $\eta_{S-II}^*$ )

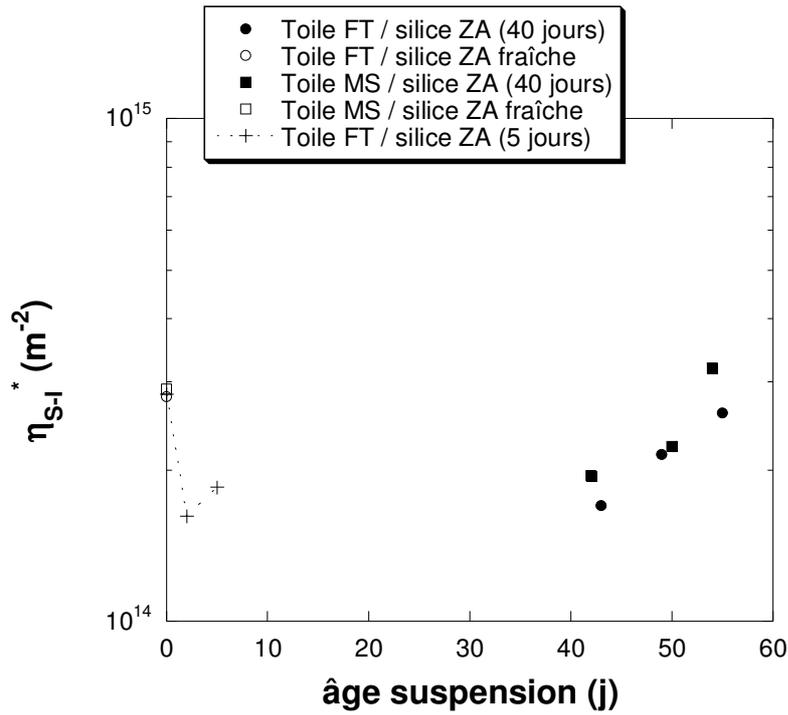


Figure V-20 : Variation du paramètre de filtration sur gâteau  $\eta_{S-I}^*$  en fonction de l'âge de la suspension ZA

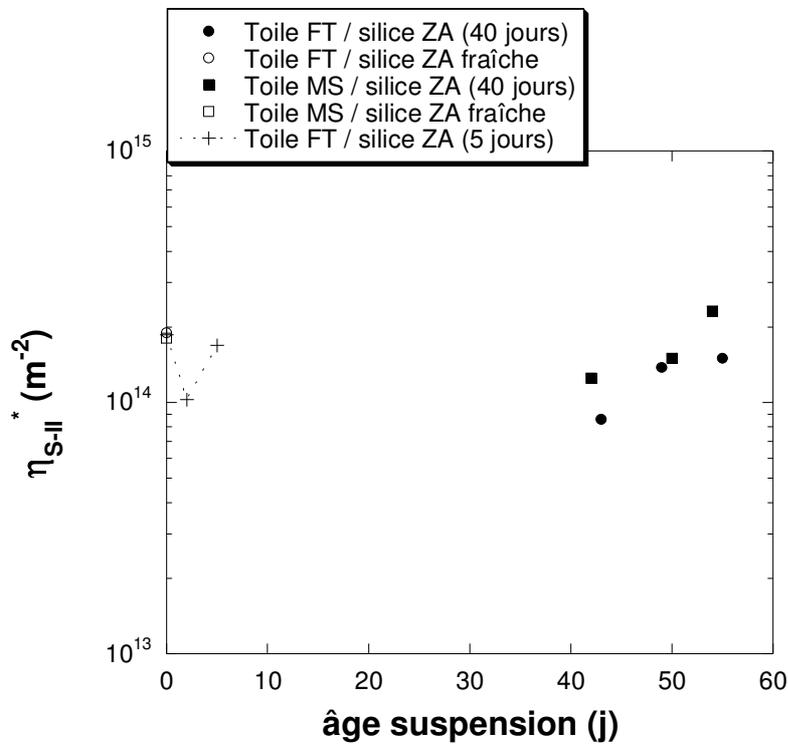


Figure V-21 : Variation du paramètre de filtration sur gâteau  $\eta_{S-II}^*$  en fonction de l'âge de la suspension ZA

Les suspensions « fraîches » et « vieilles » ne sont pas issues du même lot de fabrication.

Si on considère les expériences faites sur la suspension « vieillie » pour les deux toiles étudiées, on observe une fluctuation des points concernant les paramètres de blocage ( $\eta_B^*$  et  $\beta_{B,f}$ ) sur les figures V-18 et V-19. Cependant, les propriétés physico-chimiques telles que le pH et la conductivité de la suspension « vieillie » sont restées stables avec le temps (cf. annexe C §2). On peut suspecter une mauvaise remise en suspension des particules ou une mauvaise prise d'échantillons qui faussent la représentativité de la suspension ZA, ou encore une évolution non détectable par les mesures de paramètres de niveaux 1 et 2 qui sont à notre disposition. L'augmentation des paramètres caractérisant la filtration sur gâteau ( $\eta_{S-I}^*$  et  $\eta_{S-II}^*$ ) avec l'âge de la suspension (● : toile FT ; ■ : toile MS) traduit un accroissement de la résistance hydraulique totale pour un même volume filtré, lorsque la suspension vieillit.

Si on considère à présent le vieillissement de la suspension sur 5 jours (représenté par des symboles '+'), une évolution plus cohérente apparaît, qui suggère que le mûrissement de la suspension fait baisser les paramètres de blocage et de filtration sur gâteau.

La mauvaise répétabilité des expériences sur une suspension « vieillie » (même de quelques jours) et l'effet du mûrissement sur les paramètres du modèle montrent de manière indirecte l'intérêt de caractériser la filtration sur des suspensions fraîches.

## 4 Cycles de filtration – rétrolavage sur une toile de filtration

### 4.1 Objectifs de l'étude

Dans l'industrie, l'étape de rétrolavage est utilisée afin d'enlever de façon mécanique des particules qui restent accrochées à la surface du média filtrant après raclage du gâteau de filtration (cf. Fig. V-22). Le remplacement d'une toile de filtration représentant un coût non négligeable pour le procédé, on espère faire un maximum de cycles de filtration – rétrolavage avant d'avoir à changer de toile.

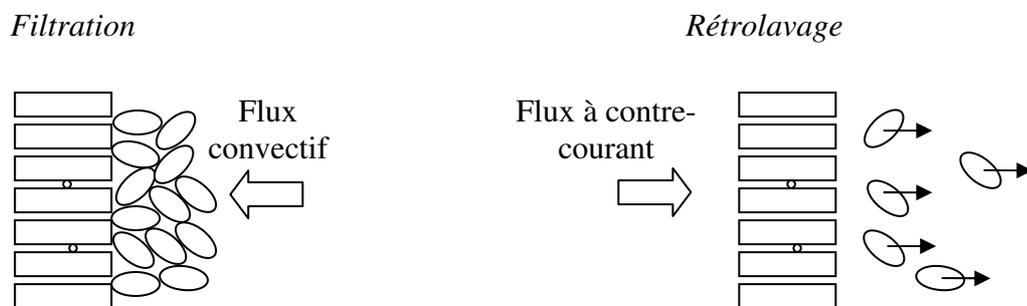


Figure V-22 : Principe du rétrolavage

Il s'agit dans un premier temps d'évaluer l'efficacité du rétrolavage sur sa capacité à récupérer la perméabilité initiale du média filtrant. Ensuite, nous verrons l'impact du colmatage non réversible (toile rétrolavée ayant une résistance plus grande que celle de la toile propre), en termes de paramètres phénoménologiques qui caractérisent les mécanismes dominants responsables de la baisse de flux. Les résultats présentés dans ce paragraphe concernent la suspension ZA fraîche.

### 4.2 Protocole

Afin de voir l'impact du colmatage sur la toile de filtration, nous avons réalisé plusieurs cycles de filtration - rétrolavage en utilisant la même toile, suivant le protocole opératoire :

1. mesure du flux  $J_0$  à travers la toile propre sous 1 bar
2. filtration de la suspension à 1 bar ; on arrête la filtration lorsqu'on a obtenu 200 mL de perméat

3. débâtissage du gâteau et nettoyage doux de la surface filtrante de la toile avec le jet d'une pissette d'eau osmosée
4. mesure du flux  $J_f$  à travers la toile colmatée après filtration sous 1 bar de pression
5. rétrolavage de la toile (la toile est retournée et par passage d'eau (4 litres) à la même pression de filtration (1 bar), on simule un rétrolavage)
6. mesure du flux  $J_r$  à travers la toile rétrolavée sous 1 bar de pression.

Puis, on recommence un deuxième cycle à partir de l'étape 2.

### 4.3 Efficacité du rétrolavage

#### 4.3.1 Toile FT

Nous allons nous intéresser dans un premier temps à l'évolution du rapport des flux  $J/J_0$  à travers la toile de filtration, avant filtration, après filtration, après rétrolavage, au cours de trois cycles.  $J_0$  est le flux à travers la toile propre à 1 bar de pression appliquée ;  $J_0 = 7,93.10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$  pour la toile FT.

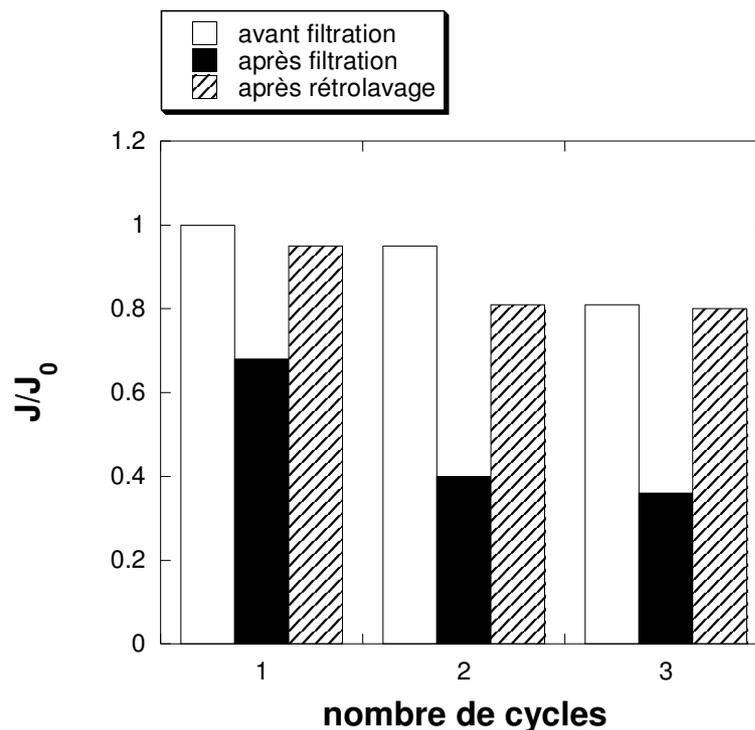


Figure V-23 : Rapports de flux  $J/J_0$  sous une pression de 1 bar pour la filtration de suspension fraîche sur la toile FT pour les trois cycles de filtration - rétrolavage

On remarque sur la figure V-23 que le rétrolavage permet de récupérer, en moyenne, 95% du flux avant filtration pour chaque cycle ( $J_{r(n+1)} \approx 0,95 \times J_{r(n)}$ ). A la fin du troisième cycle, le flux à travers la toile rétrolavée est égal à 80% du flux initial  $J_0$ .

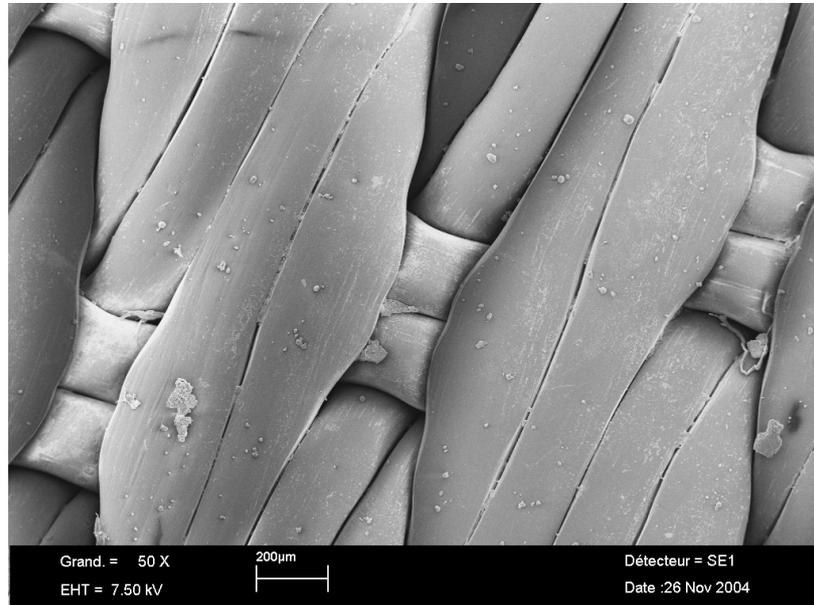


Figure V-24 : Photographie MEB de la toile FT après trois cycles de filtration - rétrolavage

D'après la figure V-24, la toile FT, après trois cycles de filtration de suspension fraîche, possède une surface peu colmatée, ce qui montre de manière qualitative, un rétrolavage assez efficace.

#### 4.3.2 Toile MS

D'après la figure V-25, pour les cycles de filtration – rétrolavage 1 et 2 concernant la toile MS, le rétrolavage permet de récupérer en moyenne 80% du flux avant filtration. Pour le cycle 3, après filtration, la toile a été abîmée lors du démontage de la cellule de filtration. Des contraintes mécaniques sur la toile ont, sans doute, modifié l'espacement entre les mailles, ce qui expliquerait l'augmentation des flux après filtration et après rétrolavage, par rapport au cycle précédent.

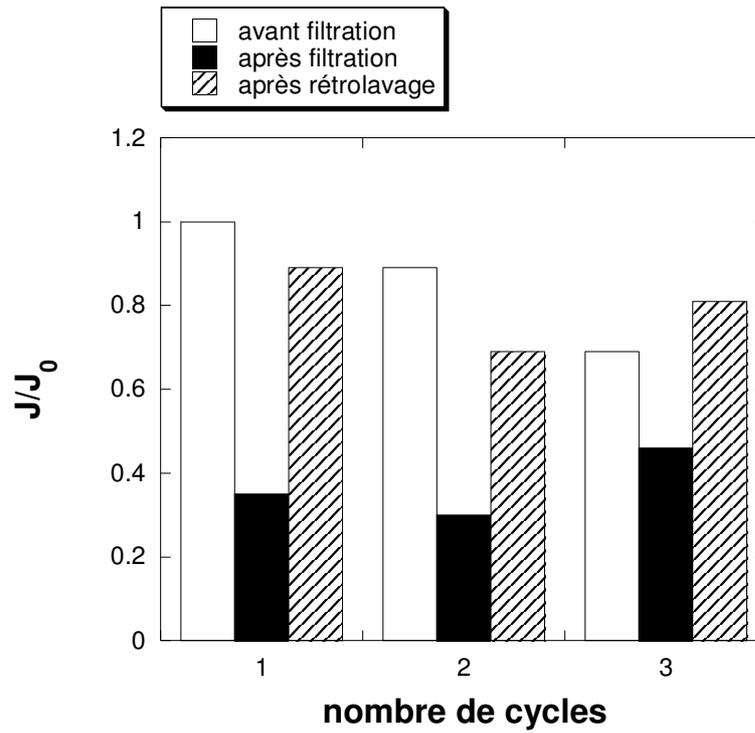


Figure V-25 : Rapports de flux  $J/J_0$  sous une pression de 1 bar pour la filtration de suspension fraîche sur la toile MS pour les trois cycles de filtration – rétrolavage

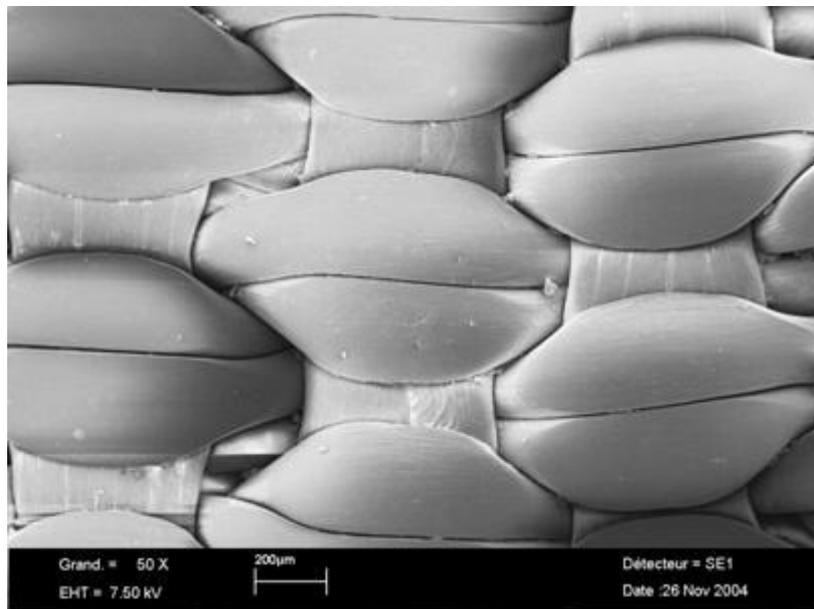


Figure V-26 : Photographie MEB de la toile MS après trois cycles de filtration - rétrolavage

La figure V-26 révèle un rétrolavage efficace permettant d’avoir une surface de toile MS encore propre même après trois cycles de filtration de suspension fraîche.

### 4.3.3 Conclusions générales sur l'efficacité du rétrolavage

Les photographies MEB, vues précédemment (cf. Figs V-24 et V-26), montrent des surfaces de média filtrants peu colmatées, ce qui prouve que l'étape de rétrolavage est efficace pour les toiles FT et MS, lorsqu'on filtre une suspension de silice ZA fraîchement produite.

Nous allons voir à présent l'influence des cycles filtration – rétrolavage sur les valeurs des paramètres caractérisant les mécanismes de colmatage et de filtration sur gâteau.

## 4.4 Impact des rétrolavages sur les paramètres du modèle

### 4.4.1 Toile FT

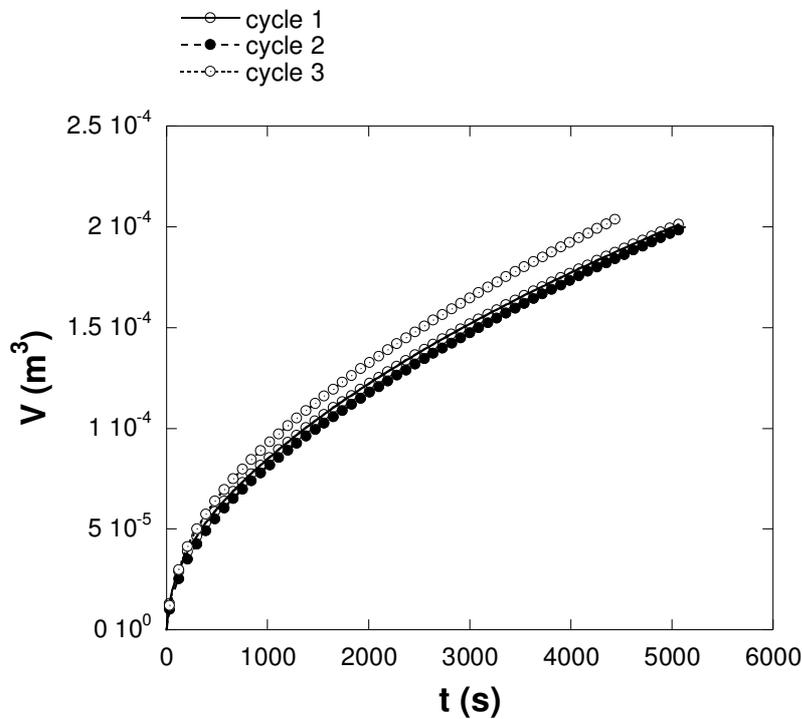


Figure V-27 : Courbes de filtration  $V(t)$  pour la toile FT

Sur la figure V-27, on remarque que, d'un cycle à l'autre, les courbes de filtration se superposent plutôt bien. Pour tous les cycles de filtration - rétrolavage, on observe les mêmes étapes de filtration (une zone où  $n_1 = 2$ , suivie de deux zones où  $n_2 = n_3 = 0$ ) (cf. Fig. V-28).

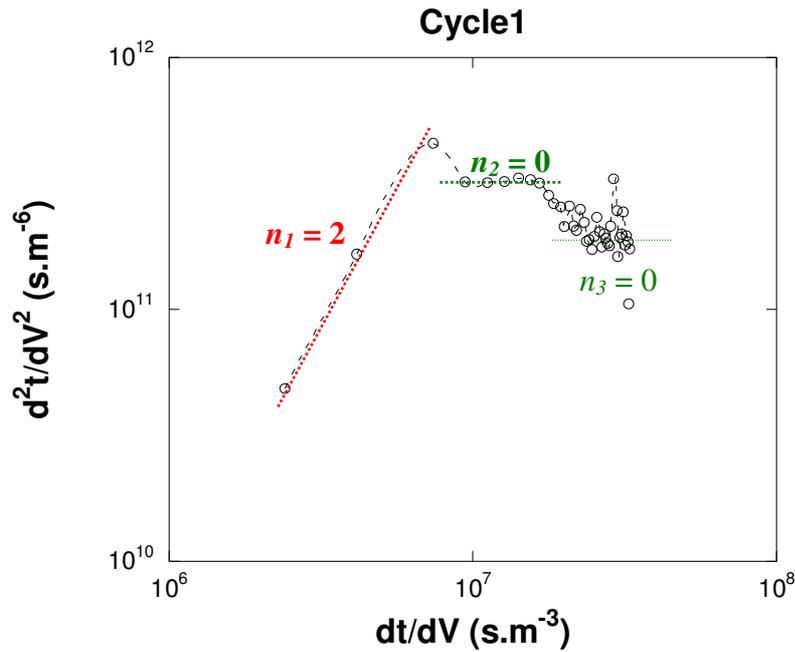


Figure V-28 : Représentation  $d^2t/dV^2$  en fonction de  $dt/dV$  pour le premier cycle de filtration – toile FT

Tableau V-12 : Paramètres du modèle pour le blocage et la formation de gâteau (toile FT / ZA fraîche)

<i>Cycle</i>	$Q_0 (m^3 \cdot s^{-1})$	$Q_{B,0} (m^3 \cdot s^{-1})$	$\beta_i$	$\eta_B^* (m^{-1})$	$\beta_{B,f}$	$\eta_{S-I}^* (m^{-2})$	$\eta_{S-II}^* (m^{-2})$
<b>1</b>	$1,56 \cdot 10^{-4}$	$4,36 \cdot 10^{-7}$	<b>99,72%</b>	<b>130</b>	<b>99,95%</b>	<b><math>2,8 \cdot 10^{14}</math></b>	<b><math>1,9 \cdot 10^{14}</math></b>
<b>2</b>	$1,47 \cdot 10^{-4}$	$2,88 \cdot 10^{-7}$	<b>99,82%</b>	<b>107</b>	<b>99,96%</b>	<b><math>2,6 \cdot 10^{14}</math></b>	<b><math>1,6 \cdot 10^{14}</math></b>
<b>3</b>	$1,26 \cdot 10^{-4}$	$3,27 \cdot 10^{-7}$	<b>99,79%</b>	<b>85</b>	<b>99,95%</b>	<b><math>2,2 \cdot 10^{14}</math></b>	<b><math>1,6 \cdot 10^{14}</math></b>

D'après le tableau V-12, les valeurs des paramètres du modèle varient peu d'un essai à l'autre.

4.4.2 Toile MS

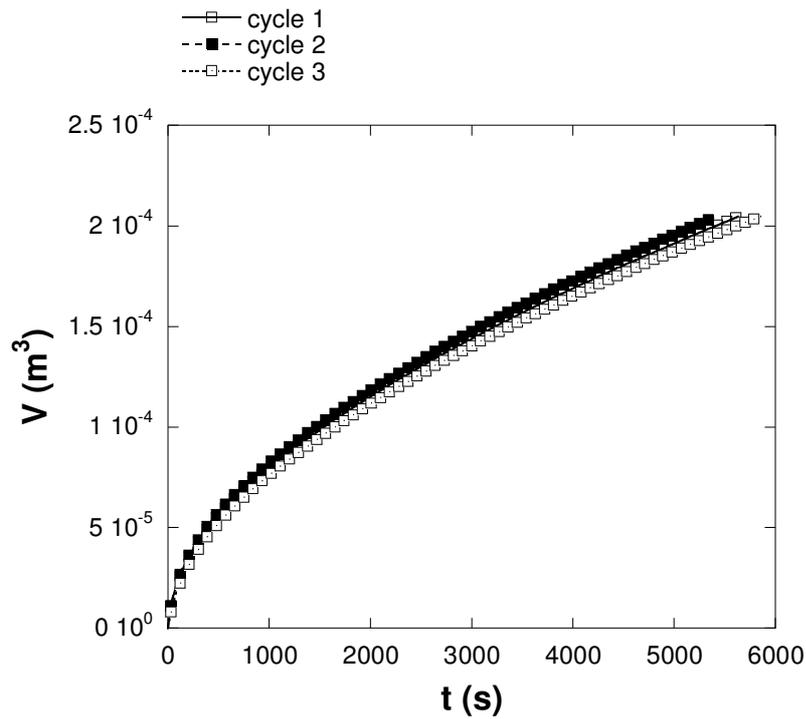


Figure V-29 : Courbes de filtration  $V(t)$  pour la toile MS

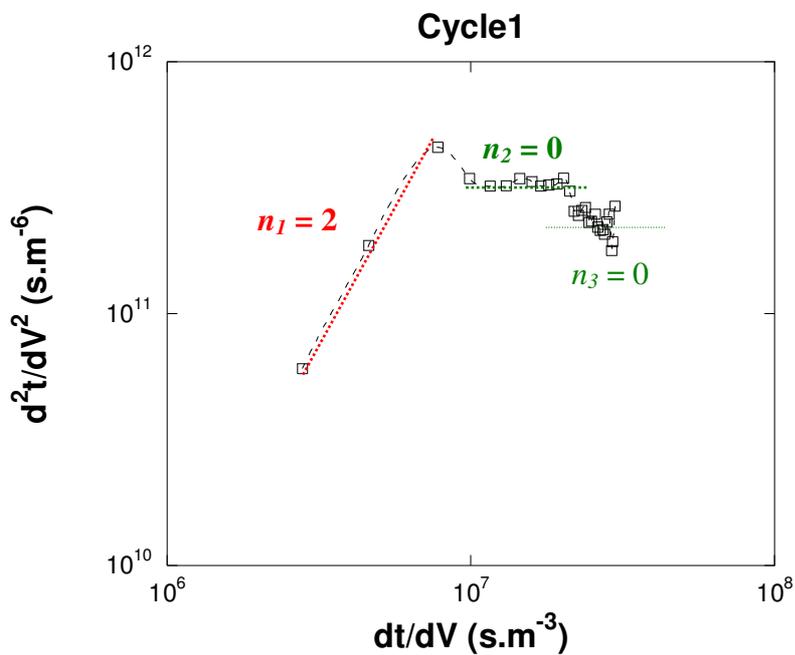


Figure V-30 : Représentation  $d^2t/dV^2$  en fonction de  $dt/dV$  pour le premier cycle de filtration – toile MS

Concernant la toile MS, nous pouvons établir les mêmes remarques que pour la toile FT. D'un cycle à l'autre, les expériences de filtration sur la suspension fraîche offrent une bonne répétabilité (cf. figure V-29). Sur la figure V-30, on identifie toujours les trois zones ( $n_1 = 2$  ;  $n_2 = n_3 = 0$ ) sur une représentation  $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$  en échelle log-log.

Tableau V-13 : Paramètres du modèle pour le blocage et la formation de gâteau (toile MS / ZA fraîche)

<i>Cycle</i>	$Q_0 (m^3.s^{-1})$	$Q_{B,0} (m^3.s^{-1})$	$\beta_i$	$\eta_B^* (m^{-1})$	$\beta_{B,f}$	$\eta_{S-I}^* (m^{-2})$	$\eta_{S-II}^* (m^{-2})$
<b>1</b>	$1,21.10^{-4}$	$3,13.10^{-7}$	<b>99,74%</b>	<b>117</b>	<b>99,89%</b>	<b><math>2,9.10^{14}</math></b>	<b><math>1,8.10^{14}</math></b>
<b>2</b>	$1,08.10^{-4}$	$3,32.10^{-7}$	<b>99,74%</b>	<b>117</b>	<b>99,94%</b>	<b><math>2,7.10^{14}</math></b>	<b><math>1,7.10^{14}</math></b>
<b>3</b>	$8,31.10^{-5}$	$2,08.10^{-7}$	<b>99,83%</b>	<b>96</b>	<b>99,95%</b>	<b><math>2,8.10^{14}</math></b>	<b><math>1,9.10^{14}</math></b>

Finalement, le rétrolavage ne modifie ni la succession des mécanismes successifs, ni les valeurs des paramètres associés.

#### 4.4.3 Comparaison FT/MS

Afin de comparer les deux toiles de filtration, nous avons représenté graphiquement l'évolution des paramètres du modèle en fonction du nombre de cycles de filtration – rétrolavage, à partir des valeurs des tableaux V-12 et V-13.

Analyse des paramètres caractérisant le blocage :  $\eta_B^*$  et  $\beta_{B,f}$

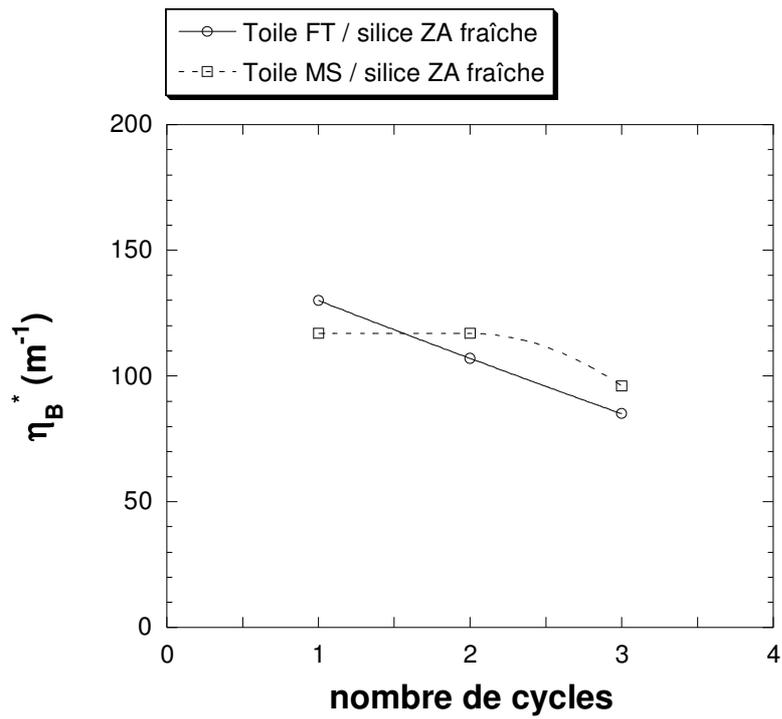


Figure V-31 : Evolution du paramètre de blocage  $\eta_B^*$  en fonction du nombre de cycles de filtration – rétrolavage

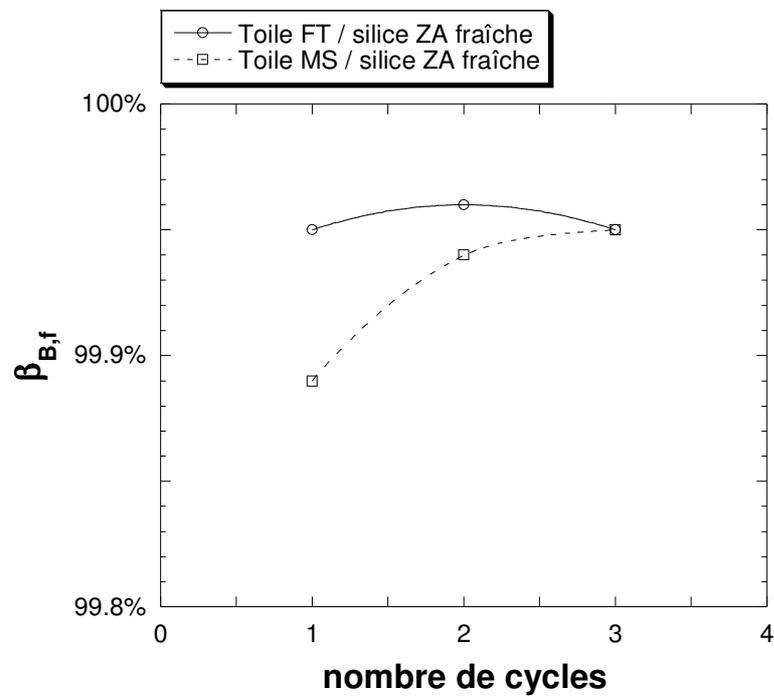


Figure V-32 : Evolution du paramètre  $\beta_{B,f}$  en fonction du nombre de cycles de filtration – rétrolavage

Analyse des paramètres de filtration sur gâteau ( $\eta_{S-I}^*$  et  $\eta_{S-II}^*$ )

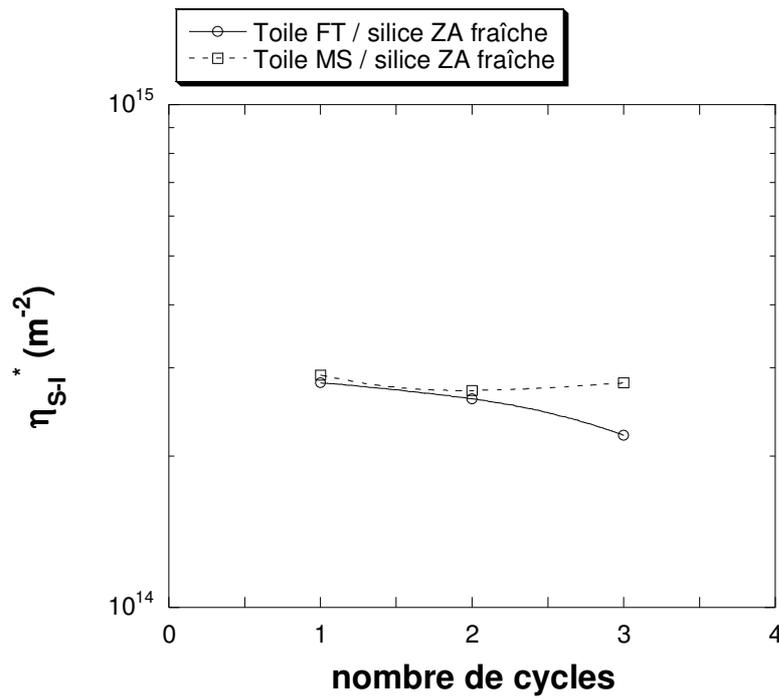


Figure V-33 : Evolution du paramètre de filtration sur gâteau  $\eta_{S-I}^*$  en fonction du nombre de cycles de filtration – rétrolavage

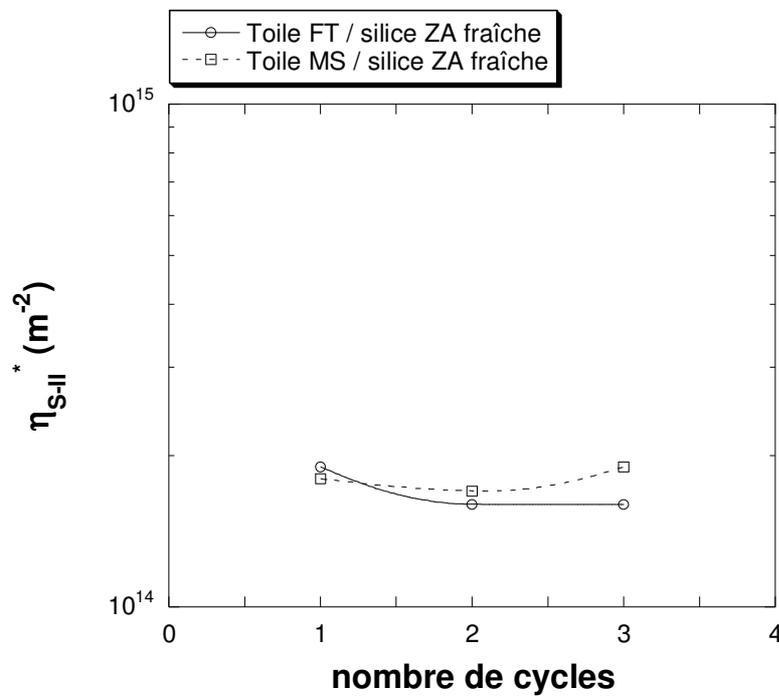


Figure V-34 : Evolution du paramètre de filtration sur gâteau  $\eta_{S-II}^*$  en fonction du nombre de cycles de filtration – rétrolavage

La filtration de suspension ZA fraîche, que ce soit sur toile FT ou sur toile MS, présente des paramètres comparables ( $\eta_B^*$ ,  $\eta_{S-I}^*$  et  $\eta_{S-II}^*$ ). De plus, les valeurs de ces paramètres semblent rester constantes sur trois cycles de filtration – rétrolavage. On en conclut que la structure de la surface du média filtrant a peu d'influence sur la filtration de la suspension ZA fraîche. Il serait intéressant de connaître l'évolution de ces paramètres sur un nombre de cycles plus important.

## 5 Discussion

Le paragraphe *Discussion* ne portera que sur les expériences de filtration de la suspension ZA fraîche, sur les toiles de filtration FT et MS. Nous essaierons d'évaluer la masse déposée de particules pendant les deux premières périodes ( $n_1 = 2$  et  $n_2 = 0$ ), dans le but de qualifier le changement de pente observé lors du régime de filtration sur gâteau ( $\eta_{S-I}^* > \eta_{S-II}^*$ ).

La dernière partie consistera à faire des simulations de cycles de filtration afin d'évaluer la capacité de l'approche à prédire le colmatage des toiles de filtration, à partir du paramètre caractérisant le blocage,  $\eta_B^*$ .

### 5.1 Comparaison toiles de filtration pour la silice ZA

Dans la partie 4.3, nous avons pu remarquer que pour les mêmes conditions opératoires, le rétrolavage, après filtration, était plus efficace pour la toile FT (80% du flux initial) que pour la toile MS (70% du flux initial) (cf. Fig. V-35).

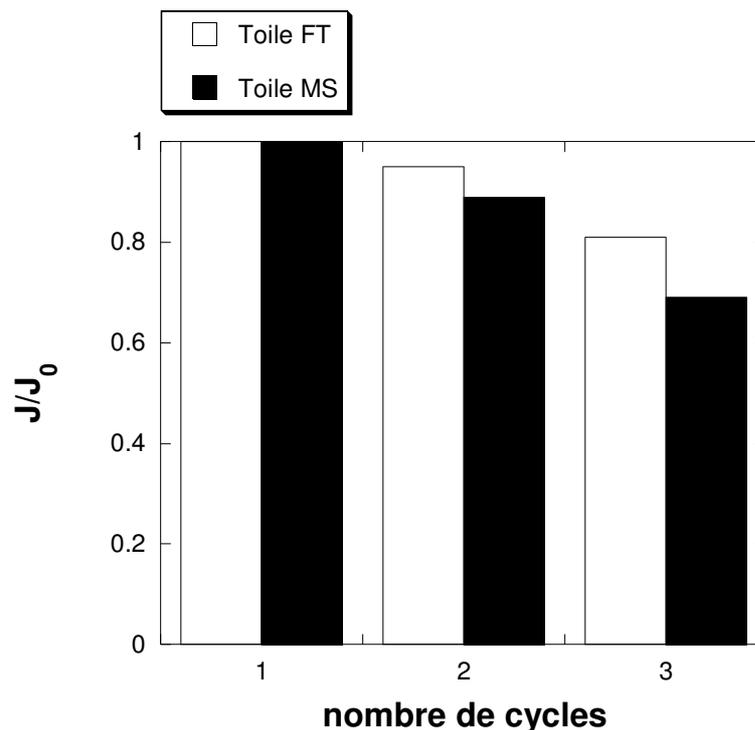


Figure V-35 : Evolution du rapport  $J/J_0$  ( $J$  flux avant filtration) pour les toiles FT et MS

Ces tendances ne sont basées que sur trois cycles de filtration – rétrolavage. On peut supposer que l'écart entre les deux toiles se creuse, pour un nombre de cycles plus important.

En termes de paramètres phénoménologiques qui caractérisent les mécanismes responsables de la baisse de flux, il n’y a pas de différence notable entre les deux toiles.

## 5.2 Masse « déposée » à l’intérieur et à la surface du média filtrant

Nous nous sommes intéressés à la quantité de matière capturée lors de la phase de blocage ( $n_1 = 2$ ) et d’autre part, à la quantité de matière déposée pendant la zone où  $n_2 = 0$ .

Calcul de la masse déposée  $M_s$

$$M_s = V_{filtré} \times C \quad (V.1)$$

où,  $C = 103 \text{ kg.m}^{-3}$  et une probabilité de capture  $\eta_i = 1$  ( $i = B, S-I$ ).

Calcul de l’épaisseur de la masse de déposée  $Z$

$$Z = \frac{M_s}{A \cdot (1 - \varepsilon_d) \cdot \rho_s} \quad (V.2)$$

Pour la suspension ZA, la masse volumique ( $\rho_s$ ) des particules est de  $3105 \text{ kg/m}^3$ . En première approximation, la porosité  $\varepsilon_d$  du gâteau de particules est prise égale à 0,4. L’aire filtrante est :  $A = 19,63 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2$ .

Tableau V-14 : Masse déposée de particules de silice et épaisseur équivalente - toile FT

$n_1 = 2$			$n_2 = 0$		
$V_{B,f} \text{ (m}^3\text{)}$	$M_{s1} \text{ (kg)}$	$Z_1 \text{ (}\mu\text{m)}$	$V_{S,f} - V_{S,0} \text{ (m}^3\text{)}$	$M_{s2} \text{ (kg)}$	$Z_2 \text{ (}\mu\text{m)}$
$8,8 \cdot 10^{-6}$	$9,01 \cdot 10^{-4}$	<b>247</b>	$15,4 \cdot 10^{-6}$	$1,58 \cdot 10^{-3}$	<b>433</b>
$8,5 \cdot 10^{-6}$	$8,77 \cdot 10^{-4}$	<b>240</b>	$24,2 \cdot 10^{-6}$	$2,50 \cdot 10^{-3}$	683
$10,0 \cdot 10^{-6}$	$1,03 \cdot 10^{-3}$	<b>282</b>	$14,6 \cdot 10^{-6}$	$1,50 \cdot 10^{-3}$	<b>411</b>

Tableau V-15 : Masse déposée de particules de silice et épaisseur équivalente - toile MS

$n_1 = 2$			$n_2 = 0$		
$V_{B,f} \text{ (m}^3\text{)}$	$M_{s1} \text{ (kg)}$	$Z_1 \text{ (}\mu\text{m)}$	$V_{S,f} - V_{S,0} \text{ (m}^3\text{)}$	$M_{s2} \text{ (kg)}$	$Z_2 \text{ (}\mu\text{m)}$
$8,9 \cdot 10^{-6}$	$9,18 \cdot 10^{-4}$	<b>251</b>	$21,4 \cdot 10^{-6}$	$2,20 \cdot 10^{-3}$	<b>603</b>
$9,2 \cdot 10^{-6}$	$9,48 \cdot 10^{-4}$	<b>259</b>	$22,1 \cdot 10^{-6}$	$2,28 \cdot 10^{-3}$	<b>623</b>
$9,3 \cdot 10^{-6}$	$9,62 \cdot 10^{-4}$	<b>263</b>	$21,6 \cdot 10^{-6}$	$2,23 \cdot 10^{-3}$	<b>610</b>

Pendant la phase de blocage ( $n_1 = 2$ ), les valeurs des épaisseurs  $Z_1$  de matière déposée sont du même ordre de grandeur ( $Z_1 \approx 260 \mu\text{m}$ ) pour les deux toiles, FT et MS.

L'épaisseur  $Z_1$  a été reportée sur les figures V-36 et V-37, représentant respectivement les coupes transversales des toiles FT et MS. Le diamètre moyen d'une particule de silice ( $Z_A$ ) est de  $80\ \mu\text{m}$  environ. Cela correspond à la superposition de trois monocouches de particules de taille moyenne. Cet ordre de grandeur demeure réaliste. Cependant, quand on regarde les photos des toiles colmatées, on peut penser que la phase de blocage ( $n_1 = 2$ ) est réalisée par des fines qui se logent entre deux fils.

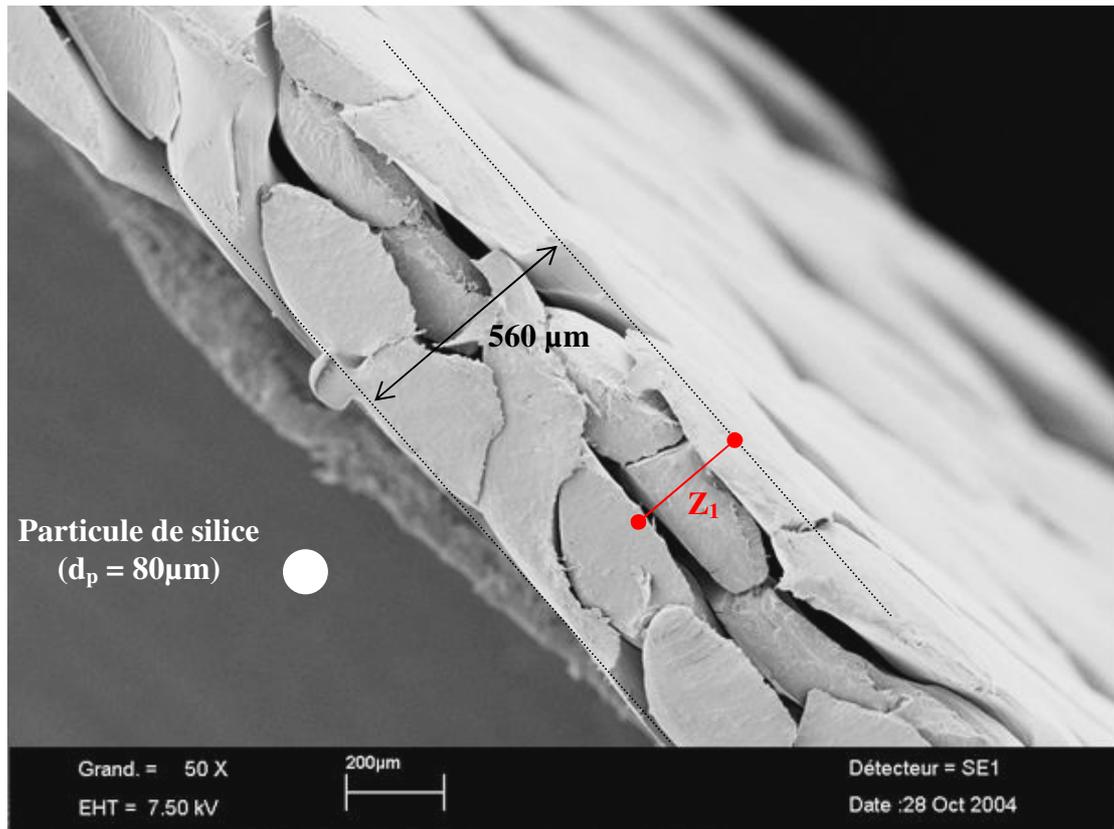


Figure V-36 : Coupe transversale de la toile FT (Photographie MEB)

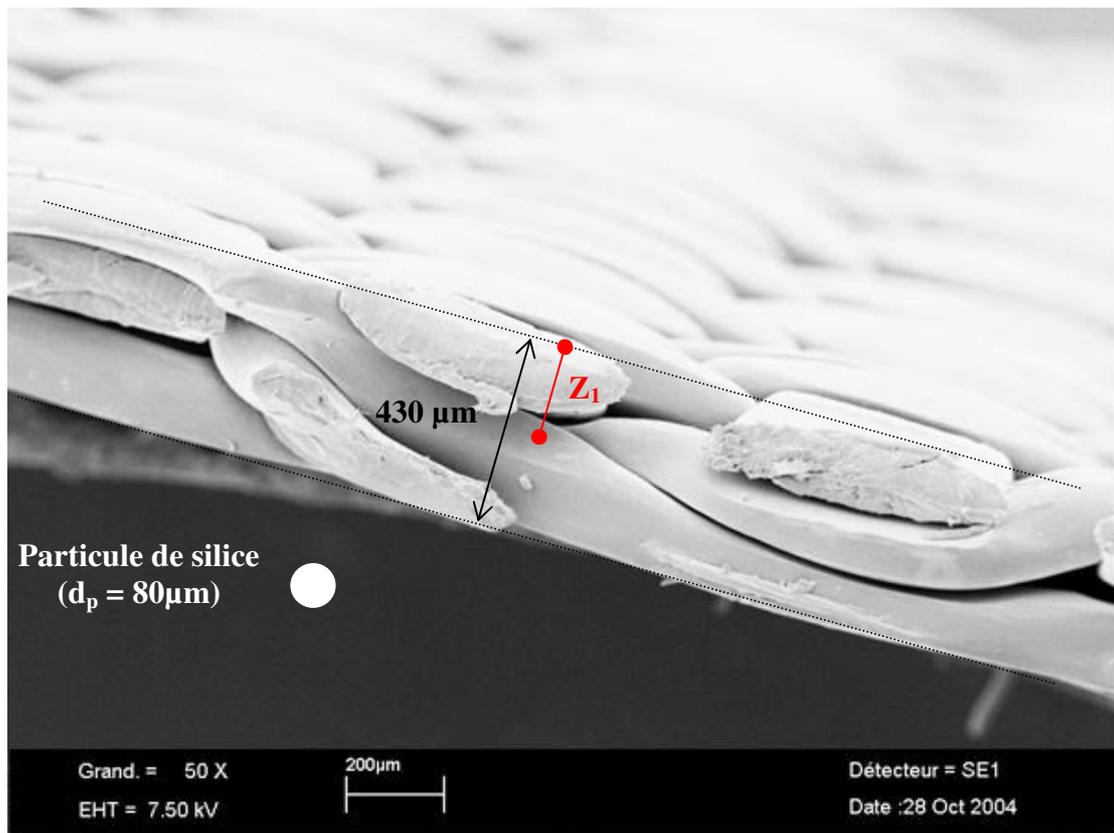


Figure V-37 : Coupe transversale de la toile MS (Photographie MEB)

On peut supposer que la zone où  $n_2 = 0$  correspond à la formation des premières couches du gâteau, encore influencées par la structure de la toile. D'après la figure V-38 (A), ci-après, on peut penser que les lignes de courant soient fortement déviées par la sous-couche de la toile. Dans cette hypothèse, l'épaisseur équivalente  $Z_2$  de la couche de matière peut être considérée comme la quantité de matière déposée nécessaire à la mise en place du régime de filtration ( $n_3 = 0$ ). D'après les tableaux V-14 et V-15, l'épaisseur  $Z_2$  est sensiblement plus grande dans le cas de la toile MS. Ce résultat semble être cohérent avec la structure de la surface des média, qui est plus ouverte dans le cas de la toile MS ; elle requiert une quantité plus importante de matière déposée pour s'affranchir de l'influence de la structure de la toile. On peut aussi rapprocher l'épaisseur  $Z_2$  de la largeur d'un double fil de la surface filtrante de la toile. Il est de  $550 \mu\text{m}$  pour la toile FT et de  $600 \mu\text{m}$  pour la toile MS (cf. figures V-4 et V-5). Les valeurs obtenues pour  $Z_2$  sont donc du même ordre de grandeur que la largeur d'un double fil. Il faudrait alors avoir une épaisseur de gâteau au moins égale à la largeur d'un double fil de la toile pour que les lignes de courant ne soient plus déviées (cf. figure V-38 (B)), et parvenir au régime de filtration ( $n_3 = 0$ ).

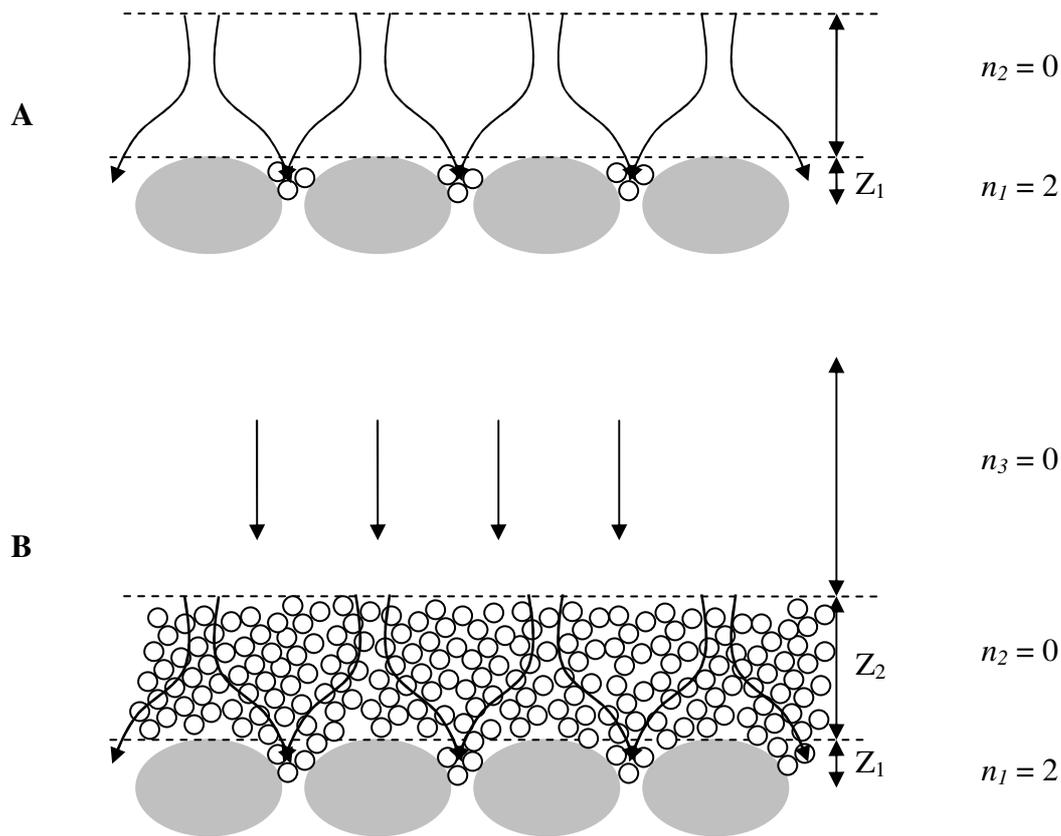


Figure V-38 : Différentes étapes de blocage et de formation du gâteau de filtration pour la filtration de silice précipitée sur un média tissé de type toile

### 5.3 Description du phénomène de colmatage en terme de résistance hydraulique

Dans le but de montrer la correspondance entre nos paramètres et ceux qui sont usuellement utilisés, en particulier par les industriels, nous avons défini des équations permettant d'exprimer un type de résistance hydraulique (générée par une réduction du volume poreux, une réduction de surface filtrante ou la construction d'un gâteau de filtration) en fonction des paramètres phénoménologiques.

#### 5.3.1 Modélisation du colmatage par le phénomène de blocage de pore

Il s'agit ici d'étudier l'impact de la valeur du paramètre  $\eta_B^*$  sur la résistance du média filtrant colmaté, notée  $R_{mB}$  et calculée à partir de l'expression suivante :

$$R_{mB} = \frac{R_{m,0}}{1 - \beta_B} = \frac{R_{m,0}}{1 - \eta_B^* \cdot \frac{V_B}{A}} \quad (V.3)$$

Dans l'équation (V.3), le terme  $V_B$  correspond au volume filtré pendant la phase de blocage du média.

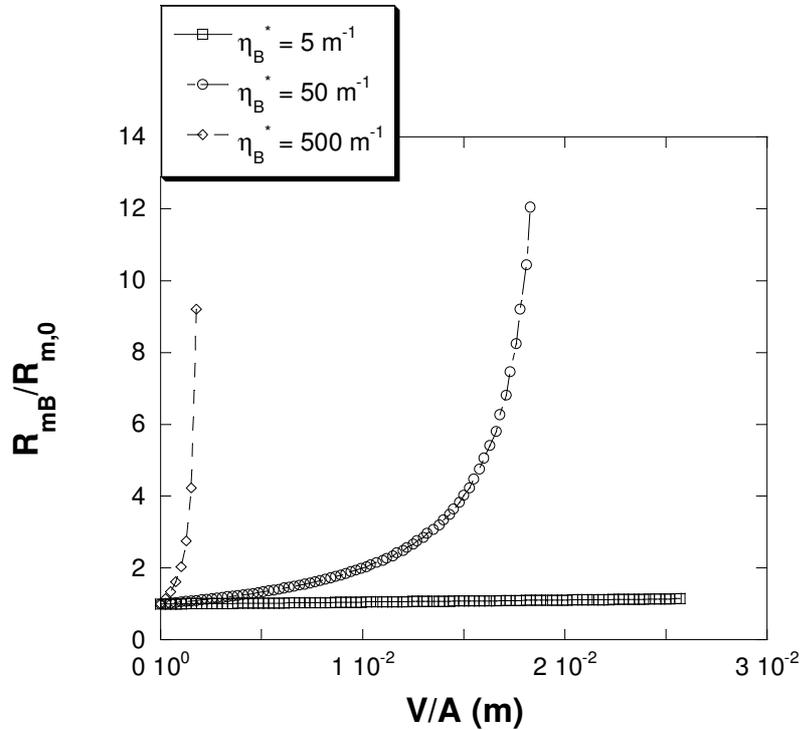


Figure V-39 : Simulation de  $R_{mB}/R_{m,0} = f(V/A)$  pour trois valeurs de  $\eta_B^*$  données

A partir de l'équation (V.3), on peut déterminer un volume filtré théorique maximal par  $m^2$  de surface filtrante,  $V_{Bmax}/A$ , qui conduirait à un blocage complet du média filtrant (c'est-à-dire une résistance  $R_{mB}$  infinie) :

$$\frac{V_{Bmax}}{A} = \frac{1}{\eta_B^*} \quad (V.4)$$

Tableau V-16 : Valeurs de  $V_{Bmax}/A$ , volume de perméat par  $m^2$  de surface filtrante, et du rapport  $R_{mB}/R_{m,0}$ , calculé à partir de l'équation (V.3)

$\eta_B^* (m^{-1})$	$V_{Bmax}/A (m)$	$R_{mB}/R_{m,0} / V_B/A = 1,53 \cdot 10^{-3} m$	$\beta_B / V_B/A = 1,53 \cdot 10^{-3} m$
5	$2 \cdot 10^{-1}$	1,0	1%
50	$2 \cdot 10^{-2}$	1,1	10%
500	$2 \cdot 10^{-3}$	4,2	75%

D'après le tableau V-16, on remarque que pour une faible valeur de  $V_B/A$  imposée ( $V_B/A = 1,53.10^{-3}$  m), le média est peu ou pas colmaté pour  $\eta_B^* = 5$  et  $50 \text{ m}^{-1}$  : la valeur de sa résistance est égale à la résistance du média propre  $R_{m,0}$ . En revanche, pour  $\eta_B^* = 500 \text{ m}^{-1}$ , la résistance du média colmaté par blocage ( $R_{mB}$ ) est 4 fois plus grande que celle du média propre, ce qui signifie que la toile est très colmatée (pour  $V_B/A = 1,53.10^{-3}$  m et  $\eta_B^* = 500 \text{ m}^{-1}$ , le taux de recouvrement de surface est de 75% environ).

*Expériences de filtration sur la suspension de silice ZA*

Tableau V-17 : Estimation des paramètres de blocage pour la toile FT

$\eta_B^*$ ( $\text{m}^{-1}$ )	Expériences			Calcul	
	$R_{m,0}$ ( $\text{m}^{-1}$ )	$R_{m,f}$ ( $\text{m}^{-1}$ )	$V_{B,f}$ ( $\text{mL}$ )	$V_{B^*}$ ( $\text{mL}$ )/ $R_{mB}=R_{m,f}$	$\beta_B$ / $R_{mB}=R_{m,f}$
<b>164</b>	$7,6.10^8$	$30,4.10^8$	<b>3,8</b>	<b>9,0</b>	75%
<b>126</b>	$6,6.10^8$	$40,1.10^8$	<b>5,3</b>	<b>13,0</b>	83%
<b>140</b>	$6,8.10^8$	$37,7.10^8$	<b>9,5</b>	<b>11,5</b>	82%
<b>166</b>	$6,7.10^8$	$22,5.10^8$	<b>5,8</b>	<b>8,3</b>	70%
<b>272</b>	$6,9.10^8$	$25,8.10^8$	<b>3,4</b>	<b>5,3</b>	73%
<b>130<sup>4</sup></b>	$3,5.10^8$	$10,8.10^8$	<b>8,8</b>	<b>10,0</b>	66%

Tableau V-18 : Estimation des paramètres de blocage pour la toile MS

$\eta_B^*$ ( $\text{m}^{-1}$ )	Expériences			Calcul	
	$R_{m,0}$ ( $\text{m}^{-1}$ )	$R_{m,f}$ ( $\text{m}^{-1}$ )	$V_{B,f}$ ( $\text{mL}$ )	$V_{B^*}$ ( $\text{mL}$ )/ $R_{mB}=R_{m,f}$	$\beta_B$ / $R_{mB}=R_{m,f}$
<b>81</b>	$1,0.10^9$	$19,0.10^9$	<b>19,9</b>	<b>23,0</b>	95%
<b>98</b>	$1,0.10^9$	$8,7.10^9$	<b>7,7</b>	<b>17,7</b>	88%
<b>208</b>	$0,3.10^9$	$3,1.10^9$	<b>4,7</b>	<b>8,55</b>	91%
<b>383</b>	$0,9.10^9$	$4,7.10^9$	<b>1,9</b>	<b>3,95</b>	77%
<b>117<sup>5</sup></b>	$0,7.10^9$	$5,0.10^9$	<b>8,9</b>	<b>14,5</b>	86%

Dans les tableaux V-17 et V-18, les valeurs du paramètre proviennent des expériences de filtration menées sur la suspension ZA. Pour chacune des valeurs de  $\eta_B^*$ ,  $R_{m,0}$  et  $R_{m,f}$ , résistances hydrauliques de la toile avant et après filtration, ont été mesurées par la méthode

<sup>4</sup> suspension fraîche

<sup>5</sup> suspension fraîche

du « flux à l'eau »<sup>6</sup>. Le volume filtré  $V_{B,f}$ , quantité de perméat passé pendant la période où le régime de blocage est dominant, a été déterminé par l'application de notre méthodologie et correspond à la fin de la phase de blocage ( $n_I = 2$ ). Nous avons aussi estimé les valeurs de  $V_{B^*}$ , volume filtré correspondant à  $R_{mB} = R_{m,f}$ , (l'expression de  $R_{mB}$  a été donnée par l'équation (V.3)) suivant :

$$V_{B^*} = \frac{A}{\eta_B^*} \times \left( 1 - \frac{R_{m,0}}{R_{m,f}} \right) \quad (V.5)$$

Que ce soit pour la toile FT ou pour la toile MS, les volumes  $V_{B,f}$  sont inférieurs aux volumes  $V_{B^*}$  estimés par l'expression (V.5).

### 5.3.2 Estimation du volume de transition $V_{trans}$ entre les régimes de blocage et de filtration sur gâteau

A partir des paramètres phénoménologiques ( $\eta_B^*$  et  $\eta_{S-I}^*$ ), nous allons voir comment il est possible de calculer de manière numérique un volume de transition  $V_{trans}$  entre le régime de blocage ( $n_I = 2$ ) et le premier régime de filtration sur gâteau ( $n_2 = 0$ ). L'objectif est de comparer par la suite ce volume de transition obtenu par simulation au volume  $V_{B,f}$  déterminé par la méthodologie, correspondant à la fin du régime de blocage ( $n_I = 2$ ). Pour ce faire, nous allons simuler les résistances  $R_{mB}$  du média colmaté et  $R_d$  du gâteau.

#### *Résistance du média colmaté $R_{mB}$*

Nous avons vu que pour toutes les filtrations menées sur la suspension ZA, la résistance du média est environ 1000 fois plus importante que la résistance du média propre, et ce dès le début de la filtration. Nous noterons cette résistance de média colmaté,  $R_{mB,0}$ . Elle a été calculée à partir du débit  $Q_{B,0}$ , qui a été déterminé quant à lui à partir des premiers points expérimentaux  $V(t)$  :

$$R_{mB,0} = \frac{\Delta P \cdot A}{\mu \cdot Q_{B,0}} \quad (V.6)$$

avec  $Q_{B,0} = \left. \frac{dV}{dt} \right|_{t=t_{B,0}=0}$

---

<sup>6</sup>  $R_{m,0}$  et  $R_{m,f}$  ont été déterminées par la loi d'Ergun (Eq. I.3)

L'expression (V.3) devient :

$$R_{mB} = \frac{R_{mB,0}}{1 - \beta_B} = \frac{R_{mB,0}}{1 - \frac{\eta_B^*}{A} \cdot V} \quad (V.7)$$

En utilisant l'expression (V.7), la résistance  $R_{mB}$  pour  $V = 0$  vaut alors  $R_{mB,0}$ .

*Résistance du gâteau  $R_d$*

$$R_d = \frac{\eta_S^*}{A} \cdot V \quad (V.8)$$

*Expressions de  $\frac{dt}{dV}$  et  $\frac{d^2t}{dV^2}$  en fonction de la résistance  $R$  totale à l'écoulement*

Dans le cas de la filtration de silice sur une toile de filtration, on a  $R = R_{mB} + R_d$ .

$$\frac{dt}{dV} = \frac{\mu}{A \cdot \Delta P} \times (R_{mB} + R_d) \quad (V.9)$$

Si on dérive l'équation (V.9) par rapport à  $V$ , on obtient une expression de  $\frac{d^2t}{dV^2}$  :

$$\frac{d^2t}{dV^2} = \frac{\mu}{A \cdot \Delta P} \times \left( \frac{dR_{mB}}{dV} + \frac{dR_d}{dV} \right) \quad (V.10)$$

Nous exploiterons l'équation (V.10) de la manière suivante :

- nous tracerons sur le même graphe les courbes  $\frac{dR_{mB}}{dV}$  et  $\frac{dR_d}{dV}$  en fonction du volume filtré  $V$  ;
- l'intersection de ces deux courbes, si intersection il y a, donne la valeur du volume de transition,  $V_{trans}$ , entre les deux régimes.

*Exemple de détermination de  $V_{trans}$*

Nous prendrons le cas de la filtration de suspension ZA fraîche sur toile FT. Les valeurs des paramètres nécessaires à la détermination de  $V_{trans}$  sont les suivants :

$$\eta_B^* = 130 \text{ m}^{-1} ; \eta_{S-I}^* = 2,83 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2} ; R_{mB,0} = 4,72 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-1} \text{ et } A = 19,63 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2.$$

Sur la figure V-40, nous avons tracé les deux courbes,  $\frac{dR_{mB}}{dV} = f(V)$  et  $\frac{dR_d}{dV} = g(V)$ , calculées à partir des paramètres ci-dessus. L'intersection des deux courbes nous permet d'évaluer le volume de transition,  $V_{trans}$ , entre le régime de blocage et le régime de filtration sur gâteau.

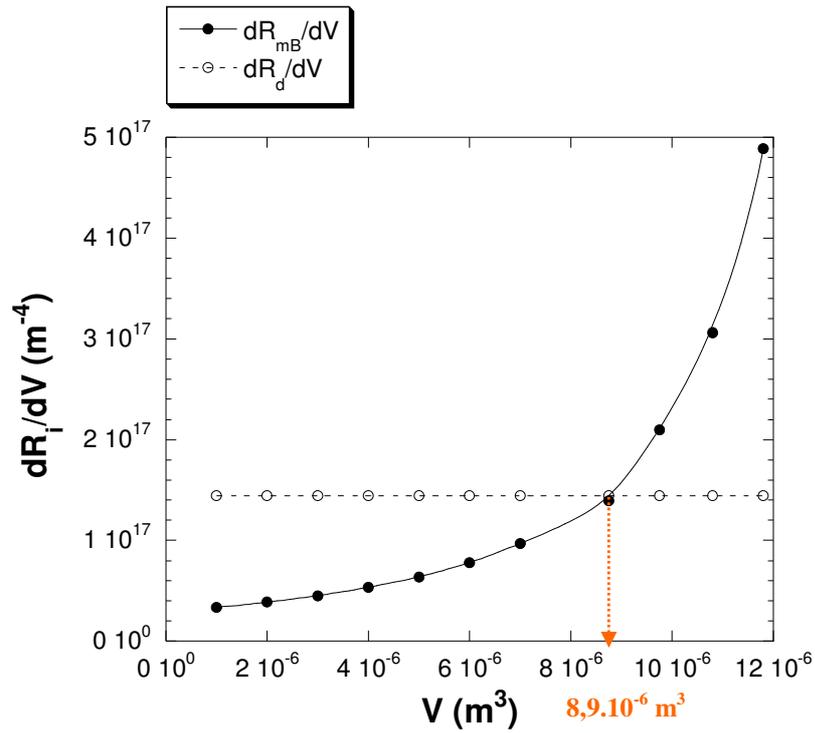

 Figure V-40 : Détermination graphique du volume de transition  $V_{trans}$ 

 Tableau V-19 : Comparaison des volumes  $V_{B,f}$  et  $V_{trans}$  pour les toiles FT et MS

$\eta_B^*$ (m <sup>-1</sup> )	Toile FT		Toile MS		
	$V_{B,f}$ (mL)	$V_{trans}$ (mL)	$\eta_B^*$ (m <sup>-1</sup> )	$V_{B,f}$ (mL)	$V_{trans}$ (mL)
164	<b>3,8</b>	<b>1,45</b>	81	<b>19,9</b>	<b>19,2</b>
126	<b>5,3</b>	<b>4,7</b>	98	<b>7,7</b>	<b>8,0</b>
140	<b>9,5</b>	<b>8,0</b>	208	<b>4,7</b>	<b>3,0</b>
166	<b>5,8</b>	<b>4,4</b>	383	<b>1,9</b>	N/A <sup>7</sup>
272	<b>3,4</b>	<b>2,3</b>	117	<b>8,9</b>	<b>8,6</b>
130	<b>8,8</b>	<b>8,9</b>			

<sup>7</sup> Les deux courbes ne se croisent pas.

A la vue des valeurs consignées dans le tableau V-19, les valeurs obtenues par la méthode précédente de  $V_{trans}$  sont toutes du même ordre de grandeur que les valeurs de  $V_{B,f}$ , déterminées comme le volume correspondant à la fin du régime de blocage (fin de la zone où  $n_1 = 2$  pour la représentation  $\frac{d^2t}{dV^2} = f\left(\frac{dt}{dV}\right)$ ).

Les expériences de filtration sur la silice précipitée ont montré qu'une phase de blocage précédait une phase de production (construction du gâteau). Afin de prévoir les transitions de régime à plus grande échelle, on pourra déterminer le volume de transition,  $V_{trans}$ , à partir d'expériences assez courtes (il n'est pas nécessaire de mener la filtration jusqu'à l'obtention de la zone où  $n_3 = 0$ ), et de la connaissance des paramètres  $\eta_B^*$  et  $\eta_{S-I}^*$ .

### 5.3.3 Simulation des cycles de filtration

Nous allons estimer le colmatage du média sur une dizaine de cycles à partir de données obtenues sur deux ou trois cycles de filtration. Dans cette partie, nous utiliserons les données issues de la filtration de la suspension ZA fraîche sur les toiles FT et MS.

Tableau V-20 : Données issues des cycles de filtration - rétrolavage ZA fraîche / toile FT

Cycle	$R_{m,0} (m^{-1})$	$R_{m,f} (m^{-1})$	$\eta_B^* (m^{-1})$	$V_{B^*} (m^3)$
1	$3,48.10^8$	$1,08.10^9$	130	$1,0.10^{-5}$
2	$4,47.10^8$	$1,75.10^9$	107	$1,3.10^{-5}$
3	$5,42.10^8$	$1,97.10^9$	85	$1,7.10^{-5}$

Dans le tableau V-20,  $V_{B^*}$  est le volume estimé par l'équation (V.5) pour passer de la résistance de toile avant filtration ( $R_{m,0}$ ) à la résistance après filtration ( $R_{m,f}$ ). Pour la simulation du colmatage de la toile FT (cf. tableau V-20), nous prendrons une valeur moyenne de  $\eta_B^*$  de  $107 m^{-1}$  et un volume écoulé  $V_{B^*}$  de  $1,3.10^{-5} m^3$ .

Tableau V-21 : Données issues des cycles de filtration - rétrolavage ZA fraîche / toile MS

Cycle	$R_{m,0} (m^{-1})$	$R_{m,f} (m^{-1})$	$\eta_B^* (m^{-1})$	$V_{B^*} (m^3)$
1	$6,92.10^8$	$5,02.10^9$	117	$1,5.10^{-5}$
2	$8,90.10^8$	$4,55.10^9$	117	$1,4.10^{-5}$
3	$2,06.10^9$	$2,72.10^9$	96	$0,5.10^{-5}$

Pour la toile MS (cf. tableau V-21), nous prendrons une valeur moyenne de  $\eta_B^*$  de  $110 \text{ m}^{-1}$  et un volume écoulé  $V_{B^*}$  de  $1,0 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3$ .

*Procédures de simulation*

Cycles successifs de filtration sans rétrolavage.

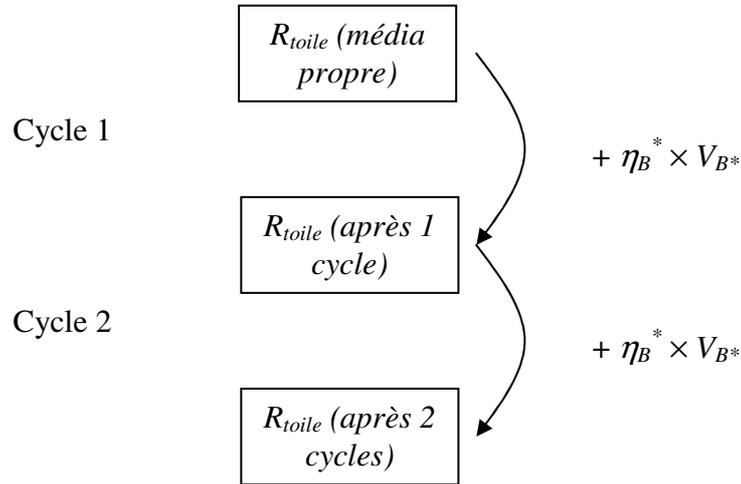


Figure V-41 : Organigramme permettant de simuler deux cycles de filtration

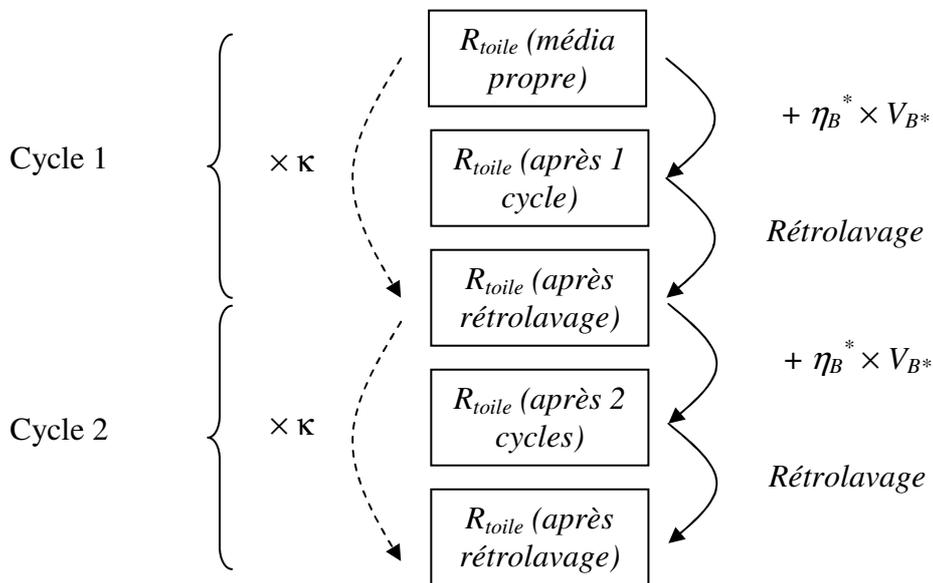


Figure V-42 : Organigramme permettant de simuler deux cycles de filtration - rétrolavage

Sur la figure V-42, le coefficient multiplicatif  $\kappa$  permet de passer de la résistance de toile avant filtration à la résistance de toile après rétrolavage. Que ce soit pour la toile FT ou la

toile MS, après rétrolavage, on ne retrouve pas la même résistance en début et en fin de cycle filtration – rétrolavage (cf. tableaux V-20 et V-21). Cependant, le rétrolavage est plus efficace pour la toile FT que pour la toile MS. Pour la toile FT, on prendra  $\kappa = 1,2$  ; et pour la toile MS,  $\kappa = 1,8$ . Ces coefficients ont été déterminés à partir des valeurs de résistances de toiles avant chaque début de cycle qui sont consignées dans les tableaux V-20 et V-21.

Nous allons montrer dans les figures qui suivent les simulations de 10 cycles successifs pour les toiles FT et MS.

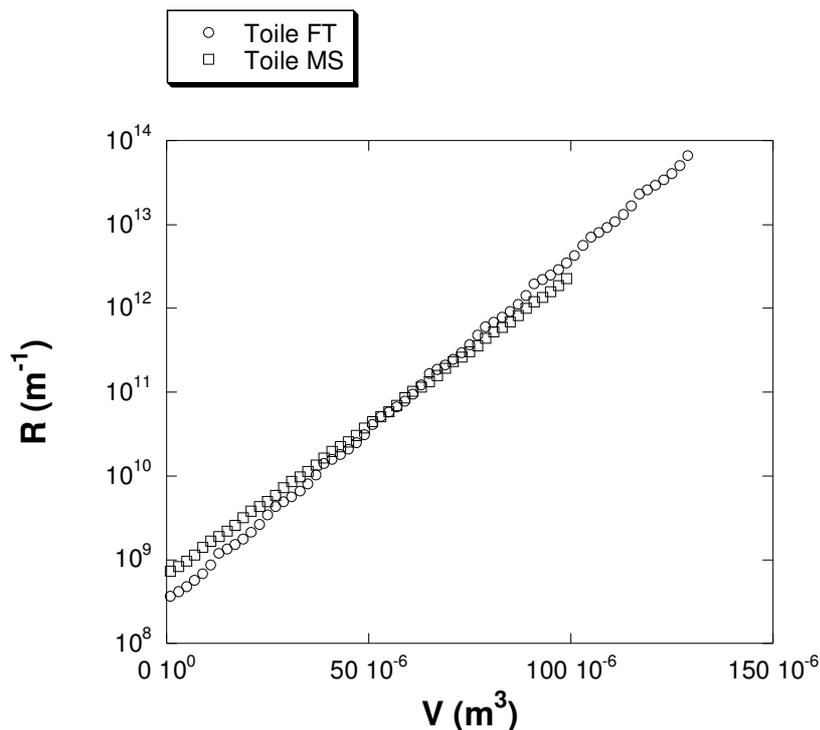


Figure V-43 : Représentation graphique des simulations  $R(V)$  de 10 cycles de filtration sans rétrolavage pour les toiles FT et MS

La figure V-43 montre que les deux toiles se colmatent approximativement de la même manière avec une résistance plus élevée pour la toile FT au bout de dix cycles de filtration. Ceci est dû en grande partie au fait que le volume  $V_{B^*}$  estimé pour colmater le média est plus grand pour la toile FT que pour la toile MS. Par ailleurs, nous avons pris des valeurs moyennes pour le paramètre  $\eta_B^*$ , alors que la valeur du paramètre  $\eta_B^*$  diminue à chaque nouveau cycle sur la toile FT. L'évolution de ce paramètre sur une dizaine de cycles serait donc très utile.

Ainsi, dans le cas où on ne fait pas de rétrolavage, les deux toiles semblent avoir un comportement similaire.

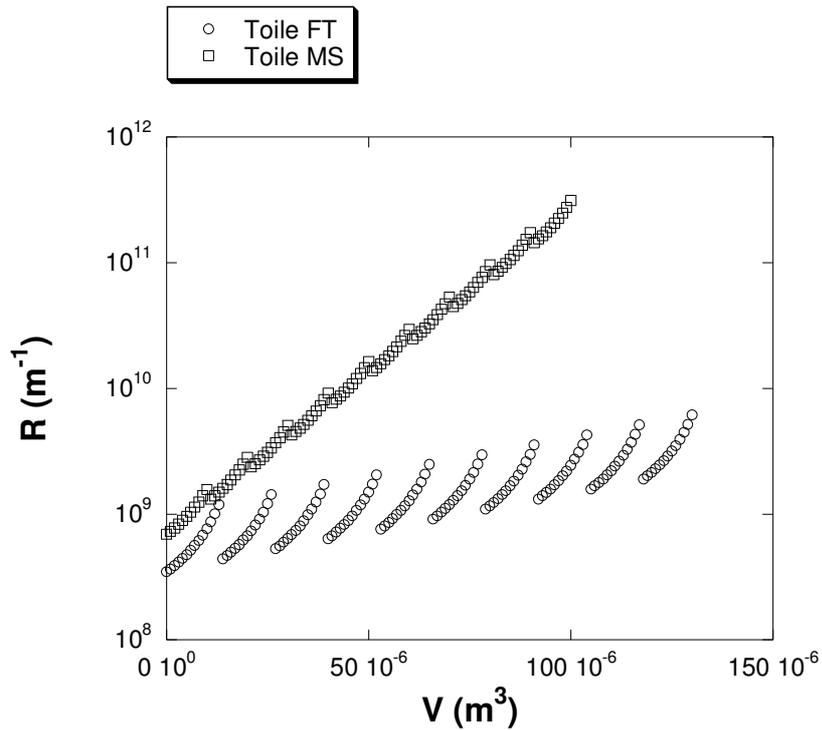


Figure V-44 : Représentation graphique des simulations  $R(V)$  de 10 cycles de filtration avec rétrolavage pour les toiles FT et MS

A la différence de la figure V-43, les calculs de la figure V-44 intègrent les rétrolavages entre deux cycles de filtration. On remarque une très nette différence entre les résistances de média obtenues pour les deux toiles au cours des différents cycles. On voit alors toute l'importance de l'efficacité du rétrolavage. En effet, à la vue de la figure V-44, on peut supposer que la toile FT aura une durée d'utilisation plus importante que la toile MS.

## Conclusion

Cette étude qui a consisté à transposer la méthodologie développée et qualifiée sur un système dit « modèle » à un cas de filtration de suspensions industrielles a permis de constater :

- la même succession de mécanismes (régime de blocage suivie de deux régimes de filtration sur gâteau ne présentant pas la même valeur de  $\eta_S^*$ ) ;
- une représentativité plutôt médiocre des essais de filtration sur des suspensions de silice qualifiées de « vieilles » vis-à-vis des suspensions fraîches filtrées sur site à Collonges. On peut penser que la fluctuation des valeurs des paramètres phénoménologiques soit due à un effet du temps de maturation sur la silice, mais aucun des paramètres classiques (pH, conductivité, granulométrie) ne traduit une telle évolution ;
- des valeurs de paramètres phénoménologiques ( $\eta_B^*$ ,  $\beta_{B,f}$ , et  $\eta_S^*$ ) très proches pour les deux toiles FT et MS lors de la filtration de suspensions fraîches.

L'étude des cycles de filtration – rétrolavage nous a permis de mettre en évidence l'importance de l'étape de rétrolavage qui s'est révélée nécessaire pour augmenter la durée d'utilisation d'une toile de filtration, mais aussi de montrer une meilleure efficacité du rétrolavage sur la toile FT que sur la toile MS. Ce résultat permet de discriminer entre les deux toiles, puisque les toiles présentaient des valeurs de paramètres ( $\eta_B^*$ ,  $\beta_{B,f}$ ) caractérisant le blocage du média filtrant peu différentes.

Dans la dernière partie de ce chapitre, nous avons utilisé une méthode permettant de déterminer un volume  $V_{trans}$  de transition entre les régimes de blocage et de filtration sur gâteau. Elle est basée sur le calcul des dérivées des résistances du média bloqué,  $R_{mB}$ , et du gâteau,  $R_d$ , par rapport au volume filtré  $V$ . Ce volume de transition est du même ordre de grandeur que le volume  $V_{B,f}$  déterminé comme le volume correspondant à la fin de la période où le régime de blocage est dominant ( $n_l = 2$ ). Ainsi, à partir de la connaissance des paramètres  $\eta_B^*$ ,  $\eta_{S-l}^*$ ,  $R_{mB,0}$  et  $A$ , il est possible de connaître la transition entre les régimes de blocage et de filtration sur gâteau, en terme de volume filtré.

Enfin, nous avons montré, en simulant une dizaine de cycles de filtration – rétrolavage à partir de la connaissance de paramètres déterminés ( $\eta_B^*$ ,  $V_{B^*}$ ) sur deux ou trois cycles, que les deux toiles présentent des différences de comportement à l'usage, plus basées sur la réversibilité des colmatages que sur l'ampleur des colmatages eux-mêmes.

Il sera nécessaire dans des travaux futurs de faire des essais pilotes sur site (Rhodia Silices à Collonges) et de faire un nombre,  $n$ , de cycles de filtration – rétrolavage ( $n > 3$ ), afin de vérifier les hypothèses émises pour la simulation des évolutions de résistances de média colmaté au bout de  $n$  cycles. Il ne s'agira plus d'étudier la période de filtration sur gâteau ; la durée d'un cycle de filtration – rétrolavage pourra alors être assez courte car on pourra arrêter la filtration lorsqu'on aura dépassé le volume de transition  $V_{trans}$ .



## Conclusions et Perspectives

La filtration industrielle de particules ayant des tailles comprises entre 1 et 500 microns nécessite le choix d'un média filtrant (dans notre cas, une toile de filtration) qui présente les caractéristiques adéquates pour bien retenir les particules en surface par la construction de gâteau de particules, tout en essayant d'éviter, autant que faire se peut, de colmater le média.

Dans cette étude, nous avons développé une approche générique et macroscopique, dans le but de pouvoir :

- anticiper le colmatage d'une installation en cours de conception ou de modification ;
- choisir un média filtrant, des conditions opératoires, pour un type de production donnée.

Nous avons appliqué des lois de description du colmatage développées à partir d'expériences de filtration classique mais exploitées en filtration membranaire ces vingt dernières années, à la filtration de particules utilisant des média autres que les membranes.

Dans le chapitre I 'Etat de l'art', il a été mis en évidence le fait que selon les interactions (mécaniques, physico-chimiques) qui existent entre un média filtrant et le milieu filtré, les mécanismes qui peuvent entrer en jeu dans le contrôle du flux sont de natures très différentes : internes au média, superficiels, liés à la déstabilisation des média ou plutôt au comportement individuel des particules vis-à-vis des éléments du média filtrant (fils, pores, etc...). Cette diversité toujours mal appréhendée explique qu'il existe toujours des lacunes au niveau de la modélisation du flux de perméat en fonction du temps de filtration, lorsqu'il y a colmatage et que de réelles difficultés sont rencontrées pour identifier les mécanismes et détecter la coexistence de plusieurs mécanismes de colmatage, tant la variation des grandeurs de transfert les plus facilement accessibles et les plus importantes pour le procédé ( $J$  ;  $V$ ) est peu spécifique des mécanismes qui interviennent.

Cette première conclusion nous a conduit à nous interroger sur le mode d'approche des problèmes de colmatage de média filtrants rencontrés au niveau des multiples sites de production d'un industriel de la chimie de spécialités, et à proposer une approche « descendante » classique, c'est-à-dire consistant à analyser les variations de paramètres

macroscopiques du procédé, pour les exploiter au maximum par rapport à des hypothèses simples sur les mécanismes possibles qui paraissent les plus probables dans un système de filtration.

Dans l'approche développée, un modèle phénoménologique a été construit sur ce constat. Les modèles de colmatage classiques (modèles de blocage standard, de blocage complet et de filtration sur gâteau) sont interprétés comme si le média filtrant était un collecteur de particules. Nous avons choisi des paramètres spécifiques à des mécanismes de blocage du média et de formation de gâteau. Le traitement des données expérimentales nous est cependant apparu au moins aussi important, voire plus, que le choix des modèles. Sur ce

point, nous avons considéré les coordonnées  $\left(\frac{dt}{dV}; \frac{d^2t}{dV^2}\right)$ , parce qu'elles ne sont pas

spécifiques d'un mécanisme de colmatage, et permettent de détecter les enchaînements de mécanismes, même si dans le cas d'une coexistence de plusieurs mécanismes d'importance égale, elles ne permettent pas de trancher. Conjointement avec le modèle, nous avons mis au point des méthodes permettant de déterminer ces paramètres phénoménologiques ( $\beta_B$  et  $\eta_i^*$ ) qui caractérisent l'interaction « média - fluide ». Nous avons choisi de décrire la diminution du flux de perméat par une succession de régimes ou de mécanismes purs, qui ont été au préalable identifiés par la détermination de la valeur de  $n$  de l'équation

$\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$  lorsqu'on représente les données expérimentales dans le système de coordonnées  $\left(\frac{dt}{dV}; \frac{d^2t}{dV^2}\right)$ .

Une première étape de qualification du modèle a été basée sur l'étude de la filtration frontale d'une suspension de bentonite sur des membranes de microfiltration (à pression constante). On a observé qu'une phase de blocage précède toujours le mécanisme de filtration sur gâteau. La méthode est robuste et fiable, et l'approximation de régimes purs successifs semble ne pas poser de difficulté pour la reconstruction de courbes de filtration (écart inférieur à 10% entre la courbe calculée et la courbe expérimentale).

Nous avons vérifié que les paramètres des modèles identifiés ont un contenu physique important : le paramètre de filtration sur dépôt est bien indépendant du média filtrant, variant selon la pression et la concentration du fluide comme on s'y attendait. La période, pendant

laquelle le blocage des pores est le mécanisme dominant, correspond à un dépôt d'environ une monocouche de particules, ce qui est un ordre de grandeur très acceptable.

Nous avons donc étudié l'influence de paramètres opératoires, tels que la différence de pression  $\Delta P$  et la concentration de la suspension  $C$ , et du diamètre de pore, en testant plusieurs membranes de microfiltration sur la variation des paramètres  $\eta_i^*$ . Concernant le mécanisme de filtration sur gâteau, on retrouve des modèles physiques connus :

- la résistance spécifique  $\alpha$  augmente avec la pression  $\Delta P$  pour une concentration  $C$  fixée ;
- le paramètre  $\eta_s^*$  augmente presque de manière linéaire avec la concentration de la suspension  $C$ .

Le paramètre  $\eta_s^*$  est bien une caractéristique intrinsèque du gâteau de filtration car dans le cas des membranes testées, nous avons pu remarquer qu'il ne dépendait pas du diamètre de pore.

Pour le mécanisme de blocage, on a pu identifier des éléments phénoménologiques qui permettent de mieux cerner la physique de certaines variations moins bien décrites sur un plan théorique. On a pu mettre en évidence que le paramètre  $\eta_B^*$  était fortement dépendant du diamètre de pore ; on a remarqué un maximum de la courbe  $\eta_B^* = f(d_{pore})$  lorsque le diamètre moyen de pore  $d_{pore}$  était proche de taille moyenne de particules de bentonite  $d_p$ . L'étude de l'influence de la pression  $\Delta P$  sur le paramètre  $\eta_B^*$  de blocage a permis de mettre en évidence l'influence de la contrainte de cisaillement à la paroi à l'entrée du pore, notée  $\tau_w$ , ce qui renforce l'approche de type collecteur de particules que nous avons adoptée dans ce travail. Dans le cadre de cette étude, une contrainte seuil de cisaillement a été mise en évidence, au-delà de laquelle le décollement d'une particule est maximal, ce qui a pour conséquence de diminuer fortement la probabilité  $\eta_B$  d'une particule à s'accrocher à la paroi d'un pore. En deçà de cette valeur seuil, la contrainte de cisaillement est faible, et la probabilité capture de particules est alors plus importante, ce qui explique une valeur de  $\eta_B^*$  plus élevée que dans la région précédente.

L'approche développée amène une contribution significative sur l'identification de deux étapes en filtration frontale sur des membranes : un régime de blocage du média qui précède un régime de production (construction du gâteau de particules). La détermination des paramètres macroscopiques  $\eta_i^*$  a permis de quantifier ces deux régimes en termes d'éléments de description d'une courbe de filtration.

L'approche développée se présente comme une passerelle entre les paramètres de base du procédé et les modèles physiques qui font appel à un grand nombre de paramètres, dont

certaines sont formellement inaccessibles, en particulier dans un mélange ou bien simplement difficiles à obtenir.

On a pu caractériser la fraction de surface bloquée du média filtrant par le paramètre  $\beta_B$ . La connaissance du paramètre  $\eta_B^*$  et de la quantité  $V_{B,f} - V_{B,0}$  (volume filtré pendant la phase de blocage du média) permettent d'évaluer la fraction de surface bloquée finale, notée  $\beta_{B,f}$ . Ces quantités dépendent à la fois de la répartition granulométrique des tailles de particules et de la structure de la membrane.

Les perspectives sur ce système « membrane - bentonite » utilisé pour la qualification de notre méthodologie seraient de poursuivre une étude phénoménologique plus poussée de ce mécanisme de blocage de type « première couche ». On a vu dans le cas de la membrane 0,2  $\mu\text{m}$ , qu'on passait rapidement d'un régime de blocage à un régime de production et que la surface de la membrane était moins colmatée que celle des autres membranes dont le diamètre de pore est supérieur à 0,2  $\mu\text{m}$ .

En terme d'anticipation du colmatage, une meilleure compréhension et une modélisation plus fine de ce phénomène de blocage devraient nous permettre de mieux définir les caractéristiques d'un média filtrant « idéal », susceptible de répondre aux exigences de procédé ( $\beta_{B,f}$  minimum) pour un fluide donné, de « gérer » la formation de cette première couche de particule et de pouvoir comparer des média entre eux. Il serait intéressant de trouver un média qui ait à la fois les caractéristiques du média à 0,2  $\mu\text{m}$  en terme de taux de recouvrement de surface bloquée  $\beta_{B,f}$  et une résistance hydraulique la plus faible possible.

La seconde phase expérimentale de ces travaux de thèse était la transposition de l'approche sur une suspension industrielle. La même méthodologie a été appliquée afin de comparer des suspensions, des toiles de filtration utilisées en industrie. La partie de ces études menée au laboratoire s'est avérée de moindre intérêt que celle réalisée sur le site industriel car les mesures réalisées sur des bouillies de silices produites sur site et expédiées au laboratoire s'avèrent assez peu fiables (à cause des délais, du stockage et de l'échantillonnage).

On a vérifié d'une part l'applicabilité de la méthode et d'autre part sa robustesse en passant des membranes à des toiles de filtration. Ces toiles présentent une perméabilité encore plus grande que les membranes de microfiltration les plus ouvertes, et cela soulève un problème déjà entrevu avec les membranes : la chaîne de mesure des perméabilités doit présenter une résistance à l'écoulement très faible pour ne pas interférer avec la caractérisation des toiles.

Nous avons remédié partiellement à ce problème en concevant une cellule spécifique pour ce type d'analyse, mais l'acquisition des premiers points de mesure (lorsque la vitesse de filtration est de l'ordre du  $\text{cm.s}^{-1}$ ) n'a pas été possible. Le colmatage extrêmement rapidement ramenant ces vitesses vers des valeurs beaucoup plus faibles (de l'ordre de  $0,1 \text{ mm.s}^{-1}$ ), l'essentiel des mesures a pu cependant être relevé sans difficulté.

On a mis en évidence différents régimes avant la formation du gâteau (régime de production,  $n_3 = 0$ ) :

- une phase très rapide de colmatage au cours de laquelle, la résistance du média ( $R_{mB,0}$ ) est presque 1000 fois plus importante que la résistance du média propre ( $R_{m,0}$ ) ;
- une phase de blocage du média ( $n_1 = 2$ ) ;
- une phase de construction de gâteau ( $n_2 = 0$ ).

A ce titre, on note que si on souhaite analyser la toute première phase de diminution de flux, qui conditionne énormément le niveau de flux suivant, une toute autre démarche expérimentale devrait être développée pour acquérir des données fiables dans les toutes premières secondes qui suivent la mise sous pression.

Nous avons aussi tenté d'évaluer les volumes de particules mis en jeu par les premiers régimes de colmatage, puisque l'on connaît les volumes de filtrat qui sont produits au cours de ces phases. Nous avons donc calculé un taux de remplissage des pores (entrelacement de deux fils) à la surface de la membrane (phase de blocage,  $n_1 = 2$ ) et une épaisseur de dépôt qui serait corrélée avec la géométrie du fil utilisé dans le média tissé ( $n_2 = 0$ ).

Il serait intéressant de poursuivre cette étude pour connaître les caractéristiques des étapes de colmatage de plusieurs types de média. Dans cette thèse, nous avons étudié les membranes et les toiles 'monofilaments'. On pourrait étendre cette étude à d'autres média tels que des toiles multifilaments qui sont susceptibles de se colmater en profondeur ou des non-tissés.

Alors que sur le site industriel, les opérateurs trouvent des différences à l'usage entre des toiles industrielles (FT et MS) pour une suspension de silice donnée, en analysant les paramètres du modèle de blocage de pore, nous ne discernons pas les deux toiles de manière très significative, malgré les différences de structures de tissé qu'elles présentent.

En approfondissant les études, on s'aperçoit alors que l'élément discriminant le plus important est la faculté de ces toiles à être régénérées au rétrolavage. Une différence, même peu importante de cette caractéristique se traduit, au bout de quelques cycles de filtration - rétrolavage par de grandes différences de vitesses de filtration.

Cet aspect des choses devrait maintenant pouvoir être étudié avec fiabilité et précision par le biais de la détermination des paramètres spécifiques tels que nous l'avons développée dans ce mémoire, et conduire, ici encore à un meilleur choix quant au matériau des fibres, ou à la forme de leur entrelacement.

## Références Bibliographiques

- [1] **O. Levenspiel**, Modeling in chemical engineering, *Chemical Engineering Science* 57 (22-23), 4691-4696, (2002).
- [2] **D.B. Purchas**, *Industrial Filtration of Liquids*, Cleveland, CRC Press, (1967).
- [3] **J.-P. Duroudier**, 1.7 Les supports filtrants, in *Pratique de la filtration*, HERMES Science Publications: Paris, (1999).
- [4] **A. Rushton**, Chapter 4: Filter Media, in *Solid-Liquid Filtration and Separation Technology*, VCH Publishers, Inc.: New York, NY (USA), (1996).
- [5] **Gantois**, *Filtration et tissus métalliques*, (1984).
- [6] <http://cerig.efpg.inpg.fr/tutoriel/non-tisse/page01.htm>.
- [7] [http://www.champagne-ardenne.cci.fr/fr/lettres\\_veilles/textile/non-tisse.pdf](http://www.champagne-ardenne.cci.fr/fr/lettres_veilles/textile/non-tisse.pdf).
- [8] **G. Mériguet**, *Filtration - Technologie*, Techniques de l'Ingénieur - Traité Génie des Procédés, (1997).
- [9] **A. Maurel**, *Osmose inverse et ultrafiltration - II Technologie et applications*, Techniques de l'Ingénieur - Traité Génie des Procédés, (1989).
- [10] **P. Aimar, S. Baklouti, and V. Sanchez**, Membrane-solute interactions: influence on pure solvent transfer during ultrafiltration, *Journal of Membrane Science* 29 (2), 207-224, (1986).
- [11] **E. Matthiasson**, The role of macromolecular adsorption in fouling of ultrafiltration membranes, *Journal of Membrane Science* 16, 23-36, (1983).
- [12] **H. Darcy**, *Les fontaines publiques de la ville de Dijon*, Paris, Victor Dalmont, (1856).
- [13] **S. Ergun**, Flow through packed columns, *Chem. Eng. Progress* 48 (2), 89, (1952).
- [14] **P.C. Carman**, Fluid flow through a granular bed, *Trans IChemE* 15, 150-167, (1937).
- [15] **F.M. Tiller**, The role of porosity in filtration, Part 2. Analytical equations for constant rate filtration, *Chemical Engineering Progress* 51, 282-290, (1955).
- [16] **J. Hermia**, Constant pressure blocking filtration laws - Application to power-law non-newtonian fluids, *Trans. I. Chem. E.* 60, 183-187, (1982).
- [17] **P.H. Hermans and H.L. Bredée**, Zur Kenntnis der Filtrationsgesetze, *Recueil des Travaux Chimiques des Pays-Bas* 54, 680-700, (1935).

- [18] **P.H. Hermans and H.L. Bredée**, Principles of the mathematical treatment of constant-pressure filtration, *J. Soc. Chem. Ind.* 55, 1T-4T, (1936).
- [19] **M. Shirato, T. Aragaki, and E. Iritani**, Blocking filtration laws for filtration of power law non-newtonian fluids, *Journal of Chemical Engineering of Japan* 12 (2), 162-164, (1979).
- [20] **H.P. Grace**, Structure and performance of filter media, *AIChE Journal* 2 (3), 307-336, (1956).
- [21] **V.E. Gonsalves**, A critical investigation on the viscose filtration process, *Recueil des Travaux Chimiques des Pays-Bas* 69, 873, (1950).
- [22] **E.M. Tracey and R.H. Davis**, Protein Fouling of Track-Etched Polycarbonate Microfiltration Membranes, *Journal of Colloid and Interface Science* 167 (1), 104-116, (1994).
- [23] **R.G. Holdich and G.M. Zhang**, Internal fouling of microporous cross-flow filtration membranes with dilute latex suspensions, *The Chemical Engineering Journal* 60 (1-3), 31-37, (1995).
- [24] **B.F. Ruth**, Studies in Filtration IV. Nature of Fluid Flow through Filter Septa and Its Importance in the Filtration Equation, *Industrial and Engineering Chemistry* 27 (7), 806-816, (1935).
- [25] **J. Jacob, P. Pradanos, J.I. Calvo, A. Hernandez, and G. Jonsson**, Fouling kinetics and associated dynamics of structural modifications, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 138 (2-3), 173-183, (1998).
- [26] **W.R. Bowen, J.I. Calvo, and A. Hernandez**, Steps of membrane blocking in flux decline during protein microfiltration, *Journal of Membrane Science* 101 (1-2), 153-165, (1995).
- [27] **C.-C. Ho and A.L. Zydney**, A Combined Pore Blockage and Cake Filtration Model for Protein Fouling during Microfiltration, *Journal of Colloid and Interface Science* 232 (2), 389-399, (2000).
- [28] **M. Kennedy, L. Zhizhong, E. Febrina, S. Van Hoof, and J. Shippers**, Effects of coagulation on filtration mechanisms in dead-end ultrafiltration, *Water Science and Technology: Water Supply* 3 (5-6), 109-116, (2003).
- [29] **C.-C. Ho and A.L. Zydney**, Effect of membrane morphology on the initial rate of protein fouling during microfiltration, *Journal of Membrane Science* 155 (2), 261-275, (1999).

- [30] **L. Palacio, C.-C. Ho, P. Pradanos, A. Hernandez, and A.L. Zydney**, Fouling with protein mixtures in microfiltration: BSA-lysozyme and BSA-pepsin, *Journal of Membrane Science* 222 (1-2), 41-51, (2003).
- [31] **W. Yuan, A. Kocic, and A.L. Zydney**, Analysis of humic acid fouling during microfiltration using a pore blockage-cake filtration model, *Journal of Membrane Science* 198 (1), 51-62, (2002).
- [32] **S. Kosvintsev, R.G. Holdich, I.W. Cumming, and V.M. Starov**, Modelling of dead-end microfiltration with pore blocking and cake formation, *Journal of Membrane Science* 208 (1-2), 181-192, (2002).
- [33] **W.S. Opong and A.L. Zydney**, Hydraulic permeability of protein layers deposited during ultrafiltration, *Journal of Colloid and Interface Science* 142, 41, (1991).
- [34] **W.R. Bowen and Q. Gan**, Properties of Microfiltration Membranes: Flux Loss During Constant Pressure Permeation of Bovine Serum Albumin, *Biotechnology and Bioengineering* 38 (7), 688-696, (1991).
- [35] **W.M. Clark, A. Bansal, M. Sontakke, and Y.H. Ma**, Protein adsorption and fouling in ceramic ultrafiltration membranes, *Journal of Membrane Science* 55, 21-38, (1991).
- [36] **G. Belfort, R.H. Davis, and A.L. Zydney**, The behavior of suspensions and macromolecular solutions in crossflow microfiltration, *Journal of Membrane Science* 96, 1-58, (1994).
- [37] **P. Bacchin**, *Formation et résistance au transfert d'un dépôt de colloïdes sur une membrane d'ultrafiltration*, Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, Toulouse, (1994).
- [38] **C. Gourgues**, *Ultrafiltration de suspensions de bentonite par des fibres creuses: production d'eau potable*, Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, Toulouse, (1991).
- [39] **A. Constantinides**, *Applied Numerical Methods with Personal Computers*. McGraw-Hill International Editions ed, Singapore, Fong & Song Printers Pte Ltd, (1987).



# Nomenclature

$a$	Rayon d'un pore	m
$A$	Surface filtrante du média filtrant	m <sup>2</sup>
$A_0$	Surface filtrante du média propre	m <sup>2</sup>
$A_B$	Aire bloquée	m <sup>2</sup>
$C$	Concentration de la suspension	kg.m <sup>-3</sup>
$C_{in}$	Concentration massique en particules à l'entrée du média filtrant	kg.m <sup>-3</sup>
$C_{out}$	Concentration massique en particules en sortie du média filtrant	kg.m <sup>-3</sup>
$C_B$	Masse de particules potentiellement bloquantes par unité de volume de filtrat	kg.m <sup>-3</sup>
$C_P$	Masse de particules susceptibles de se déposer à l'intérieur du média par unité de volume de filtrat	kg.m <sup>-3</sup>
$C_S$	Masse de particules pouvant participer à la formation du gâteau par unité de volume de filtrat	kg.m <sup>-3</sup>
$C_v$	Volume de particules déposées le long de la paroi du pore par unité de volume de filtrat	-
$d_g$	Diamètre de grains	m
$d_p$	Diamètre de particule	m
$d_{pore}$	Diamètre de pore	m
$D$	Diamètre de conduite	m
$f$	Facteur de friction	-
$f'$	Fraction de protéine qui contribue à la formation du dépôt	-
$f_H$	Facteur de forme de Herwood	-
$h$	Pas de temps pour la dérivation de V(t)	s
$I$	Coefficient d'inertie (équation d'Ergun)	-
$J$	Flux de perméat	m.s <sup>-1</sup>
$J_0$	Flux initial à travers le média propre	m.s <sup>-1</sup>
$J_f$	Flux à travers le média colmaté après filtration	m.s <sup>-1</sup>
$J_r$	Flux à travers le média rétrolavé	m.s <sup>-1</sup>
$J_O$	Flux à travers la surface ouverte à l'écoulement	m.s <sup>-1</sup>
$K$	Constante de Kozeny - Carman	-
$K_A$	Aire de membrane bouchée par unité de volume total de filtrat	m <sup>-1</sup>
$K_B$	Diminution de l'aire de section droite d'un pore par unité de volume total de filtrat	m <sup>-1</sup>

$K_C$	Aire de gâteau déposé par unité de volume total de filtrat	$m^{-1}$
$k$	constante de l'équation $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$	-
$k_d$	Perméabilité du dépôt	$m^2$
$k_m$	Perméabilité du média poreux	$m^2$
$L$	Longueur d'un pore	$m$
$L_d$	Epaisseur du dépôt	$m$
$L_m$	Epaisseur du média poreux	$m$
$M_d$	Masse sèche de solides déposés par unité de surface filtrante	$kg.m^{-2}$
$M_s$	Masse de particules déposées	$kg$
$m_B$	Masse de particules bloquantes	$kg$
$N_{in}$	Nombre de particules entrant dans le média poreux	-
$N_{out}$	Nombre de particules sortant du média poreux	-
$N_{pore}$	Nombre de pores supposés cylindriques	-
$n$	exposant de l'équation $\frac{d^2t}{dV^2} = k \cdot \left(\frac{dt}{dV}\right)^n$	-
$n_p$	Nombre de particules par unité de volume	$m^{-3}$
$\Delta P$	Pression de filtration	$Pa$
$\Delta P_c$	Perte de charge	$Pa$
$Q$	Débit volumique	$m^3.s^{-1}$
$Q_0$	Débit volumique initial à travers le média propre	$m^3.s^{-1}$
$Q_{B,0}$	Débit volumique mesuré au commencement du régime de blocage	$m^3.s^{-1}$
$Q_{P,0}$	Débit volumique mesuré au commencement du régime de colmatage en profondeur	$m^3.s^{-1}$
$R$	Résistance hydraulique totale	$m^{-1}$
$R'$	Résistance spécifique de la couche de protéine	$m.kg^{-1}$
$R_d$	Résistance du dépôt	$m^{-1}$
$R_m$	Résistance du média filtrant (toile ou membrane)	$m^{-1}$
$R_{m,0}$	Résistance du média propre	$m^{-1}$
$R_{m,f}$	Résistance du média après filtration	$m^{-1}$
$R_{mB}$	Résistance du média bloqué	$m^{-1}$
$R_{mB,0}$	Résistance du média bloqué au commencement du régime de blocage	$m^{-1}$
$R_{mB,f}$	Résistance du média bloqué en fin de régime de blocage	$m^{-1}$
$R_p'$	Résistance du dépôt de protéine	$m^{-1}$
$R_{p0}'$	Résistance d'un agrégat de protéine	$m^{-1}$

$Re$	Nombre de Reynolds	-
$r$	Coefficient de corrélation	-
$s$	Degré de compressibilité	-
$S_v$	Surface spécifique des particules	$m^{-1}$
$T$	Température	$^{\circ}C$
$t$	Temps de filtration	s
$t_{B,0}$	Temps de filtration correspondant au début du régime de blocage	s
$t_{S,0}$	Temps de filtration correspondant au début du régime de filtration sur gâteau	s
$u_0$	Vitesse moyenne initiale du filtrat	$m.s^{-1}$
$V$	Volume de perméat	$m^3$
$\Delta V$	Pas de volume pour la dérivation de $t(V)$	$m^3$
$V_B$	Volume filtré pendant le régime de blocage	$m^3$
$V_{B^*}$	Volume filtré déterminé à partir de l'équation (V.5) tel que $R_{mB} = R_{m,f}$	$m^3$
$V_{B,0}$	Volume filtré au commencement du régime de blocage	$m^3$
$V_{B,f}$	Volume filtré en fin de régime de blocage	$m^3$
$V_{P,0}$	Volume filtré au commencement du régime de colmatage en profondeur	$m^3$
$V_{S,0}$	Volume filtré au commencement du régime de filtration sur gâteau	$m^3$
$V_{Bmax}$	Volume filtré maximal théorique pendant le régime de blocage	$m^3$
$V_{trans}$	Volume de transition entre les régimes de blocage et de filtration sur gâteau	$m^3$
$\bar{v}$	Vitesse d'écoulement dans un pore	$m.s^{-1}$
$Z$	Epaisseur équivalente de gâteau	m
$\frac{dt}{dV}$	Dérivée première du temps par rapport au volume filtré	$s.m^{-3}$
$\frac{d^2t}{dV^2}$	Dérivée seconde du temps par rapport au volume filtré	$s.m^{-6}$

$\alpha$	Résistance spécifique de dépôt	$\text{m.kg}^{-1}$
$\alpha_0$	Résistance spécifique de dépôt sous 1 bar de pression	$\text{m.kg}^{-1}$
$\beta'$	Taux de bouchage	-
$\beta_i$	Fraction de surface bloquée initiale	-
$\beta_B$	Taux de recouvrement de surface par blocage	-
$\beta_{B,f}$	Taux de recouvrement de surface final en fin de blocage	-
$\beta_O$	Fraction de surface ouverte à l'écoulement	-
$\beta_S$	Fraction de surface occupée par le dépôt	-
$\varepsilon_d$	Porosité du dépôt de particules	-
$\varepsilon_m$	Porosité du média filtrant	-
$\varepsilon_s$	Porosité de surface du média filtrant	-
$\gamma$	Rapport d'aire de pore sur la surface filtrante	-
$\eta_B$	Probabilité de capture de particules pour le mécanisme de blocage de pore	-
$\eta_P$	Probabilité de capture de particules pour le mécanisme de colmatage en profondeur	-
$\eta_S$	Probabilité de capture de particules pour le mécanisme de dépôt de surface	-
$\eta_B^*$	Paramètre caractérisant le mécanisme de blocage	$\text{m}^{-1}$
$\eta_P^*$	Paramètre caractérisant le mécanisme de colmatage en profondeur	$\text{m}^{-3}$
$\eta_S^*$	Paramètre caractérisant le mécanisme de dépôt de surface	$\text{m}^{-2}$
$\varphi$	Rapport d'aire d'influence au-dessus d'un pore sur l'aire du pore	-
$\kappa$	Coefficient multiplicatif de rétrolavage	-
$\lambda$	Efficacité de capture	-
$\lambda_0$	Efficacité de capture initiale	-
$\mu$	Viscosité dynamique	$\text{Pa.s}$
$\rho$	Masse volumique	$\text{kg.m}^{-3}$
$\rho_P$	Masse volumique des particules susceptibles de participer au colmatage en profondeur	$\text{kg.m}^{-3}$
$\rho_s$	Masse volumique des particules solides	$\text{kg.m}^{-3}$
$\sigma$	Rétention de particules – filtration en profondeur	-
$\sigma_M$	Rétention maximale de particules – filtration en profondeur	-
$\tau_w$	Contrainte de cisaillement à la paroi	$\text{Pa}$
$\omega_s$	Fraction massique des particules de silice en suspension	-

## Annexes

<i>Annexe A</i>	211
Etude sur la suspension ZB	
<i>Annexe B</i>	217
Effet de la dilution sur les paramètres phénoménologiques pour la suspension de silice ZA	
<i>Annexe C</i>	223
Propriétés physico-chimiques des suspensions de silice précipitée	



---

# Annexe A Etude sur la suspension ZB

## Chapitre d'équation (Suivant) Section 1

### *1. Objectifs*

Cette campagne avait pour but de mettre en évidence les mécanismes dominants apparents responsables de la baisse de flux lorsqu'on filtre la suspension ZB sur la toile FT. L'objectif est de voir s'il existe des différences entre les suspensions ZA et ZB en termes de mécanismes identifiés et de valeurs de paramètres phénoménologiques. Il n'a cependant pas été possible de filtrer la suspension ZB fraîche à Collonges. L'étude comparative entre les deux suspensions sera donc qualitative.

### *2. Filtration sur la toile FT*

Rappelons que la concentration de la suspension ZB est de  $103 \text{ g.L}^{-1}$ .

*Propriétés physico-chimiques de la suspension de silice ZB*

pH = 5,4 ; conductivité =  $38 \text{ mS.cm}^{-1}$  (cf. annexe C)

*Identification et caractérisation des mécanismes apparents*

Sur les figures A-1 et A-2, on observe les trois étapes de filtration, déjà identifiées pour la suspension de silice ZA. On se propose alors de déterminer les paramètres du modèle correspondant à chacune de ces étapes.

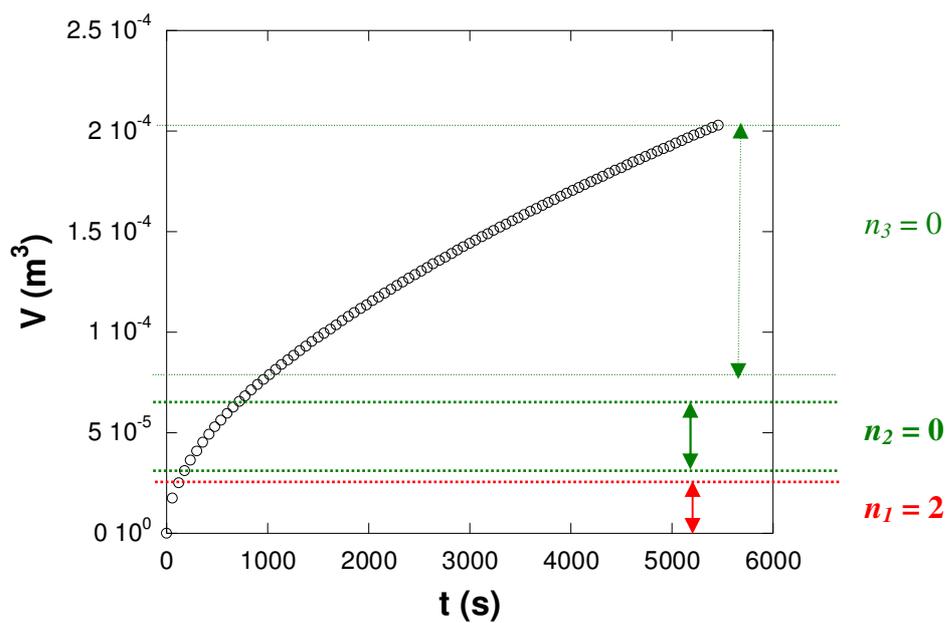


Figure A-1 : Courbe de filtration  $V(t)$  pour la filtration de la suspension ZB – toile FT

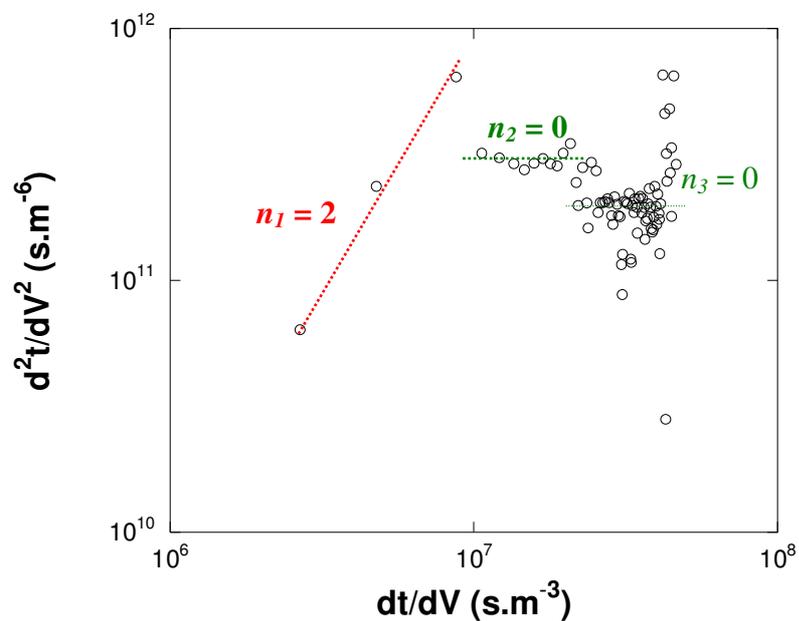


Figure A-2 : Représentation  $d^2t/dV^2$  en fonction de  $dt/dV$  pour la filtration de la suspension ZB – toile FT

Nous avons réalisé deux expériences de filtration sur une suspension ZB âgée de plus de 5 jours (en fait, l'une de 8 jours et l'autre de 89 jours). La suspension ZB a été prélevée le 6 octobre à Collonges et réceptionnée le 11 octobre 2004 au laboratoire à Toulouse. Les deux expériences ont été réalisées à température ambiante.

Tableau A-1 : Résistance de la toile FT avant et après filtration de ZB

<i>Age suspension</i>	<i>Volume filtré (mL)</i>	$R_{m,0} (m^{-1})$	$R_{m,f} (m^{-1})$
<b>8 jours</b>	210	<b><math>8.10^8</math></b>	<b><math>46.10^8</math></b>
<b>89 jours</b>	204	<b><math>10.10^8</math></b>	<b><math>16.10^8</math></b>

Tableau A-2 : Paramètres phénoménologiques pour le système « ZB – toile FT »

<i>Age suspension</i>	$Q_0 (m^3.s^{-1})$	$Q_{B,0} (m^3.s^{-1})$	$\beta_i$	$\eta_B^* (m^{-1})$	$\beta_{B,f}$	$\eta_{S-I}^* (m^{-2})$	$\eta_{S-II}^* (m^{-2})$
<b>8 jours</b>	$7,56.10^{-5}$	$5,0.10^{-7}$	<b>99,34%</b>	<b>137</b>	<b>99,85%</b>	<b><math>6,9.10^{13}</math></b>	<b><math>5,1.10^{13}</math></b>
<b>89 jours</b>	$7,85.10^{-5}$	$8,2.10^{-7}$	<b>98,96%</b>	<b>137</b>	<b>99,88%</b>	<b><math>11,0.10^{13}</math></b>	<b><math>6,8.10^{13}</math></b>

Le tableau A-1 montre que la toile FT a une résistance hydraulique après filtration plus faible, lorsqu'on filtre la même suspension mais encore plus âgée. Il semble qu'une fraction colmatante de particules de silice disparaisse avec le temps de maturation de la suspension. On peut supposer que l'âge de la suspension a pour effet de faire augmenter les valeurs des paramètres  $\eta_s^*$ , ce qui signifie une baisse de filtrabilité de la suspension ZB avec le temps de maturation.

Les tableaux A-1 et A-2 ne nous donnent que des tendances. Il ne nous est pas possible de décrire un comportement de la suspension ZB vis-à-vis de la toile FT, en termes de colmatage du média et de filtrabilité de la suspension pendant le régime de production (formation du gâteau) avec le temps de maturation de la suspension.

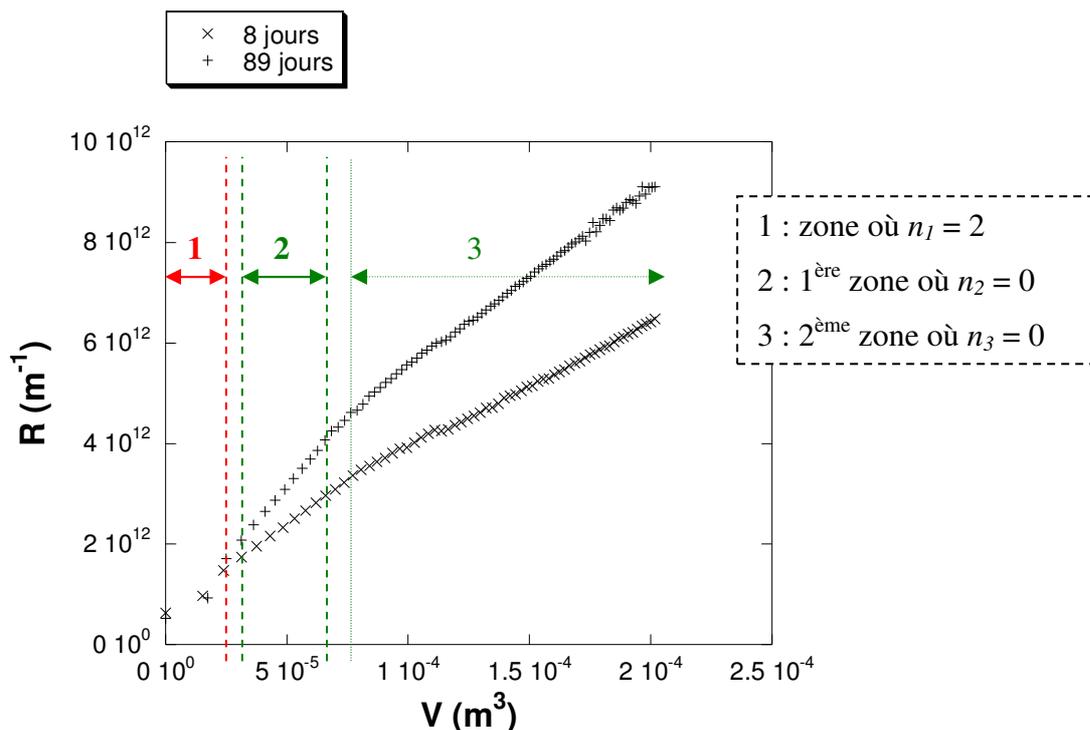


Figure A-3 : Evolution de la résistance  $R$  totale à l'écoulement en fonction du volume  $V$  filtré pour la filtration de ZB sur la toile FT à des âges de suspension différents

D'après la figure A-3, on remarque que l'écart entre les deux courbes devient significatif dès lors que le régime de filtration sur gâteau est dominant. Cet écart devient de plus en plus important avec le volume filtré. Ces différences s'expliquent par des coefficients  $\eta_{S-I}^*$  et  $\eta_{S-II}^*$  plus élevés dans le cas de la suspension plus vieille (cf. tableau A-2).

### 3. Comparaison suspension ZA/ZB

Nous allons à présent comparer de manière qualitative les valeurs des paramètres phénoménologiques obtenues pour les deux suspensions ZA et ZB, lorsqu'elles sont filtrées sur la toile FT. Il s'agit dans les deux cas de suspensions que nous qualifions de « vieilles ».

Tableau A-3 : Moyennes et écarts à la moyenne des paramètres phénoménologiques obtenus sur les suspensions ZA (3 expériences) et ZB (2 expériences) réceptionnées et filtrées au laboratoire

Suspension	$\eta_B^* (m^{-1})$	$\beta_{B,f}$	$\eta_{S-I}^* (m^{-2})$	$\eta_{S-II}^* (m^{-2})$
ZA	$143 \pm 19$	$(99,89 \pm 0,02)\%$	$(21,7 \pm 4,5) \cdot 10^{13}$	$(12,7 \pm 3,2) \cdot 10^{13}$
ZB	137	$(99,87 \pm 0,02)\%$	$(9,0 \pm 2,9) \cdot 10^{13}$	$(6,0 \pm 1,2) \cdot 10^{13}$

En termes de paramètres  $\eta_B^*$  et  $\beta_{B,f}$  caractérisant le blocage, les valeurs obtenues pour chacune des deux suspensions sont du même ordre de grandeur.

En termes de paramètres de dépôt, même si on a observé, pour la suspension ZA comme pour la ZB, des fluctuations sur les valeurs de ces paramètres, en moyenne les paramètres  $\eta_{S-I}^*$  et  $\eta_{S-II}^*$  pour la suspension ZB sont deux fois plus faibles que pour la suspension ZA. L'écart observé entre les deux suspensions pour les paramètres de dépôt est plus important que l'amplitude de leurs fluctuations avec le temps de maturation. On a donc une meilleure filtrabilité de la suspension ZB lorsque le régime de production (filtration sur gâteau) est dominant.

Rappelons l'expression de  $\eta_S^*$  :  $\eta_S^* = \eta_S \cdot C_S \cdot \alpha$ .

Nous faisons l'hypothèse que les paramètres  $\eta_S$  et  $C_S$  sont identiques pour les deux suspensions. En effet, les deux suspensions ont une fraction massique  $\omega_s$  globalement identique (un peu moins de 10%) et dans le cas où un gâteau de filtration a commencé à croître en épaisseur, on peut supposer que toutes les particules arrivant par flux convectif vont participer à la construction du dépôt ( $\eta_S = 1$ ). On peut donc supposer que le paramètre caractérisant le dépôt  $\eta_S^*$  est proportionnel à la résistance spécifique  $\alpha$  du gâteau.

Dans le chapitre I (§ 5.2), l'équation (I.11) donnait l'expression de la résistance spécifique  $\alpha$  d'un gâteau de particules :

$$\alpha = \frac{180 f_H^2 \cdot (1 - \varepsilon_d)}{\varepsilon_d^3 \cdot \rho_s \cdot d_p^2}$$

N'ayant que très peu d'informations sur les dépôts obtenus lors de la filtration de ces deux suspensions, il est très difficile de connaître les paramètres (parmi lesquels la porosité du dépôt  $\varepsilon_d$ , le diamètre de particule moyen  $d_p$ , le facteur de forme  $f_H$  ou encore la masse volumique des particules  $\rho_s$ ) qui permettraient d'expliquer les différences de filtrabilité, en termes de paramètres  $\eta_S^*$ , entre les deux suspensions de silice.



# Annexe B Effet de la dilution sur les paramètres phénoménologiques pour la suspension de silice ZA

## Chapitre d'équation (Suivant) Section 2

### 1. Effet de la dilution sur les paramètres phénoménologiques

De la même manière que dans le chapitre IV qui traitait de la filtration de suspension de bentonite sur des membranes de microfiltration, la suspension de silice ZA *fraîche* a été diluée afin d'étudier l'influence de la concentration sur les paramètres phénoménologiques. Toutes les expériences ont été faites à une pression de 1 bar.

### 2. Protocole de dilution

Afin d'étudier l'effet de la concentration de la suspension sur les paramètres phénoménologiques du modèle, la suspension de silice a été diluée d'un facteur 5 ; 20 ; 100. Afin de conserver au mieux les propriétés physico-chimiques de la suspension mère, cette dilution a été effectuée avec des eaux mères (appelées aussi filtrat) issues de la filtration de bouillie réactionnelle. D'après le tableau B-1, les valeurs de pH et de conductivité  $\chi$  de la suspension de silice diluée sont du même ordre de grandeur que celles mesurées pour la suspension mère.

Tableau B-1 : pH et conductivité  $\chi$  de la suspension ZA fraîche (diluée et non diluée) et des eaux mères utilisées pour la dilution

	<i>Suspension mère</i>	<i>Suspension diluée</i>			<i>Eaux mères</i>
		5x	20x	100x	
<i>Masse sèche</i> (% <i>massique</i> )	(9,71 ± 0,50)%				
<i>pH</i>	5,7 ± 0,6	6,1	4,7 ± 0,4	4,9 ± 0,4	5,3 ± 1,4
$\chi$ (mS.cm <sup>-1</sup> )	38,7 ± 3,9	43	41,6 ± 4,2	43,5 ± 8,4	40,7 ± 5,4

### 3. Evolution des paramètres phénoménologiques en fonction de la concentration

#### 3.1 Effet de la concentration $C$ sur le paramètre $\eta_B^*$

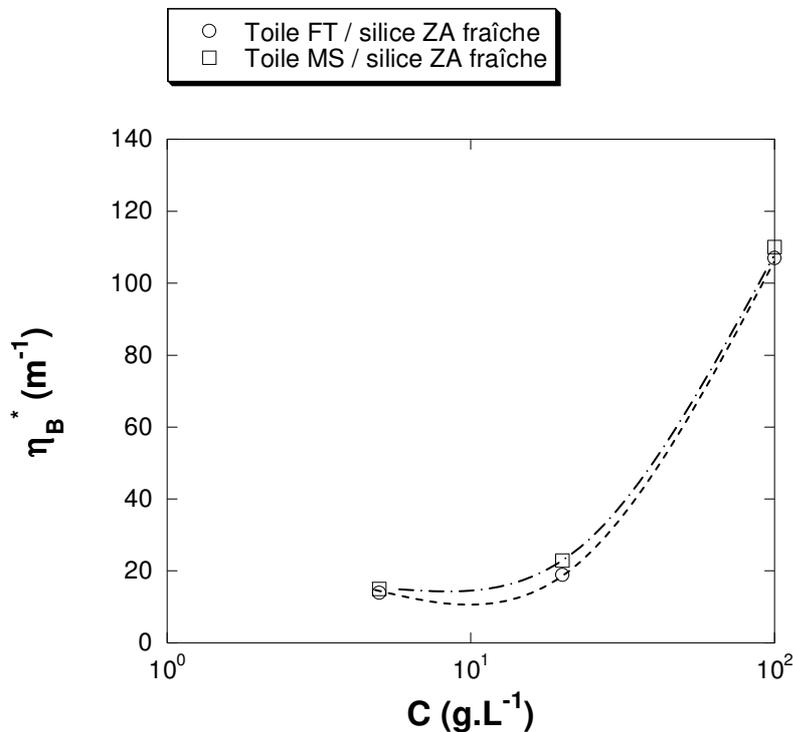


Figure B-1 : Evolution de  $\eta_B^*$  en fonction de la concentration de la suspension  $C$

La figure B-1 montre l'évolution du paramètre de blocage  $\eta_B^*$  avec la concentration  $C$  de la suspension. Une première remarque concerne les toiles FT et MS pour la filtration de la suspension ZA fraîche. Les deux courbes se superposent plutôt bien, ce qui indique que le paramètre de blocage  $\eta_B^*$  n'est pas influencé par la structure du média filtrant. La seconde remarque concerne l'allure générale des courbes  $\eta_B^* = f(C)$ . Lorsque la suspension est diluée  $5\times$  ( $C = 20 \text{ g.L}^{-1}$ ), le paramètre  $\eta_B^*$  est divisé par le même facteur pour la suspension ZA. Pour des concentrations inférieures à  $20 \text{ g.L}^{-1}$ , le paramètre  $\eta_B^*$  diminue de manière moins significative et semble même se stabiliser à une valeur de  $20 \text{ m}^{-1}$  pour la suspension ZA.

Comment expliquer le fait que  $\eta_B^*$  se stabilise à une certaine valeur, alors que la concentration continue à diminuer ? On peut supposer le scénario suivant : tout d'abord, rappelons que le paramètre  $\eta_B^*$  est fonction de la probabilité  $\eta_B$  de capture des particules bloquantes dans le média augmente et de la concentration en particules bloquantes  $C_B$ . Il est probable que la probabilité  $\eta_B$  de capture augmente, cela aurait tendance à contrebalancer la diminution de  $C_B$ , quantité de particules bloquantes, due à la diminution de la concentration  $C$  de la suspension.

L'augmentation de la probabilité de capture  $\eta_B$  proviendrait du fait que la gêne stérique créée par les particules voisines devienne de plus en plus faible au fur et à mesure que la concentration diminue, dans la gamme de concentrations étudiée.

### 3.2 Effet de la concentration $C$ sur le paramètre $\beta_{B,f}$

La figure B-2, ci-après, montre l'évolution de  $\beta_{B,f}$  avec la concentration  $C$  de la suspension.

Pour la filtration de la suspension ZA fraîche, les deux toiles présentent des courbes  $\beta_{B,f} = f(C)$  ayant des allures similaires, avec la toile MS au final moins colmatée que la toile FT. L'expérience à  $C = 20 \text{ g.L}^{-1}$  n'ayant pas été répétée, nous estimons que la baisse de  $\beta_{B,f}$  à cette concentration n'est donc pas significative.

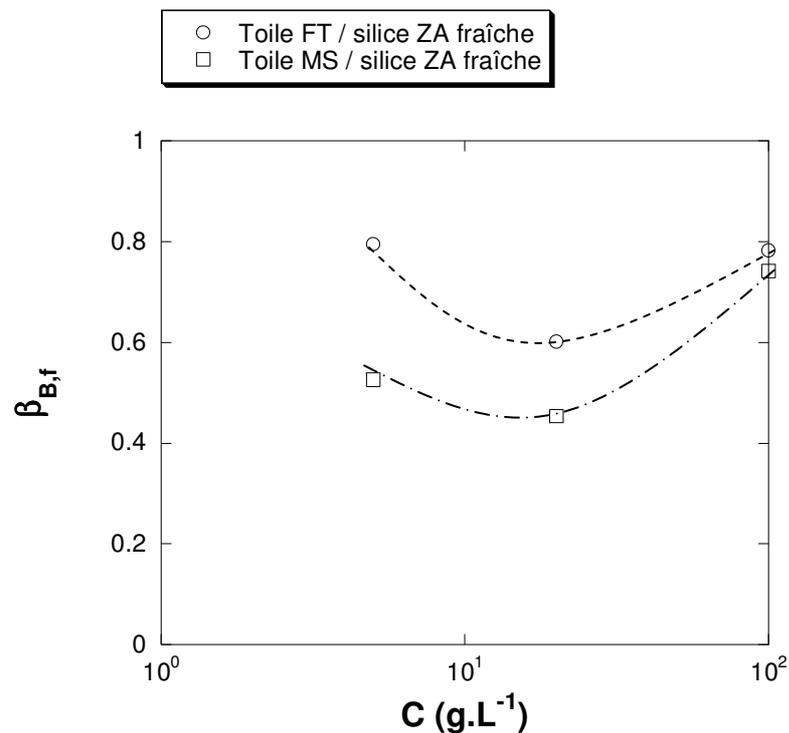
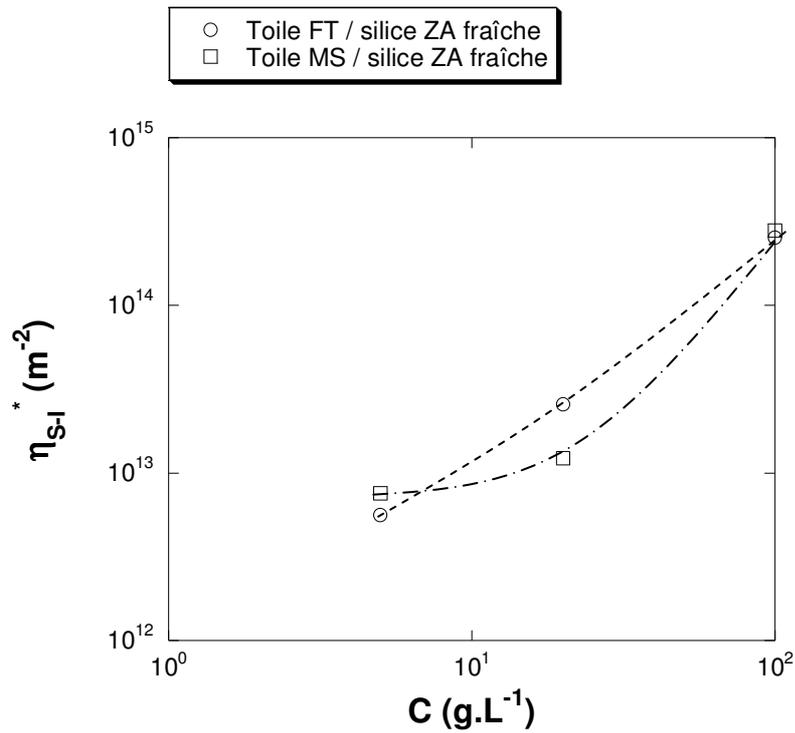


Figure B-2 : Evolution de  $\beta_{B,f}$  en fonction de la concentration  $C$

3.3 Effet de la concentration  $C$  sur le paramètre  $\eta_{S-I}^*$  (dépôt I)Figure B-3 : Evolution de  $\eta_{S-I}^*$  en fonction de la concentration de la suspension  $C$ 

Concernant le paramètre,  $\eta_{S-I}^*$ , caractérisant le gâteau de particules de silice, la figure B-3 montre que la concentration  $C$  de la suspension a un effet certain sur ce paramètre. Comme nous l'avons vu pour la suspension de bentonite (chapitre IV ; §2.1), la dépendance de  $\eta_{S-I}^*$  avec  $C$  n'est pas linéaire et aurait plutôt tendance à suivre une loi puissance.

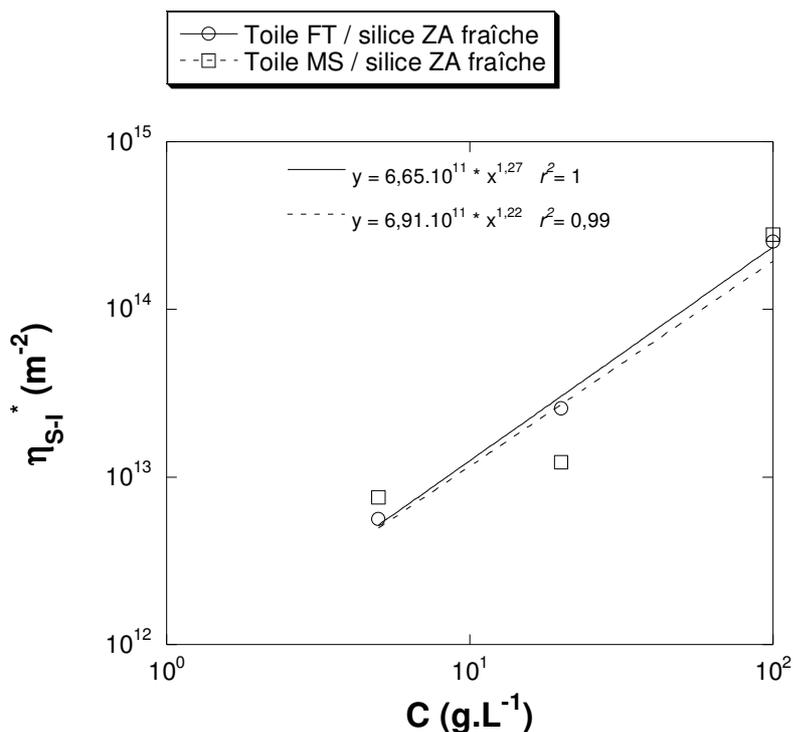


Figure B-4 : Corrélation suivant une loi puissance pour les courbes  $\eta_s^* = f(C)$

A partir des points de la figure B-4, on a pu établir des corrélations avec la concentration  $C$  pour la formation de dépôt issues de la filtration de la suspension ZA fraîche sur les toiles de filtration FT et MS (cf. Fig. B-4) :

$$\left(\eta_s^*\right)_{FT/ZA} = 6,65.10^{11} \times C^{1,28} \quad (\text{B.1})$$

$$\left(\eta_s^*\right)_{MS/ZA} = 6,91.10^{11} \times C^{1,22} \quad (\text{B.2})$$

Dans le cas du dépôt de bentonite formé sur les membranes de microfiltration, l'exposant de la concentration  $C$  était de 1,1. Les corrélations (B.1) et (B.2) ont des expressions assez proches en termes de coefficients et montrent que l'exposant est supérieur à 1 (1,3 pour la toile FT et 1,2 pour la toile MS) dans le cas de la suspension ZA fraîche. Dans tous les cas, cet exposant a une valeur proche de 1. Il n'y a donc pas un gros décalage entre l'hypothèse du modèle qui suppose une directe proportionnalité de  $\eta_s^*$  avec  $C$  et les corrélations établies à partir de points expérimentaux.

Avec des suspensions fortement diluées ( $C = 1 \text{ g.L}^{-1}$ ), nous avons mis en évidence une différence de comportement où  $n = 1,5$  (mécanisme de rétrécissement de pore, assimilable à du colmatage en profondeur) pour la toile MS et  $n = 2$  (mécanisme de blocage de pore) pour la toile FT. Ce qui est en accord avec les photos MEB (cf. Figs V-4 et V-5 du chapitre V) des

toiles propres. La toile MS ayant une structure dont les mailles sont plus ouvertes, les plus petites particules de silice peuvent alors se loger à l'intérieur de la masse poreuse du média.

# Annexe C Propriétés physico-chimiques des suspensions de silice précipitée

## 1. Suspension ZA fraîche

Tableau C-1 : Propriétés physico-chimiques (masse sèche, pH, conductivité  $\chi$ ) de la suspension ZA fraîche

Date	$\omega_s$	pH	$\chi$ (mS.cm <sup>-1</sup> )	T (°C)
3-nov	9,76%	6,12	34,8	22
		<b>6,03</b>	<b>40,5</b>	<b>29</b>
4-nov	<b>10,12%</b>	<b>6,09</b>	<b>40,9</b>	<b>28</b>
5-nov	9,25%	6,12	32,5	22
8-nov	8,77%	6,26	31,1	19
9-nov	<b>10,00%</b>	<b>4,84</b>	<b>40,4</b>	<b>31</b>
	<b>9,94%</b>	<b>5,50</b>	<b>38,9</b>	<b>29</b>
10-nov	<b>9,88%</b>	<b>4,64</b>	<b>41,9</b>	<b>31</b>

Le tableau C-1 n'est pas un suivi des propriétés physico-chimiques d'une même suspension. Chaque série de valeurs correspond à un prélèvement qui provient d'un lot de production de suspension fraîche à chaque fois différent. C'est la raison pour laquelle on observe des différences de pH entre différents lots.

## 2. Suspension ZA réceptionnée au laboratoire

La conductivité de la suspension ZA est suivie afin de détecter un éventuel relargage d'ions. Le suivi du pH peut nous permettre de suivre le phénomène d'agrégation de la silice. En effet, au cours de ce phénomène, il y a production d'ions OH<sup>-</sup> et donc une augmentation du pH.

Tableau C-2 : Suivi des propriétés physico-chimiques (pH et conductivité  $\chi$ ) de la suspension ZA (prélevée le 1<sup>er</sup> septembre 2004)

Date / (Age suspension)	pH	T (°C)	$\chi$ (mS.cm <sup>-1</sup> )	T (°C)
13-sept (12 jours)	5,40	27,4		
14-sept	5,45	27,7		
16-sept	5,45	25,5	36,6	25,5
17-sept	5,44	17,8	37,2	16,4
21-sept	5,45	24	36,2	23,5
22-sept	5,45	21,4	36,7	17,4
23-sept	5,45	27,4	36,8	27,3
29-sept (28 jours)	5,44	19,7	37,4	17,8
6-oct (35 jours)	5,41	17,9	37,4	17,9
7-oct	5,50	26,5		26,5
8-oct	5,45	31	38,3	31
11-oct (40 jours)	5,49	26	38	26

Tableau C-3 : Suivi de la fraction massique  $\omega_s$  de la suspension ZA (prélevée le 1<sup>er</sup> septembre 2004)

Date / (Age suspension)	$\omega_s$
15-sept (14 jours)	9,71%
17-sept	9,73%
21-sept	9,19%
22-sept	9,66%
23-sept	9,73%
29-sept (28 jours)	9,60%
6-oct	9,66%
7-oct	9,66%
8-oct	9,62%
11-oct (40 jours)	9,67%

Si on calcule les moyennes et écarts-types des valeurs de pH, conductivité et fraction massique des tableaux C-2 et C-3, on obtient :

- pH =  $5,45 \pm 0,03$
- $\chi = 37,2 \pm 0,7 \text{ mS.cm}^{-1}$
- $\omega_s = (9,62 \pm 0,16)\%$

Le suivi du pH et de la conductivité de la suspension ZA montre que ces paramètres physico-chimiques restent constants au cours du temps. Cette suspension de silice ZA, que nous qualifions de « vieillie » semble être stable d'un point de vue macroscopique.

### 3. Suspension ZB réceptionnée au laboratoire

Tableau C-4 : Suivi des propriétés physico-chimiques (masse sèche, pH et conductivité  $\chi$ ) de la suspension ZB (prélevée le 6 octobre 2004)

Date	$\omega_s$	pH	$\chi$ (mS.cm <sup>-1</sup> )	T (°C)
3-janv (89 jours)	9,65%	5,40	38,4	19,2
4-janv	9,56%	5,41	38,0	18,8
24-janv	9,64%	5,48	38,1	20,6
27-janv	9,78%	5,45	39,5	20,2
28-janv (114 jours)	9,63%	5,45	39,2	20,0

D'après le tableau C-4, les propriétés physico-chimiques suivies de la suspension ZB évoluent peu sur un mois. La suspension ZB qualifiée de « vieillie » a des propriétés physico-chimiques qui sont plutôt stable d'un point de vue macroscopique.



