



Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Université Toulouse III - Paul Sabatier

Discipline ou spécialité : Génie des Procédés et de l'Environnement

---

Présentée et soutenue par *Charlotte Picard*

Le 6 juillet 2011

**Titre :** *Transfert de matière dans un biofilm aéré sur membrane*

---

### JURY

*Christelle WISNIEWSKI, Professeur des Universités, Montpellier (Rapporteur)*

*João CRESPO, Full Professor, Lisboa (Rapporteur)*

*Patrice BACCHIN, Professeur des Universités, Toulouse (Président)*

*Didier LECOUTURIER, Maître de conférences, Lille (Examineur)*

*Sébastien LOGETTE, Membrane R&D manager, Veolia Environnement, Maisons-Laffitte (Invité)*

*Pierre AIMAR, Directeur de Recherche, Toulouse (Invité)*

*Jean-Christophe REMIGY, Maître de Conférences, Toulouse (Directeur de thèse)*

---

**Ecole doctorale :** *Mécanique, Energétique, Génie Civil & Procédés*

**Unité de recherche :** *Laboratoire de Génie Chimique, Toulouse*

**Directeur(s) de Thèse :** *Jean-Christophe REMIGY*

**Rapporteurs :** *Christelle WISNIEWSKI & João CRESPO*





Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Université Toulouse III - Paul Sabatier  
Discipline ou spécialité : Génie des Procédés et de l'Environnement

---

Présentée et soutenue par *Charlotte Picard*  
Le 6 juillet 2011

**Titre :** *Transfert de matière dans un biofilm aéré sur membrane*

---

### JURY

*Christelle WISNIEWSKI, Professeur des Universités, Montpellier (Rapporteur)*  
*João CRESPO, Full Professor, Lisboa (Rapporteur)*  
*Patrice BACCHIN, Professeur des Universités, Toulouse (Président)*  
*Didier LECOUTURIER, Maître de conférences, Lille (Examineur)*  
*Sébastien LOGETTE, Membrane R&D manager, Veolia Environnement, Maisons-Laffitte (Invité)*  
*Pierre AIMAR, Directeur de Recherche, Toulouse (Invité)*  
*Jean-Christophe REMIGY, Maître de Conférences, Toulouse (Directeur de thèse)*

---

**Ecole doctorale :** *Mécanique, Energétique, Génie Civil & Procédés*

**Unité de recherche :** *Laboratoire de Génie Chimique, Toulouse*

**Directeur(s) de Thèse :** *Jean-Christophe REMIGY*

**Rapporteurs :** *Christelle WISNIEWSKI & João CRESPO*



## Avant propos

*Je remercie tout naturellement mon directeur de thèse Jean-Christophe Remigy qui a accepté d'encadrer ce projet. Il m'a beaucoup apporté par son excellence scientifique. Je voudrais associer Pierre Aimar qui s'est très fortement investi dans cette thèse et avec qui les discussions scientifiques ont été motivantes et productives. Ensemble, nous avons transféré de la matière à travers le biofilm, vous m'avez transféré des compétences techniques et de gestion de projet par de riches et nombreuses discussions... Sachez toute ma reconnaissance.*

*Je remercie tous les membres du jury pour l'attention qu'ils ont bien voulu porter à mon travail ainsi que pour les remarques enrichissantes soulevées pendant la discussion. Je remercie particulièrement Christelle Wisniewski et João Crespo pour avoir accepté de rapporter mes travaux de thèse.*

*Ce projet a été possible grâce à son initiation et son financement par Veolia Environnement. A ce titre, j'adresse mes vifs remerciements à Jean-Christophe Schrotter, Sébastien Logette et Jean Cantet.*

*Il y a ceux qui ont apporté un soutien technique riche de discussions au Centre de Recherche sur l'Eau de Veolia, à savoir l'équipe de Stéphane Déléris et Juan Ochoa : Pascal Boisson, Romain Lemaire, Julie Jimenez, Valérie Gonzalez, Thomas Waroux. Je pense particulièrement à Eoin Syron qui m'a beaucoup apporté sur ce projet.*

*Ceux qui ont participé à la conception et construction du pilote : Jean-Christophe Rouch et Jean-Jacques Bertrand via la société Arias. Après l'arrivée du pilote, il y a eu sa prise en main ; ce n'aurait pas été possible sans Jean-Christophe Rouch.*

*Ceux qui m'ont emmenée à la station d'épuration ou qui m'ont ramené des litres de boues pour alimenter ce pilote!!! A savoir l'équipe Biosym du LGC, particulièrement Claire Albasi.*

*Les stagiaires avec qui j'ai pu travailler : Romain et Eva. Merci de votre implication.*

*J'exprime mes remerciements à l'ensemble des permanents de l'équipe Procédés de Séparation et Membrane que j'ai cotoyé pendant ces années de thèse.*

*Ceux enfin que la coutume nomme « mes compagnons d'infortunes » : ils ont été très importants pour moi et ont rendu les pauses thé et les moments de doutes, très agréable à partager. Et il y a aussi toute l'équipe des « potos du module ». Faisant preuve d'une grande imagination pour surenchérir en blagues : merci pour avoir rendu cette rédaction plus sympa et plus marrante qu'elle n'aurait pu l'être !!!!!*

*Enfin, j'ai une reconnaissance toute spéciale envers Mallo, Nico, Edgar, Ju & Ju, Amélie, Aurélie, Yao, Seb et MarieO, Ludo et Anaïs que j'ai rencontrés en arrivant à Toulouse et que je suis touchée de compter parmi mes amis. Ils m'ont aidée jusqu'au bout et sans eux cette thèse serait encore plus truffée de fôtes d'orthographes. J'ai des remerciements très forts que je voudrais adresser à Guille.*

*Et merci à Bibi-le-pilote : un bon travail et une bonne collaboration !*

*Ce manuscrit de thèse et son contenu sont l'aboutissement d'un travail, fruit d'importantes interactions avec de nombreuses personnes. A vous tous MERCI.*

## **Sommaire**

---





<b>SOMMAIRE</b>	<b>1</b>
<b>INTRODUCTION</b>	<b>7</b>
<b>CHAPITRE I : SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE</b>	<b>11</b>
1 INTRODUCTION ET OBJECTIFS DU CHAPITRE	15
2 LES INFLUENTS DES STATIONS D'ÉPURATION : QUELLE POLLUTION ET QUEL MOYEN DE TRAITEMENT BIOLOGIQUE UTILISÉS ?	15
2.1 Origines des influents des stations d'épuration	15
2.2 Les polluants rencontrés dans les eaux résiduaires entrant dans la station d'épuration	16
2.3 Traitement biologique des pollutions	19
2.4 Les procédés biologiques utilisés dans le traitement des eaux usées	20
3 LES BIOFILMS	22
3.1 La formation des biofilms	22
3.2 Modélisation des réactions biologiques	24
3.3 La structure générale d'un biofilm	26
3.4 Les réacteurs à biofilm de type conventionnel	28
4 LES REACTEURS A BIOFILM SUR MEMBRANE	29
4.1 Les utilisations des réacteurs à biofilm sur membrane	30
4.2 Les facteurs influençant les performances des réacteurs à biofilm sur membrane	34
5 LES CONTACTEURS MEMBRANAIRES	36
5.1 Paramètres du procédé contacteur membranaire	36
5.2 Equations de transfert de matière dans un contacteur membranaire	39
6 TRANSFERT DE MATIÈRE ENTRE LES FLUIDES ET LE BIOFILM DANS UN REACTEUR A BIOFILM	44
6.1 Profils de concentration des substrats en fonction des réacteurs à biofilm	44
6.2 Transfert de matière à l'interface biofilm - liquide	49
6.3 Transfert de matière à l'intérieur du biofilm	50
7 CONCLUSION DE LA SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE ET OBJECTIFS DE LA THÈSE	56
<b>CHAPITRE II : MATÉRIELS ET MÉTHODES</b>	<b>59</b>
1 INTRODUCTION	62
2 DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX	62
2.1 Pilote 1 : croissance du biofilm et transfert de matière	62
2.2 Pilote 2 : mesure du transfert de matière au travers des membranes vieilles	71
3 TECHNIQUES ANALYTIQUES UTILISÉES	72
3.1 Caractérisation de la vitesse de réaction du biofilm : analyse chimique de la DCO	72
3.2 Caractérisation des propriétés diffusionnelles du biofilm : quantification du transfert de gaz à travers la membrane avec ou sans biofilm	72
3.3 Caractérisation des propriétés structurales macroscopique du biofilm : épaisseur et concentration en matière sèche	78

<b>CHAPITRE III : TRANSFERT DE MATIERE DANS UN RBAM :</b>	<b>85</b>
1 INTRODUCTION ET OBJECTIFS DU CHAPITRE	88
2 CARACTERISATION DU TRANSFERT DE MATIERE SANS BIOFILM	88
2.1 Effets de l'écoulement de la phase gazeuse sur le coefficient de transfert global	89
2.2 Effets de l'écoulement de la phase liquide sur le coefficient de transfert global	89
2.3 Modèle des résistances en série	90
2.4 Détermination de l'épaisseur de la couche limite côté liquide	91
3 CARACTERISATION DU TRANSFERT DE MATIERE DU SYSTEME {LIQUIDE + BIOFILM + MEMBRANE + GAZ} A L'AIDE D'UN GAZ TRACEUR	92
3.1 Coefficient de transfert global à travers le biofilm sans réaction	92
3.2 Effet des conditions hydrodynamiques sur la concentration en matière sèche et la diffusivité relative dans le biofilm	96
3.3 Diffusivité relative, vitesse du liquide dans le biofilm et viscosité du biofilm	100
4 EFFETS DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES SUR LES PERFORMANCES D'UN REACTEUR A BIOFILM AERE SUR MEMBRANE	110
4.1 Vitesse de consommation du carbone organique	110
4.2 Etude du flux d'oxygène	115
4.3 Vitesse de consommation du carbone organique et de l'oxygène par le biofilm	116
5 CONCLUSION	119
 <b>CHAPITRE IV : TRANSFERT DE MATIERE DANS RBAM :</b>	 <b>121</b>
1 INTRODUCTION ET OBJECTIFS DU CHAPITRE	125
2 STRUCTURE DES MODELES	125
2.1 Description des compartiments	125
2.2 Les composés	127
2.3 Processus et transfert de matière	127
3 DESCRIPTION DES MODELES	128
3.1 Procédés de transformation biologiques	128
3.2 Processus physiques	135
4 VALIDATION DES MODELES	136
4.1 Validation du calcul de transfert de matière	137
4.2 Validation de la consommation du carbone organique et de l'oxygène	139
4.3 Conclusion	140
5 ANALYSE LOCALE DU FONCTIONNEMENT D'UN BIOFILM SUR MEMBRANE	141
5.1 Profils de concentration de l'oxygène et de la DCO dans le biofilm	141
5.2 Profils de l'activité bactérienne dans les biofilms	143
5.3 Conclusion	144
6 EXPLOITATION DES MODELES	144
6.1 Effets de la pression partielle en oxygène	144
6.2 Effets de la concentration en DCO	149
6.3 Effets de la variation de la diffusivité relative dans le biofilm	152

---

6.4	<i>Effets de la variation de l'épaisseur du biofilm.....</i>	<i>154</i>
6.5	<i>Couplage des différents paramètres testés.....</i>	<i>157</i>
7	APPLICATION A L'ECHELLE DE LA STATION D'EPURATION.....	160
7.1	<i>Hypothèses de fonctionnement de la station d'épuration.....</i>	<i>160</i>
7.2	<i>Résultats.....</i>	<i>161</i>
8	CONCLUSION.....	163
	<b>CONCLUSION ET PERSPECTIVES .....</b>	<b>165</b>
	<b>ANNEXES .....</b>	<b>171</b>
	<b>RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	<b>185</b>
	<b>NOMENCLATURE.....</b>	<b>199</b>



## **Introduction**

---



En France et en Angleterre, l'insalubrité et ses répercussions épidémiques (le choléra, ...) sont à l'origine des premiers réseaux d'égouts installés dans la première moitié du XIX<sup>ème</sup> siècle. L'assainissement des eaux usées consistait alors à évacuer les eaux usées le plus loin et le plus rapidement possible des agglomérations. Cependant, cette approche a eu pour conséquence de concentrer les rejets en polluants sur des emplacements géographiques précis. Il s'en est suivi une dégradation des milieux aquatiques. Aujourd'hui, la nécessité de traiter les eaux usées est indéniable, ce traitement est régi, soit par une réglementation qui est fonction de la fragilité du milieu récepteur en cas de rejet direct, soit par une qualité d'usage requise en cas de volonté de réutilisation des eaux traitées. Ainsi, une fois collectées et avant leur évacuation, il faut donc traiter ces eaux pour les rendre à un niveau de pollution « acceptable » par le milieu récepteur.

Parmi les technologies utilisées pour le traitement des eaux usées, les réacteurs à biofilm sont reconnus pour leur efficacité. La biomasse s'y développe sur un support solide non réactif. Ils représentent des solutions environnementales intéressantes en raison de leur potentiel de dégradation lié aux fonctionnalités des microorganismes qui les composent. Ces réacteurs sont régulièrement utilisés en traitement de l'eau pour l'élimination des pollutions carbonées et azotées, des hydrocarbures, des pesticides ou des composés médicamenteux. Avec la fixation des microorganismes, ces réacteurs ont l'avantage de proposer un découplage du temps de séjour des solides et du temps de séjour hydraulique. Ceci permet théoriquement d'augmenter la concentration en biomasse. Dans ces réacteurs, avec la croissance bactérienne, le transfert des substrats de la phase liquide au biofilm ainsi que dans celui-ci, où ils sont consommés par les cellules, influencent l'efficacité du réacteur. De ces phénomènes de transport résultent des gradients de concentrations en espèces chimiques et une stratification des populations de biomasse dans le biofilm. La profondeur de pénétration des substrats dans le biofilm dépend des concentrations dans le liquide, de la structure du biofilm, du transfert de matière à l'interface biofilm – liquide, du taux de réaction et de l'hydrodynamique au dessus du biofilm. Pour des substrats peu solubles comme l'oxygène, la profondeur de pénétration est relativement faible. Malgré leur importance par rapport aux réactions biologiques recherchées, ces phénomènes de transfert sont aujourd'hui encore incomplètement compris ou mal maîtrisés dans la bibliographie.

Pour leur propriétés telles qu'une stratification des espèces bactériennes différente de celle observée dans les réacteurs à biofilm conventionnels, une meilleure utilisation de l'oxygène ou encore le transfert de certaines espèces chimiques comme l'hydrogène, les réacteurs à biofilms sur membrane sont étudiés depuis quelques années comme offrant un potentiel épuratoire intéressant. Dans ces réacteurs, le transfert des substrats se fait en contre-diffusion dans le biofilm. Pour en optimiser l'efficacité, le transfert doit être maîtrisé. A l'heure actuelle, la plupart des recherches sur ces réacteurs ont été menées à l'échelle

laboratoire. Elles soulignent l'intérêt de la technologie mais ces études ont souvent été faites indépendamment les unes des autres et sans objectifs communs. Dans ces conditions de laboratoire, les biofilms développés ont le plus souvent été des biofilms mono-espèces ce qui finalement est peu rencontré à l'échelle industrielle.

Il apparaît judicieux de s'intéresser aux capacités d'une telle technologie et de connaître les potentiels de traitement par des populations de microorganismes mixtes rencontrées dans les stations de traitement. Nous nous sommes intéressés aux performances de réacteur à biofilm sur membrane élaboré à partir de cultures issues de la station d'épuration de Brax (Haute Garonne), en biofilm mixte. En particulier, le transfert de matière des substrats a été étudié en relation avec l'hydrodynamique et les capacités d'élimination du carbone. Ainsi, ce travail de thèse a été réalisé avec une partie expérimentale importante et une étude de modélisation. Ces deux points, complémentaires entre eux, apportent des éléments pour la compréhension et l'utilisation de ces réacteurs. Enfin, en vue d'une amélioration des capacités et de l'adaptabilité de ces réacteurs aux chocs de charges, nous proposerons des directions pour augmenter les vitesses de traitement en fonction des conditions opératoires.

Au cours de ce manuscrit, nous verrons dans un premier temps l'état des connaissances actuelles sur le transfert de matière au sein des biofilms afin d'en montrer les limites et les besoins d'amélioration de la compréhension. Dans cet objectif, nous avons construit un pilote à l'échelle laboratoire que nous présenterons. Il a été utilisé pour le développement des biofilms sur membrane sous différentes conditions hydrodynamiques et permettre la mesure du transfert de matière dans un biofilm. Les protocoles expérimentaux utilisés seront détaillés. Ensuite, les résultats expérimentaux liés à l'utilisation de ce pilote seront présentés. Ils permettront de montrer le comportement du biofilm en termes de transfert de matière à l'intérieur de celui-ci pour différentes conditions hydrodynamiques. Ces résultats seront ensuite illustrés au chapitre suivant par une étude de modélisation permettant de visualiser l'activité au sein du biofilm et de proposer des pistes d'amélioration de ces réacteurs. Enfin, ce manuscrit se terminera par l'analyse des principales conclusions de ce travail et par une présentation des différentes perspectives résultant de ce travail.



## **Chapitre I : Synthèse bibliographique**

---

## RESUME

Dans les procédés biologiques de traitement des pollutions des eaux usées, la biomasse épuratoire se développe sous deux formes : cultures libres ou fixées : les biofilms. Ceux-ci ont l'avantage de protéger la biomasse des phénomènes de lessivage, de créer des niches protectrices et d'offrir une grande concentration en biomasse. Les biofilms peuvent être utilisés pour leur capacité à créer des environnements propices à certaines réactions biologiques.

Dans les réacteurs à biofilm sur membrane, la membrane sépare deux phases dont l'une au moins est aqueuse. Le biofilm se développe du côté de la phase aqueuse. Les substrats transfèrent vers le biofilm à partir de l'autre phase en traversant la membrane. Les substrats sont en contre-diffusion dans le biofilm, ce qui lui confère une stratification particulière. Cette stratification spécifique à ces réacteurs va permettre de créer des environnements chimiques, dans le biofilm, différents des biofilms conventionnels et donc des réactions biologiques positionnées différemment dans le biofilm. Ces réacteurs vont aussi être utilisés pour contrôler les gaz distribués au biofilm, ou pour créer des conditions de développement du biofilm plus favorables dans le cas de la présence d'une pollution toxique par exemple. Cependant, ces intérêts que proposent ces réacteurs impliquent de maîtriser le transfert de matière dans les biofilms afin de créer les conditions chimiques souhaitées.

Dans l'objectif d'améliorer la capacité épuratoire de la pollution de ces réacteurs, le transfert de matière des phases vers le biofilm doit être optimisé. Aujourd'hui, la bibliographie montre, dans les biofilms, des observations et points de vue parfois contradictoires en apparence sur les mécanismes de transfert se développant à l'intérieur des biofilms. Ce transfert dépend de l'épaisseur de ceux-ci, de leur rugosité, de leur densité, des molécules qui transfèrent... D'autres part les propriétés du biofilm dépendent fortement des conditions dans lesquelles il s'est développé (conditions hydrodynamiques, charge en polluant, type de bactéries, ...).

## SOMMAIRE

1	INTRODUCTION ET OBJECTIFS DU CHAPITRE .....	15
2	LES INFLUENTS DES STATIONS D'EPURATION : QUELLE POLLUTION ET QUEL MOYEN DE TRAITEMENT BIOLOGIQUE UTILISES ?.....	15
2.1	<i>Origines des influents des stations d'épuration</i> .....	15
2.2	<i>Les polluants rencontrés dans les eaux résiduaires entrant dans la station d'épuration</i> .....	16
2.3	<i>Traitement biologique des pollutions</i> .....	19
2.4	<i>Les procédés biologiques utilisés dans le traitement des eaux usées</i> .....	20
2.4.1	Les procédés à cultures libres .....	20
2.4.2	Les procédés à cultures fixées.....	21
2.4.3	Les avantages de la biomasse fixée par rapport à la biomasse en suspension.....	22
3	LES BIOFILMS .....	22
3.1	<i>La formation des biofilms</i> .....	22
3.1.1	Le transfert des bactéries vers le support .....	23
3.1.2	L'adhésion des bactéries au support .....	23
3.1.3	La formation de microcolonies .....	23
3.1.4	La maturation du biofilm .....	23
3.2	<i>Modélisation des réactions biologiques</i> .....	24
3.2.1	Le métabolisme bactérien .....	24
3.2.2	Modèle de croissance de la biomasse et de consommation du substrat.....	24
3.2.3	Profil d'activité bactérienne.....	25
3.3	<i>La structure générale d'un biofilm</i> .....	26
3.3.1	La morphologie d'un biofilm.....	26
3.3.2	Facteurs influençant la structure du biofilm.....	26
3.4	<i>Les réacteurs à biofilm de type conventionnel</i> .....	28
4	LES REACTEURS A BIOFILM SUR MEMBRANE.....	29
4.1	<i>Les utilisations des réacteurs à biofilm sur membrane</i> .....	30
4.1.1	Les réacteurs à biofilm aéré sur membrane.....	30
4.1.2	Les réacteurs à biofilm sur membrane pour le transfert d'hydrogène .....	32
4.1.3	Les réacteurs à biofiltres à membrane.....	33
4.1.4	Les biofilms sur membrane de type extractif .....	33
4.2	<i>Les facteurs influençant les performances des réacteurs à biofilm sur membrane</i> .....	34
5	LES CONTACTEURS MEMBRANAIRES.....	36
5.1	<i>Paramètres du procédé contacteur membranaire</i> .....	36
5.1.1	Pression de percée.....	36
5.1.2	Phénomènes limitants .....	37
5.1.3	Caractéristiques des membranes .....	38
5.2	<i>Equations de transfert de matière dans un contacteur membranaire</i> .....	39
5.2.1	Le transfert de matière .....	39
5.2.2	Le modèle de résistance en série.....	41
5.2.3	Détermination expérimentale des coefficients de transfert dans chaque phase.....	42
6	TRANSFERT DE MATIERE ENTRE LES FLUIDES ET LE BIOFILM DANS UN REACTEUR A BIOFILM.....	44

6.1	<i>Profils de concentration des substrats en fonction des réacteurs à biofilm</i> .....	44
6.1.1	Les réacteurs à biofilm conventionnels.....	44
6.1.2	Les réacteurs à biofilm sur membrane .....	45
6.2	<i>Transfert de matière à l'interface biofilm - liquide</i> .....	49
6.3	<i>Transfert de matière à l'intérieur du biofilm</i> .....	50
6.3.1	Méthode de quantification du transfert de matière dans un biofilm.....	50
6.3.2	Convection et diffusion dans un biofilm : observations expérimentales et de modélisations .....	52
6.3.3	Paramètres influençant le transfert de matière dans le biofilm .....	53
7	CONCLUSION DE LA SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE ET OBJECTIFS DE LA THÈSE .....	56

## **1 INTRODUCTION ET OBJECTIFS DU CHAPITRE**

L'objet de cette synthèse bibliographique est de présenter le contexte de l'étude et de démontrer l'intérêt de ces travaux en vue d'une meilleure compréhension du transfert de matière dans les réacteurs à biofilm sur membrane pour en améliorer les performances.

Dans un premier temps, les pollutions entrant dans les stations d'épuration ainsi que les procédés biologiques de traitement de ces flux seront présentés. L'intérêt portera sur l'avantage des procédés à biomasse fixée par rapport à ceux à biomasse en suspension. Ensuite, la formation et la structure de cette biomasse fixée sera étudiée. Les travaux antérieurs concernant les réacteurs à biofilm sur membrane seront présentés afin d'en montrer les différentes utilisations proposées dans la bibliographie. Puis, le fonctionnement des contacteurs membranaires sera décrit. Enfin, le transfert de matière en présence d'un biofilm sera présenté dans le but de synthétiser les connaissances actuelles et d'en ressortir certaines limites nécessaires à une bonne compréhension des réacteurs à biofilm sur membrane.

## **2 LES INFLUENTS DES STATIONS D'ÉPURATION : QUELLE POLLUTION ET QUEL MOYEN DE TRAITEMENT BIOLOGIQUE UTILISES ?**

### **2.1 Origines des influents des stations d'épuration**

Les effluents à traiter ont des origines différentes, comme par exemple les eaux naturelles, les effluents urbains ou industriels et les boues (Degrémont, 2005). Dans le cadre de cette étude, nous nous intéresserons aux eaux résiduaires entrant dans une station d'épuration urbaine. Ces eaux peuvent être de deux origines :

- Les eaux usées domestiques sont essentiellement porteuses de pollutions organiques. Elles se répartissent en deux catégories : les eaux ménagères des salles de bain et des cuisines qui sont généralement chargées de substances biodégradables, de détergents, de produits nettoyants, désinfectants, et détartrants ainsi que de pesticides pour usage domestique et de solvants pour le bricolage ; ces eaux peuvent aussi contenir des polluants cosmétiques et médicamenteux. La deuxième catégorie d'eaux usées domestiques sont les « eaux vannes » comprenant les rejets de toilettes. Ces dernières sont chargées de diverses matières organiques azotées et de germes fécaux (Elskens, 2010 ; Pons et al., 2008).
- Les eaux usées industrielles peuvent également être introduites dans les systèmes d'assainissement collectifs publics. Leurs caractéristiques varient d'une industrie à l'autre (métaux lourds, micropolluants organiques, hydrocarbures,...). Ainsi, ces effluents ne sont pas toujours compatibles avec le système d'épuration public destiné à l'assainissement des effluents urbains et la présence d'éléments

indésirables peut dégrader la qualité des boues d'épuration. Dès lors, une politique d'assainissement des eaux résiduaires industrielles est nécessaire (Elskens, 2010 ; Pons et al., 2008).

Les eaux pluviales ou de ruissellements arrivent à la station d'épuration lorsque le système d'épuration est dit « unitaire ». Sinon, le système est dit « séparatif », il est alors composé de deux conduits, l'un pour les eaux usées, l'autre pour les eaux pluviales qui seront rejetées dans le milieu récepteur sans être traitées. Cependant, de plus en plus, l'eau de pluie se charge d'impuretés au contact de l'air (fumées industrielles) puis, en ruisselant, de résidus déposés sur les toitures et les voiries (huile de vidange, carburants, résidus de pneus, métaux lourds,...) (Miquel, 2003 ; Pons et al., 2008 ; Elskens, 2010). Les eaux pluviales constituent une source de pollution majeure du cours d'eau dans le cas d'un système séparatif et sont une source de difficultés pour les stations de traitement des eaux usées dans le cas d'un système unitaire. Le choix, normalement réglementé en fonction des débits prévisibles d'eaux pluviales, est largement imposé par l'histoire et l'espace disponible.

## **2.2 Les polluants rencontrés dans les eaux résiduaires entrant dans la station d'épuration**

L'origine des eaux résiduaires entrant dans la station d'épuration est variée, donc la nature des pollutions qui rentrent dans la station par le biais des eaux résiduaires et qu'il faut traiter est aussi diversifiée. L'épuration est destinée à réduire les pollutions issues des eaux usées pour les rendre « acceptables » par le milieu récepteur (Miquel, 2003). Les principaux types de pollution retrouvées dans les influents sont rapportés dans le Tableau I-1.

Nature de la pollution	Origine	Effets sur l'environnement
Pollution organique non toxique en elle-même	Eaux usées domestiques et industrielles	Leur dégradation par voie bactérienne consomme de l'oxygène dissous dans l'eau, entraînant la mort des poissons par asphyxie et le développement de fermentations anaérobies génératrices de nuisances
Pollution azotée et phosphorée	Dégradation des molécules organiques azotées, ammoniacque	Elle est à l'origine des phénomènes d'eutrophisation : développement et croissance excessive d'algues et de plancton dans les milieux récepteurs : lacs, rivières et zone côtière
Pollution toxique et substances dangereuses	<u>Micropolluants organiques :</u>	Dues en général aux rejets industriels, mais aussi aux rejets agricoles pour les produits phytosanitaires et les rejets urbains pour les biocides
	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ Les produits phytosanitaires</li> <li>○ Les biocides</li> <li>○ les hydrocarbures</li> <li>○ les biphényles polychlorés</li> <li>○ les dioxines</li> </ul>	
<u>Micropolluants minéraux</u>		Les effets sur les organismes vivants peuvent être toxiques à de très faibles concentrations. Les effets sont très variables car ils ne dépendent pas uniquement du niveau de concentration mais aussi d'autres caractéristiques comme leur biodisponibilité, bioaccumulation, persistance, spéciation, etc...
Micropolluants organométalliques		
Pollution par les matières en suspensions	Rejets urbains et industriels	Elle provoque des dépôts et des envasements nuisibles à la navigation, le colmatage des voies respiratoire des poissons et l'augmentation de la turbidité de l'eau gênant la pénétration de la lumière nécessaire à la photosynthèse

Pollution microbiologique	Mauvais raccordements au réseau d'assainissement, rejets de station d'épuration, ...	Certaines bactéries et virus sont pathogènes pour l'homme
Pollution acide	Pollution atmosphérique, engrais azotés, rejets urbains et industriels	Elle peut entraîner une augmentation des formes dissoutes des micropolluants minéraux et accroître leur réactivité, biodisponibilité et toxicité
Pollution saline	Rejets industriels	Elle peut conduire à des chocs osmotiques susceptibles de perturber la faune et la flore locale du milieu récepteur
Pollution thermique	Rejets industriels	Elle influence la solubilité de l'oxygène et l'équilibre biologique du milieu
Pollution radioactive	Rejets industriels	Elle peut être très acide. Elle perturbe l'environnement

**Tableau I-1 : Description des principaux types de pollution des eaux résiduaire entrant dans les stations d'épurations (Boeglin, 1998 ; Pons et al., 2008)**



Selon la nature, l'importance de la pollution et les objectifs recherchés, les procédés de traitement mis en œuvre dans une station d'épuration pour assainir des eaux résiduaires sont différents. Ces procédés peuvent être basés sur des processus physico-chimiques et/ou biologiques. Dans le cadre de cette étude, l'intérêt se portera uniquement sur les procédés biologiques. Ils font appel à une grande variété de microorganismes, principalement des bactéries qui décomposent la matière biodégradable.

### 2.3 Traitement biologique des pollutions

Les traitements biologiques utilisés en traitement de l'eau ne font que reprendre des phénomènes naturels déjà existants en les orientant vers les objectifs de dépollution recherchés. Ces réactions constituent le cœur des stations de traitement des eaux résiduaires urbaines. Ils font appel à des microorganismes, principalement des bactéries « vraies » et des archéobactéries. Les bactéries « vraies » sont classées en fonction de la source de carbone qu'elles utilisent : les bactéries hétérotrophes consomment du carbone organique ; les bactéries autotrophes, du carbone inorganique. Une autre classification des bactéries est la source de l'accepteur final d'électron : les bactéries aérobies utilisent l'oxygène comme accepteur final ; les bactéries anaérobies utilisent d'autres composés inorganiques comme les nitrate, sulfate, dioxyde de carbone ou des molécules organiques. Les archéobactéries, modèles précurseurs des procaryotes sont les hôtes des milieux extrêmes : sources acides, eaux très chaudes, eaux hyper salées, tubes digestifs des animaux, fond des mers. Dans le traitement de l'eau, elles sont retrouvées dans les méthaniseurs (Degrémont, 2005).

Le Tableau I-2 propose une classification du type de bactéries en fonction des substrats accompagnée d'un exemple de substrat consommé.

Source de carbone	Voie de dépollution	Type de bactéries	Donneur d'électron	Accepteur d'électron	Sous-produits
Organique	Aérobie	Hétérotrophe aérobie	Matière organique	O <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O, NH <sub>3</sub>
	Anaérobie	Hétérotrophe anaérobie : Archéobactéries	H <sub>2</sub> , acides gras volatils	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub>
Inorganique	Aérobie	Autotrophe aérobie	NH <sub>3</sub> <sup>-</sup> , NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	O <sub>2</sub>	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
	Anaérobie	Autotrophe anaérobies	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	N <sub>2</sub>

Tableau I-2 : Classification des cultures bactériennes (modifiée à partir de Degrémont, 2005)

Ces bactéries sont ensuite exploitées à l'échelle de la station d'épuration dans différentes unités de traitement mises en œuvre de manière à retenir la biomasse pour pouvoir utiliser ses capacités épuratoires.

## **2.4 Les procédés biologiques utilisés dans le traitement des eaux usées**

La mise en œuvre des cultures bactériennes peut revêtir de très nombreuses formes. Il est classique de distinguer les procédés dits à cultures libres et les procédés dits à cultures fixées.

Dans les procédés à cultures libres utilisés dans le traitement d'eaux résiduaires, la culture bactérienne est développée sous forme de floccs dispersés au sein du liquide à traiter. Le bassin est brassé afin de conserver la culture en suspension. Les procédés à culture fixée utilisent la capacité des microorganismes à produire des exopolymères permettant leur fixation sur des supports très divers, pour former un biofilm. Le matériau support est immobile. Dans les cultures mixtes, le biofilm est fixé sur des supports assez fins et/ou assez légers pour être maintenus en suspension dans le réacteur (Degrémont, 2005).

### **2.4.1 Les procédés à cultures libres**

Il existe deux types de traitements biologiques des eaux usées par procédés à cultures libres : le traitement par boues activées et le lagunage.

#### **a) Le traitement par boues activées**

Les configurations des stations de traitement des eaux résiduaires urbaines sont différentes en fonction de la qualité de l'eau et des objectifs de traitement. Une étape d'aération des boues et une phase de décantation sont nécessaires dans ce type de réacteur. Dans le cas de l'élimination de l'azote et du phosphore, une phase anoxique se rajoute au traitement aérobie. Ces phases peuvent avoir lieu soit en des lieux physiques différents d'une suite de réacteurs soit dans un même réacteur mais à des moments différents (réacteurs biologiques séquentiels).

#### **b) Le lagunage**

L'utilisation d'étangs naturels ou artificiels comme milieux récepteurs d'effluents bruts ou traités remonte à des temps anciens. On trouve des lagunes naturelles et aérées. Dans les lagunes naturelles, l'eau à épurer est stockée dans un bassin de faible profondeur. Des bactéries aérobies se développent et utilisent la pollution comme source de nourriture et aboutissent à la formation d'une boue activée dispersée. L'oxygène est fourni par l'activité photosynthétique d'algues. Le fond de la lagune est anaérobie. Les lagunes aérées sont un dispositif très proche des procédés à boues activées, où l'oxygène est apporté avec des aérateurs artificiels pour le maintien des conditions aérobies des bactéries épuratrices (Boeglin, 1998).

### 2.4.2 Les procédés à cultures fixées

Les procédés biologiques à cultures bactériennes fixées dérivent d'une intensification des processus naturels d'épuration par le sol. Le plus ancien est celui du lit bactérien. Plus récemment, les procédés à biomasse fixée sur milieu granulaire fin ont été mis en place : les biofiltres (Boeglin, 1998).

Les nutriments de la phase liquide véhiculés par l'eau à traiter diffusent à travers le biofilm, mais ne peuvent pas toujours diffuser sur toute l'épaisseur du biofilm. Il se produit ainsi dans les films bactériens une stratification avec superposition de plusieurs couches, par exemple une couche aérobie dans laquelle l'oxygène diffuse et une couche anaérobie plus profonde dans laquelle l'oxygène est absent. En fonction des réactions en place, la même stratification peut être observée avec une couche aérobie et une couche anoxique par exemple. Il peut donc y avoir plusieurs réactions biologiques différentes en fonction de l'environnement local dans le même biofilm.

#### a) Les lits bactériens

Le principe de fonctionnement d'un lit bactérien consiste à faire ruisseler l'eau à traiter, préalablement décantée ou au moins bien tamisée, sur une masse de matériau servant de support aux microorganismes épurateurs qui y forment un film. L'eau contient de l'oxygène soit par tirage naturel soit par aération forcée. Les pollutions contenues dans l'eau, ainsi que l'oxygène, diffusent à travers le film biologique pour y être dégradées par les microorganismes. Inversement, les sous-produits et le dioxyde de carbone s'éliminent dans les fluides en circulation.

#### b) Les biofiltres

Dans les procédés à biofilm, l'activité de la culture bactérienne dépend en particulier de sa surface d'échange. Dans un réacteur à lit bactérien, la surface spécifique est modeste et la répartition du flux à traiter sur la totalité du biofilm est délicate à l'échelle industrielle. Ainsi, le développement de réacteurs à biofiltres, où le film bactérien grandit sur un support granulaire de petite taille assure la surface spécifique développée et par conséquent propose une surface d'échange très supérieure à celle des procédés à lits bactériens et à boues activées (Degrémont, 2005).

Le procédé se présente comme un filtre garni de matériaux de granulométrie suffisamment faible pour obtenir un effet de filtration efficace. Le matériau sert donc simultanément de support à la biomasse de type fixée et de filtration. L'accroissement de la biomasse et des matières en suspension de l'effluent à traiter, retenues par le matériau, vont colmater progressivement le lit. Les lavages du matériau ont donc lieu cycliquement, cette technique est discontinue (Boeglin, 1998).

### 2.4.3 Les avantages de la biomasse fixée par rapport à la biomasse en suspension

La capacité des cellules à se développer sur un support fixé leur confère des avantages décisifs par rapports aux cellules en suspension. Les procédés à biofilm ont la capacité de découpler le temps de rétention des solides du temps de séjour hydraulique. En effet, la biomasse en suspension peut être éliminée par l'écoulement liquide alors que la biomasse fixée est davantage protégée de ce phénomène de lessivage (Wanner et al., 2006). Cet avantage n'est intéressant que dans le cas où le temps de rétention des solides en suspension est inférieur à leur taux de croissance spécifique (Van Benthum et al., 1998). De plus, dans les procédés où plusieurs populations bactériennes sont présentes, alors que les bactéries à faibles vitesses de croissance seront lessivées dans une culture en suspension, elles peuvent croître dans les couches basales du biofilm fixé, protégées du lessivage. Les biofilms permettent donc le développement de microorganismes caractérisés par un faible taux de croissance spécifique (Wanner et al., 2006).

Le biofilm a également un rôle de « barrière » pour les composés néfastes à la croissance bactérienne, protégeant ainsi les couches basales du biofilm. Ce rôle de barrière appliqué aux substrats peut aussi avoir un effet sur la stratification du biofilm.

La structure physique du biofilm permet aux bactéries qui le composent de créer des « niches » qui facilitent la croissance et le développement des microorganismes qui ne pourraient pas survivre dans une culture libre. En effet, l'activité microbienne peut engendrer une modification du microenvironnement (pH, oxygène, métabolites, biocides,...) pour le rendre plus hospitalier que la phase liquide (Wanner et al., 2006).

Pour profiter de ces avantages, notre étude portera sur le comportement de la biomasse fixée dans le cadre du traitement des eaux résiduaires de station d'épuration.

## **3 LES BIOFILMS**

Un biofilm est défini comme un ensemble de micro-colonies bactériennes engluées dans leurs propres exopolymères et adhérant à une surface vivante ou inerte (Jouenne, 2008). Il peut être constitué d'une seule espèce bactérienne mais le plus souvent plusieurs espèces coexistent au sein de la structure.

Les paragraphes suivants présentent les mécanismes de l'adhésion de ces microorganismes en vue de la formation des biofilms. Ensuite, les cinétiques des réactions biologiques dans les biofilms sont présentées ainsi que leur structure et les paramètres les influençant.

### **3.1 La formation des biofilms**

On admet en général que la formation d'un biofilm se déroule en quatre étapes successives : le transfert des bactéries vers le support, l'adhésion initiale des bactéries aux surfaces, la

prolifération aboutissant à la formation de micro-colonies et la maturation du biofilm (Figure I-1).

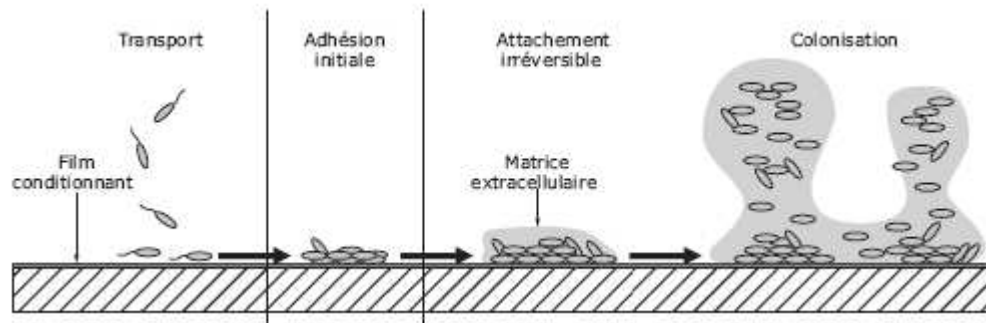


Figure I-1 : Représentation schématique de la formation d'un biofilm (Guillemot et al., 2007)

### 3.1.1 Le transfert des bactéries vers le support

Les bactéries se déplacent de la phase liquide vers le support solide par diffusion ou par convection liée au flux dynamique de la solution aqueuse ou aux mouvements actifs grâce à des structures telles que des flagelles de certaines espèces bactériennes (Van Loosdrecht et al., 1998). Avant que celles-ci ne viennent en contact du support, un mélange complexe composé de protéines, de glycoprotéines et de nutriments organiques forme un film de conditionnement sur la surface. Puis, une fraction des microorganismes est adsorbée à la surface. Ils ne sont pas au *stricto sensu* en contact immédiat avec la surface mais immobilisés à quelques dizaines de nanomètres. L'adhésion est encore réversible (Jouenne, 2008).

### 3.1.2 L'adhésion des bactéries au support

Ensuite les bactéries se rapprochent du support, et créent plusieurs points d'ancrage de forte énergie. L'adhésion est alors irréversible. La physiologie bactérienne s'oriente alors vers un phénotype « biofilm » caractérisé en particulier par la surproduction d'exopolymères qui vont « cimenter » le consortium bactérien (Jouenne, 2008).

### 3.1.3 La formation de microcolonies

L'adhésion irréversible va conduire à la présence de cellules isolées, voire d'agrégats à la surface du matériau. L'étape de colonisation consiste en une accumulation plus ou moins intense et rapide par division cellulaire des bactéries adhérentes, mais aussi par recrutement continu des bactéries de la phase liquide. Ce processus correspond à une occupation progressive de la surface disponible (colonisation horizontale) et à un développement en épaisseur, conduisant à la formation de micro-colonies.

### 3.1.4 La maturation du biofilm

La phase de maturation du biofilm se caractérise par une augmentation de la taille de la structure via la multiplication cellulaire et la synthèse d'exopolysaccharides. Un équilibre

dynamique se crée entre la perte de biomasse (mortalité et décrochement) et la multiplication concomitante d'une partie de la biomasse fixée. Le biofilm acquiert une structure tridimensionnelle, dont l'unité de base est décrite comme une structure en forme de doigts. A partir du biofilm formé, des bactéries ou des agrégats bactériens peuvent se détacher et coloniser d'autres surfaces.

### **3.2 Modélisation des réactions biologiques**

Les cinétiques de réaction ont été regroupées dans des modèles complets tels que ASM1, ASM2 et ASM3 pour les systèmes de traitement biologique des eaux usées (ASM : Activated Sludge Model).

ASM1 prend en compte les groupes bactériens principaux comme la biomasse hétérotrophe et la biomasse autotrophe pour la consommation du carbone, de l'azote et de l'oxygène. Les substances biodégradables sont considérées de deux manières : les matières facilement biodégradables, celles-ci sont assimilables par la biomasse telle quelle ; et les matières lentement biodégradables qui nécessite une hydrolyse pour devenir de la matière facilement biodégradable. Cette hydrolyse est faite par des enzymes extracellulaires sécrétées par les microorganismes.

Le modèle ASM1 utilise la relation de Monod pour décrire les cinétiques de croissance de la biomasse hétérotrophe et autotrophe. Ce modèle prend en compte l'hypothèse de mort-régénération de la biomasse, génératrice de DCO lentement biodégradable.

Le modèle ASM1 a été ensuite complété en ASM2 qui prend en compte l'élimination biologique du phosphore et ASM3 qui prend en compte le stockage de polymère dans la conversion hétérotrophe (Henze et al., 2007).

#### **3.2.1 Le métabolisme bactérien**

Un microorganisme en croissance produit de l'énergie par l'intermédiaire des réactions liées à la dégradation d'un substrat et conduisant aussi à la synthèse des molécules et macromolécules cellulaires. Le métabolisme regroupe le catabolisme et l'anabolisme. Le catabolisme est la destruction du substrat pour la production d'énergie, l'anabolisme est l'assimilation du substrat dans la cellule.

#### **3.2.2 Modèle de croissance de la biomasse et de consommation du substrat**

L'efficacité du traitement biologique est gouvernée par la croissance microbienne. Cette dernière est exprimée comme la différence (Équation I-1) entre les cinétiques de production (Équation I-2) et de décès de biomasse (Équation I-3). Plusieurs modèles mathématiques ont été proposés pour rendre compte de la cinétique de production bactérienne. Le modèle de Monod est le plus ancien et le plus utilisé. Il est présenté Équation I-2.

$$r_p = r_x - b_x$$

**Équation I-1**

Avec

$$r_x = \mu_{\max} \cdot X \cdot \frac{S_1}{S_1 + K_{S1}} \cdot \frac{S_2}{S_2 + K_{S2}}$$

**Équation I-2**

$$b_x = b \cdot X$$

**Équation I-3**

Où  $r_p$  est la vitesse de production de biomasse ( $\text{mgMVS L}^{-1} \text{j}^{-1}$ ),

$r_x$  : la vitesse de croissance de la biomasse ( $\text{mgMVS L}^{-1} \text{j}^{-1}$ ),

$b_x$  : la cinétique de décès de la biomasse ( $\text{mgMVS L}^{-1} \text{j}^{-1}$ ),

$\mu_{\max}$  : le taux de croissance maximum de la biomasse ( $\text{j}^{-1}$ ),

$X$  : la concentration en biomasse active ( $\text{mgMVS L}^{-1}$ ),

$S_1$  et  $S_2$  : les concentrations en substrats 1 et 2 ( $\text{mg L}^{-1}$ ),

$K_{S1}$  et  $K_{S2}$  : les constantes de demi-saturation pour les substrats ( $\text{mg L}^{-1}$ ),

$b$  : le taux de décès de la biomasse considérée ( $\text{j}^{-1}$ ),

MVS signifie « Matières Volatiles en Suspension ».

La cinétique de consommation du substrat ( $\text{mg L}^{-1} \text{j}^{-1}$ ) est le rapport entre la vitesse de croissance de la biomasse et le rendement de conversion du substrat en biomasse (Équation I-4).

$$r_s = \frac{r_x}{Y}$$

**Équation I-4**

Où  $Y$  est le rendement de conversion du substrat en biomasse ( $\text{mgMVS mg}^{-1}$ ).

Le processus de mort bactérienne peut être décrit de deux manières. La mort de la biomasse est représentée par une réaction d'ordre 1 reliée à la concentration de biomasse active (Équation I-3). A la mort des bactéries, une partie des bactéries devient une fraction de matière organique non biodégradable. L'autre fraction est soit oxydée, c'est le concept de respiration endogène, soit s'ajoute à la fraction de matière organique lentement biodégradable, c'est le concept de mort-régénération (Van Loosdrecht et Henze, 1999).

### 3.2.3 Profil d'activité bactérienne

Le profil d'activité du biofilm témoigne des zones de réactivité de celui-ci pour des réactions données. Les parties d'un biofilm les plus actives, dans le cas d'une population bactérienne consommant les substrats  $S_1$  et  $S_2$ , sont celles où les deux substrats sont présents

simultanément. Les zones où un des deux réactifs est absent sont limitantes pour la croissance bactérienne. L'activité du biofilm est donnée par l'Équation I-5.

$$\text{activité} = \frac{S_1}{S_1 + K_{S1}} \cdot \frac{S_2}{S_2 + K_{S2}}$$

Équation I-5

### 3.3 La structure générale d'un biofilm

La majeure partie du biofilm est composée d'eau qui en constitue jusqu'à 97% de sa masse (Sutherland, 2001). La fraction de matière autre que l'eau assure une structuration du biofilm. Cette structure est très variée entre les biofilms et ces hétérogénéités sont marquées par (Bishop et al., 1995) :

- Hétérogénéités géométriques : épaisseur, rugosité de la surface, porosité du biofilm,...
- Hétérogénéités chimiques : diversité de composition (nutriments, produits métaboliques, inhibiteurs,...), de pH, de réactions (aérobies, anaérobies,...)
- Hétérogénéités biologiques : diversité des espèces microbiennes et de leur distribution spatiale, différences d'activité (croissance cellulaire, production de substances polymériques extracellulaires, mort cellulaire,...)
- Hétérogénéités physiques : densité du biofilm, perméabilités, viscoélasticité, propriétés des substances polymériques extracellulaires, concentration en solutés, diffusivité des solutés, présence de solides abiotiques

Les paragraphes suivants décrivent les éléments principaux qui constituent un biofilm et en dépeignent la structure physique.

#### 3.3.1 La morphologie d'un biofilm

De Beer et al. (1994) mais aussi Stewart (2003) observent que les biofilms sont constitués d'agrégats séparés par du liquide interstitiel qui transporte les nutriments pour les cellules et les déchets produits par les bactéries. Ces agrégats contiennent des cellules bactériennes cloisonnées dans une matrice d'exopolymères, essentiellement constituée de polysaccharides et de protéines. L'agrégat peut être composé de 10 à 25% de cellule et de 75 à 90% de matrice extracellulaire selon les espèces impliquées (Costerton, 1999).

#### 3.3.2 Facteurs influençant la structure du biofilm

Stoodley et al. (1997) ont rapporté qu'il y a quatre catégories de facteurs qui influencent la structure d'un biofilm :

- la surface sur laquelle il se développe (hydrophobicité, rugosité et propriétés électrochimiques) ;

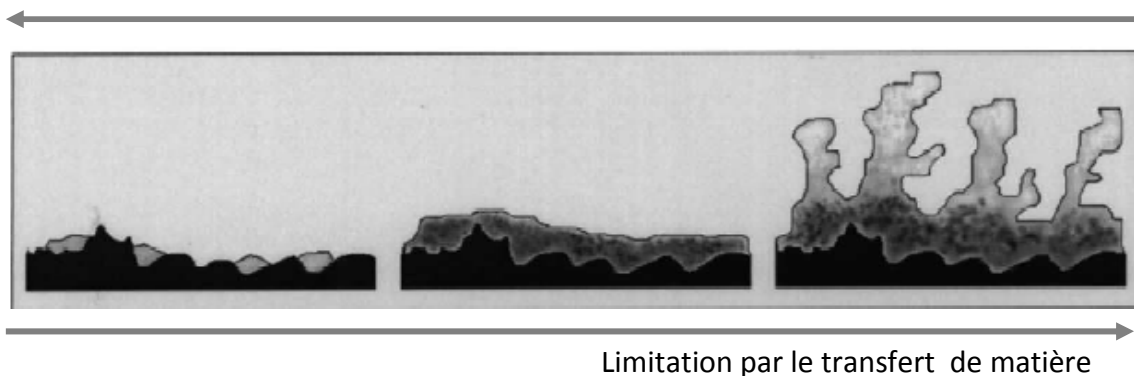


- les conditions hydrodynamiques dans lesquelles le biofilm se développe (contrainte de cisaillement, coefficient de frottement, transfert de matière) ;
- la composition du milieu (concentration, propriétés de transfert, réactivité, propriétés antimicrobiennes) ;
- le consortium bactérien et la diversité écologique du biofilm (chaîne alimentaire et structure trophique, prédation, ...).

Ces facteurs liés les uns avec les autres influencent la structure physique du biofilm.

Les conditions hydrodynamiques impactent la forme physique du biofilm à travers la contrainte de cisaillement. Plus la force physique appliquée au biofilm est élevée plus le biofilm devient résistant, compact et fin (Kugaprasatham et al., 1992, Melo et Viera, 1999 ; Kwok et al., 1998). En effet, avec une forte contrainte de cisaillement, le détachement du biofilm va avoir lieu via l'érosion du biofilm créant des biofilms lisses. Le biofilm est alors relativement homogène et plan. Dans des systèmes avec de faibles forces de détachement, le biofilm est poreux et le détachement se fait par « sloughing » (arrachage du biofilm). Le biofilm est plus hétérogène, il présente des pores et des protubérances (Figure I-2).

Contrainte de cisaillement

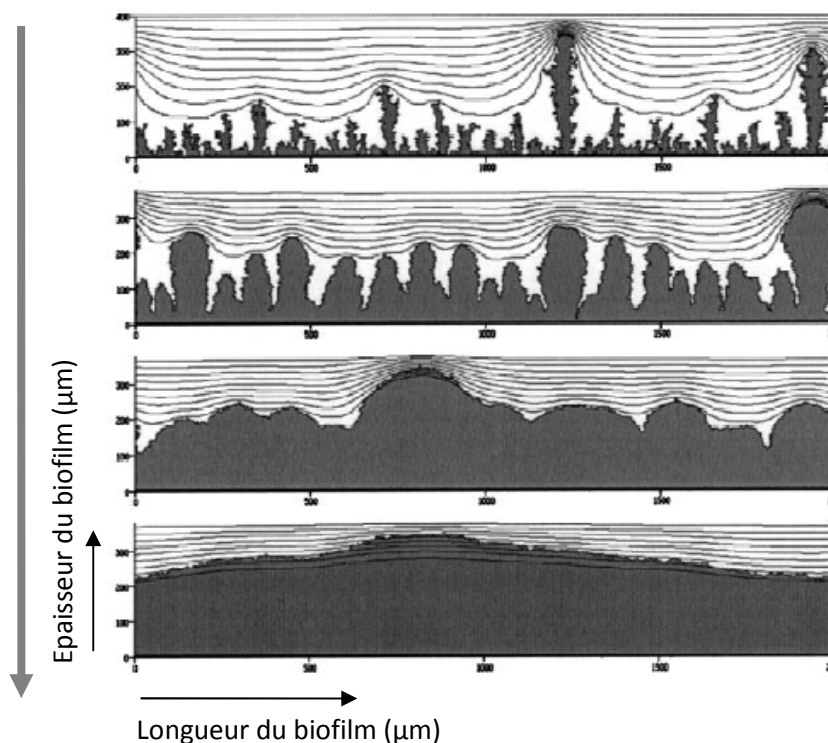


**Figure I-2 : Représentation schématique de la forme d'un biofilm en fonction des contraintes de cisaillement et du transfert de matière (Van Loosdrecht et al., 2002)**

La Figure I-2 suggère aussi l'importance du transfert de matière dans les réacteurs à biofilm. Ce transfert dépend de facteurs physiques (hydrodynamique, mélange) et biologiques (rendement de conversion, vitesse de consommation). Quand la vitesse de consommation du substrat est supérieure à la vitesse de transfert du substrat vers le biofilm, alors un gradient de concentration en substrat se crée. Plus le transfert est lent devant la vitesse de consommation bactérienne plus ce gradient est important. Picioreanu et al. (1998) montrent par simulation numérique que pour un biofilm de type conventionnel, plus la vitesse de transfert du substrat par rapport à la consommation est faible, plus le biofilm se développe sous forme poreuse, voire filamenteuse (Figure I-3). Les lignes d'iso concentration sur cette figure montrent le gradient de concentration du substrat. Ces lignes indiquent que pour un

biofilm poreux, le substrat est plus disponible pour la biomasse située en haut de l'agrégat que la biomasse située dans les couches basales. Ainsi pour un réacteur à biofilm de type conventionnel, dans le cas où deux substrats du milieu liquide sont nécessaires (ex : matière carbonée et oxygène) et en absence d'inhibiteur, la biomasse située sur les couches supérieures du biofilm se développe plus rapidement.

Structure du biofilm en  
fonction du rapport :  
 $\frac{\text{phénomènes de transport}}{\text{vitesse de consommation}}$



**Figure 1-3 : Résultats de simulation de la forme du biofilm avec une augmentation du rapport de la vitesse de transfert du substrat par la vitesse de consommation du substrat par le biofilm. Mathématiquement, l'épaisseur du biofilm est atteinte pour chaque biofilm et est fixée à 350  $\mu\text{m}$  (Picioreanu et al., 1998)**

La structure du biofilm résulte donc de l'interaction entre plusieurs facteurs (les trois principaux : transfert de matière, force de détachement, vitesse de consommation) qui rendent difficile d'étudier ces facteurs indépendamment les uns des autres.

### 3.4 Les réacteurs à biofilm de type conventionnel

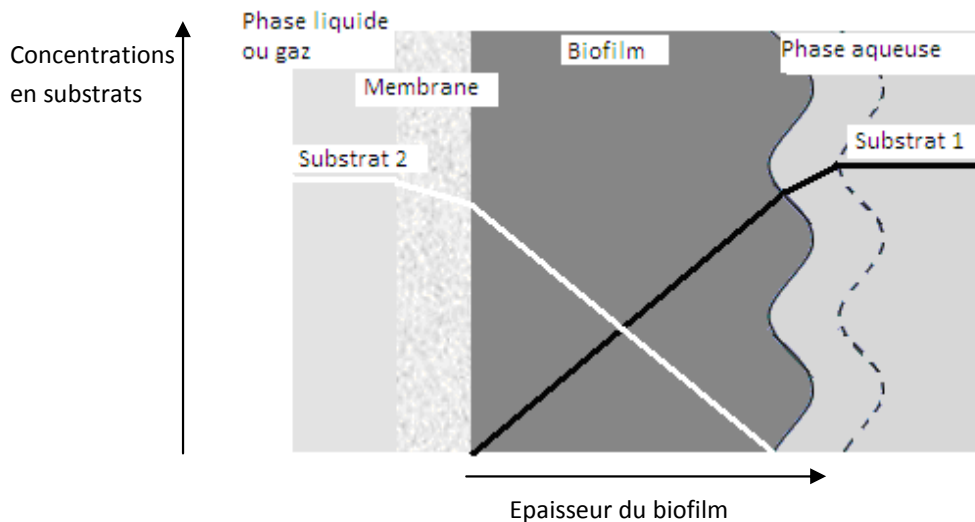
Dans un réacteur à biofilm de type conventionnel, la biomasse se développe sur un support solide inerte. Les substrats diffusent de la phase liquide vers le biofilm. Si ce dernier est épais par rapport aux capacités de transfert, les substrats ne diffusent que dans la partie proche de l'interface avec la phase liquide. Dans le cas d'un biofilm aérobique dégradant le carbone organique, étant limité par sa solubilité dans l'eau, l'oxygène ne diffuse que sur sa couche supérieure (zone d'activité du biofilm). Dans ce cas, le procédé est limité par la solubilité de l'oxygène. Il existe deux possibilités pour dépasser ces limites : augmenter la surface de réaction donc de biofilm, par exemple par l'utilisation de procédé à biofilm développé sur

des particules ou bien modifier le transfert des substrats, afin d'augmenter la capacité épuratoire. C'est le cas des réacteurs à biofilm sur membrane, sujet de ce travail.

#### 4 LES REACTEURS A BIOFILM SUR MEMBRANE

Dans un réacteur à biofilm sur membrane, le biofilm se développe sur une membrane qui est utilisée comme contacteur entre le biofilm lui-même et l'un des deux fluides adjacents. Une phase aqueuse contient la pollution à dégrader, l'autre est gazeuse, aqueuse ou organique, et contient un autre substrat nécessaire à la croissance du biofilm. Celui-ci transfère vers la base du biofilm à travers la membrane alors que le premier substrat transfère de la phase liquide vers le biofilm. Dans ces réacteurs, les substrats nécessaires à la croissance du biofilm sont donc en contre-diffusion (Figure I-4).

Le transfert des substrats dans le biofilm contrôle leur disponibilité pour la croissance des bactéries et influence donc leur stratification qui sera différente de celle d'un réacteur à biofilm de type conventionnel où les substrats sont en co-diffusion.



**Figure I-4 : Schéma du transfert de matière des substrats en contre-diffusion dans un réacteur à biofilm sur membrane**

Dans un réacteur à biofilm de type conventionnel, les substrats transfèrent de la phase liquide dans laquelle le biofilm se développe vers la base de celui-ci. Dans le cas d'un biofilm aérobie, le flux maximal d'oxygène transférable de la phase liquide vers le biofilm est de  $1,8 \times 10^{-3} \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  (calculé dans ce travail sous les hypothèses suivantes : consommation de l'oxygène instantanée, milieu liquide à l'équilibre avec de l'air, épaisseur de couche limite fixée à  $10 \text{ }\mu\text{m}$ ). Par ailleurs, si une membrane poreuse hydrophobe sépare une phase liquide d'une phase gazeuse contenant de l'air, le flux maximal d'oxygène transférable si la consommation de l'oxygène est immédiate est de  $13,2 \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  (calculé dans ce travail sous les hypothèses suivantes : consommation de l'oxygène instantanée, pas de couche limite côté gaz, coefficient de transfert de la membrane égale à  $5 \times 10^{-2} \text{ m s}^{-1}$  qui correspond à une

valeur expérimentale justifiée au chapitre III, à l'équilibre avec de l'air). Le potentiel maximum de transfert d'oxygène des réacteurs à biofilm sur membrane semble donc être, bien plus élevé que dans le cas des biofilms conventionnels. Un tel potentiel de transfert de matière et de stratification ouvre la voie à de nombreuses applications, dont les plus importantes sont rapportées dans le paragraphe suivant.

#### 4.1 Les utilisations des réacteurs à biofilm sur membrane

En fonction de l'application et des phases en contact, le nom des réacteurs à biofilm sur membrane est différent. Ci-dessous quelques exemples d'applications sont présentés.

##### 4.1.1 Les réacteurs à biofilm aéré sur membrane

Dans un Réacteur à Biofilm Aéré sur Membrane (RBAM), la membrane sépare une phase liquide d'une phase gazeuse contenant de l'oxygène pur ou de l'air. L'oxygène est utilisé par le biofilm pour toutes réactions aérobies : dégradation de la pollution carbonée et/ou azotée.

- Dégradation de la pollution carbonée des eaux usées.

Pankhania et al. (1999) et Brindle et al. (1999) ont utilisé des réacteurs à biofilm aéré sur membrane en vue de la dégradation de la DCO contenue dans l'eau usée. Ils observent une vitesse d'élimination de  $60,4 \text{ g m}^{-2} \text{ j}^{-1}$ .

Casey et al. (1999) font l'hypothèse qu'il existe trois couches au sein du biofilm. La première, proche de l'interface biofilm-membrane où la DCO n'est pas présente mais où il y a de l'oxygène, cette couche est propice à la respiration endogène. La deuxième couche où la DCO et l'oxygène sont tous les deux présents, c'est la zone de croissance du biofilm. Enfin la troisième couche, exempt d'oxygène, est anaérobie (Figure I-5).

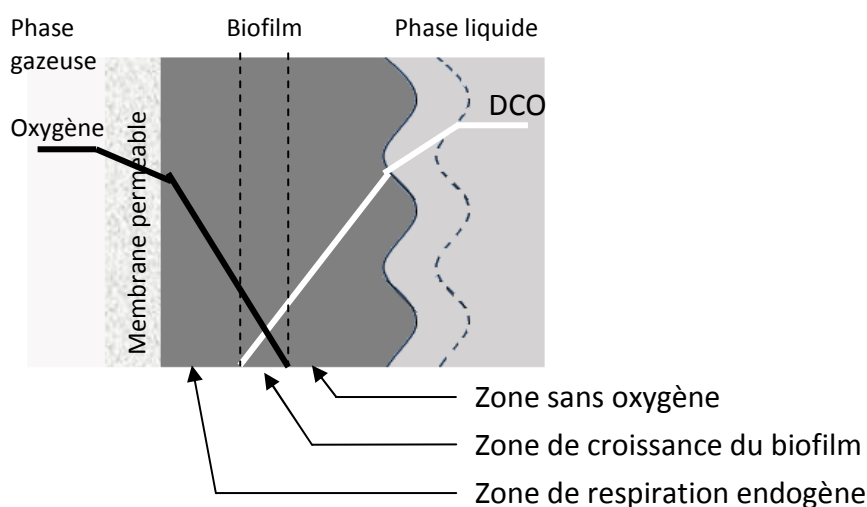


Figure I-5 : Schéma des zones de croissance dans un biofilm aéré sur membrane pour la consommation de la DCO

Les réacteurs à biofilm aéré sur membrane ont été utilisés selon la bibliographie dans des cas où le mélange de constituants serait explosif. C'est le cas de l'utilisation de bactéries méthanotrophes capables de dégrader par co-métabolisme des hydrocarbures aromatiques chlorés en présence d'oxygène et de méthane. Rishell et al. (2004) proposent de distribuer l'oxygène par la phase gazeuse et le méthane par la phase liquide. Ils observent une consommation d'oxygène maximale de  $1,9 \times 10^{-4} \text{ g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  et une croissance de biofilm jusqu'à  $300 \mu\text{m}$  d'épaisseur par jour. Ces deux observations témoignent d'une importante activité métabolique et donc du potentiel d'oxydation des RBAM méthanotrophes.

Les biofilms aérés sur membrane peuvent aussi être utilisés pour minéraliser des composés organiques pour lesquels la croissance bactérienne est faible. De cette manière, les microorganismes sont protégés du lessivage. De plus, certains de ces composés sont volatils, l'aération sans bulles via la membrane permet d'éviter l'entraînement de ces molécules lors d'un bullage. Des auteurs rapportent l'élimination de xylène (Debus, 1995) ou de 1,2-dichloro-éthane (Hage et al., 2004).

- Dégradation de la pollution azotée

La nitrification est un processus aérobie d'oxydation de l'ammoniaque en nitrite puis en nitrate. Il est réalisé par des micro-organismes autotrophes parfois hétérotrophes (Terada, 2006). La dénitrification est la réduction des nitrites ou nitrates en azote gazeux principalement, par les bactéries hétérotrophes. Cette réaction a lieu en milieu anoxique (absence d'oxygène, présence de nitrite et/ou nitrate) et en présence de matière organique. Parce que les environnements chimiques nécessaires aux réactions de nitrification et de dénitrification ne sont pas les mêmes, ces réactions ont lieu soit en deux temps distincts dans un même réacteur soit en deux espaces différents.

Dans un RBAM, la base du biofilm est riche en oxygène, les bactéries nitrifiantes qui ont une croissance faible par rapport aux hétérotrophes peuvent ainsi s'y développer et sont protégées des phénomènes de lessivage. La stratification du biofilm offre donc un potentiel pour des réactions de nitrification, dénitrification et dégradation de la DCO simultanément.

Terada et al. (2003) ont observé une nitrification et dénitrification simultanée dans un RBAM. Ils observent expérimentalement la stratification des populations bactériennes dans le biofilm. Ils notent que les bactéries nitrifiantes se situent du côté de l'interface biofilm - membrane, là où ils ont précédemment quantifié à l'aide d'une microsonde la présence d'oxygène. Satoh et al. (2004) détectent la nitrification à la base du biofilm en utilisant des microsondes à  $\text{O}_2$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{NO}_3^-$  et à pH.

Le contrôle du transfert de la DCO et de l'ammoniaque de la phase liquide vers le biofilm est nécessaire au bon fonctionnement du réacteur. Plusieurs points impactent ce transfert (voir

paragraphe 5). De plus, dans le cas d'un biofilm avec plusieurs réactions simultanées, trois éléments ont été mis en évidence : la concentration des substrats, le rapport des concentrations et l'épaisseur du biofilm. L'effet du rapport des concentrations des substrats a été recherché par Matsumoto et al. (2007) qui ont proposé une modélisation des réacteurs à biofilm aéré sur membrane. Ils rapportent une meilleure élimination de l'azote et du carbone pour des rapports de concentration de C/N compris entre 3 et 5,25 pour une épaisseur de biofilm de 750  $\mu\text{m}$ . L'effet des concentrations a été recherché par LaPara et al. (2006), ils ont observé que pour deux biofilms développés avec un même rapport DCO/N de 10 mais avec des concentrations différentes, la nitrification est fortement limitée dans le cas où les concentrations sont les plus élevées. Ils concluent qu'avec une concentration élevée, la DCO a diffusé jusqu'à la base du biofilm, riche en oxygène et la biomasse hétérotrophe est rentrée en compétition avec la biomasse autotrophe, limitant la nitrification. L'effet de l'épaisseur du biofilm a été investigué par Matsumoto et al. (2007) par l'étude de modélisation citée précédemment, ils ont observé que l'efficacité du réacteur est maximale pour une épaisseur de biofilm comprise entre 600 et 1200  $\mu\text{m}$  lorsque le rapport C/N est de 3,5. Au-delà, la DCO et l'ammoniaque ne diffusent pas jusqu'à la base du biofilm, la couche anaérobie devient une barrière pour le transfert de matière. A l'inverse, si le biofilm est trop fin, alors la DCO et l'ammoniaque diffusent jusqu'à la base du biofilm et entrent en compétition pour l'oxygène, au dépend des bactéries nitrifiantes.

Ces réacteurs ont aussi été utilisés pour un couplage de bactéries nitrifiantes et de bactéries Anammox capables d'oxyder l'ammoniaque de manière anoxique (Terada et al. ; 2007, Gong et al., 2007)

#### 4.1.2 Les réacteurs à biofilm sur membrane pour le transfert d'hydrogène

La dégradation des contaminants en présence d'hydrogène par voies biologiques n'est en général pas explorée à cause de la faible solubilité de l'hydrogène dans l'eau et de sa forte inflammabilité qui rendent alors l'utilisation des procédés par bullage peu efficace et risquée. Le développement de réacteurs à biofilm sur membrane permet de mettre en contact une phase gazeuse riche en hydrogène avec l'effluent à traiter par l'intermédiaire de la membrane et du biofilm développé sur celle-ci. Le transfert de l'hydrogène au biofilm est alors mieux maîtrisé et les polluants sont consommés par des bactéries autotrophes. Des exemples de composés réduits dans la bibliographie sont : les nitrates (Lee et Rittmann, 2002 ; Ergas et Reuss, 2001 ; Terada et al. , 2006) ; les perchlorates (Nerenberg et al., 2002 et 2008) ; les bromates (Downing et Nerenberg, 2006 et 2007) ; l'arséniate (Chung et al., 2006a), les chromates (Chung et al., 2006b) et les sélénates (Chung et al., 2006c) ; le 1,1,1 trichloroethane et le chloroforme (Chung et Rittman, 2007), ...

Lee et Rittmann (2002) observent, sur un biofilm réduisant les nitrates, un optimum de pression en hydrogène en deçà duquel les nitrates sont éliminés partiellement, et au delà duquel l'hydrogène se retrouve dans la phase liquide.

Dans ce type de réacteur, il peut exister une compétition pour l'hydrogène entre plusieurs populations bactériennes. Ainsi, Rittmann et al. (2004) observent que la présence de nitrate diminue l'efficacité de la réduction du perchlorate. Les nitrates sont inhibiteurs de la réduction des bromates (Downing et Nerenberg, 2006 et 2008), de l'arséniate (Chung et al. 2006a) et des chromates (Chung et al., 2006b).

La précipitation de minéraux dans le biofilm est aussi susceptible d'influencer le transfert de matière à long terme. Lee et Rittmann (2003) observent que les variations de pH dans le milieu liquide dues aux réactions biologiques, en présence de calcium risquent de précipiter des minéraux tels que  $\text{CaCO}_3$  et  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$ .

#### 4.1.3 Les réacteurs à biofiltres à membrane

Les biofiltres à membrane sont utilisés pour traiter les gaz contenant des polluants volatils biodégradables. Les microorganismes dégradent ces polluants en sous-produits (tel que le  $\text{CO}_2$ ), de la biomasse et de l'eau. Dans ces réacteurs à biofilm sur membrane, celle-ci sépare une phase gazeuse d'une phase liquide. La phase gazeuse contient les polluants à traiter ainsi que de l'oxygène. Le biofilm se développe sur la membrane du côté de la phase liquide. Les polluants et l'oxygène diffusent de la phase gazeuse à travers la membrane directement à la base du biofilm. Les molécules dégradées sont par exemple : le toluène (Parvatiyar et al., 1996a), le diméthyle sulfite (De Bo et al., 2002), les BTEX (Attaway et al., 2002),... Le trichloréthylène (TCE) est aussi dégradé par les biofiltres à membrane avec un biofilm stratifié en une couche anaérobie pour décomposer le TCE et une couche aérobie pour dégrader les sous-produits de la première réaction (Parvatiyar et al., 1996b).

#### 4.1.4 Les biofilms sur membrane de type extractif

Dans un réacteur à biofilm sur membrane de type extractif, la membrane sépare deux phases liquides. L'une avec une solution nécessaire à la croissance du biofilm dont de l'oxygène, l'autre avec les eaux à traiter contenant le polluant à dégrader. Le biofilm se développe sur la membrane dans la solution contenant les éléments nécessaires à sa croissance. Le polluant diffuse de l'eau usée, à travers la membrane, directement vers la base du biofilm pour y être dégradé.

Ce type de procédé peut être utilisé lorsque les polluants sont des composés organiques volatils dissous dans l'eau : ces réacteurs permettent alors la présence d'oxygène dans le milieu tout en évitant les phénomènes d'entraînement des gaz lors du bullage. Ces réacteurs sont aussi utiles dans les cas où les polluants à dégrader sont dans une solution riche en sels qui réduiraient la croissance bactérienne. La membrane utilisée est sélective et ne laisse passer que le polluant à dégrader. Ce type d'effluent à traiter se retrouve dans les effluents industriels issus de la synthèse de chimie fine et de l'industrie pharmaceutique.

A titre d'exemple, les molécules traitées sont les suivantes : phénol (Livingston, 1993a ; Loh et al., 2000) ; 3-chloro-4-methylaniline (Splendiani et al., 2000) ; 3-4 dichloroaniline (Brookes

et Livingston, 1993) ; 3-chloronitrobenzene (Livingston, 1993b) ; monochlorobenzene et 1,2-dichloroethane (Freitas Dos Santos et al., 1997).

Matos et al. (2008) utilisent une membrane échangeuse d'anions pour permettre le passage sélectif de bromates et de nitrates par exemple.

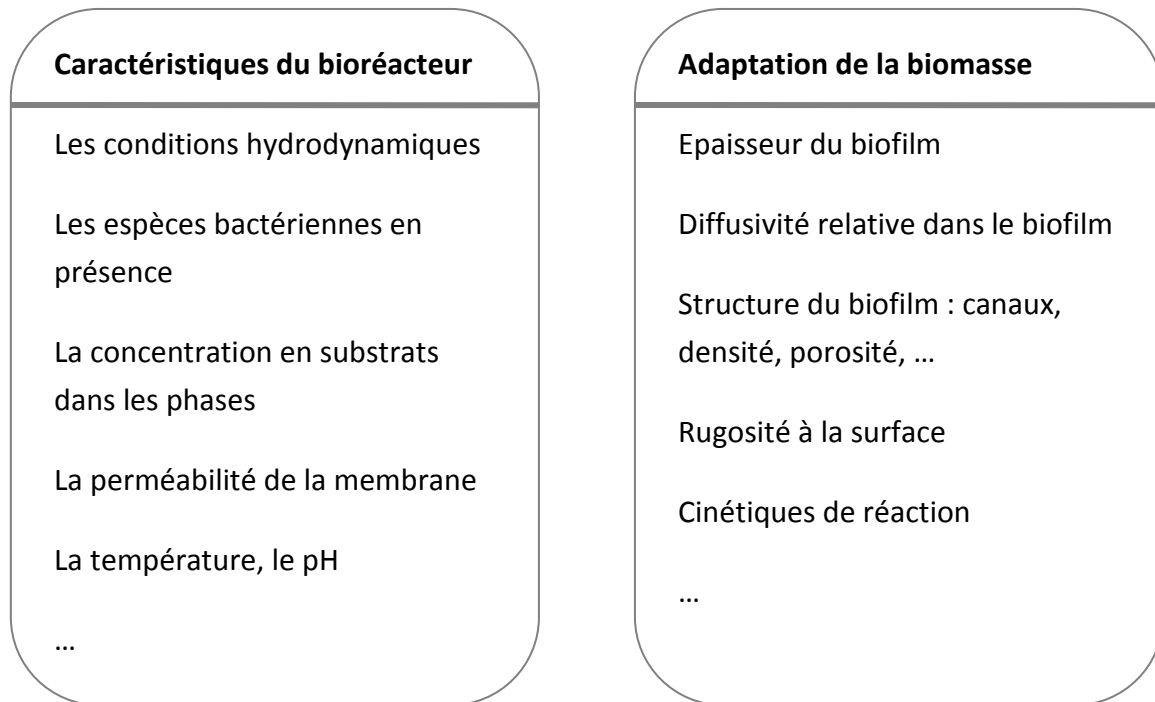
Ici également, l'épaisseur du biofilm influence l'efficacité de ces réacteurs : Freitas dos Santos et al. (1997) rapportent une diminution de l'efficacité du réacteur lorsque l'épaisseur du biofilm dépasse 200  $\mu\text{m}$ . Cependant, en dessous de 300  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, ils observent la présence du polluant dans le milieu de culture bactérien, ce qui pose des risques d'entraînement par bullage lors de l'oxygénation du milieu liquide.

L'oxygène est peu soluble dans l'eau, il ne pénètre donc que sur les couches supérieures du biofilm (côté interface biofilm – milieu de culture). Afin de dépasser ces limitations dues à la solubilité, Emanuelsson et al., (2003) et Emanuelsson et Livingston (2004) proposent de remplacer l'oxygène par des nitrates et donc de développer un biofilm anoxique pour la dégradation du toluène. Cependant, ils observent une limitation au transfert due à la partie inactive du biofilm, qui augmente alors la résistance au transfert. Ils concluent que la solubilité du nitrate par rapport à l'oxygène n'est pas le facteur essentiel contrôlant le flux de matière organique.

#### **4.2 Les facteurs influençant les performances des réacteurs à biofilm sur membrane**

Par la description des différentes utilisations des réacteurs à biofilm, le paragraphe précédent cite certains facteurs influençant les performances des réacteurs à biofilm sur membrane. Ils sont rappelés et résumés Figure I-6 en séparant ceux liés au bioréacteur et ceux liés au biofilm. Les deux sont étroitement liés. Il existe de nombreux paramètres, les principaux sont rapportés ici.





**Figure I-6 : Mise en évidence des caractéristiques qui dépendent du réacteur et qui influencent les propriétés du biofilm**

Les caractéristiques du bioréacteur et le développement du biofilm sont étroitement liés. La conséquence est qu'ils agissent tout deux sur les flux de matière entre les fluides et le biofilm et donc sur la stratification et les performances du réacteur.

A titre d'exemple, l'étude des conditions hydrodynamiques, source de coût pour les industries, et en même temps, paramètre sur lequel il est potentiellement facile d'agir, a montré selon Li et al. (2008) que la consommation de l'acétonitrile par un biofilm sur membrane augmente avec l'augmentation du Nombre de Reynolds. Les auteurs ne proposent pas d'élément sur les propriétés du biofilm pour expliquer cette amélioration. Mais Casey et al. (2000b) observent que la vitesse de consommation de l'acétate diminue avec l'augmentation du Nombre de Reynolds pour des biofilms dont l'épaisseur est inférieure à 1000  $\mu\text{m}$ . Lorsque l'épaisseur est plus grande, les résultats sont peu nombreux mais les tendances semblent s'inverser. L'hydrodynamique joue donc un rôle crucial, que la bibliographie souligne comme complexe et incomplètement maîtrisée.

Ces liens entre les caractéristiques du réacteur et la forme du biofilm sont étroits. Ils influencent tous deux le transfert de matière. Les connaissances actuelles sur le sujet seront expliquées dans les paragraphes qui suivront.

## 5 LES CONTACTEURS MEMBRANAIRES

Un contacteur membranaire est un dispositif qui sépare physiquement deux phases par une membrane et permet de réaliser un transfert non sélectif par diffusion de constituants entre ces deux phases, donc à travers la membrane. La plupart du temps la membrane est poreuse et sert de support à l'interface entre les phases.

Dans les contacteurs membranaires liquide / liquide à deux phases, deux phases immiscibles ont une interface commune à chaque pore de la membrane (Figure I-7). Ils sont utilisés pour éliminer de l'une des deux phases, un composé qui est plus soluble dans la deuxième phase, par exemple l'acide acétique extrait de l'eau par du xylène.

Dans un contacteur membranaire liquide / liquide à trois phases, la membrane sépare deux phases aqueuses ou deux phases organiques, et une troisième phase remplit les pores de la membrane. Cette phase peut être gazeuse, organique ou aqueuse (Reed et al., 1995) (Figure I-7). Dans ce type de contacteur, il y a donc deux interfaces. C'est le cas par exemple de l'élimination de l'ammonium : une membrane hydrophobe sépare une phase aqueuse contenant l'ammonium à éliminer d'une phase aqueuse d'acide sulfurique. La membrane étant hydrophobe, les pores de la membrane sont remplis d'air, l'ammonium se désorbe de l'eau à traiter sous forme d'ammoniac dans la phase gaz puis l'ammoniac est absorbé de la phase gazeuse vers la phase acide.

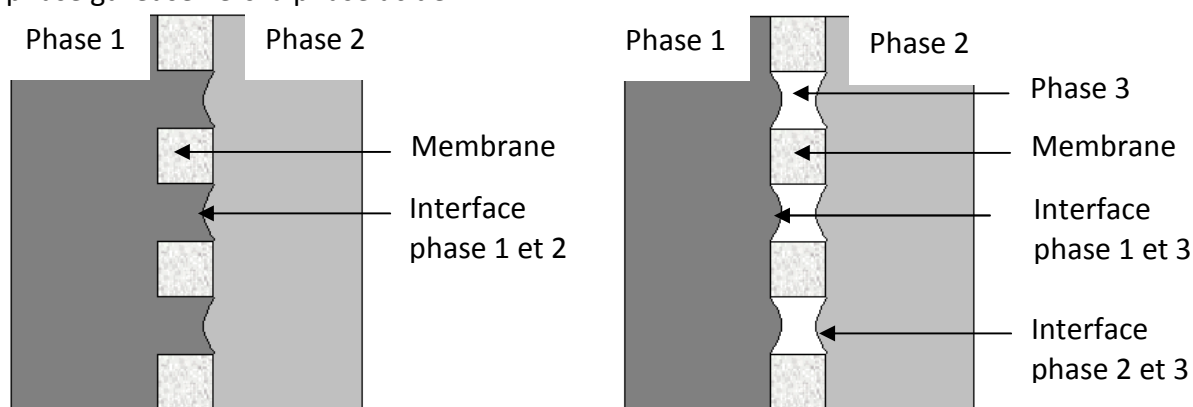


Figure I-7: A gauche : Schéma d'un contacteur liquide / liquide à deux phases. A droite : schéma d'un contacteur liquide / liquide à trois phases

### 5.1 Paramètres du procédé contacteur membranaire

#### 5.1.1 Pression de percée

La pression de percée concerne uniquement les membranes poreuses. Elle correspond à la pression capillaire qui se développe au niveau du ménisque séparant deux phases dans un capillaire. Elle est donnée par l'équation de Young-Laplace (Gabelman et Hwang, 1999) :

$$\text{Pour une interface liquide / liquide : } \Delta P = \frac{-2 \cdot \gamma \cdot \cos \theta}{r_p}$$

$$\text{Pour une interface gaz / liquide : } \Delta P = \frac{-2 \cdot \sigma \cdot \cos \theta}{r_p}$$

Avec :  $\Delta P$  : différence de pression entre les deux phases (Pa),

$\gamma$  : tension interfaciale ( $\text{J m}^{-2}$ ),

$\sigma$  : tension de surface ( $\text{J m}^{-2}$ ),

$\theta$  : angle de contact entre le liquide et le matériau (radian),

$r_p$  : rayon du pore (m).

Pour éviter au fluide « mouillant » le pore de traverser la membrane et d’aller vers le fluide « non mouillant », la pression de ce dernier est maintenue légèrement supérieure à l’autre, mais inférieure à la pression de percée qui impose donc les limites de fonctionnement du système.

### 5.1.2 Phénomènes limitants

La force motrice des contacteurs membranaires est la différence de concentration du constituant entre les deux phases. Ainsi cette différence de concentration s’applique aussi à l’eau et dans un contacteur gaz / liquide, de la vapeur d’eau peut diffuser de la phase liquide vers la phase gazeuse (Côté et al., 1989). La phase gazeuse est rapidement saturée en eau et l’eau se condense du côté intérieur de la membrane (Fang et al., 2004). Ce condensat ne peut être totalement évité.

Côté et al. (1989) observent que le transfert est moins efficace dans des modules à fonctionnement frontal coté gaz. Deux facteurs sont en cause : la condensation de la vapeur d’eau mais aussi la diffusion retour. Ahmed et Semmens (1992) ont modélisé les concentrations en oxygène et en azote dans un contacteur gaz / liquide en mode frontal (Figure I-8) et concluent également que la diffusion retour a un impact négatif important sur la performance du contacteur. En effet, le transfert de gaz de la phase gazeuse vers la phase liquide est plus important à l’entrée de la phase gaz qu’à l’extrémité. Les auteurs observent la pression partielle du gaz d’intérêt diminuer avec la longueur de la fibre.

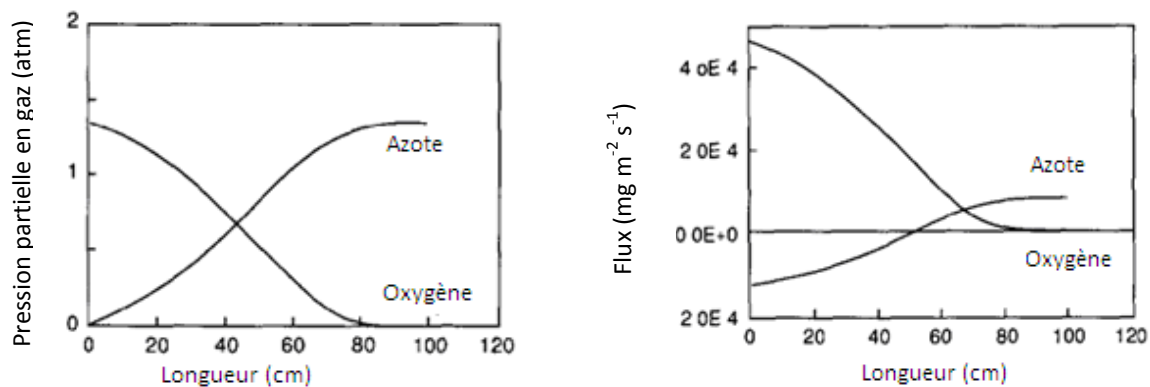


Figure I-8 : Résultats de simulation pour un contacteur gaz / liquide avec des membranes fibres creuses à extrémités fermées. L’intérieur de la membrane est alimenté avec de l’oxygène pur à une pression de 5 psi,

le diamètre des fibres est de 0,04 cm. A gauche : les concentrations en oxygène et en azote, à droite : les flux en oxygène et en azote sur la longueur de la fibre (Ahmed et Semmens, 1992)

### 5.1.3 Caractéristiques des membranes

#### a) La structure physique des membranes

La structure des membranes peut être symétrique ou asymétrique. Les membranes symétriques sont caractérisées par une structure sensiblement uniforme sur toute l'épaisseur et sont composées du même matériau sur toute l'épaisseur. Elles peuvent être poreuses ou denses (absence de pores) (Figure I-9-A) (Remigy et Desclaux, 2007).

La structure des membranes asymétriques (ou anisotropes) est variable sur l'épaisseur. On distingue en général deux couches : une peau et une sous-couche poreuse. La peau est fine (moins de 1  $\mu\text{m}$ ) par rapport à l'épaisseur de la membrane et lui confère sa sélectivité. La sous-couche est d'épaisseur plus importante (de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$  voire beaucoup plus pour les membranes inorganiques), de texture relativement poreuse, et confère à la membrane sa résistance mécanique. Elle n'est pas sélective et n'influence en principe pas la perméabilité (Figure I-9-B) (Remigy et Desclaux, 2007).

Les membranes composites sont constituées d'un assemblage de deux ou plusieurs couches de matériaux de différentes porosités et de matériaux différents : elles sont, de fait, asymétriques.

#### A- Membrane symétrique

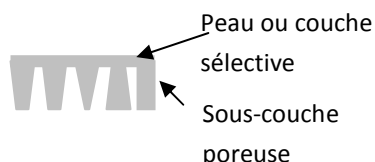
Membrane poreuse



Membrane dense



#### B- Membrane asymétrique



#### C- Membrane composite

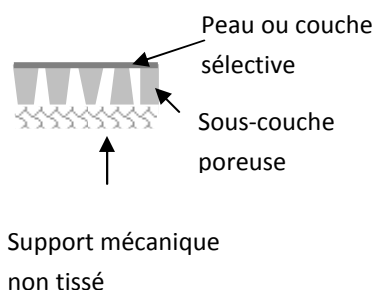


Figure I-9 : Schéma de la structure des membranes symétriques, asymétriques et composites

#### b) Les matériaux membranaires

Les membranes utilisées dans les bioréacteurs peuvent être constituées de matériaux organiques ou polymères (acétate de cellulose, polyamide, polysulfone, polymères fluorés,...), ou de matériaux minéraux (céramique ou métaux).

#### c) Les géométries des membranes

Il existe deux géométries de membranes : planes et cylindriques.

Les membranes planes peuvent être organiques ou minérales. Les deux membranes peuvent être utilisées dans des modules plans mais les membranes organiques souples peuvent être utilisées dans des modules spiralés en étant enroulées autour de l'axe de la spirale.

Les membranes cylindriques ont une dénomination qui change en fonction du diamètre du cylindre. Il n'y a pas de règle clairement établie entre la dénomination et le diamètre, mais globalement, les membranes dont le diamètre interne est supérieur au centimètre sont appelées membranes tubulaires. Les membranes dont le diamètre est compris entre 3 et 10 mm sont appelées membranes capillaires. Les membranes tubulaires et capillaires sont généralement des membranes minérales, bien que les membranes organiques existent. Elles peuvent être monocanal ou multicanaux. Les membranes fibres creuses ont un diamètre intérieur de 50 à 1500  $\mu\text{m}$  et sont fabriquées principalement en matériau organique (quelques exemples de membranes inorganiques existent). Les modules peuvent être constitués de quelques milliers à plusieurs millions de fibres creuses, conférant alors au module une grande surface spécifique.

#### d) Application aux contacteurs membranaires

Différentes membranes peuvent être utilisées dans les contacteurs membranaires. Dans le cas d'une membrane poreuse, la pression de percée impose les pressions de fonctionnement. La présence de tensioactifs, de composés polaires ou apolaires (en fonction de l'application) dans les fluides à traiter risque de réduire la tension de surface et l'angle de contact et donc la pression de percée, permettant aux fluides de pénétrer dans les pores. Ce phénomène provoque alors une diminution de la capacité de transfert des membranes (Wang et al., 2005 ; Atchariyawut et al., 2007 ; Nguyen, 2011). Ceci est l'inconvénient principal des membranes poreuses par rapport aux membranes denses (Aptel et Semmens, 1996). L'utilisation de ces dernières impose au soluté une étape de solubilisation-diffusion dans la membrane qui ralentit le transfert. Attaway et al., (2002) comparent deux réacteurs à biofilm sur membrane, dont l'un avec une membrane poreuse et l'autre avec une membrane non poreuse. Ils observent avec le temps, une détérioration de la vitesse de consommation du substrat du premier réacteur. Ils attribuent cette détérioration au développement de bactéries dans les pores de la membrane et à la condensation de l'eau dans la phase gazeuse.

## 5.2 Equations de transfert de matière dans un contacteur membranaire

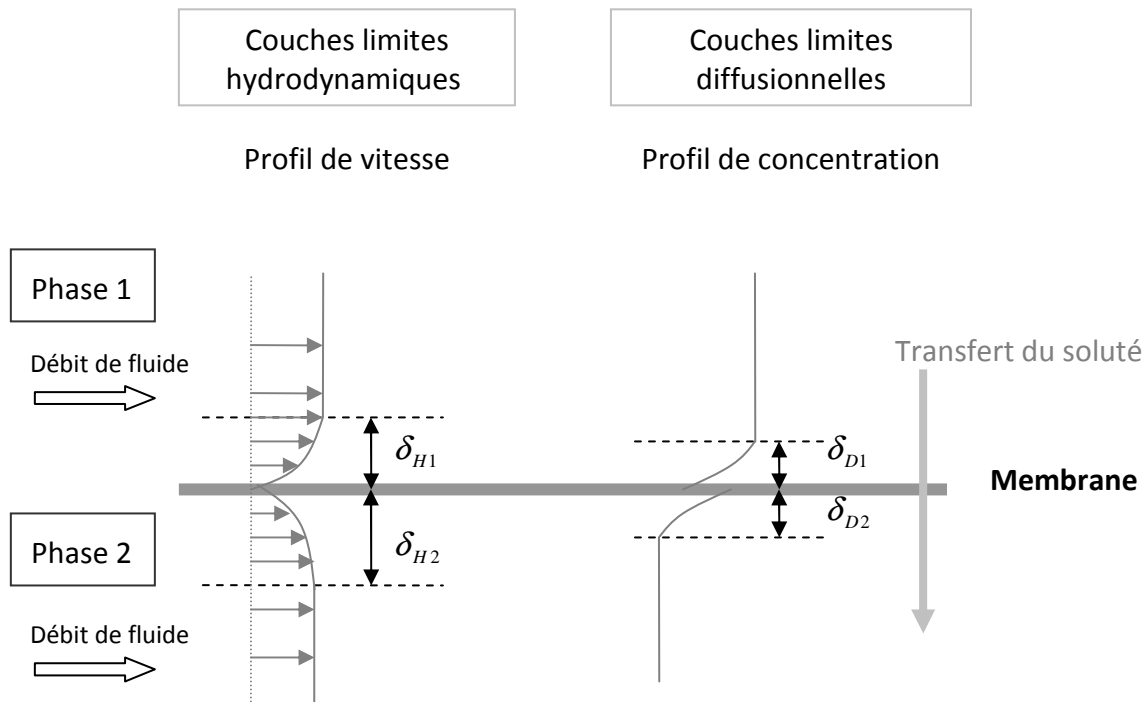
### 5.2.1 Le transfert de matière

Lorsqu'un fluide circule dans un canal, on distingue deux couches limites au voisinage des parois : l'une hydrodynamique et l'autre diffusionnelle. Dans la couche limite hydrodynamique, le fluide est en écoulement laminaire, parallèle à l'interface. La couche limite a pour épaisseur la zone où la vitesse est inférieure à 99% de la vitesse à l'infini dans le fluide. La couche limite diffusionnelle est la zone proche de l'interface dans laquelle la

concentration du soluté est différente de la concentration au cœur de la solution. Cette couche limite constitue souvent une résistance au transfert de matière (Figure I-10) car les espèces n'y sont transportées radialement uniquement par diffusion.

Le transport d'un soluté du cœur d'une phase vers l'interface est alors effectué par :

- Convection : en dehors de la couche limite diffusionnelle,
- Diffusion : au cœur de la couche limite diffusionnelle.



**Figure I-10 : Schéma des couches limites hydrodynamiques et diffusionnelles dans un contacteur membranaire en régime permanent**

Le coefficient de transfert de matière représente la vitesse du transfert. Il est égal à l'inverse de la résistance.

En régime permanent, le flux de matière qui diffuse d'une phase à l'autre à travers la membrane est proportionnel à la différence de concentration de part et d'autre de la membrane (loi de Fick) (Équation I-6).

$$F = K_G \cdot \Delta C_{in}$$

**Équation I-6**

$\Delta C_{in}$  est la différence logarithmique de concentration entre les phases ( $\text{kg m}^{-3}$ ),

$K_G$  : le coefficient de transfert de matière global ( $\text{m s}^{-1}$ ),

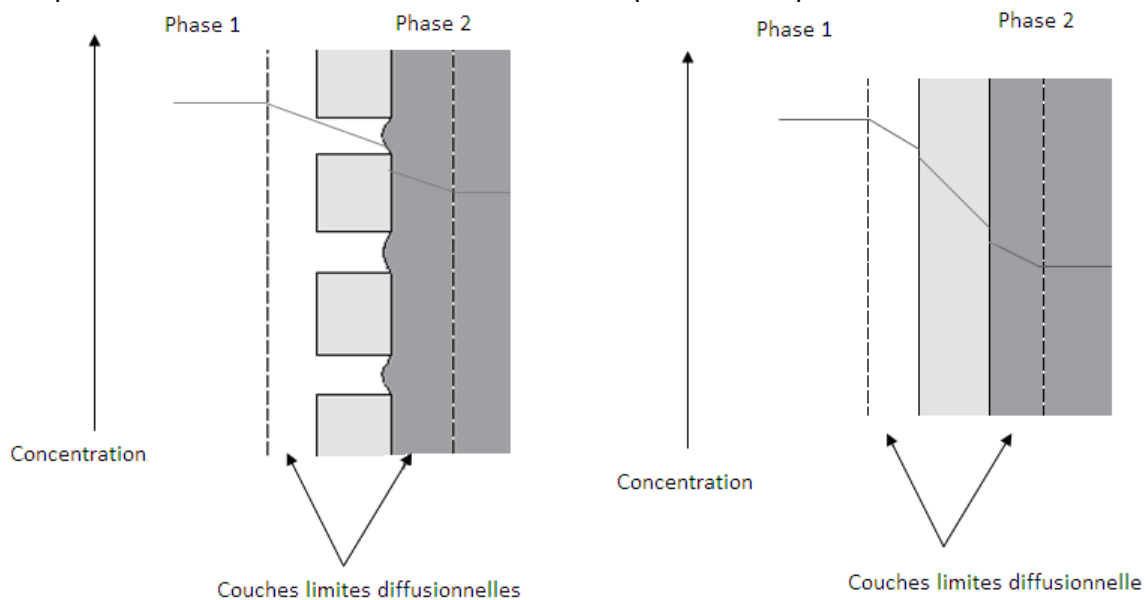
$F$  : flux surfacique transféré entre les phases ( $\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ).

Le coefficient de transfert de matière global est fonction des coefficients de transfert de chaque phase en présence (les deux couches limites diffusionnelles et la membrane). La contribution des couches limites et de la membrane est calculée selon un modèle de résistance en série.

### 5.2.2 Le modèle de résistance en série

Selon le modèle de résistances en série, la résistance globale au transfert de matière est égale à la somme des résistances locales au transfert de matière. Le flux de matière à travers chaque couche est égal au flux global lorsque les différentes interfaces sont planes (grand rayon de courbure).

Les profils de concentrations de soluté entre les phases sont présentés



**Figure I-11 : Profils de concentration du soluté à travers une membrane poreuse (à gauche) et à travers une membrane dense (à droite)**

Les discontinuités représentées entre les phases 1 et 2 pour le cas d'une membrane poreuse et entre les phases 1 et la membrane et la membrane et la phase 2 correspondent aux coefficients de partage entre les phases.

Pour un contacteur gaz/liquide avec un soluté traversant de la phase gazeuse vers la phase liquide, l'équation du coefficient de transfert global en fonction des coefficients locaux est présentée dans le Tableau I-3 pour une membrane poreuse et une membrane dense.

Membrane poreuse	Membrane dense
------------------	----------------

$$K_G = \frac{1}{\frac{1}{H' \cdot k_{\text{Gaz}}} + \frac{1}{H' \cdot k_{\text{Membrane}}} + \frac{1}{k_{\text{Liquide}}}}$$

Équation I-7

$$K_G = \frac{1}{\frac{1}{H' \cdot k_{\text{Gaz}}} + \frac{1}{K_D \cdot k_{\text{Membrane}}} + \frac{1}{k_{\text{Liquide}}}}$$

Équation I-8

**Tableau I-3 : Equation du coefficient de transfert global pour une membrane poreuse et une membrane dense pour un transfert du gaz vers le liquide basée sur les concentrations dans la phase liquide**

Avec  $k_{\text{Gaz}}$ ,  $k_{\text{Membrane}}$  et  $k_{\text{Liquide}}$  les coefficients de transfert dans chaque phase ( $\text{m s}^{-1}$ ),

$K_G$  : coefficient de transfert global ( $\text{m s}^{-1}$ ),

$H'$  : constante de Henry du soluté (sans unité), égale au rapport de la concentration dans la phase gazeuse par la concentration dans le liquide,

$K_D$  : coefficient de partage du soluté entre la membrane et la phase adjacente (sans unité).

### 5.2.3 Détermination expérimentale des coefficients de transfert dans chaque phase

#### a) Coefficient de transfert de matière dans la membrane

Pour une membrane poreuse, le coefficient de transfert dans la membrane  $k_{\text{Membrane}}$  est calculé en divisant le coefficient de diffusion du composé à travers la membrane  $D_{\text{Membrane}}$  par son épaisseur  $e_{\text{Membrane}}$  et le multipliant par le rapport de sa porosité  $\varepsilon$  par la tortuosité des pores  $\tau_R$  (Équation I-9).

$$k_{\text{Membrane}} = \frac{\varepsilon \cdot D_{\text{Membrane}}}{e_{\text{Membrane}} \cdot \tau_R}$$

Équation I-9

Dans le cas de membranes denses, la valeur de  $D_{\text{Membrane}}$  est celle de la diffusion du soluté dans la matrice solide de polymère et le rapport  $\varepsilon/\tau_R$  vaut 1. Dans le cas d'une membrane poreuse, la valeur de  $D_{\text{Membrane}}$  est égale au coefficient de diffusion de la phase qui occupe les pores de la membrane (Aptel et Semmens, 1998).

#### b) Détermination expérimentale des coefficients de transfert de chaque phase à partir du coefficient de transfert global

On ne connaît en général pas précisément les grandeurs de la porosité, de la tortuosité et du coefficient de diffusion dans la membrane. Il est donc nécessaire de déterminer les paramètres de transfert à partir de mesures expérimentales. Le calcul des coefficients de transfert individuel est basé sur deux hypothèses :

- 1- La résistance de l'une des phases fluide est négligeable par rapport aux autres résistances. Par exemple dans le cas d'un contacteur gaz / liquide dans une membrane poreuse, l'équation du coefficient de transfert global en fonction des coefficients de transfert de chaque phase (Tableau I-3 ; Équation I-7) indique que si



$H'$  est grand alors la résistance liée à la phase gazeuse est négligeable par rapport à la résistance liée à la phase liquide.

2- Les coefficients de transfert de matière dans la couche de diffusion suivent une corrélation de la forme :

$$Sh = f \cdot Re^\alpha \cdot Sc^\beta$$

**Équation I-10**

Avec  $Sh$  : le Nombre de Sherwood :  $Sh = \frac{k_{Liquide} \cdot D_H}{D_{Liquide}}$

$Re$  : le Nombre de Reynolds :  $Re = \frac{D_H \cdot V \cdot \rho}{\mu}$

$Sc$  : le Nombre de Schmidt :  $Sc = \frac{\mu}{\rho \cdot D_{Liquide}}$

Et  $f$ ,  $\alpha$  et  $\beta$  des constantes expérimentales ou semi théoriques. Avec  $\beta$  égal à 1/3 (Cussler, 1997).

$D_H$  : longueur caractéristique (m)

$D_{Liquide}$  : coefficient de diffusion du soluté dans la phase liquide ( $m^2 s^{-1}$ )

$\rho$  : masse volumique du liquide ( $kg m^{-3}$ )

$\mu$  : viscosité dynamique du liquide (Pa.s)

$V$  : vitesse moyenne de circulation du liquide ( $m s^{-1}$ )

Alors l'Équation I-10 devient :

$$\frac{k_{Liquide} \cdot D_H}{D_{Liquide}} = f \cdot \left( \frac{D_H \cdot V \cdot \rho}{\mu} \right)^\alpha \cdot \left( \frac{\mu}{\rho \cdot D_{Liquide}} \right)^\beta$$

D'où  $k_{Liquide} \propto V^\alpha$

**Équation I-11**

Suite à ces deux remarques, l'Équation I-7 devient :

$$\frac{1}{K_G} \propto \frac{1}{H' \cdot k_{Membrane}} + \frac{1}{V^\alpha}$$

**Équation I-12**

La détermination des coefficients de transfert individuels consiste à calculer expérimentalement la valeur de  $\frac{1}{K_G}$  (déterminé expérimentalement par l'Équation I-6) en fonction de  $\frac{1}{V^\alpha}$  et d'ajuster  $\alpha$  par la méthode des moindres carrés. Les valeurs des coefficients de transfert de chaque phase sont ensuite déduites.

## 6 TRANSFERT DE MATIERE ENTRE LES FLUIDES ET LE BIOFILM DANS UN REACTEUR A BIOFILM

### 6.1 Profils de concentration des substrats en fonction des réacteurs à biofilm

#### 6.1.1 Les réacteurs à biofilm conventionnels

Dans les réacteurs où le biofilm s'est développé sur un support solide non distributeur de substrat, les donneurs et accepteurs d'électrons diffusent de la phase liquide vers le biofilm à travers la couche limite du biofilm (Figure I-12).

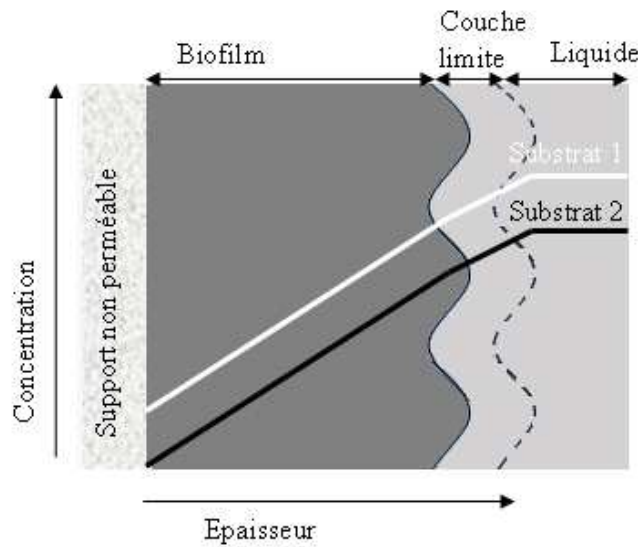


Figure I-12 : Schéma du profil de concentration des substrats en co-diffusion dans un biofilm

En fonction des concentrations en substrats et des vitesses de consommation, les substrats ne diffusent pas sur toute l'épaisseur du biofilm qui se stratifie sur l'épaisseur (Figure I-13), menant à différentes réactions en fonction des zones du biofilm. C'est le cas, par exemple, des réactions de nitrification et dénitrification simultanées. La réaction de nitrification a lieu en zone aérobie dans les couches supérieures du biofilm. La dénitrification a lieu en zone anoxique dans les couches basales du biofilm (Figure I-14).

D'autres stratifications de type aérobie / anaérobie sont possibles.

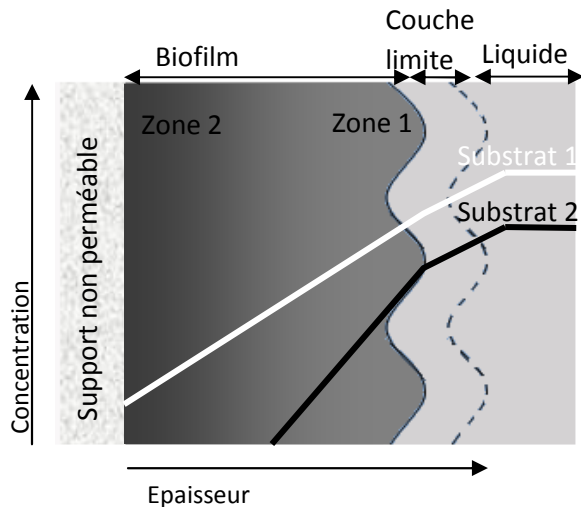


Figure I-13 : Profil de concentration des substrats s'ils ne diffusent pas sur toute l'épaisseur du biofilm et stratification du biofilm

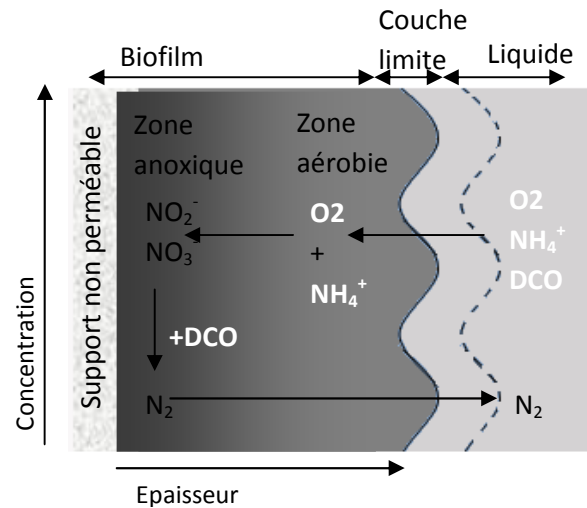
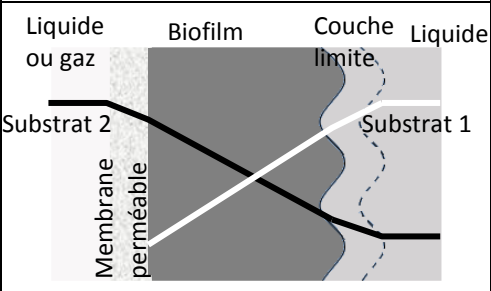
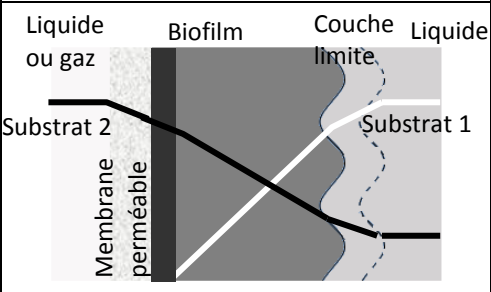
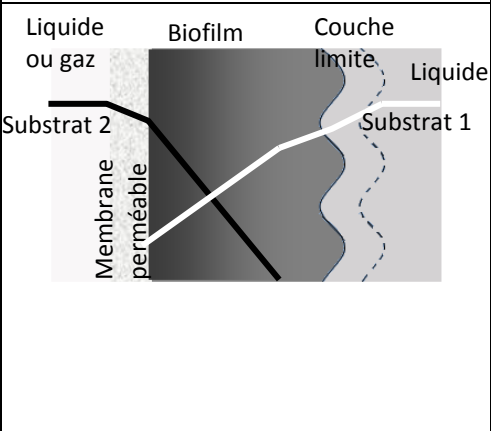


Figure I-14 : Stratification en deux zones (aérobie et anoxique) sur l'épaisseur du biofilm pour une nitrification et dénitrification simultanée

### 6.1.2 Les réacteurs à biofilm sur membrane

Dans un réacteur à biofilm sur membrane les substrats transfèrent dans le biofilm à partir de deux côtés opposés du biofilm. Ils sont en contre-diffusion. Différentes situations de profils de concentration des substrats rencontrés dans un réacteur à biofilm sur membrane sont présentées Tableau I-4.

Schémas du profil de concentration des espèces chimiques dans un réacteur à biofilm sur membrane	Utilisation du réacteur à biofilm sur membrane en fonction des différentes configurations.
 <p>Le schéma illustre un réacteur à biofilm sur membrane. À gauche, une phase fluide (liquide ou gaz) contient le substrat 2. À droite, une autre phase fluide (liquide) contient le substrat 1. Une membrane perméable sépare les deux phases. Le biofilm se développe sur la membrane. Une couche limite est visible à l'interface du biofilm et de la phase fluide de droite. Les profils de concentration des substrats 1 et 2 sont tracés à travers le biofilm, montrant une diffusion bidirectionnelle.</p>	<p>Les substrats diffusent sur toute l'épaisseur du biofilm. Ce type de configuration est recherché lorsqu'il n'y a qu'un seul composé à dégrader. Le biofilm est actif sur toute son épaisseur. Cependant, les performances d'un tel biofilm sont limitées par sa croissance.</p> <p>Les substrats traversent le biofilm à partir d'une phase jusqu'à se retrouver dans la deuxième phase fluide. Ceci peut être un effet non recherché dans le cas de la diffusion de méthane par exemple.</p>
 <p>Le schéma illustre un réacteur à biofilm sur membrane. À gauche, une phase fluide (liquide ou gaz) contient le substrat 2. À droite, une autre phase fluide (liquide) contient le substrat 1. Une membrane perméable sépare les deux phases. Le biofilm se développe sur la membrane. Une couche limite est visible à l'interface du biofilm et de la phase fluide de droite. Le substrat 2 ne diffuse pas à travers le biofilm, ce qui est représenté par une ligne horizontale à zéro concentration à l'interface.</p>	<p>Le substrat de la phase liquide ne diffuse pas sur toute l'épaisseur du biofilm, il est l'élément limitant de la réaction. Dans le cas d'un réacteur à biofilm aéré sur membrane, de l'oxygène est présent à la base du biofilm sans substrat à consommer. Cette zone est alors propice au développement de la respiration endogène (Casey et al., 2000a) et consommatrice d'oxygène sans qu'il y ait de consommation du substrat.</p> <p>De la même manière que précédemment, du substrat de la phase liquide ou gazeuse diffuse jusque dans la phase liquide où le biofilm se développe.</p>
 <p>Le schéma illustre un réacteur à biofilm sur membrane. À gauche, une phase fluide (liquide ou gaz) contient le substrat 2. À droite, une autre phase fluide (liquide) contient le substrat 1. Une membrane perméable sépare les deux phases. Le biofilm se développe sur la membrane. Une couche limite est visible à l'interface du biofilm et de la phase fluide de droite. Le substrat 2 ne diffuse pas à travers le biofilm, ce qui est représenté par une ligne horizontale à zéro concentration à l'interface.</p>	<p>Le substrat de la phase liquide ou gaz ne diffuse pas sur toute l'épaisseur du biofilm. Le biofilm est donc stratifié en deux couches. Trois cas se présentent :</p> <ol style="list-style-type: none"> <li>1. Cette stratification est recherchée afin de mener deux réactions simultanément. C'est par exemple le cas des réacteurs à biofilm aéré sur membrane utilisés pour des réactions de nitrification et dénitrification simultanément. Dans ce type de réacteur, l'ammoniaque et la DCO diffusent de la phase liquide vers le biofilm, à travers la couche limite liquide. En contre-diffusion, l'oxygène diffuse de la phase gazeuse à travers la membrane ; la base du biofilm est alors une zone aérobie propice à la nitrification. La partie supérieure du biofilm est alors une zone anoxique propice à la dénitrification (absence d'oxygène, présence de nitrites et/ou nitrates, et présence de DCO) (Figure I-15).</li> </ol>

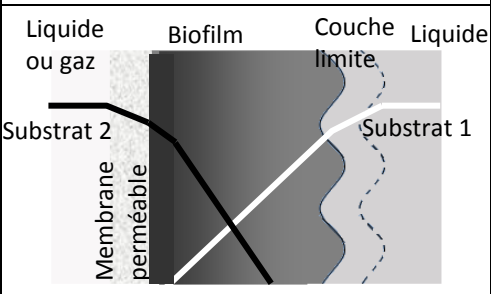
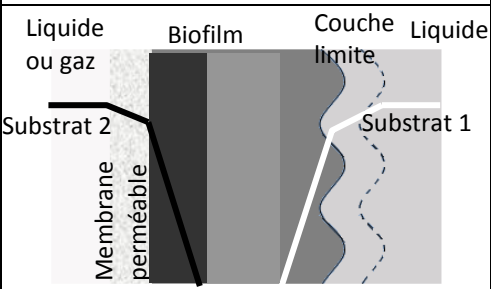
	<p>Ce type de biofilm peut aussi être intéressant pour stratifier le biofilm selon une zone anaérobie et une zone aérobie pour la dégradation du perchloro-éthylène par exemple (Ohandja et Stuckey, 2006).</p> <ol style="list-style-type: none"> <li>2. Dans le cas où une seule réaction est recherchée, alors la partie supérieure du biofilm agit comme une couche diffusionnelle supplémentaire pour le substrat de la phase liquide. Le substrat de la phase gazeuse ou liquide est limitant pour les performances du réacteur. Cette configuration peut être recherchée en présence d'un inhibiteur dans la phase liquide du biofilm (Syron et al., 2009).</li> <li>3. Cette configuration peut être voulue dans le cas par exemple de co-métabolisme pour la dégradation de composés chlorés. En effet, du méthane, de l'oxygène et un hydrocarbure aliphatique chloré sont nécessaires. Mais le mélange méthane/oxygène nécessaire est explosif. Ainsi, transférer ces gaz par des côtés opposés permet d'éviter de les mélanger (Clapp et al., 1999, Rishell et al., 2004). De plus, si le méthane est dans la phase gazeuse, il pourra ainsi ne pas diffuser jusque la phase liquide et éviter alors sa dispersion (à cause du fort pouvoir à effet de serre du méthane).</li> </ol>
	<p>Cette configuration des profils de réaction implique un biofilm stratifié selon trois couches. Dans le cas où plusieurs réactions sont recherchées, comme précédemment, elles ont lieu selon les couches stratifiées. À l'inverse si une seule réaction est recherchée, alors les deux substrats sont limitants pour une efficacité maximale du réacteur. Seule la partie centrale du biofilm est active. Dans le cas d'un réacteur à biofilm aéré sur membrane, la couche de biofilm proche de la membrane semble être utilisée pour de la respiration endogène. Tout l'oxygène diffusé n'est donc pas utilisé pour les réactions souhaitées.</p>
	<p>Dans ce type de configuration, le biofilm est stratifié en trois couches, les concentrations en substrats de chaque phase aux extrémités du biofilm atteignent zéro dans le biofilm et ne sont pas en contact. Le biofilm est en double limitation, cet effet n'est en général pas recherché.</p>

Tableau I-4 : Différentes configurations de profil de concentration dans un réacteur à biofilm sur membrane

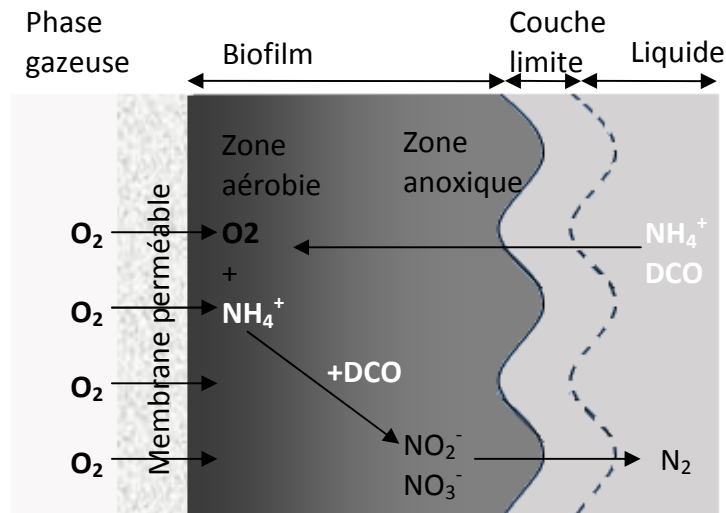


Figure I-15 : Profil de concentration des espèces chimiques dans un biofilm aéré sur membrane dans le cas d'une nitrification et dénitrification simultanée

Le Tableau I-4 montre que selon les réactions recherchées dans le biofilm, la longueur de pénétration des substrats dans le biofilm ne doit pas être la même. La vitesse de réaction du biofilm, les concentrations en substrats ainsi que les vitesses de transfert des substrats à travers les différentes phases rencontrées (fluides, biofilm, membrane) influencent cette longueur de pénétration. La connaissance de la résistance de chaque phase (Figure I-16) est donc essentielle en vue de la compréhension du fonctionnement des réacteurs à biofilm sur membrane et d'une amélioration de leurs performances.

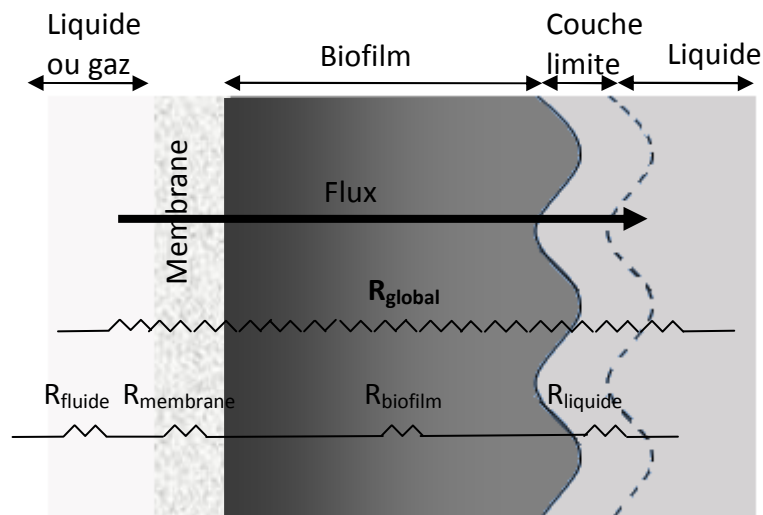


Figure I-16 : Représentation schématique des résistances de chaque phase dans un réacteur à biofilm sur membrane (modèle de résistance en série)

La résistance de la phase fluide sans biofilm est indépendante des phénomènes biologiques. Plus le débit de cette phase augmente, plus cette résistance est faible.

La résistance de la membrane augmente en présence d'un biofilm et en fonction du matériau, de la structure de la membrane, et des molécules en présence (Coutte et al., 2010).

Nous nous intéresserons dans les paragraphes suivants aux résistances au transfert à l'interface biofilm - liquide et à l'intérieur du biofilm. Ces résistances sont influencées par la croissance et les propriétés du biofilm.

## **6.2 Transfert de matière à l'interface biofilm - liquide**

A l'interface biofilm - liquide, la surface du biofilm a été décrite comme rugueuse et hétérogène (Siegrist et Gujer, 1985). Cette rugosité est fonction des conditions hydrodynamiques du liquide dans lequel le biofilm s'est développé (Kugaprasatham et al., 1992). Ceci rejoint le paragraphe précédent nommé «3.3 La structure générale d'un biofilm ».

Dawson et Trass (1975) ont rapporté que la rugosité sur une surface influence le coefficient de transfert de matière dans la couche limite surface - liquide. Par une étude de modélisation, Picioreanu et al. (2000) ont montré que la rugosité du biofilm ainsi que son hydrodynamique interne influence le transfert à la surface du biofilm. Horn et Hempel (1995) ont rapporté un coefficient de transfert dans la couche limite supérieur en présence de biofilm qu'en absence. De plus, certains biofilms ont des structures flexibles à la surface (streamers) dont les oscillations induites par l'écoulement tangentiel peuvent créer des turbulences et améliorer les flux de matière à travers l'interface biofilm - liquide (Kugaprasatham et al., 1992 ; Stoodley et al., 1998).

Ensuite De Beer et Stoodley (1995 et 1996) ont cherché à caractériser la forme de la couche limite au dessus du biofilm. Ils ont utilisé des microélectrodes à oxygène à la surface d'un biofilm. Ils observent à faible vitesse du liquide ( $0,0078 \text{ m s}^{-1}$ ) que les gradients de concentration de l'oxygène sont perpendiculaires au biofilm et la couche limite diffusionnelle est parallèle au biofilm. A l'inverse, lorsque la vitesse du liquide est plus importante ( $0,115 \text{ m s}^{-1}$ ), les gradients de concentrations de l'oxygène sont plus ou moins perpendiculaires aux irrégularités de la surface du biofilm. Alors la couche limite diffusionnelle suit de près la forme du biofilm. Cette étude expérimentale a été appuyée par une étude de modélisation par Picioreanu et al. (2000). Les auteurs ont montré de même que le coefficient de transfert à l'interface biofilm - liquide est très lié aux irrégularités du biofilm et que cette mesure est locale.

## 6.3 Transfert de matière à l'intérieur du biofilm

### 6.3.1 Méthode de quantification du transfert de matière dans un biofilm

#### a) La diffusivité relative

Le diffusivité relative est le rapport du coefficient de diffusion d'une molécule  $i$  dans le biofilm rapporté à son coefficient de diffusion dans l'eau (Équation I-13).

$$Deff = \frac{D_{biofilm}^i}{D_{eau}^i}$$

Équation I-13

Où  $Deff$  est la diffusivité relative (-),

$D_{biofilm}^i$  : coefficient de diffusion de la molécule  $i$  dans le biofilm ( $m^2 s^{-1}$ ),

$D_{eau}^i$  : coefficient de diffusion de la molécule  $i$  dans l'eau ( $m^2 s^{-1}$ ).

On calcule souvent  $D_{biofilm}^i$  comme le produit du coefficient de transfert de matière calculé à travers les flux mesurés, par l'épaisseur du biofilm. Pour pouvoir mettre en évidence de possibles différences dans la limitation du transfert d'un type de soluté à l'autre, on divise alors ce  $D_{biofilm}^i$  d'un soluté par son coefficient de diffusion à une dilution infinie, ce qui donne  $Deff$ .

La mesure sur la diffusivité relative a été très utilisée pour caractériser le transfert de matière dans un biofilm. Cependant, cette mesure est fonction du type de molécules étudiées, de la position de la mesure dans le biofilm ainsi que de la méthode utilisée pour faire la mesure. Il est donc nécessaire de prendre en compte ces spécificités pour une meilleure interprétation de la diffusivité relative.

#### b) La diffusivité relative dépend des molécules

Mayer et al. (1999) ont noté que dans un biofilm, les interactions électrostatiques et les liaisons hydrogènes sont les forces dominantes sur les macromolécules dans le biofilm. Ces interactions chimiques à l'intérieur du biofilm, influencent donc le déplacement des molécules dans le biofilm.

Stewart (1998 et 2003) a passé en revue la diffusivité relative en fonction des molécules. Il rapporte qu'elle est fonction des propriétés physico-chimiques du soluté et que plus la masse molaire du soluté augmente plus la diffusivité relative diminue. Il distingue trois catégories de solutés selon un ordre de diffusivité relative décroissante :

1. les petits solutés non polaires de masse molaire inférieure à  $44 \text{ g mol}^{-1}$  (oxygène, hydrogène, dioxyde de carbone, méthanol,...),
2. les ions inorganiques (ammoniaque, lithium, nitrate,...),
3. les solutés de masse molaire supérieure à  $45 \text{ g mol}^{-1}$  (sucres et acides gras).



Il faut bien noter ici que l'auteur met en évidence que la diffusivité relative n'est pas une grandeur propre au biofilm, comme certaines publications pourraient le laisser penser, mais bien une caractérisation de l'interaction entre le biofilm et une molécule ou une catégorie de molécules.

#### c) La diffusivité relative varie localement dans le biofilm

Renslaw et al. (2010), Beyenal et Lewandowski (2000) ont observé que la diffusivité relative diminue sur l'épaisseur du biofilm à partir du haut du biofilm jusqu'à sa base. Zhang et al. (1994) et Bryers et Drummond (1998) mettent en évidence que la mesure de la diffusivité relative est fonction de la position en trois dimensions dans le biofilm. Cette conclusion est appuyée par Stoodley et al. (1997) qui mesurent deux coefficients de transfert différents, l'un dans un canal du biofilm, l'autre dans un agrégat cellulaire, celui du canal étant plus élevé. Bryers et Drummond (1998) proposent une cartographie en deux dimensions de la diffusivité relative dans un biofilm (Figure I-17) : la diffusivité relative pouvant varier d'un facteur 4 dans le même biofilm. Eberl et al. (2000) par une étude de modélisation en trois dimensions appuient les résultats, montrant que la diffusivité relative est fonction de la position en trois dimensions où l'on se trouve. Les différences essentielles entre les mesures s'observent entre une mesure dans un canal et dans un agrégat bactérien.

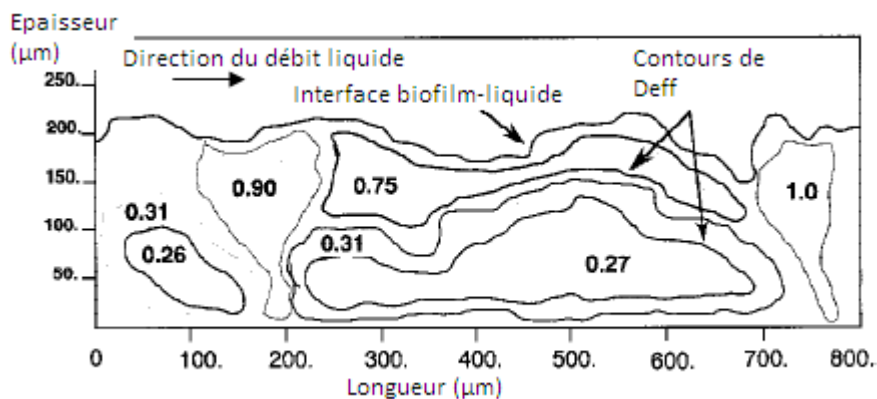


Figure I-17 : Différences spatiales des diffusivités relatives du dextran dans un biofilm de culture pure et déterminé par redistribution de la fluorescence après photoblanchiment (Bryers et Drummond, 1998)

#### d) Les méthodes de mesure de la diffusivité relative

La mesure de la diffusivité relative est fonction de la position en trois dimensions dans le biofilm. La méthode de mesure est bien sûr fonction de l'objectif recherché. Quelques exemples rapportés par Renslow et al. (2010) et Bryers et Drummond (1998) de la mesure de la diffusivité relative dans le biofilm sont rapportés ci-dessous :

Lawrence et al. (1994), Bryers et Drummond (1998) utilisent des méthodes de redistribution de la fluorescence après photoblanchiment sur des molécules de fluorescéine et de dextran. Renslow et al. (2010) utilisent une méthode par résonance magnétique nucléaire. Celle-ci,

peu invasive et non destructive pour le biofilm, permet une mesure de la diffusivité relative selon son épaisseur.

La mesure de la diffusivité relative par l'utilisation de microsonde est souvent rapportée dans la bibliographie (Stoodley et al., 1997 ; Beuling et al., 1998 ; Shanahan et Semmens, 2006). Beyenal et al. (1998) utilisent des microsondes pour mesurer la diffusivité relative du ferricyanide de potassium. Mais le ferricyanide a pour propriétés de désactiver les biofilms et donc de modifier son comportement (Renslow et al., 2010). De plus, le transfert de matière dans un biofilm étant un mélange de convection et de diffusion (De Beer et Stoodley, 1995), une couche limite diffusionnelle peut se former autour de la microsonde (Coeuret et Stork, 1993) qui, si elle n'est pas prise en compte dans le calcul de la diffusivité relative, risque de conduire à sous-estimer la mesure. Renslow et al. (2010) rapportent également la limite à l'utilisation des microsondes à la base du biofilm, à cause des limites du transfert autour de la tête de microsonde quand elle est proche de la surface solide.

#### e) Conclusion

La mesure de la diffusivité relative est donc très liée à la position de la mesure mais aussi à la méthode utilisée et à la molécule étudiée. Les méthodes actuelles et leur utilisation ont été identifiées. Il en est de même pour l'impact des molécules.

La structure physique du biofilm influence le transfert, et donc la diffusivité relative. Cependant cette structure n'est connue essentiellement que pour des biofilms de type conventionnel. Elle est présentée au paragraphe « 3.3 La structure générale d'un biofilm ». Cependant, les biofilms sur membrane sont des réacteurs dont l'intérêt est plus récent que les réacteurs à biofilm conventionnel et moins d'études ont été réalisées. Parce que la croissance ne sera pas localisée au même endroit du biofilm, la structure physique du biofilm sera différente. Ainsi, ces mesures locales comme présentées Figure I-17 ne sont pas connues pour des biofilms sur membrane alors qu'elles donneraient des informations sur leur structure et leurs propriétés de transfert.

#### 6.3.2 Convection et diffusion dans un biofilm : observations expérimentales et de modélisations

Il est établi que les biofilms ont des structures très irrégulières et spatialement hétérogènes (Costerton et al., 1995 ; Noguera et al., 1999). Le transfert de matière à l'intérieur de ces systèmes complexes est aujourd'hui très discuté dans la communauté des chercheurs (Picioeanu et al., 2000).

Stoodley et al., (1994) et De Beer et Stoodley (1995) ont observé la présence d'un débit liquide dans la partie supérieure du biofilm et entre les structures en forme de doigts, en suivant des particules à l'aide d'un microscope confocal à balayage laser. Ils ont ainsi prouvé

expérimentalement et de manière directe la présence de convection axiale à l'intérieur même du biofilm. Ils observent les particules circuler autour des agrégats bactériens, passer dans les pores du biofilm et accélérer dans les étranglements de canaux. Ils remarquent des particules passer au dessus des agrégats bactériens, témoin de convection radiale. De plus, la présence d'une couche limite, qui suit les irrégularités du biofilm à des vitesses de liquide plus élevées (paragraphe 5.2.2), est aussi le témoin de la présence d'une forte activité liquide dans le biofilm.

Il peut donc exister un débit de liquide dans les canaux du biofilm et un liquide stagnant dans les agrégats du biofilm. En conséquence, le transfert de matière peut avoir lieu par convection et/ou diffusion dans les canaux d'un biofilm alors que dans les agrégats cellulaires seule la diffusion a lieu (De Beer et al., 1994).

Les conditions dans lesquelles la convection joue un rôle ne sont pas encore clarifiées et le lien qui existe entre écoulement tangentiel et écoulement dans le biofilm a été peu formalisé jusqu'ici.

### 6.3.3 Paramètres influençant le transfert de matière dans le biofilm

#### a) Les conditions hydrodynamiques dans la veine liquide

Le transfert de matière dans le biofilm est fortement lié au déplacement du liquide dans le biofilm. Ainsi, De Beer et Stoodley (1995) observent que le débit de liquide dans les canaux du biofilm est proportionnel au débit de liquide dans la veine liquide. Dans la bibliographie, les effets de l'hydrodynamique dans la veine liquide sur la diffusivité relative dans le biofilm sont controversés. En effet, Beyenal et Lewandowski (2000 et 2002) observent une diminution de la diffusivité relative avec l'augmentation du débit de liquide. A l'inverse, Garcia Lopez et al. (2003) rapportent une augmentation de la diffusivité relative avec l'augmentation du débit. Cependant les débits utilisés par Beyenal et Lewandowski (2000 et 2002) sont plus élevés que ceux utilisés par Garcia Lopez et al. (2003). Ceci peut suggérer qu'il existerait un débit pour lequel la diffusivité relative est maximale. Melo (2005) après une revue de la bibliographie rapporte que les valeurs de diffusivité relative diffèrent beaucoup en fonction des équipes de travail. Mais à fort débit de la veine liquide, la diffusivité relative semble diminuer avec l'augmentation du débit pour des régimes turbulents. Pour des régimes laminaires et transitoires, il ne semble pas y avoir de tendance claire entre les équipes.

Cette hypothèse est appuyée par Beyenal et Lewandowski (2002) qui observent un gradient de diffusivité maximale selon l'épaisseur du biofilm pour un nombre de Reynolds de 6000. Selon ces auteurs, ces résultats sont dus à l'adaptation du biofilm aux conditions

hydrodynamiques. Ils tendent à montrer que ce dernier adapte sa structure interne pour satisfaire deux objectifs : être suffisamment robuste pour résister à la contrainte de cisaillement et augmenter le transport des nutriments jusqu'aux couches basales du biofilm. La diffusivité relative n'est donc pas corrélée à la concentration en matière sèche d'un biofilm ou à l'hydrodynamique de manière bijective.

Les apparentes divergences de résultat rapportées ci-dessous reflètent surtout le fait que les études ont souvent porté sur un nombre de paramètres expérimentaux réduit, par rapport à ceux qui sont réellement influant. Des relations de cause à effet ont ainsi parfois été tirées un peu hâtivement. De nouveaux travaux, plus exhaustifs et utilisant des techniques d'analyses plus fines et plus complètes demeurent donc nécessaires.

#### b) La densité et la porosité du biofilm

Un paramètre expérimental très étudié dans la bibliographie pour lier la diffusivité relative avec les propriétés intrinsèques du biofilm est la concentration en matière sèche, cette matière pouvant constituer un obstacle au transfert.

Fan et al. (1990) proposent une équation (Équation I-14) reliant la diffusivité relative à la concentration en matière sèche du biofilm.

$$D_{eff} = \frac{D_{Biofilm}}{D_{Eau}} = 1 \frac{0,43 \cdot \rho_{biofilm}^{0,92}}{11,19 + 0,27 \cdot \rho_{biofilm}^{0,99}}$$

#### Équation I-14

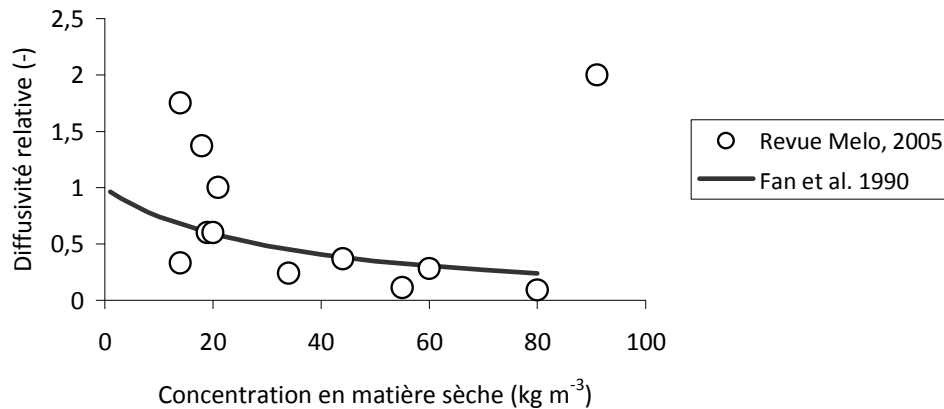
Où  $\rho_{biofilm}$  est la concentration en matière sèche du biofilm ( $\text{kg m}^{-3}$ ),

$D_{eff}$  : diffusivité relative de la molécule d'intérêt (-),

$D_{Biofilm}$  : coefficient de diffusion de la molécule d'intérêt dans le biofilm ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ),

$D_{Eau}$  : coefficient de diffusion de la molécule d'intérêt dans l'eau ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ).

Cette loi a été utilisée par plusieurs auteurs (Fu et al., 1994 ; Beyenal et Tanyolaç, 1994) qui rapportent aussi une diminution de la diffusivité relative avec l'augmentation de la concentration en matière sèche. En 2005, Melo rassemble plusieurs diffusivités relatives en fonction des concentrations en matière sèche. Les résultats sont comparés à l'équation de Fan (Équation I-14) sur la Figure I-18. On constate un accord relativement correct pour la tendance générale. Cependant, le caractère multiparamétrique du transfert ressort ici, à travers la dispersion des données.



**Figure I-18 : Diffusivité relative en fonction de la concentration en matière sèche dans le biofilm. Résultats expérimentaux rapportés par Melo (2005) et résultats de l'expression mathématique proposée par Fan et al. (1990)**

Il existe d'autres cas de la bibliographie contredisant le modèle proposé. En effet Zhang et al. (1998) observent une augmentation de la diffusivité relative avec la concentration en matière sèche. De même, Casey et al. (2000b) développent un réacteur à biofilm sur membrane et observent des résultats en désaccord avec l'Équation I-14. De même, ils suggèrent que la diffusivité relative est fonction de nombreux facteurs et pas uniquement de la concentration en matière du biofilm.

### c) L'épaisseur du biofilm

Les substrats sont en contre-diffusion dans le biofilm. L'épaisseur du biofilm va donc influencer leur zone de contact dans le biofilm. Quand les substrats traversent le biofilm, ils peuvent soit transférer à travers une couche active de biomasse où ils sont consommés, soit, ils traversent une couche de biomasse inactive. Cette zone se comporte alors comme une résistance supplémentaire au transfert de matière.

Casey et al. (2000b) observent dans le cas d'un réacteur à biofilm aéré sur membrane pour la consommation d'un unique substrat carboné, une diminution de la vitesse de consommation de celui-ci avec l'augmentation de l'épaisseur du biofilm jusqu'à 1000  $\mu\text{m}$ . Au-delà de cette valeur, les tendances ne sont pas clairement établies. Dans ces mêmes réacteurs, Semmens et Essila (2001) montrent mathématiquement qu'il existe une épaisseur optimale de biofilm en fonction de la concentration en substrat pour laquelle la vitesse de consommation du substrat est maximale.

L'épaisseur du biofilm peut être recherchée dans le cas de plusieurs réactions simultanées dans le biofilm, par exemple : nitrification et dénitrification.

Ensuite, le transfert de matière n'est pas identique sur l'épaisseur. De Beer et Stoodley (1995) observent une diminution de la vitesse du liquide dans les canaux du biofilm avec la profondeur. Ils relient cette diminution à l'épaisseur et à la porosité.

#### d) Les populations de microorganismes

Les populations bactériennes influencent la structure physique du biofilm, celle-ci impacte ensuite la vitesse de transfert du substrat. De plus, leur croissance par rapport aux capacités de transfert influence la structure du biofilm.

## **7 CONCLUSION DE LA SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE ET OBJECTIFS DE LA THÈSE**

Dans un réacteur à biofilm de type conventionnel, le biofilm se développe sur un support solide et les substrats transfèrent de la phase liquide vers le biofilm, ils sont en co-diffusion. Dans un réacteur à biofilm sur membrane, le biofilm se développe sur la membrane et les substrats diffusent à contre sens : l'un provient de la phase liquide dans laquelle le biofilm s'est développé, l'autre est distribué à travers la membrane directement à la base du biofilm. La stratification des biofilms de ces deux types de réacteur se fait donc différemment et les réactions biologiques ont lieu dans des espaces physiques du biofilm différent.

La configuration des réacteurs à biofilm sur membrane a été envisagée pour un grand nombre d'applications spécifiques et a montré ses avantages sur les réacteurs plus conventionnels, à biomasse immobilisée ou non. Par rapport à une culture à biomasse en suspension, les réacteurs à biofilm permettent une concentration importante de la biomasse et une protection des phénomènes de lessivage d'espèces bactériennes à croissance lente. Dans un réacteur à biofilm sur membrane, il est possible de contrôler le transfert d'oxygène et permettre une meilleure efficacité du transfert dans le cas d'un écoulement gaz en mode frontal. De plus, ces réacteurs permettent un transfert théorique de l'oxygène jusqu'à  $10^3$  fois plus important que dans un biofilm de type conventionnel. Ces réacteurs ont l'avantage d'éviter tout stripping des composés organiques volatils présents dans le milieu liquide. De plus, les fluides de part et d'autre de la membrane circulent indépendamment ; les débits peuvent être régulés en fonction des besoins. Ainsi ces réacteurs proposent beaucoup d'avantages mais le contrôle des réactions biologiques est aujourd'hui mal maîtrisé et mérite d'être amélioré pour une application industrielle.

Parce que les substrats sont en contre-diffusion dans le biofilm, la maîtrise de ce type de réacteur se fait via le contrôle du transfert de matière dans le biofilm et à la surface de celui-ci. Ce transfert est fortement lié à la structure physique du biofilm (épaisseur, porosité, canaux,...) qui est aussi fonction des conditions opératoires du réacteur. Cependant, aujourd'hui, la bibliographie montre les liens entre les conditions opératoires d'un

bioréacteur et les conséquences sur un biofilm de type conventionnel. Ces réponses permettent une première approche de la compréhension du fonctionnement global des biofilms mais la structure de ces deux biofilms (conventionnel et sur membrane) est fortement différente puisque la croissance de la biomasse a lieu dans la partie supérieure pour l'un et dans les couches inférieures pour l'autre. L'un des objectifs de ce travail est d'apporter des éléments de compréhension de la diffusivité relative dans le biofilm afin de compléter utilement les données de la bibliographie et la maîtrise du transfert de matière dans un réacteur à biofilm sur membrane.

L'étude portera sur l'utilisation de ces réacteurs pour l'élimination de la DCO contenue dans les eaux usées. A ce titre, nous utiliserons un Réacteur à Biofilm Aéré sur Membrane (RBAM) avec une biomasse issue de boues activées de station d'épuration. La culture du biofilm sera donc une population de microorganismes mixtes. Ceci permettra également, de compléter les données en vue d'une application industrielle. En effet, les études menées jusqu'à lors ont porté essentiellement sur des populations de biofilm mono-espèces dans les RBAM. Les types de microorganismes présents influencent fortement la structure du biofilm et donc le transfert de matière.

L'objectif est de proposer une étude macroscopique sur le transfert de matière dans le biofilm et de le lier aux conditions hydrodynamiques du milieu dans lequel il s'est développé. Ceci dans le but de positionner ces deux caractéristiques par rapport aux performances du réacteur. Ainsi la méthode de mesure du transfert utilisée devra proposer une réponse macroscopique et s'affranchir de toutes questions de l'influence des conditions locales dans le biofilm et limiter les interactions entre le biofilm et la molécule traceuse.





## **Chapitre II : Matériels et méthodes**

---

## RESUME

Nous avons conçu et fait construire un pilote afin d'étudier les effets des conditions hydrodynamiques sur le fonctionnement des réacteurs à biofilms aérés sur membrane (RBAM). Le pilote comprend cinq contacteurs membranaires plans en parallèle dont les conditions hydrodynamiques sont indépendantes les unes des autres. Une boucle de recirculation est utilisée pour découpler le temps de séjour hydraulique de la vitesse de circulation du liquide. Quatre expériences de croissance du biofilm sont menées successivement sous des conditions hydrodynamiques différentes. Les méthodes utilisées pour mesurer les concentrations des principaux substrats : DCO et oxygène, sont présentées. La concentration en DCO est mesurée par des kits à DCO pour chaque condition hydrodynamique choisie. Nous en déduisons la vitesse de consommation de celle-ci, témoin des performances épuratrices du RBAM. Les flux de gaz transférés entre les phases liquides et gaz : oxygène et néon, sont quantifiés à l'aide de la chromatographie en phase gaz et d'un débitmètre gaz électronique.

Une fois le biofilm développé, son épaisseur et sa densité sont mesurées en évaluant la quantité d'eau qu'il contient sur une surface connue (méthode mise au point par Horn et Hampel, 1997 ; Wäsche et al., 2002). Cette méthode est comparée à une mesure utilisant un microscope confocal. Dans certains cas, le biofilm est retiré de la membrane grâce à un jet d'eau et le transfert du gaz est mesuré à travers la membrane colmatée, à l'aide d'un dispositif expérimental adapté.

## SOMMAIRE

1	INTRODUCTION .....	62
2	DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX .....	62
2.1	<i>Pilote 1 : croissance du biofilm et transfert de matière</i> .....	62
2.1.1	Installation expérimentale.....	62
2.1.2	Composition de l'alimentation du pilote.....	67
2.1.3	Protocole de colonisation des membranes .....	68
2.1.4	Conditions expérimentales.....	68
2.2	<i>Pilote 2 : mesure du transfert de matière au travers des membranes vieilles</i> .....	71
3	TECHNIQUES ANALYTIQUES UTILISEES .....	72
3.1	<i>Caractérisation de la vitesse de réaction du biofilm : analyse chimique de la DCO</i> .....	72
3.2	<i>Caractérisation des propriétés diffusionnelles du biofilm : quantification du transfert de gaz à travers la membrane avec ou sans biofilm</i> .....	72
3.2.1	Détermination des flux de gaz transférés entre la phase gazeuse et la phase liquide .....	73
3.2.2	Détermination de la diffusivité relative .....	73
3.2.3	Méthodes de mesure des variables nécessaires aux calculs des flux de gaz transférés et de la diffusivité relative .....	74
3.2.4	Détermination des incertitudes des mesures .....	76
3.3	<i>Caractérisation des propriétés structurales macroscopique du biofilm : épaisseur et concentration en matière sèche</i> .....	78
3.3.1	Méthode par quantification de l'eau du biofilm.....	78
3.3.2	Utilisation du microscope confocal .....	81
3.3.3	Résultats .....	81

## **1 INTRODUCTION**

Ce chapitre a pour objectif de présenter le matériel ainsi que les protocoles expérimentaux utilisés pour répondre aux problématiques présentées au chapitre précédent. Les choix effectués seront justifiés. Les mesures seront commentées par la suite.

Deux pilotes ont été conçus spécifiquement pour ces expériences. Leur dimensionnement, l'instrumentation ainsi que les matériaux utilisés sont présentés et expliqués dans la première partie de ce chapitre. Les techniques de mesures sont exposées dans une deuxième partie et les incertitudes sur les mesures principales sont discutées.

## **2 DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX**

Le premier pilote de type contacteur gaz - liquide a été utilisé pour développer le biofilm sur une membrane sous différentes contraintes hydrodynamiques entre les expériences. Il a été conçu pour permettre de quantifier le transfert de gaz à travers la membrane, en absence, puis en présence d'un biofilm, par un bilan matière entre les courants entrant et sortant. Ensuite, les biofilms développés ont été sacrifiés pour évaluer leurs propriétés (épaisseur et densité). La conception de ce pilote a été réalisée au sein du Laboratoire de Génie Chimique (LGC) de l'Université de Toulouse III. La fabrication du pilote a ensuite été confiée à l'entreprise Arias localisée à Toulouse.

Une deuxième installation a été utilisée pour quantifier le transfert de gaz au travers d'une membrane issue du premier pilote, dont nous avons, au préalable, retiré le biofilm. Ce deuxième pilote, moins complexe que le premier a été conçu au LGC. Il présente l'intérêt d'avoir un contacteur membranaire plus petit. En effet, l'objectif est de quantifier le transfert de matière au travers d'une membrane colmatée et les joints du contacteur membranaire du premier pilote écrasant la membrane, il faut découper dans cette surface de membrane pour en mesurer le transfert tout en assurant l'étanchéité.

### **2.1 Pilote 1 : croissance du biofilm et transfert de matière**

#### **2.1.1 Installation expérimentale**

Le circuit est composé de cinq unités de contacteurs membranaires plans alimentés en parallèle. Ils sont traversés par un flux liquide et un flux gaz de part et d'autre de la membrane en co-courant. Les débits de gaz et de liquide sont réglés de manière indépendante entre les contacteurs.

Les débits de liquide dans les contacteurs membranaires sont liés entre eux par une boucle de recirculation, celle-ci se contient une pompe qui contrôle le débit liquide total dans le pilote. En cas de surpression dans le pilote, une ligne de sécurité parallèle à la boucle de recirculation a été placée de manière à s'ouvrir si la pression devient supérieure à 2 bars. La sortie du circuit liquide se fait à travers une ampoule à décanter avant un rejet dans un bac.

La solution contenue dans l'ampoule à décantée sera utilisée ensuite pour la mesure des gaz dissous dans l'eau (méthode détaillée paragraphe II.3.2.3). Le circuit liquide dans le pilote est réglé à 25°C.

La composition de l'alimentation du circuit gaz peut être ajustée à partir de trois gaz : l'oxygène, nécessaire à la croissance bactérienne ; le néon, utilisé comme traceur et l'azote, utilisé pour imiter la composition de l'air et diluer l'oxygène. Ces gaz sont mélangés avant l'entrée de chaque contacteur. La sortie gaz a lieu à l'air libre ou sur une chromatographie phase gazeuse (CPG) pour être analysée.

Un schéma fonctionnel du pilote est présenté Figure II-1 et un schéma de procédé et d'instrumentation plus détaillé du pilote est présenté en annexe A. Des photos du pilote sont présentées Figure II-2.

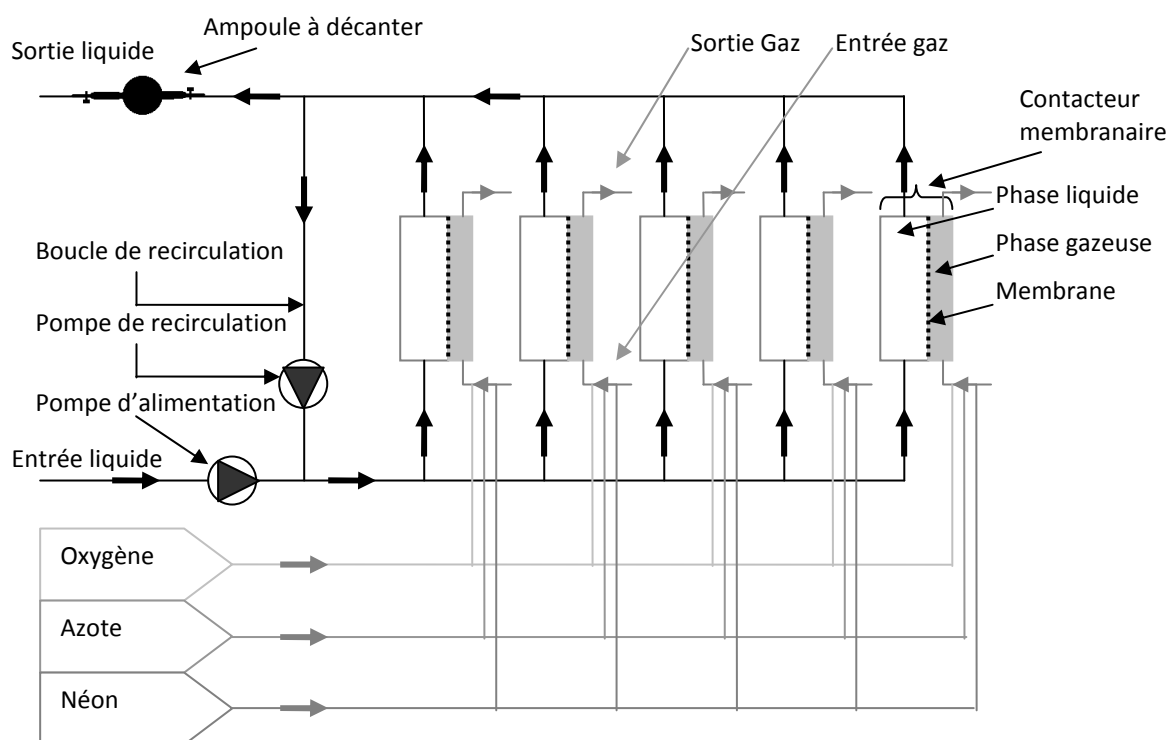


Figure II-1 : Schéma du circuit liquide (en noir) et gaz (en gris) du fonctionnement du pilote



**Figure II-2 : Photographie du pilote utilisé pour le développement des biofilms aérés sur membrane. En haut à gauche : le pilote en entier avec les tiroirs fermés. En haut à droite : le pilote ouvert. En bas à droite : une unité de contacteur membranaire du pilote**

La boucle de recirculation du circuit liquide est utilisée pour découpler la vitesse du liquide du temps de séjour hydraulique dans le pilote. Le débit de recirculation est très supérieur au débit d'alimentation de manière à assurer un bon mélange dans la phase liquide. Le pilote peut fonctionner avec un à cinq contacteurs membranaires en parallèle. De plus, un contacteur peut être remplacé par une sonde à oxygène. Les conduits liquides et gaz sont en inox et tube polyamide (Rilsan®).

#### a) Circuit liquide

La biomasse développée sur les membranes des contacteurs est alimentée en nutriments par une solution dont la composition est donnée Tableau II-2. Cette solution est contenue dans un bac situé en entrée du circuit liquide. Afin de limiter le développement bactérien, ce bac est maintenu à 4°C avec un bullage à l'azote et une agitation et l'alimentation est renouvelée toute les 24 heures. Le bullage d'azote permet de diminuer la concentration d'oxygène dans l'alimentation qui devient inférieure à 1 mg L<sup>-1</sup> et permet ainsi de limiter le développement bactérien et l'introduction d'oxygène dans le circuit liquide. L'alimentation se fait par une pompe à vis excentrée (PCM) de débit maximal 2 L h<sup>-1</sup> et de pression maximale 4 bars. La pompe est équipée d'un by-pass pour éviter la surchauffe du moteur dans les faibles débits (inférieurs à 0,4 L h<sup>-1</sup>). La régulation du débit est réalisée par le biais

d'un débitmètre électromagnétique (Micro-Motion, LF-Série, 0 à 0,2 L h<sup>-1</sup>) piloté par l'ordinateur de contrôle.

La ligne de sécurité comprend un déverseur (0–2 bars) permettant d'éviter toute surpression dans le circuit liquide pour protéger les membranes du compactage et éviter le mouillage des pores.

La boucle de recirculation comprend une pompe à vis excentrée (PCM) dont le débit est réglé par un débitmètre électromagnétique (Rosemount ; 0 à 1500 L h<sup>-1</sup>) et compris entre 0 et 1500 L h<sup>-1</sup> pour une pression maximale de 4 bars. Le débit dans chaque ligne contenant les contacteurs membranaires est mesuré et ajusté manuellement par des vannes à membrane situées en entrée de chaque contacteur. Le volume total de la boucle de recirculation hors contacteurs.

#### b) Dimension des contacteurs membranaires

Les contacteurs sont en acier inoxydable et contiennent une veine liquide et une veine gaz séparées par une membrane plane supportée par une grille (Figure II-3).

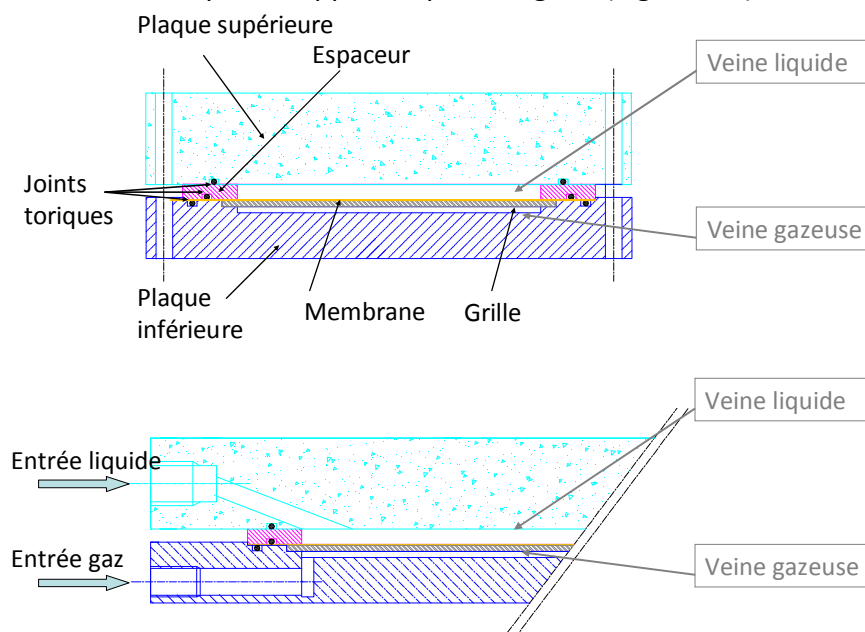
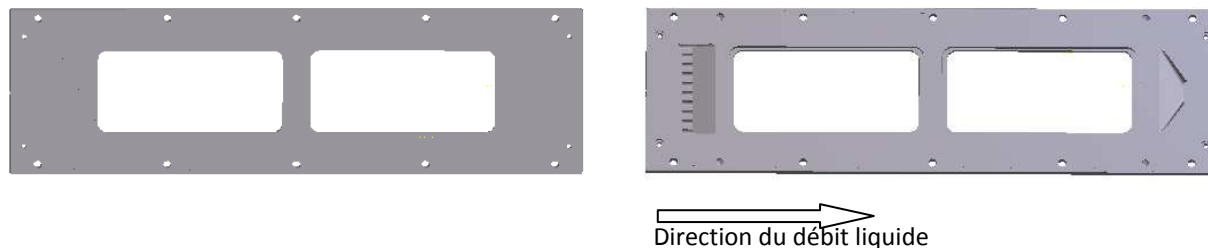


Figure II-3 : Coupe latérale (en haut) et longitudinale (en bas) des contacteurs membranaires

Les contacteurs membranaires sont en trois parties : deux plaques en inox et un espaceur. Le canal creusé dans la plaque en inox supérieure est utilisée pour le débit de liquide. Celui creusé dans la plaque inférieure est utilisé pour le débit de gaz. La surface de membrane utile pour le développement du biofilm est de 0,05 m<sup>2</sup>. Les espaceurs ont pour épaisseur 6, 8, 10 et 12 mm. Ils sont choisis en fonction des conditions hydrodynamiques voulues dans le contacteur membranaire.

La plaque supérieure est équipée de deux fenêtres en verre donnant un accès visuel à la veine liquide, donc au biofilm pendant les expériences (Figure II-4). Pour une meilleure

distribution du liquide, du côté interne du contacteur elle comprend, à l'entrée, un rainurage. La sortie de la phase liquide est soumise à une pente de 20°.



**Figure II-4 : Schéma de la plaque supérieure. A gauche : le dessus. A droite : la face interne de la plaque**

La cotation exacte des contacteurs membranaires est présentée en annexe B.

La gamme de débits possibles et la gamme d'épaisseur des modules de contacteurs membranaires vont permettre de développer le biofilm dans une gamme de Nombre de Reynolds de 600 à 4500 et une gamme de contrainte de cisaillement de  $9 \times 10^{-3}$  à 0,25 Pa.

#### c) Circuit gazeux

Les gaz sont distribués à partir de trois bouteilles sous pression : oxygène (qualité 5.0), azote (qualité 4.5) et néon (qualité 4.5). Les gaz arrivent sur une « clarinette » permettant de distribuer chaque gaz en cinq circuits reliés chacun à un régulateur de débit massique (Brooks, 5850TR) à l'entrée des cinq contacteurs. Les gammes de débits de gaz des débitmètres massiques sont comprises entre 0 et 25 NmL min<sup>-1</sup> pour l'oxygène et l'azote et 0 à 5 NmL min<sup>-1</sup> pour le néon. Ainsi, chaque contacteur a un circuit gaz indépendant les uns des autres et pour chacun des trois gaz utilisés.

Un capteur de pression (Keller, PR 215) côté gaz permet d'informer sur une éventuelle obstruction de la phase gazeuse ; une augmentation de la pression indique si la phase gazeuse est bouchée.

Le gaz en sortie du contacteur est dirigé soit vers l'atmosphère soit vers la chromatographie phase gazeuse (CPG). Le compartiment « gaz » contient souvent de la vapeur d'eau (transférée depuis la phase liquide à travers la membrane) qui peut se condenser. Afin d'éviter l'entrée d'eau liquide dans la CPG, risquant de modifier les résultats de l'analyse, un piège à eau est installé entre la sortie gaz du contacteur et la CPG. Il consiste en un tube en U dont la sortie tournée vers le haut est destinée au gaz et l'autre recueille l'eau dans un siphon (Figure II-5). Pour éviter la stagnation de l'eau condensée dans la phase gazeuse du contacteur membranaire, celui-ci est inclinée de 2°.



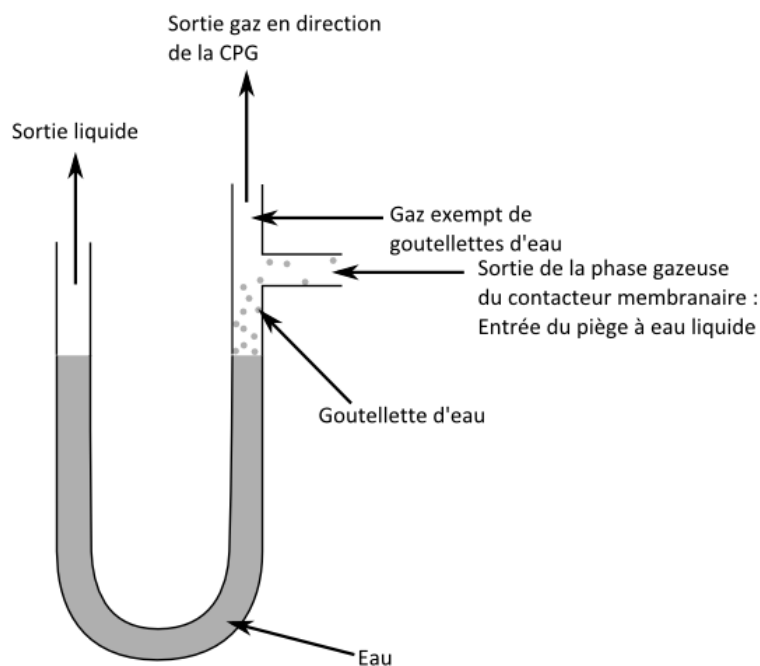


Figure II-5 : Schéma du piège à eau liquide

#### d) Membrane

La membrane utilisée est hydrophobe, plane, poreuse et en polypropylène (Membrana, Accurel<sup>®</sup>; PP; 1E; R/P), la taille nominale des pores est de 0,1  $\mu\text{m}$  et l'épaisseur de la membrane de 92,5  $\mu\text{m}$  (données fournisseur) (Figure II-6).

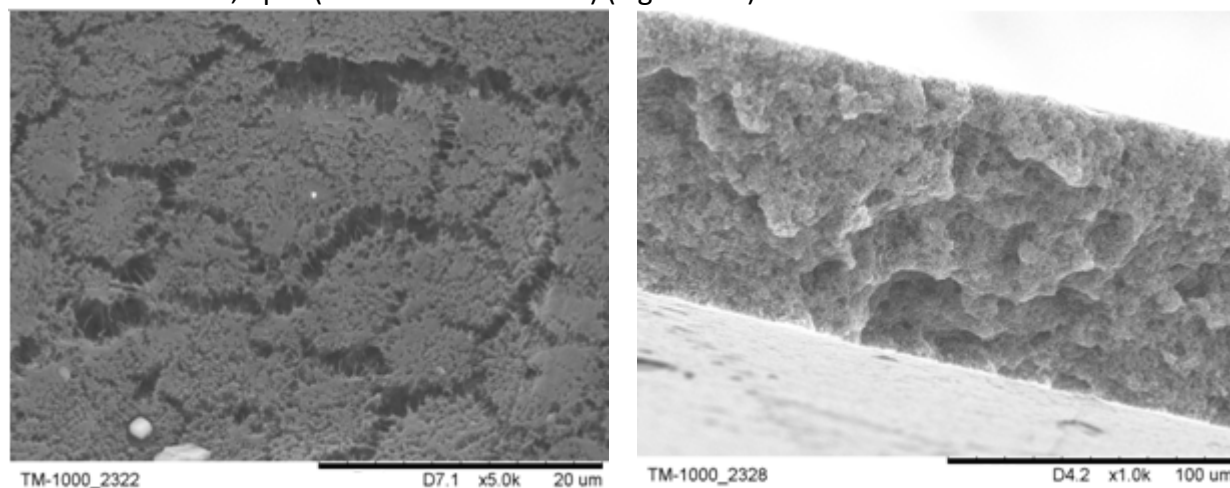


Figure II-6 : Photographie au microscope électronique à balayage (Hitachi, TM 10 000). A gauche, la surface de la membrane. A droite, la tranche de la membrane

#### 2.1.2 Composition de l'alimentation du pilote

Le pilote est alimenté avec une solution permettant la croissance de la biomasse et dont la composition est donnée dans les Tableau II-1 et Tableau II-2. La demande chimique en oxygène est de 1350  $\text{mg L}^{-1}$  et les concentrations en nutriments sont adaptées de manière à répondre aux besoins de la biomasse pour la consommation de cette quantité de DCO.

Composé	Concentration
CH <sub>3</sub> COONa	1,73 g L <sup>-1</sup>
NaCl	0,25 g L <sup>-1</sup>
EDTA	0,25 g L <sup>-1</sup>
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	1 g L <sup>-1</sup>
Na <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub> , 2H <sub>2</sub> O	2,2 g L <sup>-1</sup>
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	1,75 g L <sup>-1</sup>
MgSO <sub>4</sub> , 7H <sub>2</sub> O	0,25 g L <sup>-1</sup>
CaCl <sub>2</sub> , 2H <sub>2</sub> O	0,25 g L <sup>-1</sup>
Solution minérale	1,25 mL L <sup>-1</sup>

**Tableau II-2 : Compositions de la solution d'alimentation (modifiée à partir de Syron et Casey, 2008)**

Composé	Concentration
CaCl <sub>2</sub> , 2H <sub>2</sub> O	7,34 g L <sup>-1</sup>
MgCl <sub>2</sub> , 6H <sub>2</sub> O	25,07 g L <sup>-1</sup>
FeCl <sub>3</sub> , 6H <sub>2</sub> O	4,8 g L <sup>-1</sup>
MnCl <sub>2</sub> , 4H <sub>2</sub> O	1,03 g L <sup>-1</sup>
ZnCl <sub>2</sub> , 2H <sub>2</sub> O	0,01 g L <sup>-1</sup>
CuCl <sub>2</sub> , 2H <sub>2</sub> O	0,112 g L <sup>-1</sup>
NaMoO <sub>4</sub> , 2H <sub>2</sub> O	0,0025 g L <sup>-1</sup>

**Tableau II-1 : Compositions de la solution minérale (Bougard, 2004)**

Le débit d'alimentation est déterminé de manière à ce que quelque soit le volume du pilote entre les expériences, la charge en DCO soit constante et égale à 50 mg L<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>. Cette charge a été choisie de manière à ce que la concentration en DCO soit élevée en entrée (1400 mg L<sup>-1</sup>) et le débit de liquide petit (inférieur à 0,2 L h<sup>-1</sup>) pour que le temps de séjour dans le pilote soit de 1,125 jour. Ce choix va permettre une différence de concentration entre la DCO en entrée et en sortie du pilote, supérieure aux incertitudes liées à la mesure de la concentration en DCO. Ainsi, la vitesse de consommation de la DCO dans le pilote est calculée avec plus de précision.

### 2.1.3 Protocole de colonisation des membranes

Les microorganismes développés sous forme de biofilm dans le pilote décrit précédemment, proviennent des boues issues du bassin d'aération de la station d'épuration de Brax (31). Ces boues sont diluées d'un tiers avec la solution d'alimentation et acclimatées dans un réacteur batch séquencé pendant 24 heures.

Ensuite, la biomasse est inoculée dans le circuit liquide du pilote, les deux circuits (gaz et liquide) fonctionnant en circuit fermé. 24h après l'inoculation de la biomasse, la pompe d'alimentation est démarrée de manière à alimenter la biomasse contenue dans le pilote en nutriment.

### 2.1.4 Conditions expérimentales

#### a) Conditions expérimentales sur le circuit liquide

Le débit de liquide dans le contacteur membranaire ainsi que l'épaisseur de la veine liquide du contacteur impactent les conditions hydrodynamiques de croissance de la biomasse.

Pour chaque condition hydrodynamique, le Nombre de Reynolds est calculé (présenté chapitre I, rappelé Équation II-1) ainsi que la contrainte de cisaillement (Équation II-2).

$$\text{Re} = \frac{D_H \cdot V \cdot \rho}{\mu}$$

Équation II-1

$$\tau = \frac{6 \cdot \mu \cdot Q}{e_{\text{veine liquide}}^2 \cdot \text{largeur}}$$

Équation II-2

Où  $D_H$  est la longueur caractéristique (m).  $D_H$  est le rapport de 4 fois l'aire de la section de passage sur le périmètre

$\rho$  : masse volumique du liquide ( $\text{kg m}^{-3}$ ),

$\mu$  : viscosité dynamique du liquide (Pa s),

$V$  : vitesse moyenne de circulation du liquide ( $\text{m s}^{-1}$ ),

$Q$  : débit de liquide dans la veine liquide ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ),

$e_{\text{veine liquide}}$  : épaisseur de la veine liquide (m),

largeur : la largeur de la veine liquide (m).

Quatre séries d'expériences sont discutées dans cette étude. Les Nombres de Reynolds et contraintes de cisaillement de ces expériences sont présentés dans le Tableau II-3. Dans l'expérience 2, deux débits ont été testés parallèlement sur deux contacteurs membranaires pour chaque débit.

	Expérience 1	Expérience 2		Expérience 3	Expérience 4
		Condition 1	Condition 2		
<b>Epaisseur du contacteur membranaire (mm)</b>	8	8	8	6	10
<b>Débit de liquide (L h<sup>-1</sup>)</b>	293	293	100	487	457
<b>Nombre de Reynolds</b>	1880	1880	643	3190	2885
<b>Contrainte de cisaillement (Pa)</b>	6,1x10 <sup>-2</sup>	6,1x10 <sup>-2</sup>	2,1x10 <sup>-2</sup>	1,8x10 <sup>-1</sup>	6,1x10 <sup>-2</sup>

**Tableau II-3: Conditions hydrodynamiques du circuit liquide calculées sans biofilm et utilisées pour la croissance des biofilms**

Les conditions hydrodynamiques de la condition 1 de l'expérience 2 sont identiques aux conditions hydrodynamiques de l'expérience 1. L'objectif est d'évaluer la reproductibilité de l'expérience.

Le Nombre de Reynolds de l'expérience 4 est proche de celui de l'expérience 3, à 10% près. La contrainte de cisaillement de l'expérience 4 est égale à celle de l'expérience 1. Ainsi à partir de l'expérience 4, l'influence du Nombre de Reynolds ou de la contrainte de cisaillement sur les performances des réacteurs à biofilm sur membrane pourra être discutée.

#### b) Conditions expérimentales sur le circuit gaz

Dans les contacteurs membranaires dans lesquels un biofilm est développé, la phase gazeuse est composée de 20% d'oxygène et 80% d'azote afin d'imiter la composition de l'air. De manière à ce que la différence de composition de la phase gazeuse soit mesurable par la chromatographie phase gazeuse et en dehors des incertitudes de mesure, le débit de gaz est fixé à 1,5 mL min<sup>-1</sup>.

Lors de chaque expérience rapportée dans ce mémoire, un contacteur membranaire a été utilisé pour transférer le néon dans le liquide et permettre une concentration en néon élevée voir la saturation. Ensuite, le néon transfère du liquide vers le gaz dans les autres contacteurs membranaires, et c'est ce flux transféré qui est mesuré. En général, la phase qui

circule dans le contacteur membranaire de saturation contient 100% de néon à un débit de  $2 \text{ mL min}^{-1}$ . Exceptionnellement, pour l'expérience 1, la composition est de 20% d'oxygène et 80% de néon, un biofilm étant développé sur la membrane correspondante.

## 2.2 Pilote 2 : mesure du transfert de matière au travers des membranes vieilles

A la fin des expériences précédentes, les membranes sont sacrifiées pour caractériser le biofilm (méthodes détaillées au paragraphe 3) et la membrane support. L'effet du colmatage de la membrane par le biofilm sur le coefficient de transfert de matière est quantifié à l'aide du deuxième pilote. Nous comparerons le transfert à travers une membrane neuve et une membrane colmatée.

Sur une membrane support, le biofilm est retiré mécaniquement de la membrane pour mesurer le transfert du gaz en l'absence de ce dernier.

L'installation expérimentale est schématisée Figure II-7. Le gaz à l'entrée du contacteur membranaire est composé d'azote pur. La sortie de gaz du contacteur membranaire est reliée à la CPG par l'intermédiaire d'un piège à eau liquide (Figure II-5).

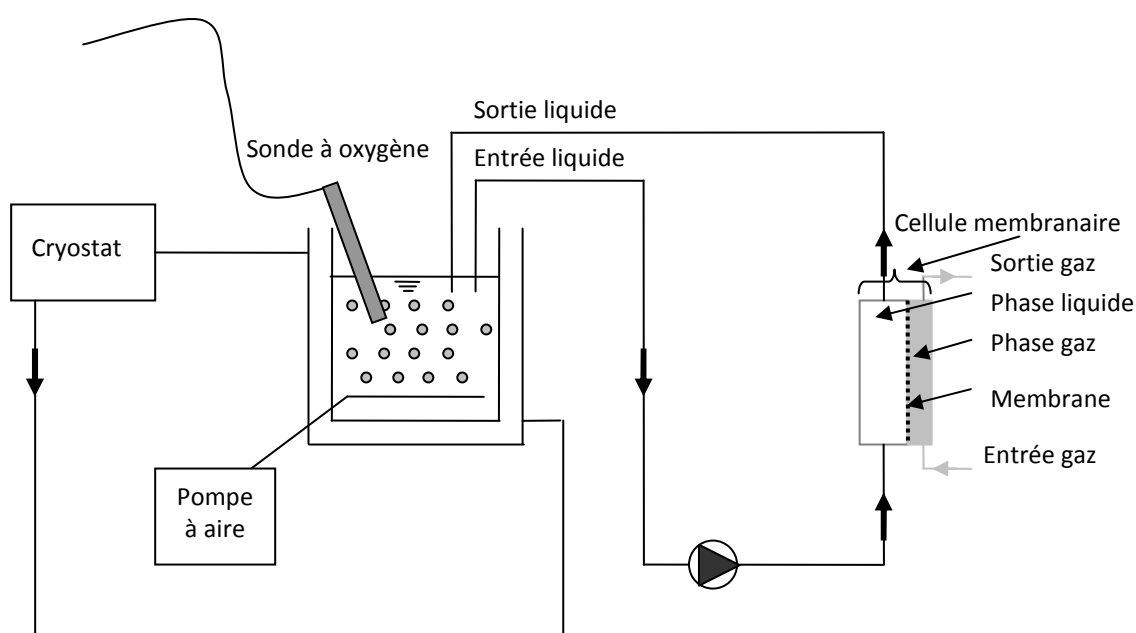


Figure II-7 : Schéma du circuit liquide (en noir) et gaz (en gris) du pilote 2

Le circuit liquide est composé d'une pompe à vis excentrée (Iwaki Pumps, Magnet gear pump, MDG-M456B). Le débit de liquide est compris entre : 0 et  $140 \text{ L h}^{-1}$ . L'eau du bac de rétention est maintenue à  $15^\circ\text{C}$  via un cryostat (RMS Lauda). La concentration en oxygène du bac de rétention est maintenue constante par l'intermédiaire d'un bullage à l'air et d'une agitation. La concentration en oxygène de l'eau est donc celle de l'équilibre entre de l'eau à  $15^\circ\text{C}$  et de l'air. Cette concentration est gardée constante par l'intermédiaire d'une pompe à

air (Hailea) de débit  $1,6 \text{ L h}^{-1}$  et d'un diffuseur d'air (rideau d'air de 60 cm de long, diamètre 8 mm microperforé, Jardiland). La concentration en oxygène est contrôlée par l'intermédiaire d'une sonde à oxygène (WTW Multi 1970i, Cellox 325) dans le bac de rétention. Les tuyaux du circuit liquide sont en polyamide (Rilsan®).

L'unité de contacteur membranaire est composée de deux plaques en inox de dimensions extérieures : 85 x 195 mm. La plaque supérieure est dédiée au passage du liquide, un canal est creusé pour le liquide, elle mesure : 40 mm de largeur, 150 mm de longueur et 4 mm de hauteur. De la même façon que pour le liquide, un canal est creusé dans la plaque inférieure de dimensions : 40 mm X 150 mm X 3 mm. Ces canaux sont séparés par une membrane reposant sur une plaque en inox perforée de 33% de porosité. La surface de membrane utile est de  $6 \times 10^{-3} \text{ m}^2$ .

Le gaz est composé d'azote (qualité 4.5) en entrée du contacteur membranaire avec un débit de  $0,5 \text{ mL min}^{-1}$ . L'oxygène de la phase liquide transfère de l'eau vers la phase gazeuse. En sortie du contacteur, l'eau liquide contenue dans le circuit gaz est éliminée par un piège à eau et le gaz dirigé vers la CPG pour y être analysé. Afin d'éviter tout échange de gaz par diffusion avec l'air ambiant, les tuyaux pour la circulation du gaz sont en inox.

La membrane utilisée est issue des expériences menées sur le pilote 1. L'échantillon de membrane, débarrassé du biofilm à l'aide d'un jet d'eau, est placé dans le contacteur membranaire. Les débits gaz et liquide sont mis en fonctionnement. Pendant 48 heures, un fort débit d'azote est appliqué dans la phase gazeuse afin d'éliminer l'eau qui pourrait être de ce côté de la membrane.

### **3 TECHNIQUES ANALYTIQUES UTILISEES**

#### **3.1 Caractérisation de la vitesse de réaction du biofilm : analyse chimique de la DCO**

Afin de déterminer la vitesse de consommation du carbone par le biofilm, la DCO (Demande Chimique en Oxygène) est mesurée tous les deux jours dans les effluents d'entrée et de sortie du pilote. Après filtration de l'échantillon à  $0,2 \mu\text{m}$  sur filtre nylon, la DCO est mesurée par oxydation au dichromate de potassium (AFNOR, NFT 90-101) (kits Hach Lange, LCK 314, 15-150  $\text{mg L}^{-1}$ ).

#### **3.2 Caractérisation des propriétés diffusionnelles du biofilm : quantification du transfert de gaz à travers la membrane avec ou sans biofilm**

Nous suivons le transfert du néon de la phase liquide vers la phase gazeuse, pour quantifier les propriétés de transfert du système biofilm plus membrane. La différence entre les flux d'oxygène et de néon permet ensuite de mesurer l'effet de la réaction de consommation de DCO sur le transfert de matière.

### 3.2.1 Détermination des flux de gaz transférés entre la phase gazeuse et la phase liquide

Les flux de gaz transférés de l'oxygène et du néon sont calculés selon les équations suivantes dans le cas d'un transfert du gaz vers le liquide.

$$\Phi_{\text{transféré}} = \dot{n}_{\text{entrée}}^i - \dot{n}_{\text{sortie}}^i$$

$$\Phi_{\text{transféré}} = y_{\text{entrée}}^i \cdot \dot{n}_{\text{entrée}}^{\text{total}} - y_{\text{sortie}}^i \cdot \dot{n}_{\text{sortie}}^{\text{total}}$$

En supposant les gaz parfaits:

$$\Phi_{\text{transféré}} = \frac{P}{R.T} (y_{\text{entrée}}^i \cdot Q_{\text{entrée}} - y_{\text{sortie}}^i \cdot Q_{\text{sortie}})$$

#### Équation II-3

$\Phi_{\text{transféré}}$  : flux molaire transféré de la molécule d'intérêt « i » ( $\text{mol s}^{-1}$ ),

P : pression totale (Pa),

R : constante des gaz parfait ( $8,314 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ),

T : température de la pièce (K),

$y_{\text{entrée}}^i$  : fraction molaire de la molécule « i » en entrée (-),

$y_{\text{sortie}}^i$  : fraction molaire de la molécule « i » en sortie (-),

$Q_{\text{entrée}}$  : débit de gaz en entrée de la phase gazeuse ( $\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$ ),

$Q_{\text{sortie}}$  : débit de gaz en sortie de la phase gazeuse ( $\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$ ),

$\dot{n}_{\text{entrée}}^i$  : flux molaire de la molécule « i » en entrée de la phase gazeuse ( $\text{mol s}^{-1}$ ),

$\dot{n}_{\text{sortie}}^i$  : flux molaire de la molécule « i » en sortie de la phase gazeuse ( $\text{mol s}^{-1}$ ),

$\dot{n}_{\text{entrée}}^{\text{total}}$  : flux molaire total en entrée de la phase gazeuse ( $\text{mol s}^{-1}$ ),

$\dot{n}_{\text{sortie}}^{\text{total}}$  : flux molaire total en sortie de la phase gazeuse ( $\text{mol s}^{-1}$ ).

La valeur de l'incertitude de la mesure du flux transféré est évaluée paragraphe 3.2.4.

### 3.2.2 Détermination de la diffusivité relative

La diffusivité relative  $D_{\text{eff}}$  du biofilm est déterminée à partir du transfert du néon à travers le biofilm et la membrane selon l'Équation II-4.

$$D_{\text{eff}} = \frac{D_{\text{biofilm}}^{\text{Néon}}}{D_{\text{eau}}^{\text{Néon}}}$$

$$\text{Et } D_{\text{biofilm}}^{\text{Néon}} = K_{\text{GLOBAL}}^{\text{Neon}} \cdot e_{\text{biofilm}}$$

#### Équation II-4

Avec :

$D_{\text{eau}}^{\text{Néon}}$  : coefficient de diffusion du néon dans l'eau ( $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$ ),

$D_{\text{biofilm}}^{\text{Néon}}$  : coefficient de diffusion du néon dans le biofilm ( $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$ ),

$K_{\text{GLOBAL}}^{\text{Neon}}$  : coefficient de transfert global du néon de la phase liquide à la phase gazeuse ( $\text{m s}^{-1}$ ),

$e_{\text{biofilm}}$  : épaisseur du biofilm (m).

$$\text{Or : } K_{GLOBAL}^{Neon} = \frac{\Phi_{transféré}}{\Delta C_{In} \cdot S_{mb}} \quad (\text{Gabelman et Hwang, 1999})$$

### Équation II-5

$$\Delta C_{In} = \frac{\Delta C_{entrée} - \Delta C_{sortie}}{\ln \frac{\Delta C_{entrée}}{\Delta C_{sortie}}}$$

### Équation II-6

Où :  $\Phi_{transféré}$  est le flux de néon transféré ( $\text{mol s}^{-1}$ ),

$S_{mb}$  : surface de membrane ( $\text{m}^2$ ),

$\Delta C$  : différence de concentration entre les phases gaz et liquide en entrée et sortie des débits gaz et liquide :  $\Delta C = H^i \cdot y^i \cdot P - C_{liquide}$ ,

$H^i$  : constante de Henry de la molécule « i » ( $\text{mol m}^{-3} \text{Pa}^{-1}$ ),

$C_{liquide}$  : concentration de la molécule dans la phase liquide ( $\text{mol m}^{-3}$ ).

### 3.2.3 Méthodes de mesure des variables nécessaires aux calculs des flux de gaz transférés et de la diffusivité relative

#### a) Mesures des pressions et températures

Afin de corriger précisément les débits de gaz, la pression atmosphérique est relevée au moment où les expérimentations sont réalisées. Ces pressions sont relevées via le site internet de « Météo France ».

#### b) Mesures du débit de gaz

Les débits de gaz en entrée et en sortie des phases gazeuses des contacteurs membranaires sont mesurés via un débitmètre gaz volumétrique électronique (Intelligent Digital Flowmeter, Varian). L'incertitude de la mesure est de 3 %.

#### c) Dosage des concentrations de gaz

- Concentration en gaz dans la phase gazeuse

#### Dosage du gaz

Les concentrations en gaz de la phase gazeuse sont mesurées à l'aide d'une chromatographie en phase gazeuse (Varian, GC 450). L'erreur sur la mesure indiquée par le fournisseur est de 3%.

#### Fonctionnement de la chromatographie phase gazeuse

Le gaz vecteur de la CPG est l'hydrogène. Un volume de 250  $\mu\text{L}$  de gaz à analyser est injecté dans la CPG à 140°C afin de vaporiser toute l'eau potentiellement contenue dans le gaz à tester. Ensuite trois colonnes de chromatographie se succèdent dans un four à 40°C. La



première est utilisée pour la rétention de l'eau qui ne doit pas pénétrer dans les colonnes suivantes (tamis moléculaire, mol Sieve 5A, TN 1591). La 2<sup>ème</sup> est destinée à retenir le dioxyde de carbone (colonne apolaire, Porapak Q n°80-100, MESH, TN 9933). La 3<sup>ème</sup> colonne a la capacité de retenir l'argon, l'oxygène, l'azote, le méthane,... (colonne polaire, Porapak N n°80-100, MESH, TN 9935). Puis le contenu de la 2<sup>ème</sup> colonne contourne la 3<sup>ème</sup> pour sortir, et enfin le contenu de la 3<sup>ème</sup> transfère vers les détecteurs de la CPG. On utilise un détecteur par ionisation de flamme (FID) et un détecteur par conductivité thermique (TCD). Le premier détectent les gaz qui brûlent (méthane dans le cas présent), le deuxième les autres. Le temps d'une analyse est de 11 minutes.

#### Distribution des temps de séjours (DTS)

Avant d'être analysé par CPG, le gaz en sortie de la phase gazeuse du contacteur membranaire traverse un piège à eau. Celui-ci contient un volume mort important. De même, le compartiment gaz du contacteur membranaire contient un volume mort. Ces volumes sont potentiellement responsables de mauvais mélanges de la phase gazeuse, qui risquent donc d'influencer les mesures. La connaissance de la distribution des temps de séjour est donc nécessaire (DTS).

Dans la présente étude, la détermination de la DTS se fait par une méthode d'injection-échelon dans la phase gazeuse (Villermoux, 1994). Le volume apparent déterminé est alors de 1420 mL pour un volume réel de 125 mL. La différence importante entre ces valeurs est due à la présence d'un important volume mort dans le piège à eau. A un débit de gaz de 1,5 mL min<sup>-1</sup>, il est alors nécessaire d'attendre un temps minimum de 15 heures avant que le régime permanent soit atteint.

- Concentration en gaz dans la phase liquide

#### Dosage de l'oxygène

Dans la phase liquide, la concentration en oxygène est mesurée via une sonde à oxygène (WTW Multi 1970i, Cellox 325) intégrée au circuit liquide du pilote.

#### Dosage du néon

Le néon est dosé dans la phase liquide à la sortie du réacteur.

Pour ce dosage, un volume connu de la solution liquide à doser est mis en contact avec un volume connu de gaz. Les molécules gazeuses des deux phases en présence sont en équilibre gaz - liquide, décrit par la loi de Henry. Ensuite, la phase gazeuse est récupérée dans une poche à gaz préalablement vidée de tout gaz et injectée ensuite pour analyse dans la CPG. Un protocole expérimental précis est présenté en annexe C.

Cette méthode permet de doser tous les gaz dissous : oxygène et néon. A chaque mesure, la concentration en oxygène, mesurée par la sonde décrite précédemment, va être comparée

avec la concentration mesurée par cette méthode. La comparaison est un indicateur de contamination potentielle par l'air ambiant.

### 3.2.4 Détermination des incertitudes des mesures

#### a) Détermination de l'incertitude des flux de gaz transférés entre la phase gazeuse et la phase liquide

Selon l'Équation II-3 :

$$\Phi_{\text{transféré}} = \dot{n}_{\text{entrée}}^i - \dot{n}_{\text{sortie}}^i$$

Et

$$\dot{n}_{\text{entrée}}^i = \frac{P}{R.T} y_{\text{entrée}}^i \cdot Q_{\text{total}}$$

$y_{\text{entrée}}^i$  est la fraction molaire de la molécule « i » en entrée du circuit gaz.

La fraction molaire  $y^i$  est déterminée via l'utilisation de la CPG. L'analyse de l'échantillon de gaz par la CPG commence par introduction dans les colonnes de chromatographie d'un volume  $V_{\text{CPG}}$  connu de gaz (250  $\mu\text{L}$ ), à une température connue (140°C) et la pression atmosphérique relevée (paragraphe 2.3.2.a). Ce volume de gaz comprend les gaz d'intérêts : azote, oxygène et néon mais aussi de l'eau sous forme vapeur. Comme expliqué au paragraphe 3.2.3.c, l'eau est retenue dans la première colonne de la CPG et selon le programme de la CPG n'est pas pris en compte dans le nombre de mole total. Hors, dans notre étude, à la sortie gaz, celui-ci est très chargé en vapeur d'eau (près de 100% d'humidité). La non prise en compte de cette humidité vient diminuer la précision de la mesure. C'est pourquoi la fraction molaire contenue dans le gaz est recalculée à partir du nombre de moles totales introduit dans la CPG et l'aire sous la courbe du chromatogramme de la molécule d'intérêt. Une corrélation du nombre de moles en fonction de l'aire sous la courbe ayant été déterminée précédemment avec des concentrations connues en gaz.

La fraction molaire est ensuite égale au rapport du nombre de moles calculées de la molécule d'intérêt par le nombre de moles totales (Équation II-7).

$$y_{\text{entrée}}^i = \frac{n^i}{n^{\text{total}}} = \frac{n^i \cdot R \cdot T_{\text{CPG}}}{P \cdot V_{\text{CPG}}}$$

**Équation II-7**

Alors

$$\dot{n}_{\text{entrée}}^i = \frac{n_{\text{entrée}}^i \cdot Q_{\text{total}} \cdot T_{\text{CPG}}}{T \cdot V_{\text{CPG}}}$$

**Équation II-8**

La détermination de l'incertitude du flux molaire en entrée devient :

$$\frac{d\dot{n}_{entrée}^i}{\dot{n}_{entrée}^i} = \frac{dn_{entrée}^i}{n_{entrée}^i} + \frac{dQ_{total}}{Q_{total}} + \frac{dT_{CPG}}{T_{CPG}} + \frac{dT}{T} + \frac{dV_{CPG}}{V_{CPG}}$$

Équation II-9

Les incertitudes sur les flux molaires en sortie sont calculées de la même manière que pour le flux molaire en entrée. L'incertitude relative sur le flux transféré est la somme des incertitudes relatives sur les flux en entrée et en sortie.

$$\frac{d\Phi_{transféré}}{\Phi_{transféré}} = \frac{d\dot{n}_{entrée}^i}{\dot{n}_{entrée}^i} + \frac{d\dot{n}_{sortie}^i}{\dot{n}_{sortie}^i}$$

Équation II-10

Ces calculs d'incertitude ont imposé les débits de gaz dans la phase gazeuse. En effet, afin d'observer une réelle différence entre les flux en entrée et en sortie, le débit de gaz doit être suffisamment petit pour que la différence entre les flux entrée et sortie soit supérieure à l'incertitude. Cependant, le débit de gaz doit être suffisamment grand pour éviter un débit molaire en oxygène trop faible en sortie par rapport à l'entrée, qui risque de favoriser la biomasse en entrée du contacteur membranaire par rapport à la biomasse en sortie.

b) Détermination des incertitudes de la diffusivité relative

Selon l'Équation II-4 et Équation II-5, la diffusivité s'exprime selon l'équation :

$$D_{eff} = \frac{e_{biofilm} \cdot \frac{\Phi_{transféré}}{\Delta C_{ln} \cdot S_{mb}}}{D_{eau}^{Néon}}$$

Équation II-11

L'incertitude sur la diffusivité relative se calcule selon l'équation suivante :

$$\frac{dD_{eff}}{D_{eff}} = \frac{dD_{eau}^{Néon}}{D_{eau}^{Néon}} + \frac{d\Delta C_{ln}}{\Delta C_{ln}} + \frac{dS_{mb}}{S_{mb}} + \frac{de_{biofilm}}{e_{biofilm}} + \frac{d\Phi_{transféré}}{\Phi_{transféré}}$$

Équation II-12

$$\text{Avec : } \Delta C_{ln} = \frac{\Delta C_{entrée} - \Delta C_{sortie}}{\ln \frac{\Delta C_{entrée}}{\Delta C_{sortie}}} \text{ et } \Delta C = H^i \cdot y^i \cdot P - C_{liquide}$$

$$\frac{d\Delta C}{\Delta C} = \frac{H^i \cdot y^i \cdot dP + H^i \cdot P \cdot dy^i + dH^i \cdot P \cdot y^i + dC_{liquide}}{H^i \cdot y^i \cdot P - C_{liquide}}$$

Équation II-13

$$\frac{d\Delta C_{in}}{\Delta C_{in}} = \frac{\left( \ln \frac{\Delta C_{entrée}}{\Delta C_{sortie}} \right) \cdot (\Delta C_{entrée} + d\Delta C_{entrée} - \Delta C_{sortie} + d\Delta C_{sortie})}{(\Delta C_{entrée} - \Delta C_{sortie}) \cdot \left( \ln \frac{\Delta C_{entrée} + d\Delta C_{entrée}}{\Delta C_{sortie} + d\Delta C_{sortie}} \right)} - 1$$

Équation II-14

### 3.3 Caractérisation des propriétés structurales macroscopique du biofilm : épaisseur et concentration en matière sèche

Deux méthodes sont utilisées et comparées pour mesurer l'épaisseur du biofilm. La première fait appel à une méthode mise au point par Horn et Hampel (1997) puis reprise et modifiée par Wäsche et al. (2002). Le biofilm est pesé en présence et en absence d'eau puis on déduit l'épaisseur du biofilm et sa concentration en matière sèche à partir d'une hypothèse sur sa masse volumique. La deuxième méthode fait appel à une visualisation du biofilm par microscopie confocal. Ces méthodes sont décrites dans les paragraphes qui suivent.

#### 3.3.1 Méthode par quantification de l'eau du biofilm

##### a) Description de la méthode

La méthode mise au point par Horn et Hampel (1997) puis reprise par Wäsche et al. (2002) consiste en 4 étapes successives :

1. Drainage de l'eau contenue dans l'échantillon de biofilm pendant 30 min
2. Pesée de l'échantillon de biofilm mouillé
3. Séchage de l'échantillon de biofilm pendant 24h à 105°C afin d'éliminer toute l'eau présente
4. Pesée de l'échantillon de biofilm sec

Connaissant la surface d'échantillon du biofilm, il est possible de remonter à la concentration en matière sèche du biofilm (Équation II-15) et à l'épaisseur du biofilm (Équation II-17) si la masse volumique du biofilm mouillé est connue.

Dans cet objectif, Horn et Hempel (1997) travaillent avec une masse volumique de biofilm mouillé de 1 g cm<sup>-3</sup>. A la température de travail, la masse volumique de l'eau étant de 0,99 g cm<sup>-3</sup>, ils font l'approximation que le biofilm étant composé à 97% d'eau, sa masse volumique est celle de l'eau. Wäsche et al. (2002) utilisent une masse volumique de biofilm humide de 1,02 g cm<sup>-3</sup> mais sans expliquer le choix de la valeur. Cette valeur prend probablement en compte les 3% de matière sèche du biofilm. La différence d'épaisseur et de concentration en matière sèche du biofilm pour ces trois valeurs (0,99 ; 1 et 1,02 g cm<sup>-3</sup>) a été testée et n'est pas significative. Dans le cadre de cette étude, la masse volumique du biofilm humide est arrêtée à 1,02 g cm<sup>-3</sup>.

Enfin la concentration en matière sèche et l'épaisseur du biofilm sont calculées selon les Équation II-15 et Équation II-17 respectivement et les incertitudes sur ces mesures selon les Équation II-16 et Équation II-18.

$$\rho_{\text{biofilm}} = \frac{m_{\text{biofsèc}}}{\frac{m_{\text{biof.humide}}}{\rho_{\text{biof.humide}}}}$$

**Équation II-15**

$$\frac{d\rho_{\text{biofilm}}}{\rho_{\text{biofilm}}} = \frac{dm_{\text{biofsèc}}}{m_{\text{biofsèc}}} + \frac{dm_{\text{biof.humide}}}{m_{\text{biof.humide}}} + \frac{d\rho_{\text{biof.humide}}}{\rho_{\text{biof.humide}}}$$

**Équation II-16**

Avec :

$\rho_{\text{biofilm}}$  : concentration en matière sèche du biofilm ( $\text{kg m}^{-3}$ ),

$\rho_{\text{biof.humide}}$  : masse volumique du biofilm humide ( $1,02 \text{ kg m}^{-3}$ ),

$m_{\text{biof sèc}}$  : masse de biofilm sec (kg),

$m_{\text{biof humide}}$  : masse de biofilm humide (kg).

$$e_{\text{biofilm}} = \frac{m_{\text{biof.humide}}}{\rho_{\text{biof.humide}} \cdot S_{\text{échantillon}}}$$

**Équation II-17**

$$\frac{de_{\text{biofilm}}}{e_{\text{biofilm}}} = \frac{dm_{\text{biof.humide}}}{m_{\text{biof.humide}}} + \frac{d\rho_{\text{biof.humide}}}{\rho_{\text{biof.humide}}} + \frac{dS_{\text{échantillon}}}{S_{\text{échantillon}}}$$

**Équation II-18**

Avec :

$e_{\text{biofilm}}$  : épaisseur du biofilm (m),

$S_{\text{échantillon}}$  : surface de l'échantillon de biofilm mesuré ( $\text{m}^2$ ).

b) Application et mise au point de la méthode aux biofilms développés sur le pilote

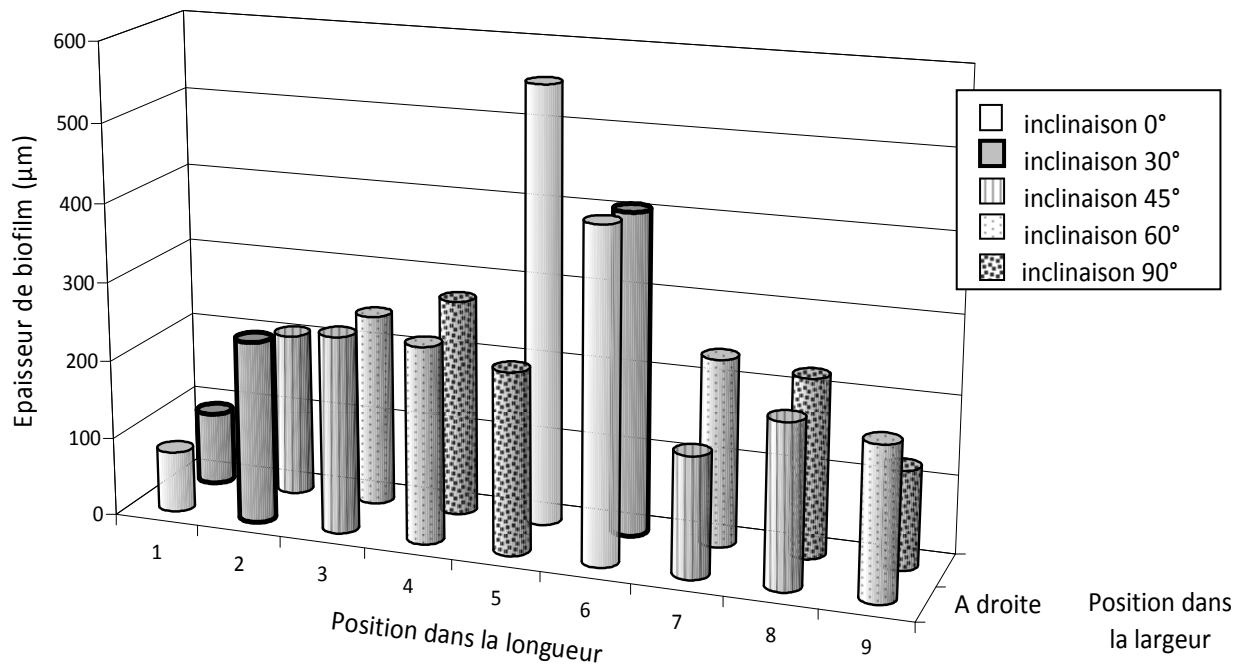
- Découpe de la membrane

Malgré un rainurage disposé à l'entrée des canaux liquides, les conditions hydrodynamiques ne sont pas homogènes sur toute la surface des biofilms. En entrée et sortie notamment, l'écoulement n'est probablement pas en régime établi. Pour étudier l'épaisseur et la concentration en matière sèche du biofilm, la membrane est découpée au scalpel sur une ligne médiane selon la longueur : les propriétés du biofilm sont supposées identiques de part

et d'autre de la ligne. Ensuite les deux bandes sont découpées en rectangles (de 5 cm par 8 cm environ) selon la largeur permettant ainsi de séparer les parties proches de l'entrée de la membrane, soumises à de plus fortes instabilités hydrodynamiques, du reste. Plusieurs échantillons sont disponibles pour évaluer la reproductibilité des valeurs mesurées.

- Inclinaison de la membrane

Afin d'assurer un drainage correct et reproductible de l'eau des biofilms avant la mesure de l'épaisseur, nous avons réalisé des tests d'inclinaison des échantillons de biofilm sur membrane, à des angles de 0, 30, 45, 60 et 90° pendant 30 minutes. Ensuite, les échantillons ont été pesés, séchés à 105°C à l'étuve pendant 24 heures et pesés de nouveau. L'épaisseur du biofilm a ensuite été calculée d'après la masse d'eau éliminée. Un exemple de résultat est présenté Figure II-8. L'épaisseur du biofilm est présentée en fonction de l'inclinaison et de la position sur la membrane.



**Figure II-8 : Épaisseur du biofilm en fonction de la position sur la membrane et de l'inclinaison lors du test de drainage. Dans la longueur, la position 1 correspond à l'entrée du liquide dans le contacteur membranaire et la position 9, la sortie**

Les tests d'inclinaison des échantillons de membrane ont montré dans un premier temps, que pour des inclinaisons de 60 et 90°, le biofilm est entraîné par le drainage de l'eau. Ces inclinaisons sont donc considérées comme trop importantes et risquent de sous estimer la mesure de l'épaisseur du biofilm.

L'épaisseur du biofilm en entrée du contacteur membranaire est faible, sans doute en raison de l'écoulement instable dans cette zone, et il n'est donc pas représentatif du biofilm

moyen. L'épaisseur de biofilm pour les inclinaisons à 30° est du même ordre de grandeur que celle mesurée à 0°, c'est-à-dire sans drainage (Figure II-8, positions 5 et 6). Ces épaisseurs en position 5 et 6 semblent surestimer l'épaisseur totale du biofilm. Pour ces raisons, le drainage de l'eau sera pratiqué par la suite à une inclinaison de 45° pendant 30 minutes.

### 3.3.2 Utilisation du microscope confocal

En parallèle, nous avons cherché à observer la structure du biofilm à l'aide du microscope confocal à balayage laser. Quand cela était possible, nous avons comparé les mesures d'épaisseurs du biofilm avec la méthode précédente.

Ce microscope permet de réaliser des coupes d'un échantillon en profondeur (plans focaux). Ces plans sont réalisés tous les 5 micromètres. Le nombre de plans nécessaires pour balayer l'épaisseur du biofilm tous les 5 micromètres indique l'épaisseur du biofilm. Nous utilisons un microscope confocal LEICA statif droit (DMRXA2) équipé de lasers argon et d'un objectif 20X utilisé pour les biofilms épais.

L'observation au microscope confocal nécessite un marquage par fluorescence des bactéries. Le kit « live/dead Baclight® » (Molecular Probes, L7007) utilisé<sup>1</sup>, contient deux marqueurs fluorescents se fixant sur les acides nucléiques :

- Le SYTO 9 (vert) qui marque toutes les bactéries (vivantes et mortes) dont les longueurs d'ondes d'excitations et d'émissions sont respectivement 488 et 500 nm ;
- L'iodure de propidium : IP (violet) qui marque les bactéries mortes, dont les longueurs d'ondes d'excitation et d'émissions sont respectivement 488 et 620 nm (Hannon et al., 2006).

L'échantillon de biofilm est déposé sur une boîte de Pétri dans une solution d'alimentation. Quelques microlitres de solution C<sup>1</sup> sont ajoutés afin de colorer l'échantillon. La coloration nécessite une période d'incubation de 15 minutes à l'obscurité avant la visualisation au microscope. Ensuite l'épaisseur du biofilm peut être déterminée.

### 3.3.3 Résultats

Les résultats obtenus selon les deux méthodes sont présentés dans le Tableau II-4.

Pour rappel, chaque expérience est menée avec 2 à 5 contacteurs membranaires en parallèle. C'est pourquoi plusieurs épaisseurs sont présentées par expériences, elles représentent les épaisseurs moyennes sur la surface de la membrane.

---

<sup>1</sup> Le kit live/Dead Baclight® contient deux solutions : la solution A : 1,67 mM de SYTO9 + 1,67 mM d'IP et la solution B : 1,67 mM de SYTO9 + 18 mM d'IP. La solution C permettant la coloration de l'échantillon est préparée en mélangeant volume à volume les solutions A et B.

	Expérience 1		Expérience 2		Expérience 3		Expérience 4		
			Condition 1	Condition 2					
<b>Méthode par quantification de l'eau contenue dans le biofilm (mm)</b>	2,7	2,0	1,2	1,5	1,5	1,4	1,3	2,1	2,1
<b>Utilisation du microscope confocal (mm)</b>	0,6 à 1,3					0,9 (visualisation sur l'épaisseur du biofilm)		1,6	

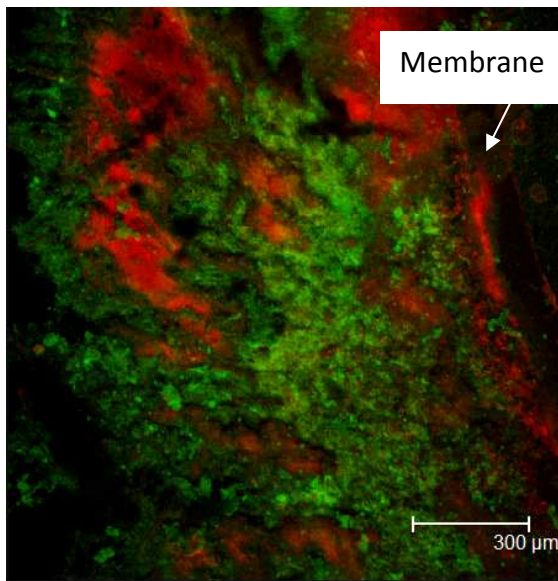
**Tableau II-4 : Epaisseur du biofilm pour les différentes expériences et les deux méthodes de mesures : quantification de l'eau contenue dans le biofilm et microscopie confocal**

Le biofilm est dense et épais par rapport aux possibilités du microscope et à la diffusion des marqueurs. Ainsi, la mesure étant réalisée de l'interface liquide-biofilm vers l'interface biofilm – membrane, les rayons lasers du microscope n'ont pas pu pénétrer sur toute la profondeur du biofilm lors de la première expérience ; l'épaisseur du biofilm est donc sous-estimée. C'est pourquoi, dans les expériences suivantes, l'épaisseur du biofilm a été mesurée par une photo sur une coupe de la largeur du biofilm (Figure II-9). Mais cette méthode implique une découpe du biofilm sur le côté risquant d'altérer les propriétés d'épaisseurs du biofilm.

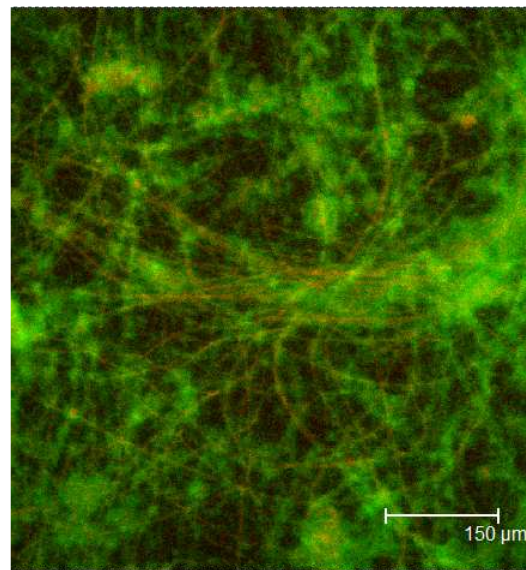
En conclusion, avec la concentration en matière sèche et de l'épaisseur du biofilm étudié, le laser du microscope a des difficultés à pénétrer sur toute l'épaisseur. Cette méthode ne sera donc pas retenue pour quantifier l'épaisseur du biofilm.

Ensuite, il a été possible d'obtenir des informations sur la structure du biofilm. Nous avons observé dans l'expérience 1, à l'aide du microscope photonique binoculaire que les microorganismes composant le biofilm sont de deux types : bactéries et champignons. Le microscope confocal a montré l'organisation des deux microorganismes : les champignons sont filamenteux (Figure II-10). Dans ce cas, ces microorganismes semblent conférer au biofilm une structure physique particulière qui semble être relativement lâche avec des amas bactériens posés sur les filaments du biofilm. Ces champignons n'ont pas été observés dans ces quantités dans les autres expériences.





**Figure II-9 :** Image issue du microscope confocal d'un biofilm mesuré sur la largeur. La base de la membrane a été collée sur un support pour maintenir le biofilm et la membrane pendant la mesure. Cette colle peut fluorescer et donc interférer avec les intensités des couleurs rouge et verte. C'est pourquoi les indications rouges et vertes ne sont pas forcément représentatives et ne seront pas commentées ici.



**Figure II-10 :** Image issue du microscope confocal d'un biofilm composé de champignons filamenteux (filaments rouges) et de bactéries (points vert et jaunes ; le jaune est la superposition du rouge et du vert)

Les Figure II-11, Figure II-12, Figure II-13 et Figure II-14 montrent d'autres plans de la structure du biofilm.

La Figure III-11 montre une superposition des plans focaux réalisés tous les 5 micromètres du biofilm développé à l'expérience 4. Le microscope n'a pas été jusqu'à la base du biofilm. Ainsi, les zones d'ombres ne signifient pas l'absence de biomasse mais un pore. Cette figure montre des hétérogénéités dans l'épaisseur du biofilm. A noter que le biofilm n'était probablement pas exactement plat, c'est pourquoi le haut de la figure est plus clair que le bas.

Les Figure II-12, Figure II-13 et Figure II-14 sont des plans du biofilm de l'expérience 4 à différentes profondeurs du biofilm. Les deux colorants Syto9 et IP sont additionnés. Nous ne discuterons pas ici les couleurs des cellules, la pénétration des marqueurs : Syto 9 et IP ne sont pas bien connus, il est possible qu'ils ne pénètrent pas sur toute la profondeur. De plus, la base du biofilm apparaît plus claire que le haut pour des questions de retour de la longueur d'onde au microscope confocal. Nous nous intéresserons à la structure globale.

La Figure III-12 montre un plan focal à environ 620 μm de la surface du biofilm. Cette figure met en évidence la présence d'agrégats et de canaux dans le biofilm. Les canaux mesurés ont pour dimension : 75, 150, 125, 120 et 110 μm. Les agrégats ont pour dimension 110, 190, 250 et 260 μm.

La Figure II-14 semble montrer que le Syto9 ne marque pas de cellule à l'intérieur des agrégats bactériens à cette profondeur. Soit parce qu'il n'y en n'a pas soit pour des questions de pénétrations des colorants. Les contours vert semblent marquer des canaux du biofilm et l'intérieur de ces contours est rempli de colorants rouge qui montre la présence des agrégats bactériens. La taille des canaux en présence est de 75  $\mu\text{m}$ .

La Figure II-13 illustre les irrégularités de la surface du biofilm par deux pics de microorganismes plus hauts que les autres à la surface.

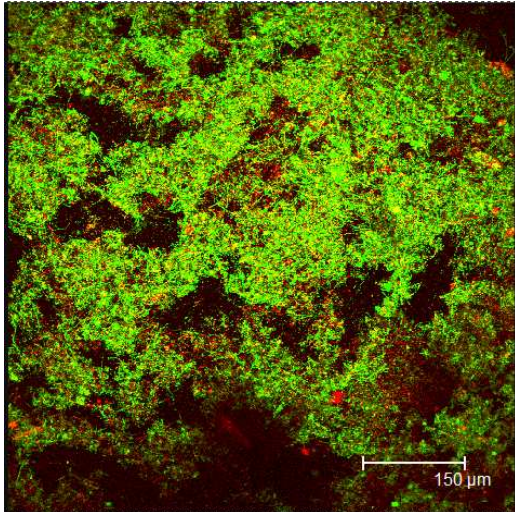


Figure II-11 : Image issue de la somme de plans focaux réalisés par un microscope confocal sur l'épaisseur du biofilm. Le vert correspond au marquage par le Syto9 ; le rouge au marquage par l'IP

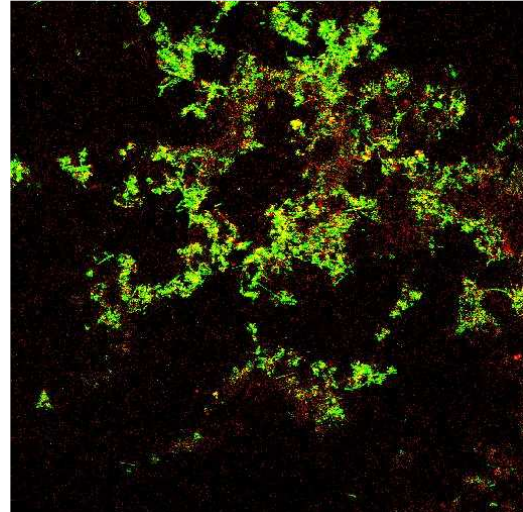


Figure II-12 : Photo issue du microscope confocal d'un biofilm sur un plan à 620  $\mu\text{m}$  de profondeur à partir du haut du biofilm. Le vert correspond au marquage par le Syto9 ; le rouge au marquage par l'IP

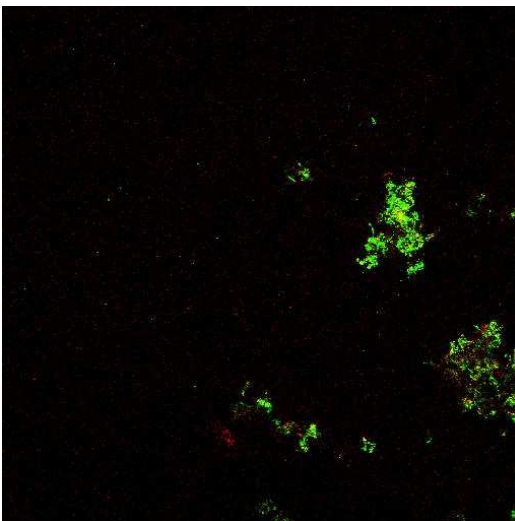


Figure II-13 : Photo issue du microscope confocal d'un biofilm sur la surface du biofilm. Le vert correspond au marquage par le Syto9 ; le rouge au marquage par l'IP

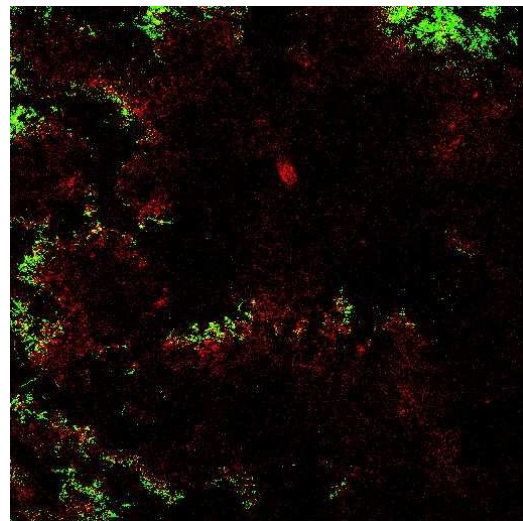


Figure II-14 : Photo issue du microscope confocal d'un biofilm sur un plan à 1,1 mm de profondeur à partir du haut du biofilm. Le vert correspond au marquage par le Syto9 ; le rouge au marquage par l'IP

**Chapitre III : Transfert de matière dans un RBAM :  
Etude expérimentale**

---

## RESUME

Dans un premier temps, l'étude du transfert de matière sans biofilm entre les phases gazeuse et liquide montre que la résistance au transfert se situe essentiellement dans la phase liquide. Une corrélation du coefficient de transfert de matière dans la phase liquide en fonction du Nombre de Reynolds et du Nombre de Schmidt a été établie.

Ensuite, un biofilm a été développé sur les membranes du côté de la phase liquide sous plusieurs conditions hydrodynamiques. L'étude montre que la résistance au transfert se situe dès lors dans le biofilm et la phase liquide ne représente plus que 3% de la résistance totale. Cependant, la contribution de la résistance de la membrane augmente en présence du biofilm à cause du dépôt cellulaire, et participe jusqu'à 8 % de la résistance totale.

L'augmentation des contraintes de cisaillement et du Nombre de Reynolds, pour passer d'un régime laminaire à transitoire, ont eu pour conséquence une augmentation de la concentration en matière sèche du biofilm et de la diffusivité relative d'un gaz traceur (le néon) jusqu'à une valeur supérieure à 1. Ces observations conjointes témoignent de la présence de convection dans le biofilm. La consommation de la DCO par le biofilm semble augmenter avec le durcissement des conditions hydrodynamiques. Cette variation de la consommation semble être liée à une diminution du rapport de l'épaisseur du biofilm par la diffusivité relative, permettant alors un meilleur transfert de matière. Cependant, ces résultats ne montrent que des tendances car peu de campagnes expérimentales ont pu être menées dans le cadre de ce travail.

## SOMMAIRE

1	INTRODUCTION ET OBJECTIFS DU CHAPITRE .....	88
2	CARACTERISATION DU TRANSFERT DE MATIERE SANS BIOFILM .....	88
2.1	<i>Effets de l'écoulement de la phase gazeuse sur le coefficient de transfert global</i> .....	89
2.2	<i>Effets de l'écoulement de la phase liquide sur le coefficient de transfert global</i> .....	89
2.3	<i>Modèle des résistances en série</i> .....	90
2.4	<i>Détermination de l'épaisseur de la couche limite côté liquide</i> .....	91
3	CARACTERISATION DU TRANSFERT DE MATIERE DU SYSTEME {LIQUIDE + BIOFILM + MEMBRANE + GAZ} A L'AIDE D'UN GAZ TRACEUR .....	92
3.1	<i>Coefficient de transfert global à travers le biofilm sans réaction</i> .....	92
3.1.1	Exemple de résultats : coefficient de transfert du néon à travers le biofilm.....	92
3.1.2	Recherche du phénomène limitant.....	94
3.2	<i>Effet des conditions hydrodynamiques sur la concentration en matière sèche et la diffusivité relative dans le biofilm</i> .....	96
3.2.1	Résultats .....	96
3.2.2	Discussion.....	99
3.3	<i>Diffusivité relative, vitesse du liquide dans le biofilm et viscosité du biofilm</i> .....	100
3.3.1	Ecoulement du biofilm .....	101
3.3.2	Données de la bibliographie concernant la viscosité d'un biofilm.....	102
3.3.3	Vitesse d'écoulement dans le biofilm supposé poreux et immobile.....	103
3.3.4	Comparaison avec les simulations d'Aspa et al. (2011) .....	106
3.3.5	Conclusion.....	110
4	EFFETS DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES SUR LES PERFORMANCES D'UN REACTEUR A BIOFILM AERE SUR MEMBRANE .....	110
4.1	<i>Vitesse de consommation du carbone organique</i> .....	110
4.1.1	Résultats : consommation du carbone organique en fonction des conditions hydrodynamiques .....	110
4.1.2	Discussion.....	112
4.1.3	Résultats : consommation du carbone organique en fonction des propriétés du biofilm .....	114
4.2	<i>Etude du flux d'oxygène</i> .....	115
4.3	<i>Vitesse de consommation du carbone organique et de l'oxygène par le biofilm</i> .....	116
5	CONCLUSION .....	119

## **1 INTRODUCTION ET OBJECTIFS DU CHAPITRE**

Les conditions hydrodynamiques et le transfert de substrats dans un milieu biologique influencent la croissance des bactéries développées sous forme d'agrégats ou de biofilm, la production d'EPS et la structuration du milieu biologique. En retour, l'activité bactérienne modifie le transfert de matière. La composition du biofilm est étroitement liée aux propriétés du bioréacteur dans lesquelles se développe le biofilm (concentration en substrats, Nombre de Reynolds, contrainte de cisaillement, ...). Ainsi dans un réacteur biologique le transfert de substrats, la croissance du biofilm et les caractéristiques du bioréacteur sont étroitement liés et influencent les vitesses de réactions du biofilm (Fan et al., 1990 ; Wäsche et al., 2002 ; Ohl et al., 2004).

Dans les réacteurs à biofilm aéré sur membrane, les substrats (oxygène, nutriments) sont en contre-diffusion à l'intérieur du biofilm. Cette caractéristique impose leurs disponibilités à la biomasse et donc leur consommation. Le contrôle de ce transfert de matière à partir de chaque interface (liquide ou membrane) est donc essentiel pour maîtriser les performances du réacteur.

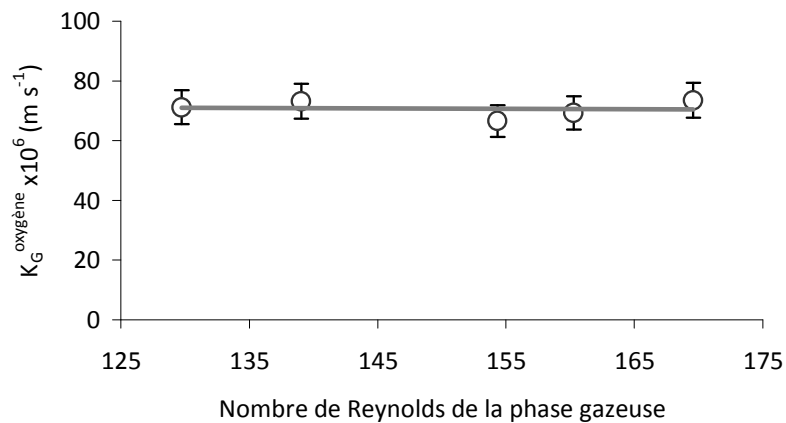
Dans ce travail, nous avons cherché à décomposer les résistances au transfert en fonction des conditions opératoires, en vue de dégager des règles de conception d'un RBAM. La difficulté à maîtriser les expériences et leur durée ne nous a pas toujours permis d'obtenir suffisamment de données pour dégager des modèles précis, mais nous avons pu néanmoins faire ressortir des tendances, qui permettent de compléter utilement les données déjà publiées sur ces systèmes. Nous avons tout d'abord étudié le transfert de l'oxygène sans biofilm dans le but de caractériser le transfert de matière dans le pilote expérimental. Ensuite, un biofilm a été développé et le transfert de matière a pu être étudié en fonction des conditions hydrodynamiques. Le néon a été utilisé comme gaz traceur, parce que non réactif, à travers le système {liquide + biofilm + membrane + gaz}. Le transfert de matière est donc caractérisé indépendamment des réactions biologiques. Les résultats obtenus sont ensuite utilisés afin de déterminer la part jouée par le transfert de matière sur la consommation de la DCO.

## **2 CARACTERISATION DU TRANSFERT DE MATIERE SANS BIOFILM**

Le coefficient de transfert de matière global est déterminé expérimentalement pour différentes valeurs du Nombre de Reynolds de la phase considérée. Nous commencerons par déterminer la mesure du coefficient de transfert global pour différents Nombres de Reynolds de la phase gazeuse puis de la phase liquide. Ensuite, l'analyse des mesures est réalisée à l'aide du modèle de résistances en série.

### 2.1 Effets de l'écoulement de la phase gazeuse sur le coefficient de transfert global

Le coefficient de transfert de matière global  $K_G$  de l'oxygène est déterminé expérimentalement pour une gamme de débit de gaz, tout en gardant le débit de liquide constant. Celui-ci a été fixé arbitrairement vers le milieu de la gamme à  $294 \text{ L h}^{-1}$  pour une épaisseur de cellule de 8 mm soit un Nombre de Reynolds du côté liquide de 1890. Le flux de gaz à travers la surface totale de la membrane est ramené à un flux à travers les pores de la grille, support de la membrane, soit 22% de la surface totale de membrane. Les résultats sont présentés Figure III-1.

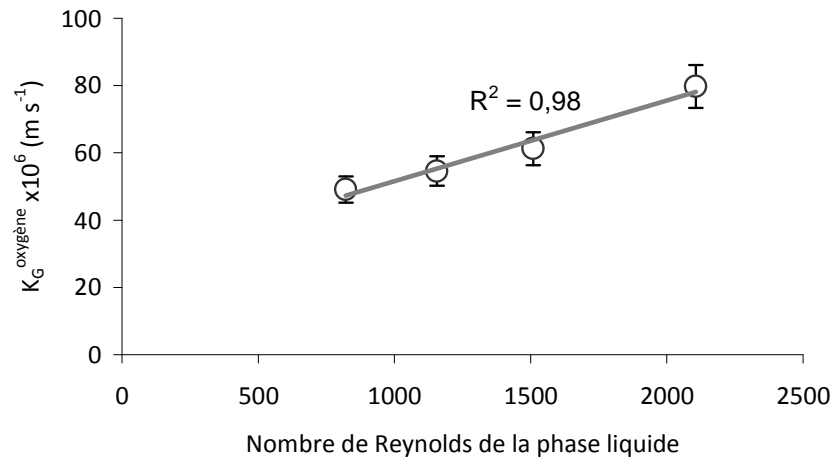


**Figure III-1 : Effet du Nombre de Reynolds de la phase gazeuse sur le coefficient de transfert de matière global de l'oxygène pour un Nombre de Reynolds coté liquide de 1890**

La Figure III-1 montre que le coefficient de transfert global est constant lorsque le Nombre de Reynolds coté gaz varie. La résistance au transfert de la phase gazeuse est donc négligeable par rapport aux autres résistances au transfert dues à la phase liquide ou à la membrane.

### 2.2 Effets de l'écoulement de la phase liquide sur le coefficient de transfert global

De la même manière que pour le paragraphe précédent, le coefficient de transfert global  $K_G$  est déterminé pour différents débits de liquide (différents Nombres de Reynolds). Les conditions d'écoulement de la phase gazeuse sont gardées constantes, et le débit est fixé à  $1,5 \text{ mL min}^{-1}$ , soit un Nombre de Reynolds de 130. L'épaisseur de la veine liquide est de 8 mm. Comme pour l'étude des effets de l'écoulement de la phase gazeuse, le flux de matière à travers la membrane est rapporté à la porosité de la plaque support de la membrane : 22%. Les résultats sont présentés Figure III-2.



**Figure III-2 : Effet du Nombre de Reynolds de la phase liquide sur le coefficient de transfert de matière global de l'oxygène pour un Nombre de Reynolds coté gaz de 130**

Le coefficient de transfert de matière global augmente avec le Nombre de Reynolds. Ceci témoigne de l'effet de la phase liquide sur le transfert de matière et indique que la couche limite diffusionnelle côté liquide diminue avec l'augmentation de la vitesse du liquide.

### 2.3 Modèle des résistances en série

Le coefficient de transfert de matière de la phase liquide est généralement représenté par une relation entre le Nombre de Sherwood avec les Nombres de Reynolds et de Schmidt. Pour rappel (Chapitre I), la corrélation est de la forme suivante :

$$Sh = f \cdot Re^\alpha \cdot Sc^\beta$$

Équation III-1

En utilisant la méthode de résolution numérique présentée au Chapitre I – paragraphe 5.2.3, les résultats sont les suivants :

- Tortuosité de la membrane :  $\tau_R = 3$
- Coefficient de transfert de la membrane :  $k_{\text{membrane}} = 5 \times 10^{-2} \text{ m s}^{-1}$
- Corrélation :  $Sh = 0,024 \cdot Re^{0,55} \cdot Sc^{0,33}$

Les valeurs de  $f$  : 0,024 et  $\alpha$  : 0,5 dépendent de la géométrie du système étudié.

La valeur de  $f$  proposée pour notre Nombre de Sherwood est une valeur pour la surface totale de la membrane, hors dans ce travail, la membrane repose sur une grille de 22% de vide qui aura tendance à diminuer le transfert total par rapport à une membrane ne reposant pas sur un support. La valeur de  $f$  est en fait de 0,11.



En l'absence de biofilm, la résistance au transfert de matière est principalement située dans le liquide. Aucune résistance significative au transfert de matière n'a été observée côté gaz dans nos conditions expérimentales. La résistance au sein de la membrane est faible avec un coefficient de transfert de l'ordre de  $10^{-2} \text{ m s}^{-1}$  ce qui représente moins de 1% de la résistance globale. La faible valeur du coefficient de transfert au travers de la membrane indique que les pores sont probablement remplis d'air.

Dans des conditions expérimentales proches de celles présentées ici : membrane plane identique pour un contacteur gaz – liquide, Shanahan et Semmens (2006) déterminent un coefficient de transfert global de l'oxygène de  $28 \times 10^{-6}$  et  $42 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1}$  pour des Nombres de Reynolds de 1000 et 1500 respectivement. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur mais légèrement supérieures à celles calculées dans cette étude et présentées Figure III-2. Il est à noter que les méthodes de mesure ne sont pas les mêmes ainsi que les géométries des contacteurs. Ces différences peuvent engendrer la variation des résultats.

#### 2.4 Détermination de l'épaisseur de la couche limite côté liquide

Nous avons évalué l'épaisseur de la couche limite de transfert à partir des valeurs du coefficient de transfert de matière rapporté à la porosité de la plaque support. Les résultats sont présentés Figure III-3.

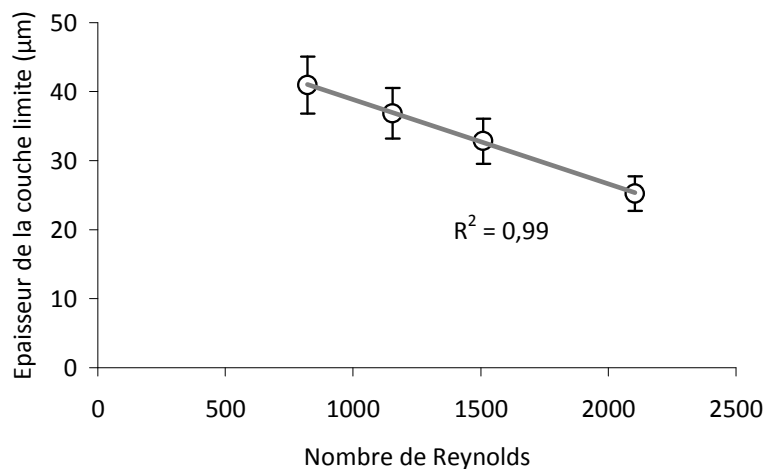


Figure III-3 : Épaisseur de la couche limite côté liquide en fonction du Nombre de Reynolds

La valeur de l'épaisseur de la couche limite diminue avec l'augmentation du Nombre de Reynolds. Les résultats présentés sur la Figure III-3 seront utilisés dans le chapitre IV.

### 3 CARACTERISATION DU TRANSFERT DE MATIERE DU SYSTEME {LIQUIDE + BIOFILM + MEMBRANE + GAZ} A L'AIDE D'UN GAZ TRACEUR

Le transfert d'un composé non réactif à travers un biofilm est influencé par la structure physique (densité, porosité, épaisseur, rugosité, ...) du biofilm et les propriétés physico-chimique de la molécule. Cette structure physique est entre autre fonction des conditions opératoires du réacteur dans lesquelles il se développe. Pour étudier l'influence de cette structure, nous avons suivi le transfert du néon utilisé comme molécule traceur puisqu'il traverse le biofilm sans être consommé par la biomasse. Différentes conditions hydrodynamiques ont été testées sans modifier les autres paramètres opératoires. Le néon permet de rendre compte des seules résistances au transfert à travers le système {liquide + biofilm + membrane + gaz}. D'après la bibliographie (Fan et al. 1990 ; Melo, 2005), la quantité de biomasse dans le biofilm ainsi que la vitesse du liquide ont un rôle important sur le transfert de matière à travers le biofilm. Nous avons donc étudié, la concentration en matière sèche et la diffusivité relative, en fonction de l'hydrodynamique.

#### 3.1 Coefficient de transfert global à travers le biofilm sans réaction

##### 3.1.1 Exemple de résultats : coefficient de transfert du néon à travers le biofilm

Le flux de néon transféré de la phase liquide à la phase gazeuse est déterminé par la mesure des concentrations en néon dans chaque phase. Dans le liquide, la concentration a été mesurée par la méthode des ampoules (chapitre II et annexe C) et par chromatographie en phase gazeuse (CPG). Dans la phase gazeuse, la concentration est mesurée à l'entrée et à la sortie directement par CPG. Les débits de liquide et de gaz sont réglés automatiquement aux valeurs de consigne.

Le coefficient de transfert global du néon peut ensuite être calculé (rappel chapitre II) :

$$K_G^{Neon} = \frac{\Phi_{transféré}^{Neon}}{\Delta C_{ln} \cdot S_{mb}} \quad \text{Où } \Delta C_{ln} = \frac{\Delta C_{entrée} - \Delta C_{sortie}}{\ln \frac{\Delta C_{entrée}}{\Delta C_{sortie}}} \quad \text{et } \Delta C = H^{Neon} \cdot y^{Neon} \cdot P - C_{liquide}$$

#### Équation III-2

Où  $K_G^{Neon}$  est le coefficient de transfert global du néon ( $m \cdot s^{-1}$ ),

$\Phi_{transféré}^{Neon}$  : flux de néon transféré de la phase liquide vers la phase gazeuse ( $mol \cdot s^{-1}$ ),

$\Delta C_{ln}$  : moyenne logarithmique de la différence de concentration en néon entre la phase gazeuse et la phase liquide entre l'entrée et la sortie du module ( $mol \cdot m^{-3}$ ),

$S_{mb}$  : surface de la membrane sur laquelle le biofilm s'est développé ( $m^2$ ),

$H^{Neon}$  : constante de Henry du néon ( $mol \cdot m^{-3} \cdot Pa^{-1}$ ),

$y^{Neon}$  : fraction molaire du néon dans la phase gazeuse (-),

$P$  : la pression totale (Pa),

$C_{liquide}$  : la concentration en néon dans la phase liquide ( $mol \cdot m^{-3}$ ).

Les photos du tableau (Tableau III-1) correspondent aux états du biofilm pour lesquels les coefficients  $K_G$  de la Figure III-4 ont été mesurés.

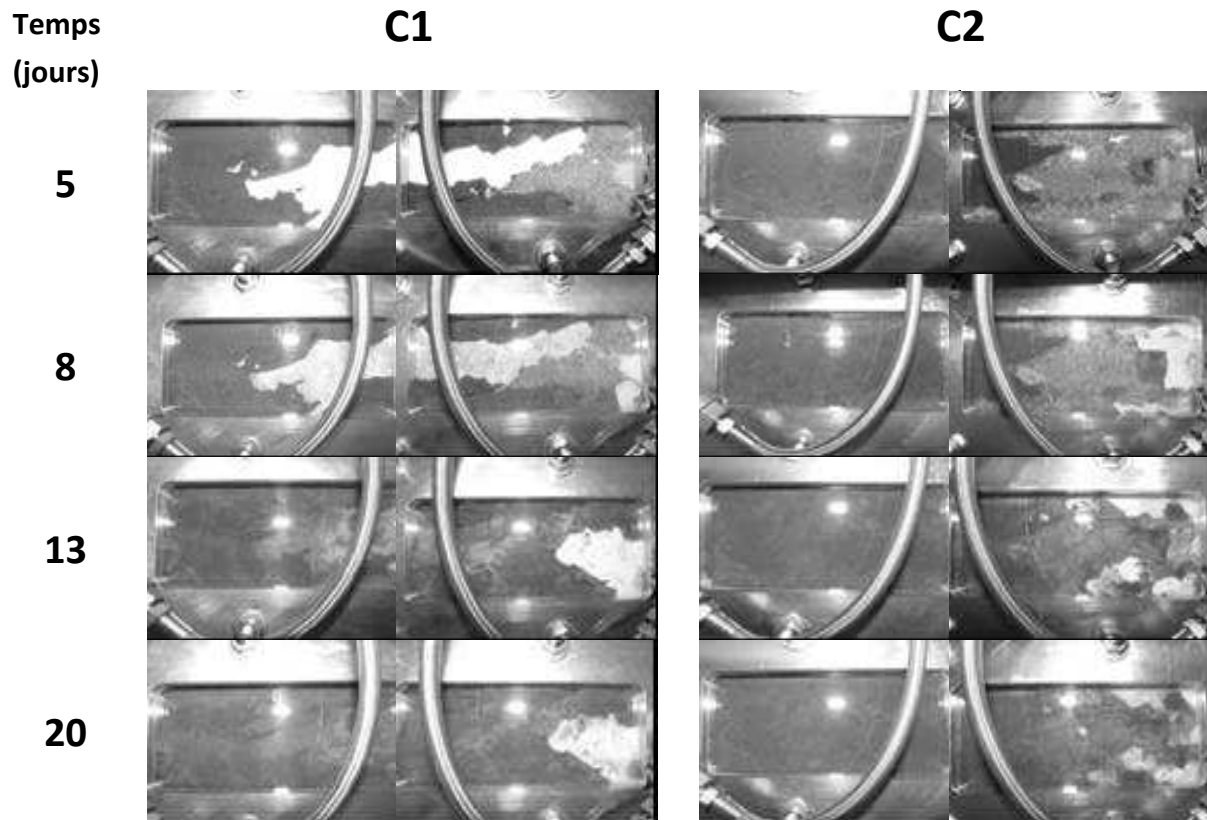


Tableau III-1 : Photos du développement et de l'arrachage du biofilm au cours d'une expérience de 23 jours pour les cellules C1 et C2

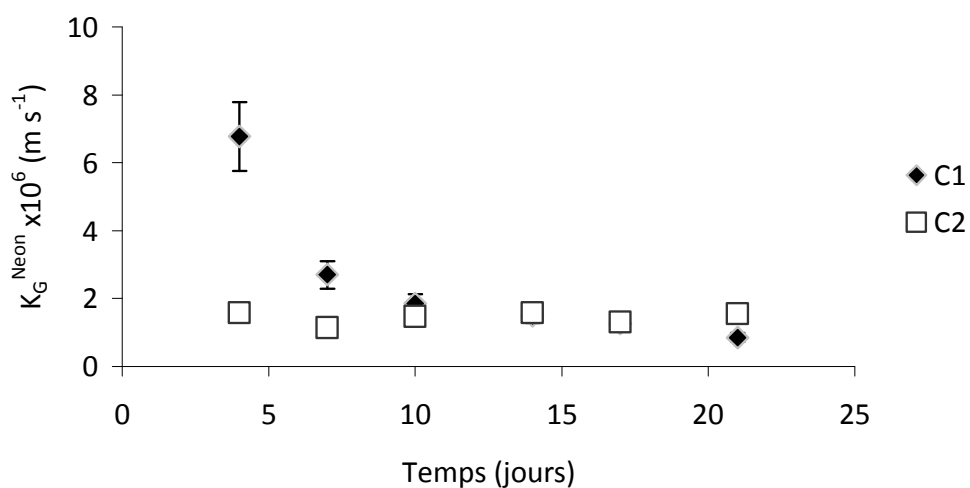


Figure III-4 : Evolution des coefficients de transfert globaux du néon en fonction du temps au cours d'une expérience de 23 jours pour les cellules C1 et C2

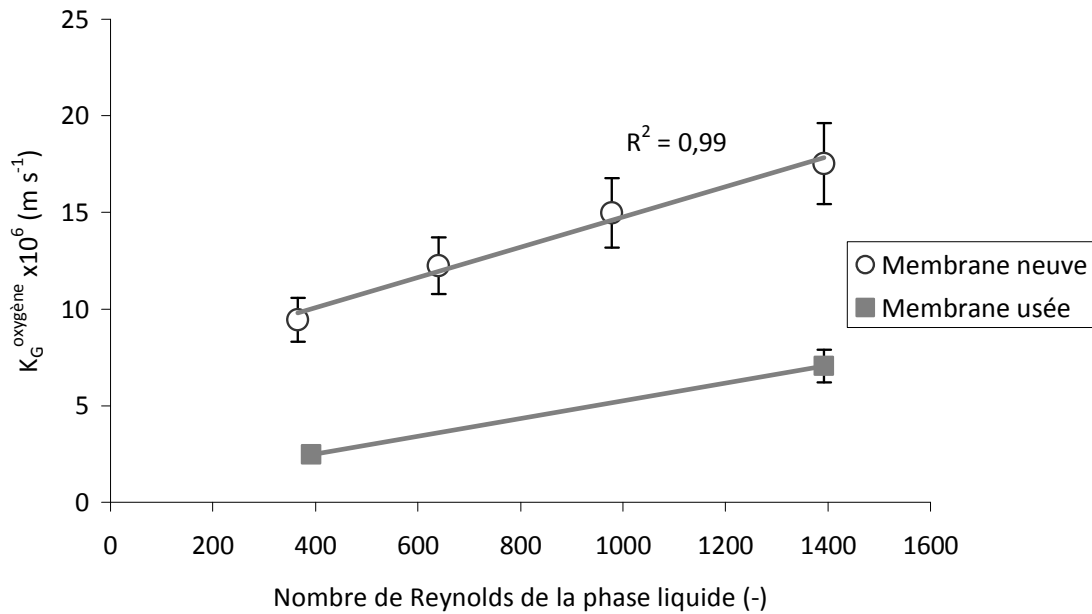
Le coefficient de transfert du néon de la cellule 1 (C1) diminue rapidement avec la repousse observée du biofilm tandis que celui de la cellule 2 (C2) reste constant. Quatre jours après la reformation du biofilm, celui-ci semble rester stable jusqu'au 23<sup>ème</sup> jour. Les deux atteignent une valeur moyenne et stable de  $1,3 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1}$  dans le cas présenté.

### 3.1.2 Recherche du phénomène limitant

La recherche de la phase limitante au transfert de matière passe par la détermination de la résistance de chaque phase. Les résistances des phases gazeuse et liquide ont été déterminées en absence de biofilm. Nous considérons le biofilm à une échelle macroscopique et faisons alors l'approximation que ces valeurs sans biofilm sont identiques en présence du biofilm. Pour vérifier cette hypothèse, nous nous intéressons à la résistance de la membrane une fois le biofilm développé. Ainsi, en fin d'expérience, le biofilm a été raclé de la surface de la membrane. Reste alors sur celle-ci la matière adsorbée en surface et dans les pores. Le transfert de gaz à travers cette membrane est alors mesuré à l'aide du deuxième dispositif expérimental décrit au chapitre II. Les résultats pour une membrane neuve et une membrane raclée sont présentés sur la Figure III-5.

Pour la membrane usagée, seules deux expériences ont été menées. Mais, la Figure III-5 permet de voir que les coefficients de transfert globaux diminuent d'un facteur 3 environ entre une membrane neuve et une membrane usée mais la résistance dans la couche côté liquide demeure importante puisque le transfert demeure sensible au changement d'hydrodynamique. Ces résultats sont en accord avec ceux de Couette et al. (2010) qui constatent une diminution du transfert de matière après développement d'un biofilm dans un contacteur gaz - liquide. Ils observèrent que cette diminution est fonction du matériau membranaire, de la taille des pores et des conditions opératoires dans lesquelles le biofilm s'est développé.

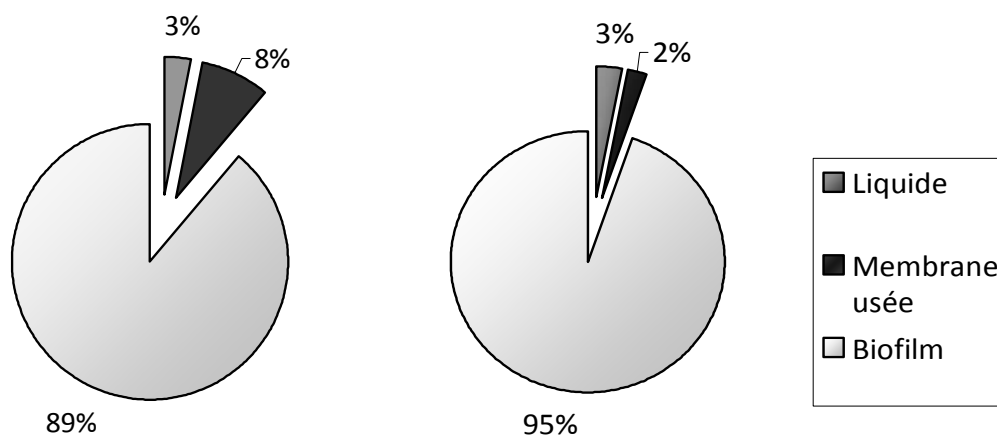
Les coefficients de transfert de la phase liquide pour une membrane neuve de la Figure III-5 ne sont pas identiques à ceux présentés Figure III-2 pour des Nombres de Reynolds identiques. Cette différence est attribuée à des établissements du régime hydrodynamique différents et aux géométries des cellules entre les deux pilotes expérimentaux.



**Figure III-5 : Coefficients de transfert globaux de l'oxygène à travers une membrane neuve et une membrane usée dans le pilote 2 pour différents Nombres de Reynolds de la phase liquide. Les conditions hydrodynamiques de la phase gazeuse sont gardées constantes**

La contribution des phases : membrane, biofilm et liquide pour le transfert du néon a été déterminée en appliquant la loi des résistances en série et la valeur du coefficient de transfert dans la membrane neuve déterminée précédemment. Pour rappel, la résistance de la phase gazeuse peut être considérée comme négligeable par rapport aux autres.

Dans le cas d'une membrane sans biofilm adsorbé, les résultats montrent que, pour un transfert sans biofilm, la résistance totale au transfert se situe à presque 100% dans la phase liquide et 0,0004% dans la membrane. La résistance de la membrane est donc négligeable. Dans le cas d'un système {membrane + biofilm + phase liquide}, les résultats de la Figure III-5 sont utilisés pour déterminer la résistance de chaque phase et celles-ci sont présentées Figure III-6. Cette figure contient deux graphes, ils représentent chacun un point de la Figure III-5 pour une membrane usée.



**Figure III-6 : Contribution des résistances des différentes phases : liquide, biofilm et membrane pour le transfert du néon dans le cas du biofilm développé dans les conditions 4 présentées chapitre II. A gauche, la résistance de la membrane usée a été déterminée avec la résistance globale pour un faible Nombre de Reynolds. A droite : la résistance de la membrane usée a été déterminée avec la résistance globale pour un Nombre de Reynolds plus élevé**

Les résultats de la Figure III-6 montrent qu'avec le développement du biofilm sur la membrane, celui-ci dépose de la matière ce qui augmente la résistance de la membrane qui reste néanmoins négligeable par rapport à la résistance totale.

### 3.2 Effet des conditions hydrodynamiques sur la concentration en matière sèche et la diffusivité relative dans le biofilm

#### 3.2.1 Résultats

##### a) Concentration en matière sèche et conditions hydrodynamiques

La concentration en matière sèche dans biofilm a été déterminée pour chaque condition hydrodynamique selon le protocole décrit au paragraphe 3.3 du chapitre II. Elle est présentée Figure III-7 en fonction du Nombre de Reynolds et Figure III-8 en fonction de la contrainte de cisaillement.

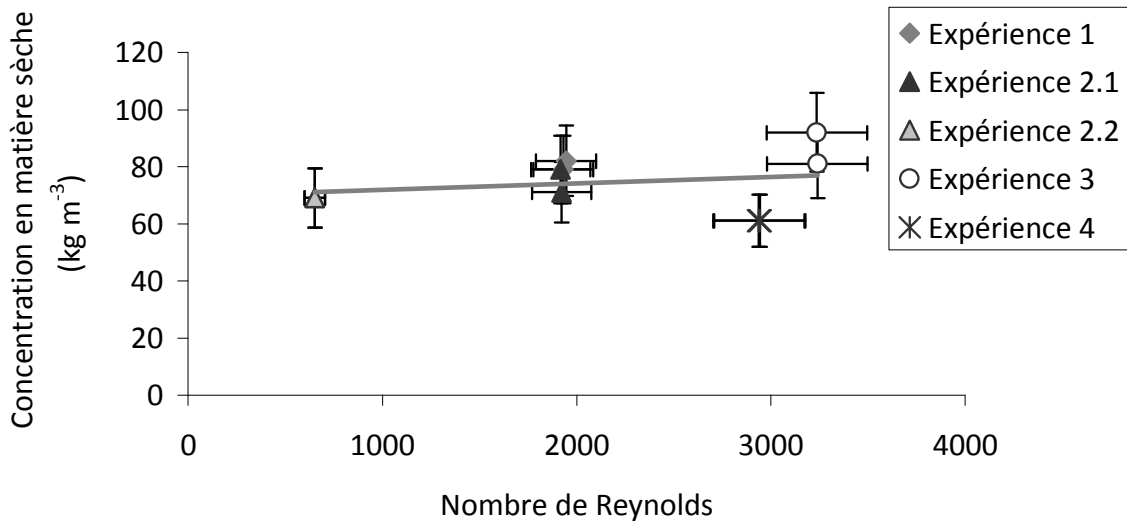


Figure III-7 : Concentration en matière sèche du biofilm pour différents Nombre de Reynolds

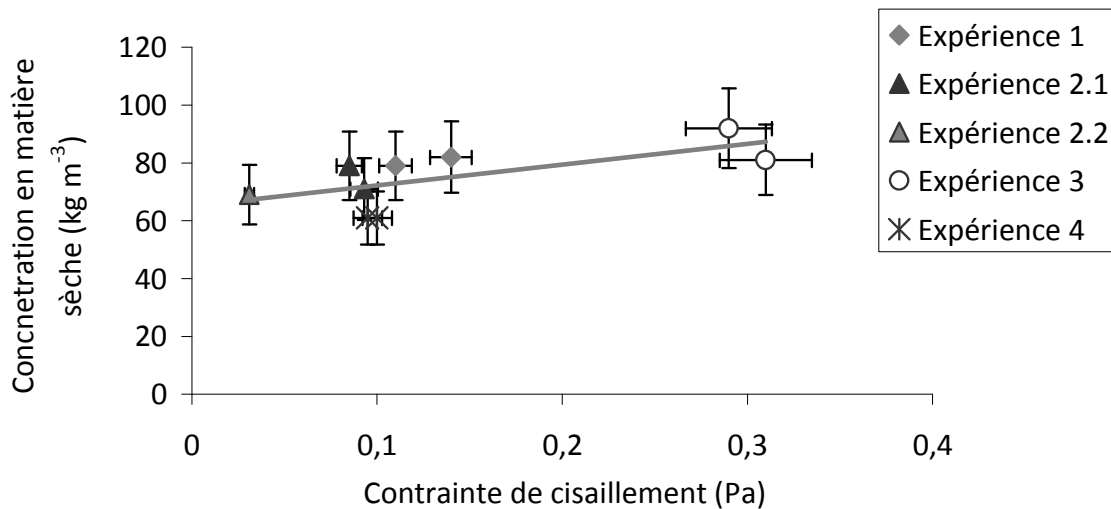


Figure III-8 : Concentration en matière sèche du biofilm pour différentes contraintes de cisaillement

Les résultats présentés Figure III-7 et Figure III-8 indiquent que la concentration en matière sèche du biofilm varie peu avec les conditions hydrodynamiques étudiées. On observe une légère augmentation de la concentration en matière sèche avec le Nombre de Reynolds et la contrainte de cisaillement.

Les conditions hydrodynamiques des expériences 1 et de la condition 1 de l'expérience 2 (rappel Tableau II-3) sont identiques. Les épaisseurs de biofilm sont légèrement différentes, ce qui explique une contrainte de cisaillement calculée légèrement supérieure dans l'expérience 1.

Les conditions hydrodynamique de l'expérience 4 (Nombre de Reynolds : 2885 et contrainte de cisaillement :  $6,1 \times 10^{-2}$  Pa) a un Nombre de Reynolds proche de l'expérience 3 (Nombre de Reynolds : 3190) et un cisaillement proche des expériences 1 et 2.1 (contrainte de

cisaillement :  $6,1 \times 10^{-2}$  Pa). L'expérience 4 semble montrer que la concentration en matière sèche dépend plus du Nombre de Reynolds que de la contrainte de cisaillement.

b) Diffusivité relative et conditions hydrodynamiques

Le transfert du néon est présenté sous forme d'un coefficient de diffusivité relative (rapport de la diffusivité dans le biofilm sur la diffusivité dans l'eau) en fonction du Nombre de Reynolds et de la contrainte de cisaillement sur les Figure III-9 et Figure III-10 respectivement.

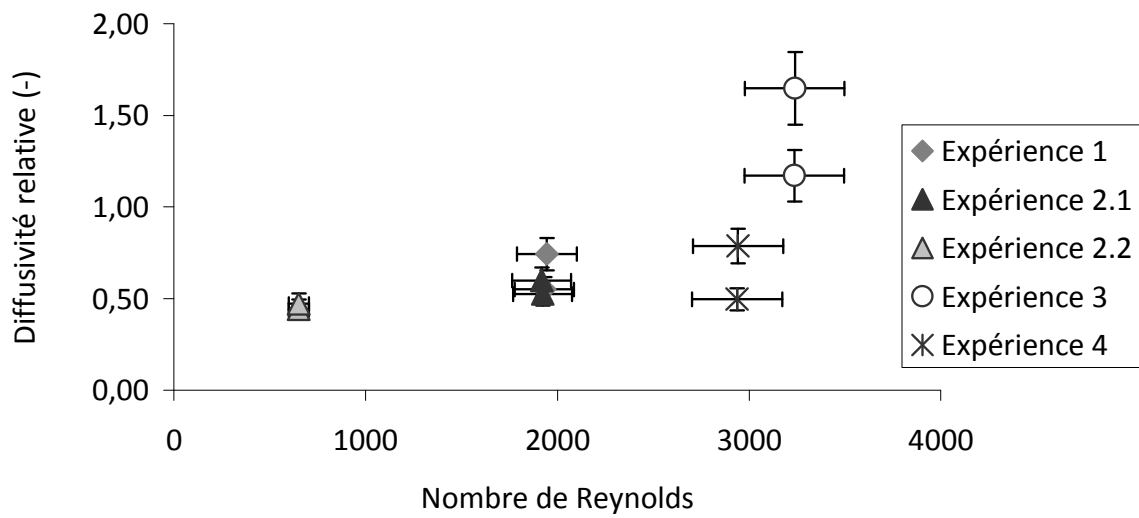


Figure III-9 : Diffusivité relative pour différents du Nombre de Reynolds

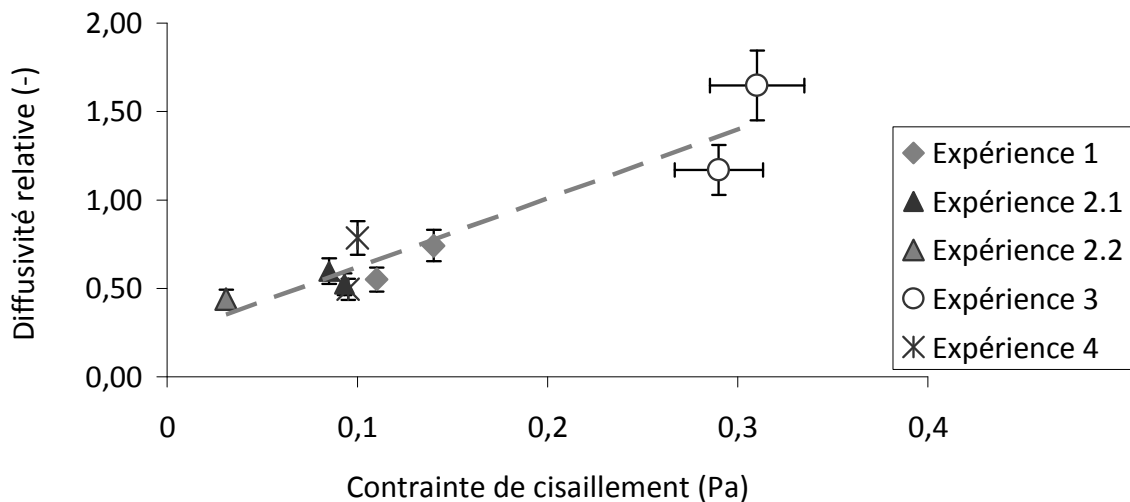


Figure III-10 : Diffusivité relative pour différentes contraintes de cisaillement

La diffusivité relative augmente avec le Nombre de Reynolds et la contrainte de cisaillement. Les résultats de l'expérience 4 (Nombre de Reynolds proche de l'expérience 3 et contrainte de cisaillement proche des expériences 1 et 2.1) indiquent une diffusivité relative proche de celles des expériences 1 et 2.1 mais éloignée de celle des conditions 3. Cette première



approche suggère que la diffusivité relative est plutôt corrélée à la contrainte de cisaillement qu'au Nombre de Reynolds.

Une deuxième lecture peut se faire à partir de la Figure III-9 qui semble indiquer qu'en dessous de 3000, la diffusivité relative est peu dépendante du Nombre de Reynolds et au-delà, elle augmente fortement.

### 3.2.2 Discussion

#### a) Concentration en matière sèche du biofilm et conditions hydrodynamiques

Dans cette étude, la charge carbonée et l'apport en oxygène étant constants, seuls les effets des conditions hydrodynamiques sont supposés affecter la concentration en matière sèche du biofilm. L'hydrodynamique intervient directement par les forces appliquées au biofilm (contrainte de cisaillement) ou indirectement par la modification du transfert de matière.

Les résultats au travers des Figure III-7 et Figure III-8 montrent une concentration en matière sèche du biofilm qui augmente, allant de 60 à 92 kg m<sup>-3</sup>, lorsque les conditions hydrodynamiques deviennent plus sévères. Pour des conditions expérimentales relativement proches des nôtres (charge carbonée et source de carbone), Casey et al. (2000a) observent des concentrations en matière sèche de biofilm du même ordre de grandeur, ce qui nous conduit à penser que les résultats présentés sont conformes aux observations de la bibliographie.

Plusieurs auteurs ont observé une densification du biofilm avec l'augmentation de la contrainte de cisaillement appliquée sur celui-ci (Melo et Viera (1999) ; Kwok et al. (1998)). Ohashi et al. (1999) montrent que la résistance à la traction du biofilm est corrélée à sa concentration en matière sèche, suggérant ainsi que la concentration en matière sèche est un moyen de prédiction de la résistance mécanique du biofilm. Ceci suggère que la force appliquée par le liquide sur le biofilm induirait une augmentation de la sécrétion des EPS et/ou des bactéries. Ainsi, le biofilm serait attaché plus fermement et la concentration en matière sèche serait plus élevée.

#### b) Diffusivité relative, concentration en matière sèche du biofilm et conditions hydrodynamiques

Fan et al. (1990) relie la diffusivité relative avec la concentration en matière sèche du biofilm uniquement. Ils suggèrent ainsi que la matière sèche fait obstacle au transfert et que le mécanisme de transport dominant de la matière dans le biofilm est la diffusion.

Néanmoins, les Figure III-7, Figure III-8, Figure III-9 et Figure III-10 montrent que la concentration en matière sèche et le coefficient de diffusivité relative du biofilm augmentent avec le Nombre de Reynolds et la contrainte de cisaillement. En présence de diffusion uniquement, le transfert observé devrait diminuer avec l'augmentation de la concentration en matière sèche du fait de la diminution de la porosité du milieu. Il semble donc que la matière sèche du biofilm n'est pas un obstacle au transfert. De plus, les

coefficients de diffusivité relative présentés Figure III-9 et Figure III-10 montrent des valeurs supérieures à 1 pour des Nombres de Reynolds de 3200 et des contraintes de cisaillement de 0,18 Pa. Le fait que le transfert soit plus intense que la diffusion en milieu dilué indique la présence d'un mécanisme de transport qui se superpose à la diffusion.

Ces observations suggèrent la présence de convection au sein du biofilm, quel que soient les Nombres de Reynolds étudiés.

Celle-ci peut avoir deux origines :

1. La rugosité de l'interface biofilm-liquide : la rugosité du biofilm peut créer des turbulences à la surface de celui-ci comme le signalent Horn et Hampel (1995) et Rittmann et al. (1999). Cependant, le processus d'amélioration du transfert dû à la rugosité reste controversé dans la bibliographie puisque Picioreanu et al. (2000) montrent, par modélisation, que la rugosité n'est pas toujours favorable au transfert de matière dans un biofilm.

Dans notre cas, nous avons observé à la surface des biofilms développés des agrégats qui oscillent ce qui pourrait être susceptibles de diminuer la résistance au transfert dans la phase liquide.

2. Les chercheurs du « Center for biofilm engineering » de l'Université de l'état du Montana aux Etats-Unis ont montré expérimentalement par une mesure directe la présence de convection dans les canaux du biofilm. Ils montrent que la vitesse du liquide dans ces canaux dépend du débit de liquide (De Beer et al., 1994 ; Stoodley et al., 1994). Erbel et al. (2000) font une étude de modélisation en résolvant les équations de Navier-Stokes en trois dimensions dans des structures de biofilm en forme de doigts. Ils montrent dans les conditions de leur étude, la présence de convection dans les biofilms mais qu'elle ne contribue pas significativement à une amélioration du transfert du liquide vers le biofilm.

Nos mesures suggèrent la contribution de la convection dans le transfert de matière à travers le biofilm. Un tel mécanisme a déjà été rapporté sur des biofilms conventionnels, mais n'a pas fait l'objet d'études sur des biofilms aérés sur membranes. Dans le paragraphe suivant, nous essayons d'évaluer l'amplitude du phénomène de convection dans le biofilm.

### **3.3 Diffusivité relative, vitesse du liquide dans le biofilm et viscosité du biofilm**

Dans l'hypothèse de la présence de convection à l'intérieur des biofilms, nous avons cherché à estimer les vitesses de liquide dans les pores du biofilm dans nos conditions expérimentales.

### 3.3.1 Ecoulement du biofilm

Un biofilm est composé de bactéries immobilisées dans un mélange de composés polymères généralement appelé Exo Polysaccharide (EPS). Etant composé de 97% d'eau, le biofilm contient environ 3% de matière sèche (bactéries, EPS, protéines, débris cellulaire, ...). Les EPS forment un maillage lâche dans la phase aqueuse, donnant au biofilm les caractéristiques d'un gel (Mayer et al., 1999 et 2001).

A l'échelle macroscopique, l'écoulement du système {liquide nutritif-biofilm} peut être considéré comme celui d'une couche de liquide visqueux (appelé  $\mu^{biofilm}$  dans l'Équation III-3) entraînée par l'écoulement de l'effluent à traiter (écoulement tangentiel) (Figure III-11). Le biofilm étant très hétérogène, le modèle donne des ordres de grandeur de vitesse. Ce type de situation est décrit par Bird et al. (1960) et permet de déterminer le profil de vitesse du liquide en fonction de la distance à la paroi.

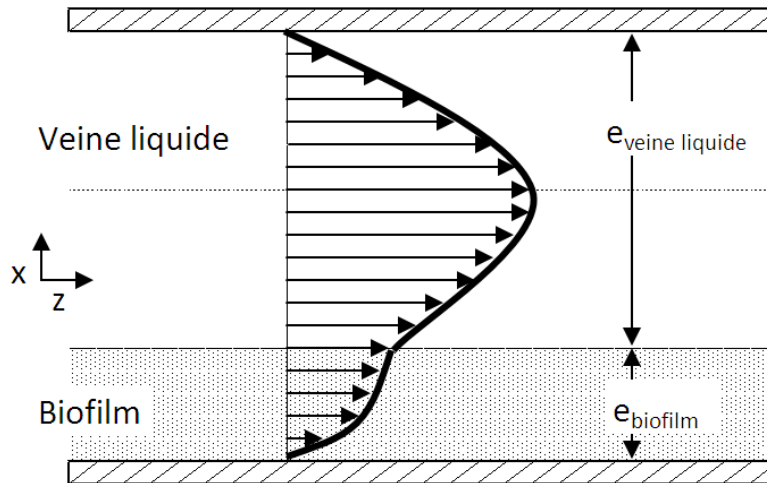


Figure III-11 : Profil de vitesse de deux fluides non miscibles, circulants entre deux plans parallèles, sous l'influence d'un gradient de pression (Birds et al., 1960)

Les profils de vitesse dans les deux fluides en présence sont exprimés en fonction de la position selon l'axe x :

$$v_z^{liquide} = \frac{\Delta P}{2.L} \left( \frac{e_{veine.liquide}^2}{\mu^{eau}} - \frac{x^2}{\mu^{eau}} \right) + \frac{\Delta P}{2.L} \cdot \left( \frac{\frac{e_{biofilm}^2}{\mu^{biofilm}} + \frac{e_{veine.liquide}^2}{\mu^{eau}}}{\frac{e_{veine.liquide}}{\mu^{eau}} - \frac{e_{biofilm}}{\mu^{biofilm}}} \right) \cdot \left( \frac{e_{veine.liquide}^2}{\mu^{eau}} - \frac{x^2}{\mu^{eau}} \right)$$

$$v_z^{biofilm} = \frac{\Delta P}{2.L} \left( \frac{e_{biofilm}^2}{\mu^{biofilm}} - \frac{x^2}{\mu^{biofilm}} \right) + \frac{\Delta P}{2.L} \cdot \left( \frac{\frac{e_{biofilm}^2}{\mu^{biofilm}} + \frac{e_{veine.liquide}^2}{\mu^{eau}}}{\frac{e_{veine.liquide}}{\mu^{eau}} - \frac{e_{biofilm}}{\mu^{biofilm}}} \right) \cdot \left( -\frac{e_{biofilm}}{\mu^{biofilm}} - \frac{x}{\mu^{biofilm}} \right)$$

Équation III-3

La perte de charge  $\Delta P$  d'un écoulement laminaire d'un fluide newtonien, pesant et incompressible entre deux plans parallèles immobiles est calculée par l'équation suivante :

$$\Delta P = \frac{12 \cdot \mu \cdot L \cdot V_{\text{veine liquide}}}{(e_{\text{veine liquide}})^2}$$

**Équation III-4**

Avec  $e_{\text{biofilm}}$  : épaisseur du biofilm (m),

$e_{\text{veine liquide}}$  : épaisseur de la veine liquide au dessus du biofilm (m),

$\Delta P$  : perte de charge (Pa),

$L$  : longueur d'écoulement des fluides (m),

$\mu^{\text{eau}}$  et  $\mu^{\text{biofilm}}$  : viscosités de l'eau et du biofilm respectivement (Pa s),

$V_{\text{veine liquide}}$  : vitesse du liquide dans la veine liquide ( $\text{m s}^{-1}$ ).

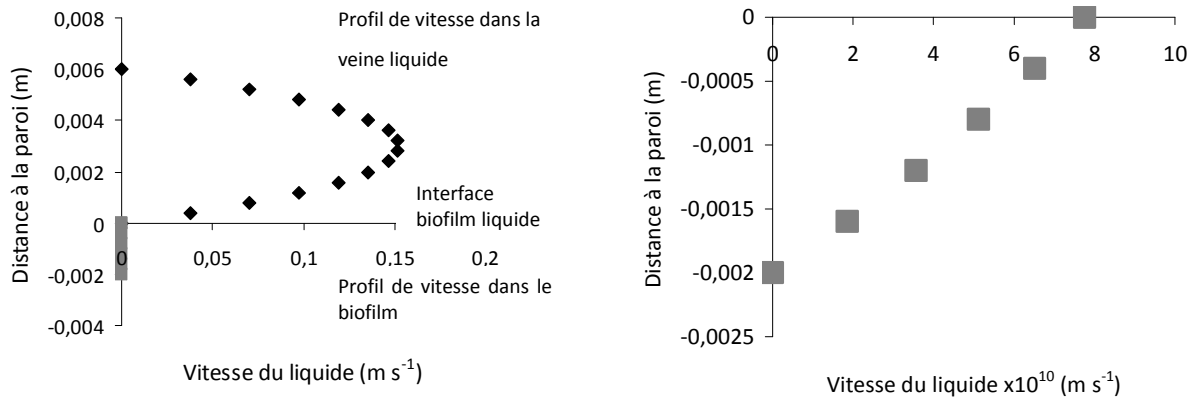
### 3.3.2 Données de la bibliographie concernant la viscosité d'un biofilm

Afin de déterminer le profil de vitesse dans un système tel que décrit au paragraphe précédent, la viscosité du biofilm doit être connue. L'analyse de la bibliographie est présentée ci-dessous. Plusieurs auteurs ont reporté des viscosités de biofilm mesurées en prélevant des échantillons à la spatule et en les déposants sur la platine d'un viscosimètre cône-plan par exemple. Ils prennent en compte l'ensemble {eau + bactéries + EPS}. Ces grandeurs sont donc dépendantes des espèces bactériennes et des conditions de croissance (Klapper et al. (2002)). Afin de fixer des ordres de grandeur, quelques valeurs sont reportées dans le Tableau III-2.

Auteurs	Viscosité (Pa s)
Lau et al. (2009)	$1,7 \times 10^4$ à $2,3 \times 10^5$
Stefano et al. (2009)	$46 \times 10^3$ à $2,1 \times 10^6$
Rupp et al. (2005)	$3,5 \times 10^3$
Klapper et al. (2002)	$1,3 \times 10^2$ à $1,8 \times 10^4$

**Tableau III-2 : Différentes viscosités de la bibliographie**

Les viscosités rapportées couvrent une large gamme d'ordres de grandeur. En prenant une viscosité moyenne de  $3,5 \times 10^5$  Pa.s le calcul du profil de vitesse montre les résultats présentés sur la Figure III-12.



**Figure III-12 : A gauche profil de vitesse dans le biofilm et la veine liquide, à droite : le profil de vitesse dans le biofilm. La viscosité du biofilm est considérée égale à  $3,5 \times 10^5 \text{ Pa s}$**

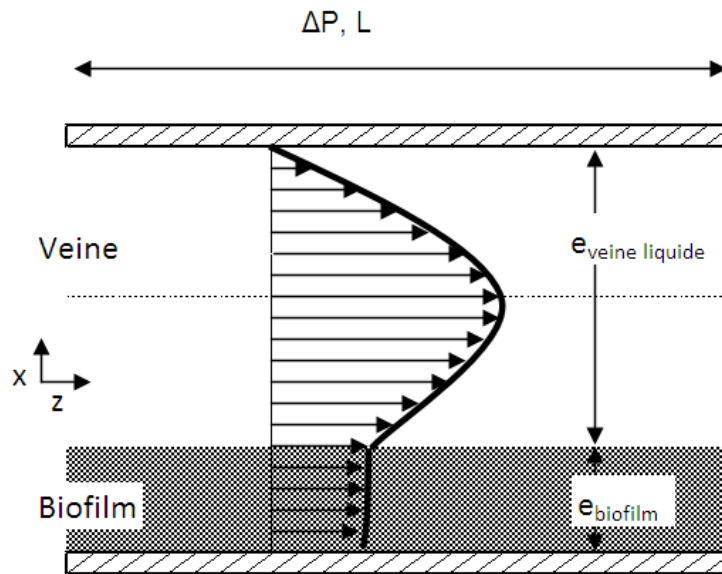
Pour une telle viscosité, la vitesse moyenne du biofilm serait de l'ordre de  $4 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$  pour une vitesse moyenne de l'eau dans la veine liquide de  $0,1 \text{ m s}^{-1}$ . Cette valeur est particulièrement faible et le biofilm peut être considéré comme immobile dans son ensemble. Compte tenu de la structure des biofilms, il est probable que les agrégats soient immobiles tandis que le liquide interstitiel s'écoule.

En effet, Stoodley et al. (1994) par le traçage de particules de latex marquées ont observé le déplacement de liquide dans les canaux du biofilm autour d'agrégats qui resteraient immobiles. Ils rapportent pour une vitesse de liquide de  $0,066 \text{ m s}^{-1}$  au-dessus d'un biofilm de  $700 \mu\text{m}$ , sur les 500 premiers micromètres, une vitesse de liquide interstitiel qui chute de  $0,03$  à  $0,005 \text{ m s}^{-1}$  avec la profondeur. En dessous la vitesse chute de  $0,005 \text{ m s}^{-1}$  jusqu'à être nulle à la base du biofilm avec en parallèle une diminution de la porosité. De Beer et Stoodley (1995) observent que la vitesse dans le biofilm dépend de la vitesse dans le liquide. Pour une vitesse de liquide de  $0,14 \text{ m s}^{-1}$ , les auteurs observent une vitesse de  $0,01 \text{ m s}^{-1}$  dans les couches supérieures du biofilm qui diminue jusqu'à une valeur nulle à la base du biofilm.

Ainsi, il semblerait plus pertinent de considérer le biofilm comme un milieu poreux qui représenterait les agrégats bactériens autour desquels du liquide circule plutôt qu'un milieu très visqueux.

### 3.3.3 Vitesse d'écoulement dans le biofilm supposé poreux et immobile

On peut considérer que le biofilm est un milieu poreux immobile le long duquel s'écoule, en régime laminaire, le fluide à traiter. Le biofilm est en première approximation considéré homogène sur son épaisseur. Le profil de vitesse dans ce cas est présenté Figure III-13.



**Figure III-13 : Profil de vitesse d'un liquide circulant sous l'influence d'un gradient de pression au dessus d'un milieu poreux**

La différence de pression nécessaire pour déplacer ce dernier se retrouve dans le biofilm, si on suppose qu'en tout point d'un plan normal à l'axe de l'écoulement, la pression dans le biofilm est la même que celle dans la veine liquide. Ceci devrait entraîner un écoulement que l'on peut décrire en utilisant un modèle de Kozeny-Carman :

La résistance de ce milieu poreux  $R_d$  s'écrit :

$$R_d = \alpha_R \cdot M_d$$

Équation III-5

Où  $\alpha_R$  est la résistance spécifique ( $m \text{ kg}^{-1}$ ) et  $M_d$  est la masse déposée par unité d'aire ( $kg \text{ m}^{-2}$ )

Selon la relation classique de Kozeny-Carman :

$$\alpha_R = \frac{5 \cdot (1 - \varepsilon) \cdot A_p^2}{\varepsilon^3 \cdot \rho}$$

Équation III-6

Ou  $\varepsilon$  est le taux de vide dans le poreux,  $A_p$  l'aire spécifique des particules qui le composent ( $m^{-1}$ ) et  $\rho$  la masse volumique du matériau constitutif : le biofilm ( $kg \text{ m}^{-3}$ ).

La masse  $M_d$  s'exprime simplement comme :

$$M_d = L \cdot (1 - \varepsilon) \cdot \rho$$

Équation III-7

Où  $L$  est la longueur d'une cellule.

En appliquant la loi de Darcy, on peut écrire une expression de la vitesse moyenne du liquide dans les pores du biofilm  $v^\circ$  :

$$v^\circ = \frac{\Delta P \cdot \varepsilon^3}{5 \cdot \mu \cdot (1 - \varepsilon)^2 \cdot A_p^2 \cdot L}$$

**Équation III-8**

Où  $\Delta P$  est la différence de pression sur la longueur de la cellule  $L$  (Pa).

Par ailleurs, nous postulons que la différence de pression (selon la direction parallèle à la membrane) est la même dans le biofilm et dans la veine liquide, alors, il est possible d'écrire cette différence de pression dans la veine liquide selon la loi de Poiseuille :

$$\Delta P = \frac{12 \cdot \mu \cdot L \cdot V_{\text{veine liquide}}}{(e_{\text{veine liquide}})^2}$$

**Équation III-9**

Si  $V_{\text{veine liquide}}$  est la vitesse moyenne dans la veine liquide, et  $e_{\text{veine liquide}}$  l'épaisseur de la veine liquide.

En combinant les Équation III-8 et Équation III-9, il vient :

$$v^\circ = \frac{12 \cdot V_{\text{veine liquide}} \cdot \varepsilon^3}{5 (e_{\text{veine liquide}})^2 (1 - \varepsilon)^2 A_p^2}$$

**Équation III-10**

On peut proposer une application numérique de cette équation, avec les valeurs numériques suivantes :  $\varepsilon=0,9$  ;  $e_{\text{veine liquide}} = 6,5 \text{ mm}$ , et  $A_p=3/r$  (approximation sphérique). En supposant que les agrégats qui constituent le biofilm ont un rayon de  $200 \mu\text{m}$ , valeur déterminée au chapitre II, Figure II-12. Cette valeur est proche de celle de De Beer et Stoodley (1995) qui trouvaient  $150 \mu\text{m}$  pour un biofilm conventionnel.  $A_p= 3/(150 \times 10^{-6})=1,5 \times 10^4 \text{ m}^{-1}$ .

D'où :  $v^\circ \approx 0,018 \cdot V_{\text{veine liquide}}$

Pour des vitesses moyennes de  $0,14 \text{ m s}^{-1}$  dans la veine liquide, on aurait donc une vitesse moyenne de l'ordre de  $2,6 \times 10^{-3} \text{ m s}^{-1}$  dans le biofilm, soit un ordre de grandeur situé entre les extrêmes (certes éloignés) rapportés par Stoodley et al. (1994).

Il ressort de cette approximation que l'hypothèse d'un écoulement convectif axial entraîné par l'écoulement principal, souvent discutée dans la bibliographie, est plausible dans nos conditions opératoires. Cet écoulement, même lent, doit contourner les agrégats de matière présents dans le biofilm et se développer en 3 dimensions, générant ainsi notamment une composante radiale, normale au plan des membranes.

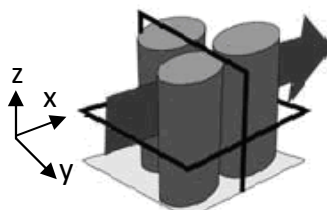
### 3.3.4 Comparaison avec les simulations d'Aspa et al. (2011)

D'après les résultats expérimentaux et le modèle sur les écoulements dans les milieux poreux, la convection dans les biofilms étudiés est donc possible. Le modèle rend compte des ordres de grandeur des vitesses dans le biofilm. Aspa et al. (2011) proposent une modélisation de la diffusivité relative dans les biofilms en fonction du Nombre de Peclet dans les canaux du biofilm. Nous nous proposons de comparer nos résultats expérimentaux à leurs résultats calculés. Notre Nombre de Peclet sera déterminé à partir de notre modélisation des écoulements dans les milieux poreux.

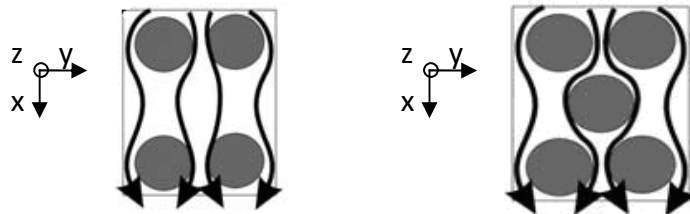
Dans un premier temps nous présenterons le modèle d'Aspa et al. (2011). Dans un deuxième temps, nous présenterons le Nombre de Peclet que nous avons calculé et nous comparerons nos résultats.

#### a) Description du modèle d'Aspa et al. (2011)

Aspa et al. (2011) ont modélisé des écoulements d'eau dans les canaux d'un biofilm conventionnel. Ils représentent la matière solide du biofilm comme des cylindres parallèles normaux à la base du biofilm (Figure III-14) sous deux configurations possibles (Figure III-15). La rugosité du biofilm n'est pas prise en compte et l'échelle de temps de sa croissance est considérée plus longue que l'échelle de transport. Ce modèle s'intéresse uniquement aux écoulements liquides selon la répartition de la biomasse dans le biofilm et à leurs conséquences sur le transfert de matière.



**Figure III-14: Schématisation de la géométrie utilisée en vue de la modélisation des écoulements liquides dans le biofilm**



**Figure III-15 : Schématisation des deux configurations utilisées par Aspa et al. (2011) pour la modélisation**

Le problème est traité de manière adimensionnelle pour relier les Nombres de Peclet dans les canaux à l'échelle du biofilm avec la diffusivité relative (Figure III-16), telle que celle que nous avons déterminée expérimentalement. Le Nombre de Peclet est calculé selon l'Équation III-11. Il représente le rapport entre la vitesse du fluide et la vitesse de diffusion dans les canaux du biofilm.

$$Pe = \frac{v^{\circ} \cdot l}{D_{\text{Néon}}^{\text{eau}}}$$

**Équation III-11**

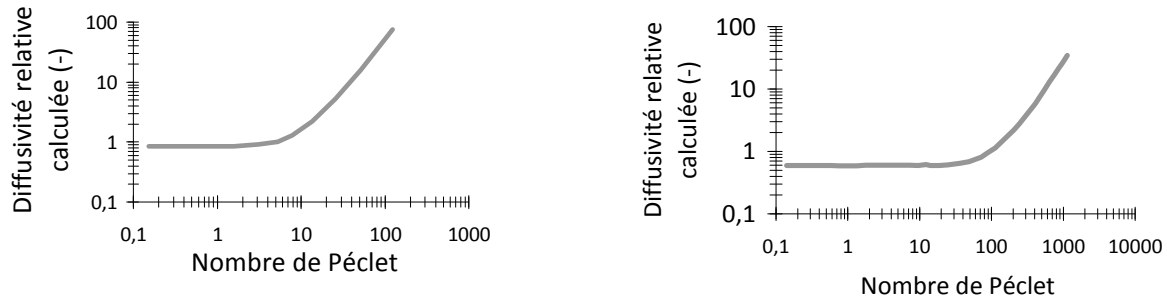


Avec  $Pe$  : Nombre de Peclet (-),

$v^\circ$  : vitesse du liquide dans les pores du biofilm ( $m\ s^{-1}$ ),

$l$  : diamètre des canaux dans le biofilm (m),

$D_{Néon}^{eau}$  : diffusivité du néon dans l'eau ( $m^2\ s^{-1}$ ).



**Figure III-16: Diffusivité relative calculée selon l'axe  $x$  en fonction du Nombre de Peclet selon le modèle développé par Aspa et al. (2011). A gauche : résultats avec la première géométrie ; à droite : résultats avec la deuxième géométrie (coordonnées logarithmiques) de la Figure III-15**

Aspa et al. (2010) mettent en évidence que le transfert de matière se déroule de manière anisotrope. Ils observent un Nombre de Peclet de transition au-delà duquel le transfert de matière dans une direction orthogonale (selon l'axe  $x$  sur Figure III-14 et Figure III-15) à l'écoulement principal est dominé par la convection. Ce Nombre de Peclet de transition est compris entre 10 et 100 en fonction de la géométrie retenue pour modéliser la répartition spatiale de la biomasse dans le biofilm.

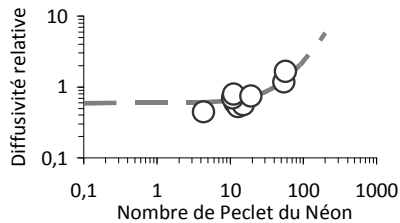
Avec les deux géométries qu'ils utilisent, ils observent selon l'axe  $y$  des effets dispersifs dépendant de la géométrie utilisée. Peu d'effets dispersifs sont observés selon la direction  $z$  pour un écoulement selon  $x$ , mais il est à noter que la géométrie du biofilm en cylindre décrite est idéalisée.

#### b) Diffusivité relative expérimentale en fonction du Nombre de Peclet calculé

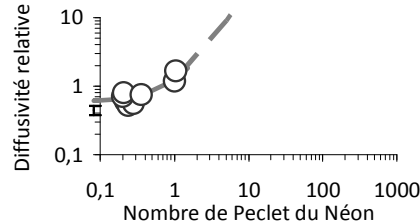
Afin de positionner nos résultats par rapport aux simulations proposées par Aspa et al. (2011), nous portons le coefficient de diffusivité relative expérimental en fonction du Nombre de Peclet sur la Figure III-17. La diffusivité relative est déterminée expérimentalement selon une direction normale (axe  $z$ ) à l'écoulement et au plan de la membrane. C'est une partie peu exploitée par Aspa et al. (2011). Le Nombre de Peclet est déterminé via l'Équation III-11. Deux valeurs sont nécessaires : le diamètre des canaux :  $100\ \mu m$  (valeur expérimentale présentée chapitre II et identique à celle de De Beer et Stoodley (1995)) et la vitesse du liquide dans les canaux. Cette vitesse est accessible via le modèle précédent (Équation III-10) ; elle est fonction de la porosité du milieu.

Sur la Figure III-17, trois porosités de biofilm ont été considérées : 90 et 60 % qui sont des porosités aux extrémités du biofilm (à la surface et à la base du biofilm) rapportées dans la bibliographie (Zhang et Bishop, 1994b et Lewandowski, 2000). Une porosité de 80% a été choisie comme valeur intermédiaire.

A : la porosité est fixée à 90 %

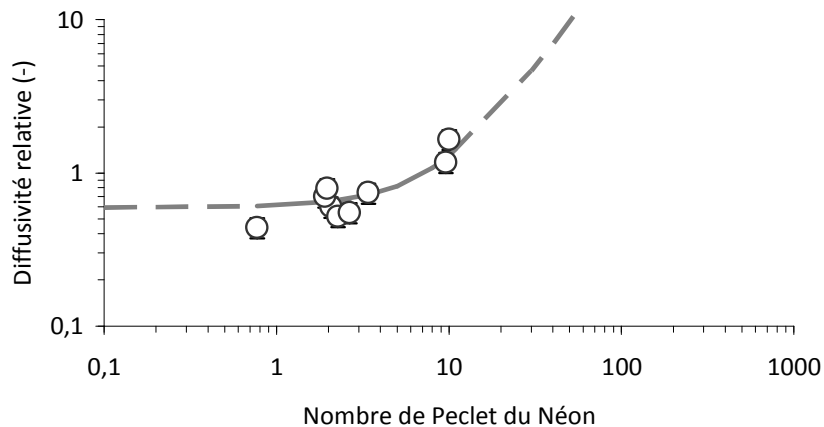


B : la porosité est fixée à 60%



○ Résultats expérimentaux  
— Mise en équation mathématique

C : porosité fixée à 80%



**Figure III-17 : Diffusivité relative en fonction du Nombre de Peclet calculé pour différentes porosités de biofilm (échelle logarithmique). Le trait gris correspond à l'expression mathématique des résultats ; en trait plein, les résultats expérimentaux ; en pointillé l'extrapolation par l'équation.**

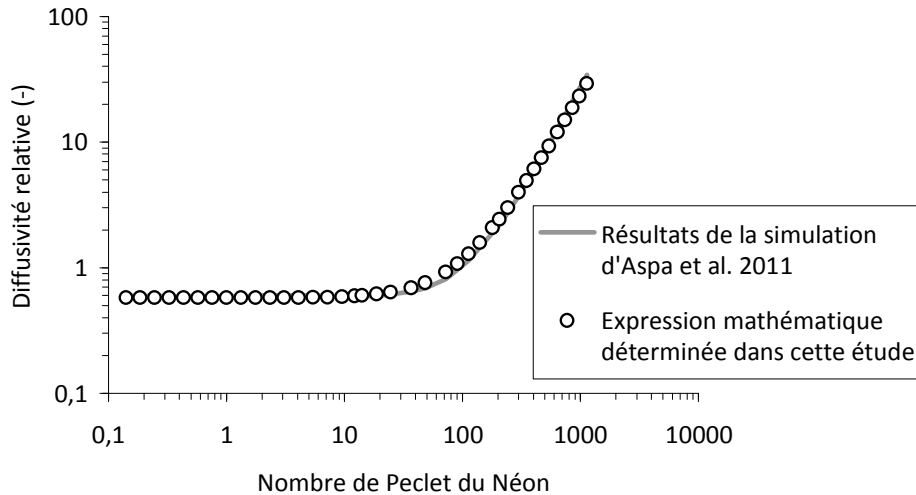
Comme Aspa et al. (2011) (Figure III-16), pour des diffusivités relatives parallèles à l'écoulement, les résultats expérimentaux (Figure III-17) semblent présenter un Nombre de Peclet de transition en-dessous duquel l'écoulement convectif n'a pas d'incidence sur la diffusivité. Le régime de transfert est alors purement diffusif et le coefficient de diffusion apparent est égal à environ 60% de celui que l'on aurait dans l'eau. Au-delà, le coefficient de diffusivité relative augmente significativement et dépasse la valeur 1. Le transfert de matière est alors dominé par la convection.

Nous proposons une expression mathématique (Équation III-12) de la courbe présentée Figure III-16-droite pour la géométrie de la Figure III-15-droite.

$$D_{eff} = 0,6.(1 + 6,5 \times 10^{-4}.Pe^{1,6})$$

Équation III-12

Cette courbe est tracée sur la Figure III-18 pour être comparée aux résultats d'Aspa et al. (2011). Nous pouvons noter une bonne cohérence entre les deux courbes tracées.



**Figure III-18 : Comparaison des résultats calculés par Aspa et al. 2011 et ceux de l'Équation III-12 pour la deuxième géométrie de la Figure III-15**

L'exposant 1,6 du Nombre de Peclet est en accord avec leur publication qui indiquait un exposant compris entre 1,5 et 1,7. Il est représentatif du phénomène de dispersion radiale qu'Aspa et al. (2011) avaient simulés.

Dans la suite, nous conservons ce coefficient et le coefficient multiplicateur de 0,6. Pour chacune des porosités, nous cherchons le coefficient devant le Nombre de Peclet de manière à ce que nos résultats expérimentaux et avec courbe coïncident au mieux.

Les équations mathématiques de la diffusivité relative expérimentale en fonction du Nombre de Peclet pour différentes porosités sont présentées Tableau III-3 (pour la Figure III-17).

Porosité	Expression mathématique	Nombre de Peclet de transition
90 %	$Deff_y = 0,6.(1 + 1,8 \times 10^{-3}.Pe^{1,6})$	51
80 %	$Deff_y = 0,6.(1 + 2,9 \times 10^{-2}.Pe^{1,6})$	9
60 %	$Deff_y = 0,6.(1 + 1,1.Pe^{1,6})$	0,9

**Tableau III-3 : Equation mathématique de la diffusivité relative en fonction du Nombre de Peclet pour différentes porosités**

Ces équations sont représentées en gris et en trait plein sur la Figure III-17. Elles sont extrapolées à des Nombres de Peclet plus grand et plus petit en pointillés sur la Figure. Le Nombre de Peclet de transition dépend de la porosité supposée du biofilm.

### 3.3.5 Conclusion

En conclusion, il semble que la diffusivité relative expérimentale bien qu'elle soit axiale, suive les mêmes tendances que la diffusivité relative radiale de l'étude d'Aspa et al. (2010). Il existe donc une gamme de régime pour laquelle toute augmentation de la vitesse tangentielle n'apporte aucune amélioration au transfert radial dans le biofilm. La mesure du transfert de matière sans réaction a montré la présence de convection dans les canaux de celui-ci au-delà d'un Nombre de Peclet de transition. Les modèles d'approximation du biofilm par un milieu poreux ont confirmé qu'il était possible qu'il y ait de la convection dans les biofilms. Ces biofilms aérés sur membranes sont donc conformes à l'un des modèles souvent invoqués par ailleurs où la convection se déroule dans des canaux autour des agrégats cellulaires. Dans ces modèles, le transfert à l'intérieur de ces derniers a lieu par diffusion et il est donc intéressant de lier ce de matière avec les vitesses de consommation du substrat dans le réacteur.

## **4 EFFETS DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES SUR LES PERFORMANCES D'UN REACTEUR A BIOFILM AERE SUR MEMBRANE**

Les résultats précédents ont montré une influence de l'hydrodynamique sur la concentration en matière sèche du biofilm et sur le transfert de matière radial dans le biofilm. Cette partie présente les effets des conditions hydrodynamiques sur les performances globales du réacteur.

### **4.1 Vitesse de consommation du carbone organique**

#### 4.1.1 Résultats : consommation du carbone organique en fonction des conditions hydrodynamiques

La vitesse d'élimination du carbone a été mesurée pour chaque condition hydrodynamique pour une charge volumique constante de  $59 \text{ mg m}^{-3} \text{ h}^{-1}$ . Les résultats sont présentés en fonction du nombre de Reynolds et de la contrainte de cisaillement sur les Figure III-19 et Figure III-20.

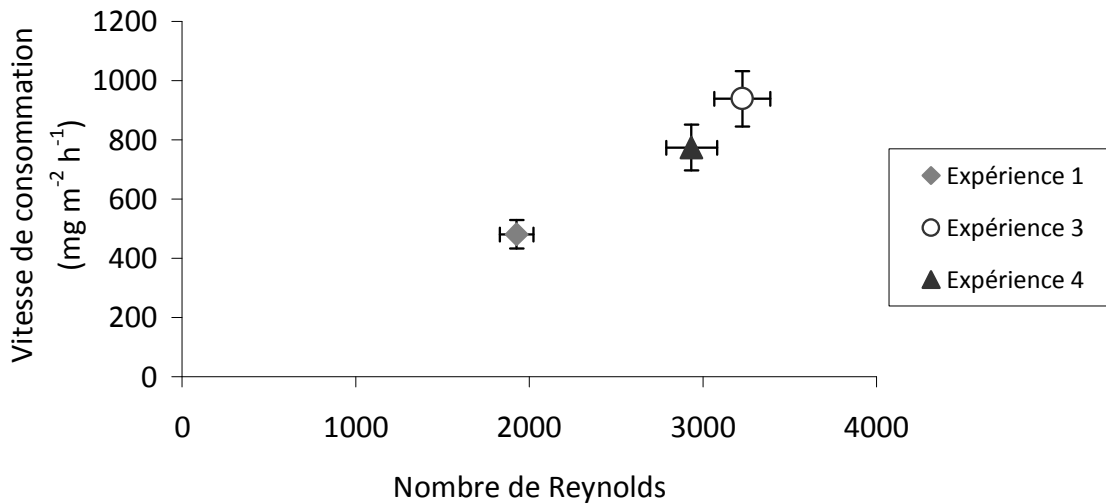


Figure III-19 : Vitesse de consommation de la DCO en fonction du Nombre de Reynolds

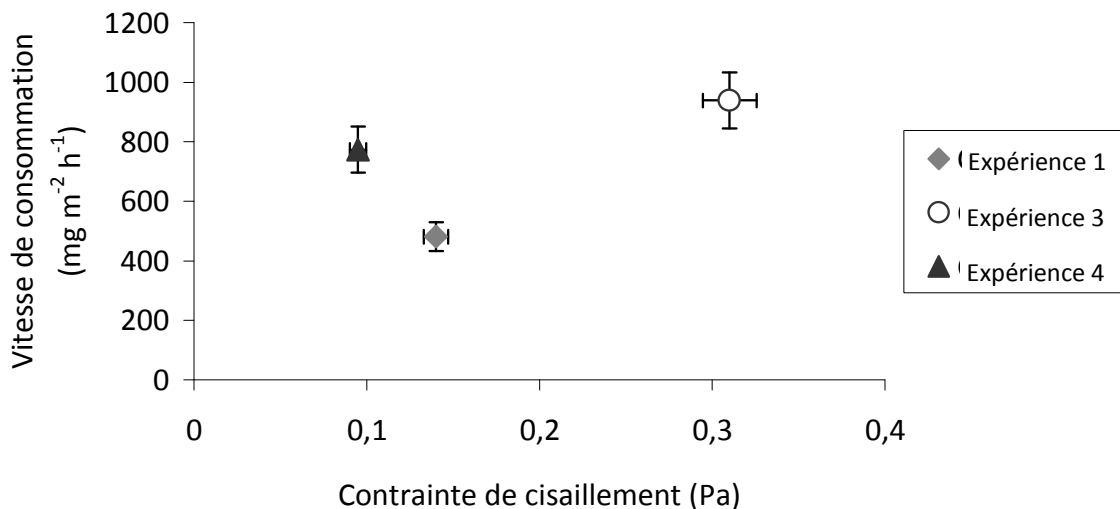


Figure III-20 : Vitesse de consommation de la DCO en fonction de la contrainte de cisaillement

Les vitesses d'élimination de la DCO sont de l'ordre de 400 à 900  $\text{mg m}^{-2} \text{h}^{-1}$  ce qui entre dans la gamme de vitesse rapportée dans la bibliographie de 35 (Pankhania et al. (1994)) à 2600 (Brindle et al. (1999))  $\text{mg m}^{-2} \text{h}^{-1}$  en fonction des conditions opératoires. Sur les Figure III-19 et Figure III-20, la vitesse d'élimination de la DCO augmente avec le Nombre de Reynolds alors qu'elle ne semble pas être corrélée à la contrainte de cisaillement. Ces résultats sont en accord avec ceux de Li et al. (2008) qui observent de manière quasi-linéaire une augmentation de la vitesse de consommation de l'acétonitrile avec le Nombre de Reynolds dans un RBAM.

Dans la présente étude, nous disposons de peu de résultats pour tirer une véritable loi de variation de la consommation de DCO avec les conditions hydrodynamiques mais il y a quand même de fortes tendances.

## 4.1.2 Discussion

La vitesse de consommation de la DCO par le biofilm est comparée à la vitesse de transfert de l'oxygène sans biofilm en fonction du Nombre de Reynolds sur la Figure III-21.

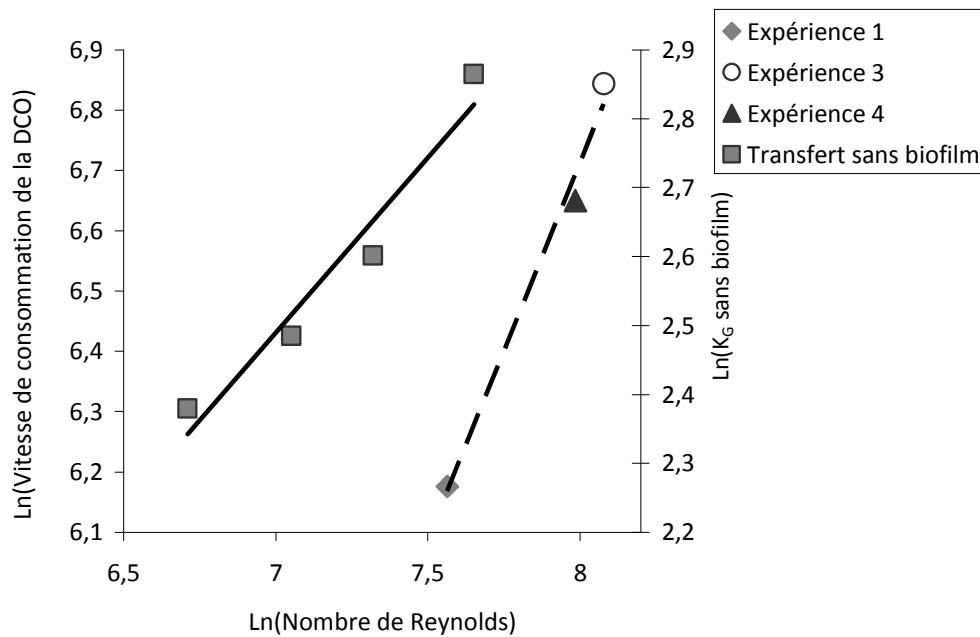


Figure III-21 : Vitesse de consommation de la DCO pour chaque expérience et coefficients de transfert globaux de l'oxygène sans biofilm en fonction du Nombre de Reynolds. La vitesse de consommation est en  $\text{mg m}^{-2} \text{h}^{-1}$  et le coefficient de transfert en  $\text{m s}^{-1}$  (coordonnées semi-logarithmiques)

Les résultats expérimentaux ainsi que la corrélation établie pour un transfert de matière sans biofilm (chapitre III, paragraphe 2-3) pour ce réacteur est également portée sur la Figure III-21. Il apparaît clairement que la consommation de la DCO augmente plus rapidement avec le Nombre de Reynolds (droite de pente 1,24), qu'en l'absence de réaction (droite de pente 0,55) (Équation III-13 et Équation III-14).

Transfert de matière sans biofilm :

$$Sh = 0,024 \cdot Re^{0,55} \cdot Sc^{0,33}$$

$$\text{donc } k_{\text{liquide}} \propto Re^{0,55}$$

Équation III-13

Transfert de matière avec biofilm :

$$V_{\text{consommation DCO}} \propto Re^{1,24}$$

$$\text{d'où } V_{\text{consommation DCO}} \propto k_{\text{liquide}}^{2,25}$$

Équation III-14

Ainsi, le biofilm consomme de la DCO et creuse les profils de concentration à l'interface biofilm-liquide, ce qui entraîne un flux de DCO plus important. Deux hypothèses permettent d'expliquer cette amélioration lorsque la vitesse d'écoulement liquide augmente :

1. Soit la biomasse est devenue plus efficace,
2. Soit il y a plus de biomasse d'une expérience à l'autre ou un rapport aérobie / anaérobie différent.

Afin d'essayer de discriminer ces hypothèses, la vitesse de consommation de la DCO a été rapportée à la quantité de biomasse présente et les résultats sont présentés Figure III-22 et Figure III-23 en fonction du Nombre de Reynolds et de la contrainte de cisaillement.

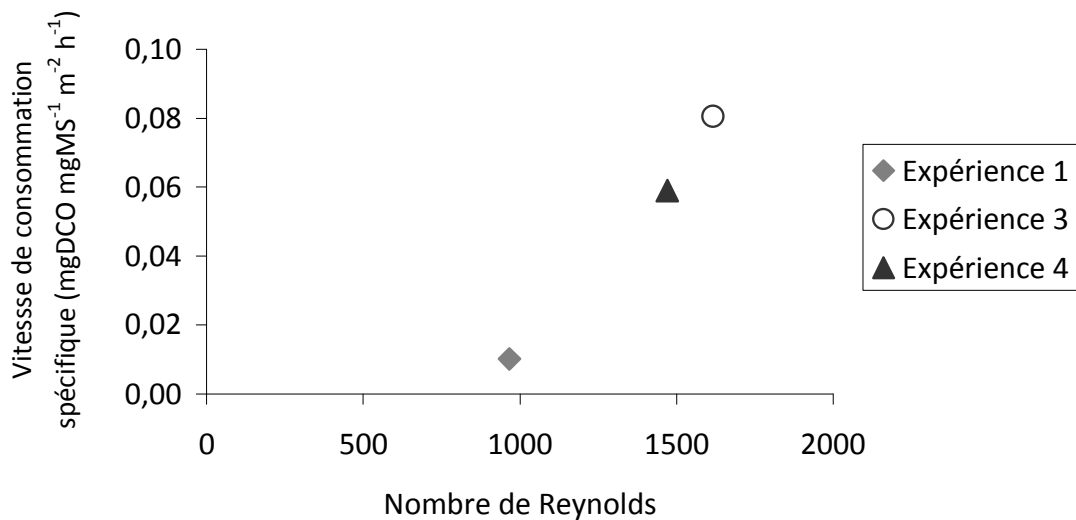


Figure III-22 : Vitesse de consommation spécifique de la DCO en fonction du Nombre de Reynolds, MS : Matière sèche

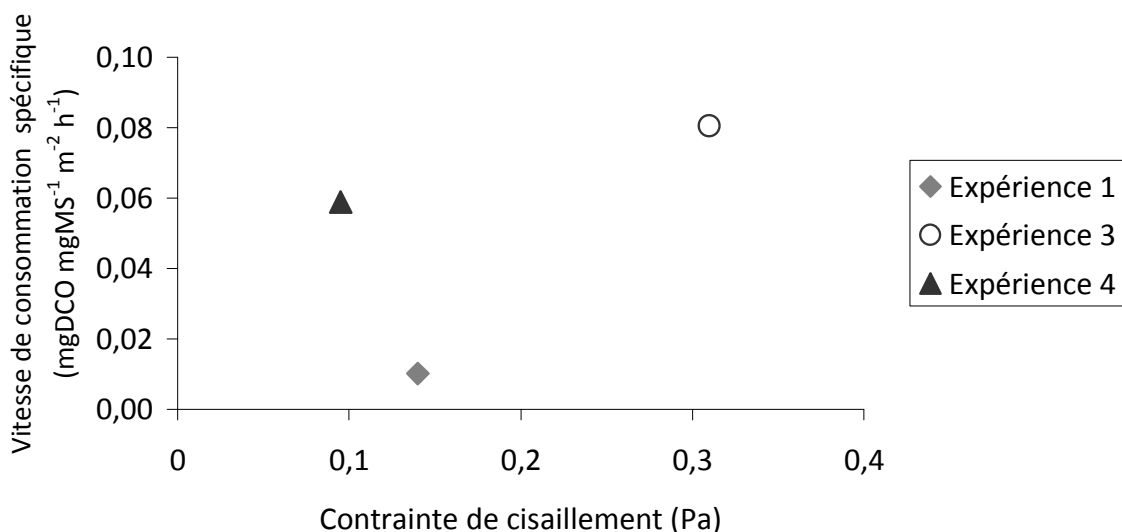
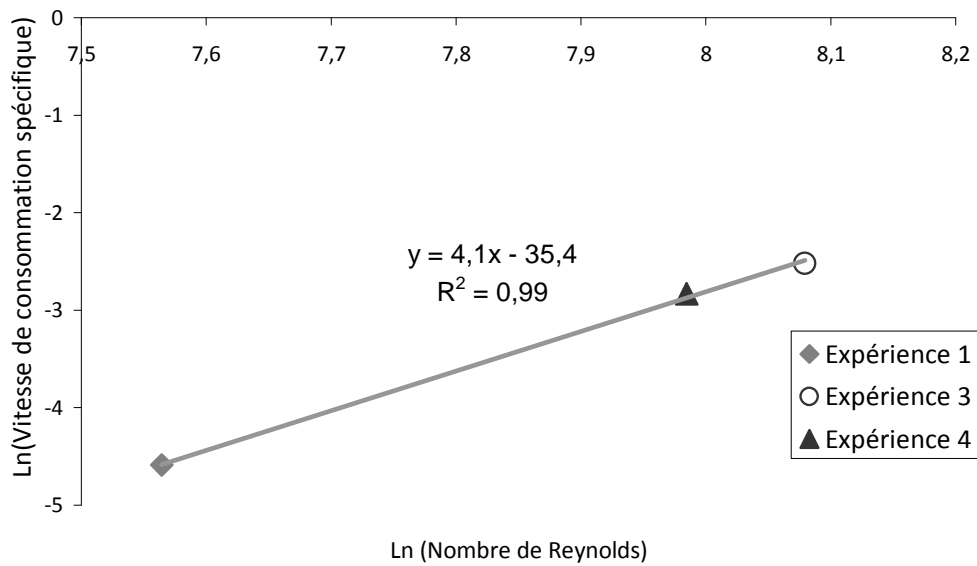


Figure III-23 : Vitesse de consommation spécifique de la DCO en fonction de la contrainte de cisaillement, MS : Matière sèche



**Figure III-24 : Vitesse de consommation spécifique de la DCO en fonction du Nombre de Reynolds, la vitesse de consommation est en mg de DCO mg de MS<sup>-1</sup> m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup> (coordonnées semi-logarithmiques)**

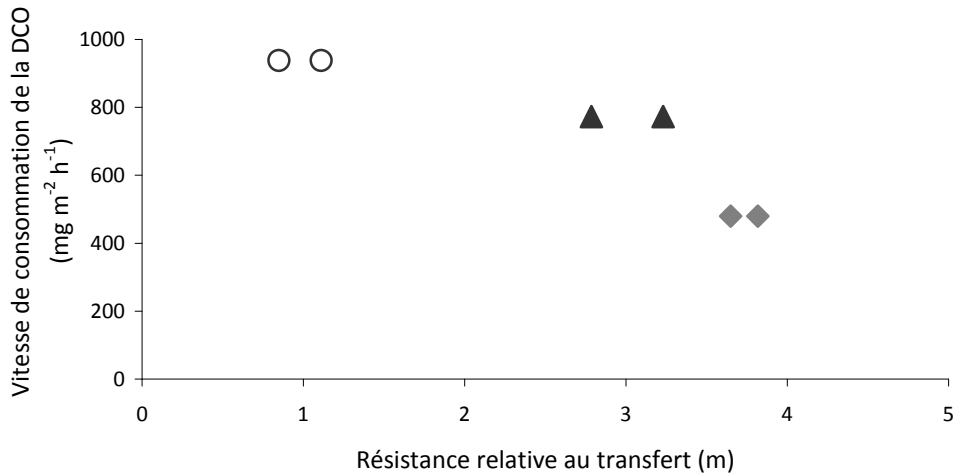
Selon les Figure III-22 et Figure III-23, la vitesse de consommation spécifique de la DCO est une fonction du Nombre de Reynolds à la puissance 4,1 (Figure III-24). La biomasse devient plus efficace avec l'augmentation du Nombre de Reynolds. La biomasse qui se développe dans un environnement riche en nutriments (transfert amélioré par l'hydrodynamique) possède une activité spécifique bien supérieure à celle d'une biomasse développée dans un environnement pauvre.

#### 4.1.3 Résultats : consommation du carbone organique en fonction des propriétés du biofilm

Les conditions hydrodynamiques influencent les propriétés du biofilm. Nous nous sommes intéressés à deux points influençant le transfert de matière dans le biofilm : la diffusivité relative et l'épaisseur du biofilm.

Le rapport de l'épaisseur du biofilm par la diffusivité relative est appelé résistance relative au transfert et est présenté Figure III-25 lié à la vitesse de consommation de la DCO.



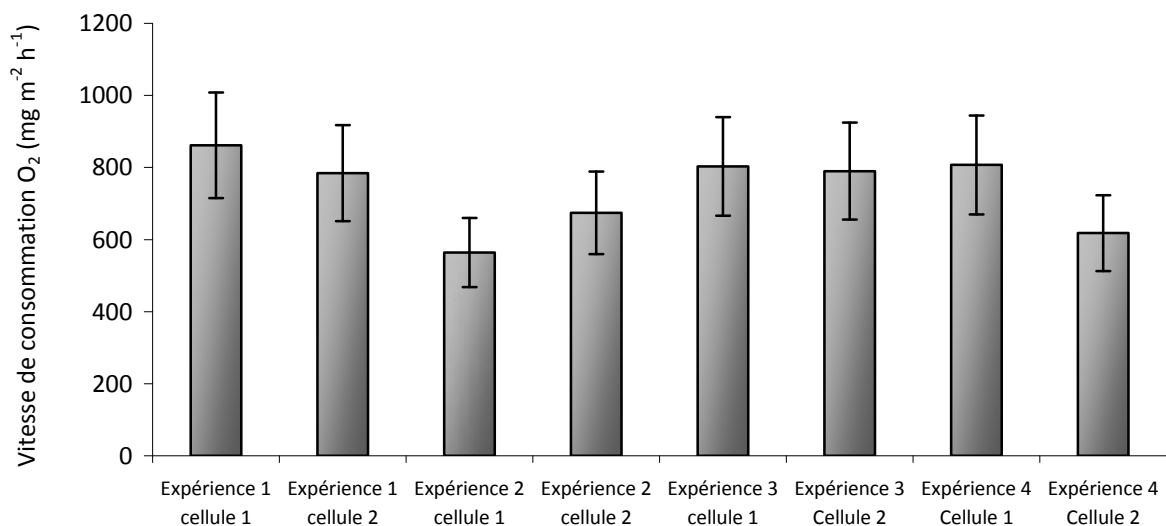


**Figure III-25 : Vitesse de consommation de la DCO en fonction du rapport de l'épaisseur du biofilm par la diffusivité relative : la résistance relative**

La Figure III-25 montre que plus le rapport de l'épaisseur du biofilm par la diffusivité relative est petit, plus la vitesse d'élimination du biofilm est élevée. Ceci signifie que plus la capacité de transfert du biofilm est élevée plus le biofilm est efficace.

#### 4.2 Etude du flux d'oxygène

Les flux d'oxygène transférés de la phase gazeuse à travers la membrane vers le biofilm et la phase liquide sont déterminés via l'utilisation de la chromatographie phase gazeuse. La concentration en oxygène dans la phase liquide est nulle en présence d'un biofilm : tout l'oxygène transféré est consommé par celui-ci. Pour chaque condition hydrodynamique menée, les flux d'oxygène transférés sont présentés Figure III-26.



**Figure III-26 : Flux d'oxygène transférés pour chaque condition hydrodynamique**

Le facteur d'accélération est le rapport du flux d'oxygène transféré et mesuré expérimentalement par le flux d'oxygène déterminé mathématiquement sous l'hypothèse que l'oxygène transfert sur toute l'épaisseur du biofilm. Ce flux mathématique est calculé à partir du coefficient de transfert du néon en considérant que l'oxygène subit les mêmes résistances au transfert. Le facteur d'accélération est compris entre 15 et 58 selon les conditions testées. Ce qui montre une forte accélération du transfert de l'oxygène du à la réaction de consommation de l'oxygène par le biofilm.

### 4.3 Vitesse de consommation du carbone organique et de l'oxygène par le biofilm

Un autre moyen de comparer la vitesse de réaction de la DCO et de l'oxygène avec le transfert de matière est l'utilisation du Module de Thiele. Le Module de Thiele est un nombre adimensionnel qui compare les phénomènes physiques (transfert de matière) et biologiques (vitesse de réaction). Il est calculé pour la consommation de l'oxygène et la consommation de la DCO. Il est égal au rapport de la vitesse de consommation du substrat sur la vitesse de diffusion.

La cinétique de Monod est souvent utilisée pour décrire la consommation du substrat et la croissance des bactéries. Dans ce cas, les cinétiques de consommation du substrat sont données par une expression de la forme :

$$R_{DCO} = \frac{\mu_{\max} \cdot X_H}{Y_H} \cdot \frac{S_s}{S_s + Ks_H\_COD} \cdot \frac{S_{O_2}}{S_{O_2} + Ks_H\_O_2}$$

$$R_{O_2} = \frac{\mu_{\max} \cdot X_H \cdot O_2\_COD}{Y_H} \cdot \frac{S_s}{S_s + Ks_H\_COD} \cdot \frac{S_{O_2}}{S_{O_2} + Ks_H\_O_2}$$

#### Équation III-15

Où  $S_s$  est la concentration en DCO ( $g\ m^{-3}$ ),

$S_{O_2}$  : la concentration en oxygène ( $g\ m^{-3}$ ),

$Ks_H\_O_2$  : la constante de Monod des bactéries hétérotrophes aérobies pour l'oxygène ( $g\ m^{-3}$ ),

$Ks_H\_COD$  : la constante de Monod des bactéries hétérotrophes aérobies pour la DCO ( $g\ m^{-3}$ ),

$X_H$  : la concentration en bactérie ( $gMVS\ m^{-3}$ ),

$Y_H$  : taux de conversion ( $gMVS\ gDCO_{consommé}^{-1}$ ),

$\mu_{\max}$  : vitesse de croissance maximale ( $j^{-1}$ ),

$O_2\_COD$  : ratio d'oxygène consommé par DCO consommé ( $gO_2\ gDCO_{consommé}^{-1}$ ).

Parce qu'ils sont en contre-diffusion, les substrats DCO et oxygène sont alternativement limitants dans le biofilm. Les Équation III-15 sont de la forme :

$$R_{DCO} = \frac{\mu_{\max} \cdot X_H}{Y_H} \cdot \frac{S_s}{S_s + Ks_H\_COD}$$

$$R_{O_2} = \frac{\mu_{\max} \cdot X_H \cdot O_2\_COD}{Y_H} \cdot \frac{S_{O_2}}{S_{O_2} + Ks_H\_O_2}$$

Équation III-16

Nous considérons dans un premier temps, les concentrations en DCO et oxygène très inférieures aux constantes de Monod respectives. C'est le cas dans la zone de réaction du biofilm (voir modélisation chapitre IV). Les Equations sont de la forme (cinétique d'ordre 1):

$$R_{DCO} = \frac{\mu_{\max} \cdot X_H}{Y_H} \cdot \frac{S_s}{Ks_H\_COD}$$

$$R_{O_2} = \frac{\mu_{\max} \cdot X_H \cdot O_2\_COD}{Y_H} \cdot \frac{S_{O_2}}{Ks_H\_O_2}$$

Équation III-17

La vitesse de diffusion du substrat dans le biofilm est donnée par l'équation suivante :

$$V_{DCO}^{Diffusion} = \frac{D_{eff} \cdot D_{DCO}}{e_{biofilm}} \cdot S_s$$

$$V_{O_2}^{Diffusion} = \frac{D_{eff} \cdot D_{O_2}}{e_{biofilm}} \cdot S_{O_2}$$

Équation III-18

Davit et al. (2009) rapportent que ces équations ont été très utilisées (Brusseau et al., 1992 ; Chang et al. 1999 ; Sun et Lu, 2005) et commentées (Gray, 1975 ; Cunningham et Mandoza-Sanchez, 2006). Les Modules de Thiele pour la DCO et l'oxygène calculés sont de la forme :

$$Thiele = \frac{R \cdot e_{biofilm}}{V^{Diffusion}}$$

Équation III-19

D'où pour les substrats considérés, le Module de Thiele est déterminé comme suit :

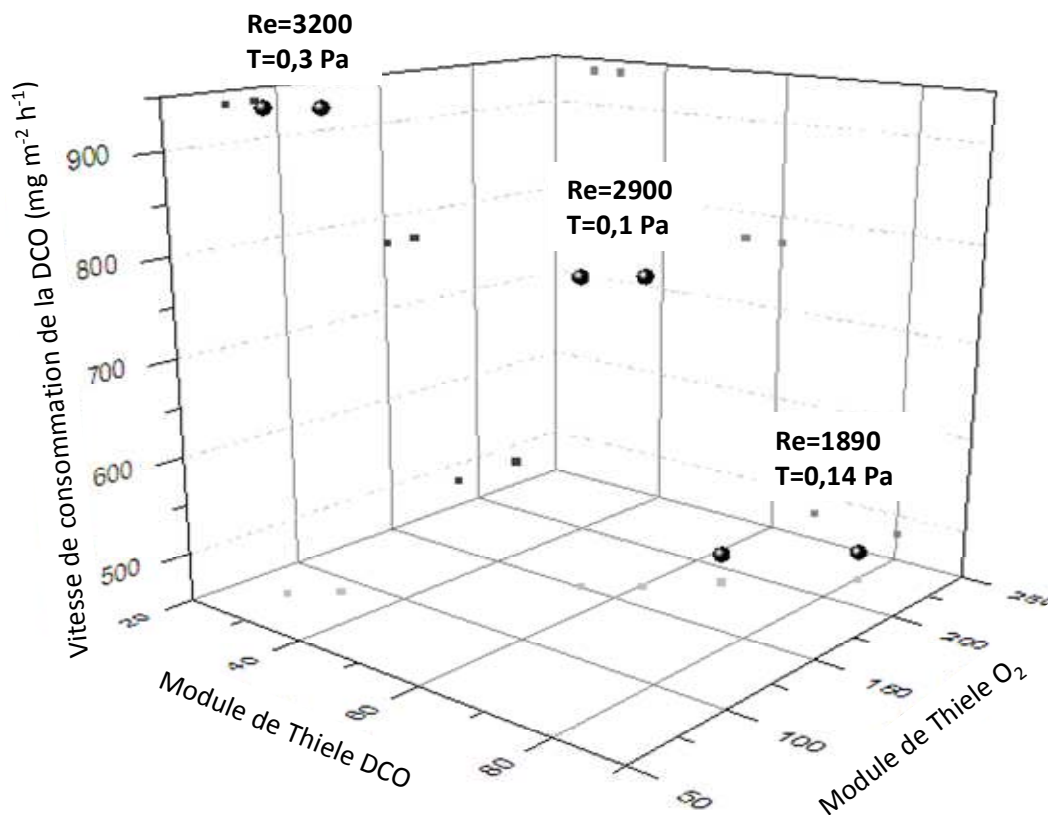
$$Thiele_{DCO} = \frac{e_{biofilm}^2 \cdot \mu_H \cdot X_H}{Y_H \cdot Ks_H\_COD \cdot D_{eff} \cdot D_{DCO}^{eau}}$$

$$Thiele_{O_2} = \frac{e_{biofilm}^2 \cdot \mu_{\max} \cdot X_H}{Y_H \cdot Ks_H\_O_2 \cdot D_{eff} \cdot D_{O_2}^{eau}}$$

Équation III-20

Où  $e_{biofilm}$  est l'épaisseur du biofilm (m)

Les Modules de Thiele pour l'oxygène et la DCO sont étudiés en fonction des vitesses de réaction expérimentales et des données expérimentales sur le biofilm pour chacune des conditions hydrodynamiques testées. Les résultats sont présentés Figure III-27.



**Figure III-27 : Modules de Thiele de la DCO et de l'oxygène en fonction de la vitesse de consommation de la DCO. Les points en noir sont projetés en gris sur chacun des trois plans. Les conditions hydrodynamiques (Nombre de Reynolds et contrainte de cisaillement) sont rappelées sur le graphique pour chaque point**

La Figure III-27 montre qu'aux conditions hydrodynamiques testées, la vitesse de consommation de la DCO est élevée lorsque les Modules de Thiele de l'oxygène et de la DCO sont petits. Plus le Module de Thiele est petit, plus la vitesse de diffusion devient importante par rapport à la vitesse de réaction. Ce qui signifie donc que plus la diffusion dans le biofilm est importante, meilleure est la vitesse de réaction.

Au vue des conditions expérimentales, les Modules de Thiele sont faibles pour des conditions de Nombre de Reynolds et de contrainte de cisaillement élevées.

Ces constatations vont dans le sens des paragraphes précédents et montrent que la vitesse de réaction augmente avec l'amélioration du transfert de matière dans le biofilm. Cette amélioration a lieu pour des conditions hydrodynamiques élevées.

Ces résultats expérimentaux viennent appuyer les résultats issus de la modélisation de Syron et Casey (2008) et Beyenal et Lewandowski (2005) qui montrent que l'efficacité de la réaction diminue avec l'augmentation du Module de Thiele.

## 5 CONCLUSION

A l'aide d'un gaz traceur, nous avons montré que la diffusivité relative augmente avec la contrainte de cisaillement et le Nombre de Reynolds. La concentration en matière sèche varie peu avec les conditions hydrodynamiques étudiées, elle augmente très légèrement. Ces résultats suggèrent une contribution de la convection pour le transfert de matière dans le biofilm.

Quatre observations du transfert de matière entre la phase liquide et la phase gazeuse séparées par la membrane, avec et en absence de biofilm, ressortent de l'étude expérimentale présentée :

- 1) En l'absence de biofilm, le transfert de gaz n'est pas limité par le régime d'écoulement du gaz ; la résistance au transfert vient principalement de la couche limite du côté liquide. L'évaluation de la résistance de la membrane indique que ses pores semblent remplis d'air. La résistance varie conformément à la classique loi du film, corrigée de la surface réelle ouverte au transfert dans notre pilote.
- 2) En présence d'un biofilm de 1,5 mm d'épaisseur environ, la résistance au transfert est multipliée par 10 environ. La membrane débarrassée du biofilm voit sa résistance augmentée par rapport à une neuve, ce qui laisse penser que l'interface membrane biofilm, une fois ce dernier formé, constitue la première barrière à l'entrée du gaz dans le biofilm.
- 3) On note que la teneur en matière sèche augmente légèrement avec la contrainte de cisaillement. Et la diffusivité relative du biofilm augmente avec le Nombre de Reynolds ou la contrainte. Au vue de ces résultats, deux régimes ont été mis en évidence : l'un, en dessous d'un Nombre de Peclet de transition pour lequel le coefficient de diffusivité relative est indépendant de l'hydrodynamique de la phase liquide et est égale à environ 60% de celui mesuré à dilution infinie. Et l'autre, au-delà du Nombre de Peclet de transition, pour lequel la diffusivité relative dépasse la diffusivité à la dilution infinie. Ceci suggère des mouvements convectifs importants selon une direction normale au plan de la membrane. Ces observations sont en accord avec les résultats de simulation d'Aspa et al. (2011) qui observent les mêmes phénomènes pour une direction parallèle au plan.
- 4) La vitesse de consommation de la DCO augmente de manière très rapide avec le Nombre de Reynolds. A partir de la sensibilité du transfert de gaz au régime d'écoulement et des mesures de consommation de DCO, il ressort que la biomasse

développée en présence d'un écoulement rapide bénéficie d'une concentration en DCO élevée dans le biofilm pendant son développement et présente une activité spécifique (ramenée à l'unité de masse de biomasse) élevée. En même temps, la diffusion de la DCO vers l'intérieur du biofilm est accélérée par ces conditions hydrodynamiques.

**Chapitre IV : Transfert de matière dans RBAM :  
Etude de modélisation**

---

## RESUME

Dans ce chapitre, deux modèles dynamiques unidimensionnels ont été comparés en utilisant des conditions identiques. Le premier modèle a été écrit par l'équipe de M.J. Semmens sous le logiciel Aquasim<sup>®</sup> (modèle nommé RTR dans ce chapitre), le deuxième modèle par l'équipe d'E. Casey sous le logiciel Matlab<sup>®</sup> (modèle nommé RT dans ce chapitre). Le premier prend en compte des réactions de croissance de la biomasse et les processus de mort-régénération des microorganismes. Le deuxième modèle ne prend en compte que les processus de la croissance microbienne. Les résultats du modèle RTR se sont révélés être plus en adéquation avec les résultats expérimentaux que le modèle RT. Il a été utilisé pour lier le comportement du RBAM à l'échelle macroscopique avec l'activité biologique du biofilm à l'échelle microscopique.

Les modélisations montrent que sous les conditions expérimentales étudiées, l'activité se situe du côté de l'interface membrane – biofilm. Ils permettent d'observer que l'amélioration du transfert de matière a pour conséquence un étalement de l'activité du biofilm à partir de l'interface membrane – biofilm vers la phase liquide, une diminution de l'intensité de l'activité et une augmentation de l'aire de l'activité. L'efficacité du RBAM en est améliorée.

Ensuite, le modèle RTR a été utilisé pour faire un balayage des conditions opératoires de fonctionnement des RBAM. Il a été observé que pour la pression partielle en oxygène dans la phase gazeuse comme pour la concentration en DCO dans la phase liquide, il existe un seuil à partir duquel la vitesse de réaction du biofilm est maximale. Ce seuil est fonction du substrat qui devient limitant. Ensuite, l'exploitation des modèles a montré qu'une augmentation des capacités de transfert de matière du le biofilm soit par l'augmentation de la diffusivité relative soit par la diminution de l'épaisseur du biofilm permet une augmentation de la vitesse de réaction.



## SOMMAIRE

1	INTRODUCTION ET OBJECTIFS DU CHAPITRE .....	125
2	STRUCTURE DES MODELES.....	125
2.1	<i>Description des compartiments</i> .....	125
2.2	<i>Les composés</i> .....	127
2.2.1	Les composés solubles.....	127
2.2.2	Les composés particuliers .....	127
2.3	<i>Processus et transfert de matière</i> .....	127
3	DESCRIPTION DES MODELES .....	128
3.1	<i>Procédés de transformation biologiques</i> .....	128
3.1.1	Etapas de transformation de la matière organique .....	129
3.1.2	Bilan des processus biologiques et valeurs des paramètres retenus pour les modèles .....	130
3.2	<i>Processus physiques</i> .....	135
3.2.1	Sous-couche diffusionnelle.....	135
3.2.2	Transport dans le biofilm.....	135
3.2.3	Valeurs des coefficients de diffusion .....	136
3.2.4	Valeurs des constantes de Henry utilisées .....	136
4	VALIDATION DES MODELES .....	136
4.1	<i>Validation du calcul de transfert de matière</i> .....	137
4.1.1	Mise en œuvre des modèles .....	137
4.1.2	Utilisation de la diffusivité relative expérimentale dans les modèles de biofilms.....	138
4.2	<i>Validation de la consommation du carbone organique et de l’oxygène</i> .....	139
4.3	<i>Conclusion</i> .....	140
5	ANALYSE LOCALE DU FONCTIONNEMENT D’UN BIOFILM SUR MEMBRANE.....	141
5.1	<i>Profils de concentration de l’oxygène et de la DCO dans le biofilm</i> .....	141
5.2	<i>Profils de l’activité bactérienne dans les biofilms</i> .....	143
5.3	<i>Conclusion</i> .....	144
6	EXPLOITATION DES MODELES .....	144
6.1	<i>Effets de la pression partielle en oxygène</i> .....	144
6.1.1	Conditions opératoires.....	144
6.1.2	Effet sur la vitesse de consommation de la DCO à concentration en DCO limitante .....	144
6.1.3	Effet sur la vitesse de consommation de la DCO à concentration en DCO non limitante.....	147
6.1.4	Conclusion.....	149
6.2	<i>Effets de la concentration en DCO</i> .....	149
6.2.1	Conditions opératoires.....	149
6.2.2	Effet sur la vitesse d’élimination de la DCO .....	149
6.2.3	Effet sur les profils d’activités dans le biofilm .....	151
6.2.4	Conclusion.....	151
6.3	<i>Effets de la variation de la diffusivité relative dans le biofilm</i> .....	152
6.3.1	Conditions opératoires.....	152
6.3.2	Effet sur la vitesse de consommation de la DCO et de l’oxygène .....	152

6.3.3	Effets sur les profils d'activité dans le biofilm .....	153
6.3.4	Conclusion.....	154
6.4	<i>Effets de la variation de l'épaisseur du biofilm.....</i>	<i>154</i>
6.4.1	Conditions opératoires.....	154
6.4.2	Effet sur la vitesse d'élimination de la DCO .....	155
6.4.3	Effet sur les profils d'activités dans le biofilm .....	156
6.4.4	Conclusion.....	157
6.5	<i>Couplage des différents paramètres testés .....</i>	<i>157</i>
7	APPLICATION A L'ECHELLE DE LA STATION D'EPURATION.....	160
7.1	<i>Hypothèses de fonctionnement de la station d'épuration.....</i>	<i>160</i>
7.1.1	Données d'entrées de la station d'épuration et objectifs recherchés .....	160
7.1.2	Dimension d'un module de RBAM .....	160
7.2	<i>Résultats .....</i>	<i>161</i>
8	CONCLUSION .....	163

## 1 INTRODUCTION ET OBJECTIFS DU CHAPITRE

Ce chapitre a pour objectif de dégager une représentation du fonctionnement du réacteur à biofilm aéré sur membrane dont l'étude expérimentale a été rapportée au chapitre III. Nous comparerons deux modèles dans ce travail. Ils ont été proposés par deux équipes différentes en les confrontant à nos résultats expérimentaux. Le premier modèle a été écrit sous le logiciel Aquasim<sup>®</sup> par l'équipe de M.J. Semmens<sup>2</sup>. Il a été publié par Shanahan et Semmens (2004). Le deuxième modèle a été réalisé sous le logiciel Matlab<sup>®</sup> par E. Syron sous la direction d'E. Casey<sup>3</sup> et publié par Syron et Casey (2007). Nous avons choisi de travailler avec les modèles tels qu'ils ont été construits et paramétrés par leurs auteurs, en ne modifiant que les constantes des réactions et la structure du biofilm.

Dans un premier temps, nous présenterons la structure de ces modèles puis nous les confronterons à nos résultats expérimentaux.

Dans un deuxième temps, le modèle le plus proche de nos résultats expérimentaux est utilisé pour étudier les processus se déroulant à l'échelle du biofilm (croissance bactérienne, transfert de composés solubles et particulaires,...) et pour lesquels l'accès expérimental n'est pas possible dans le cadre de nos expérimentations. Ensuite, l'impact des propriétés du biofilm (diffusivité relative, épaisseur) et des caractéristiques du procédé (concentration en DCO et en oxygène) sur les performances du réacteur a été évalué.

## 2 STRUCTURE DES MODELES

Dans les modèles, les biofilms et leurs environnements sont généralement sectionnés en compartiments (Figure IV-1) qui définissent les différentes zones du système : biofilm, liquide, couche limite côté liquide et gaz. Les composés (biomasse, substrats, produits,...) contenus dans chaque compartiment peuvent subir des transformations (réactions biochimiques, croissance bactérienne, ...) et être soumis à des phénomènes de transport. Les équations de bilan et de continuité permettent d'établir un lien quantitatif entre compartiments (Wanner et al., 2006).

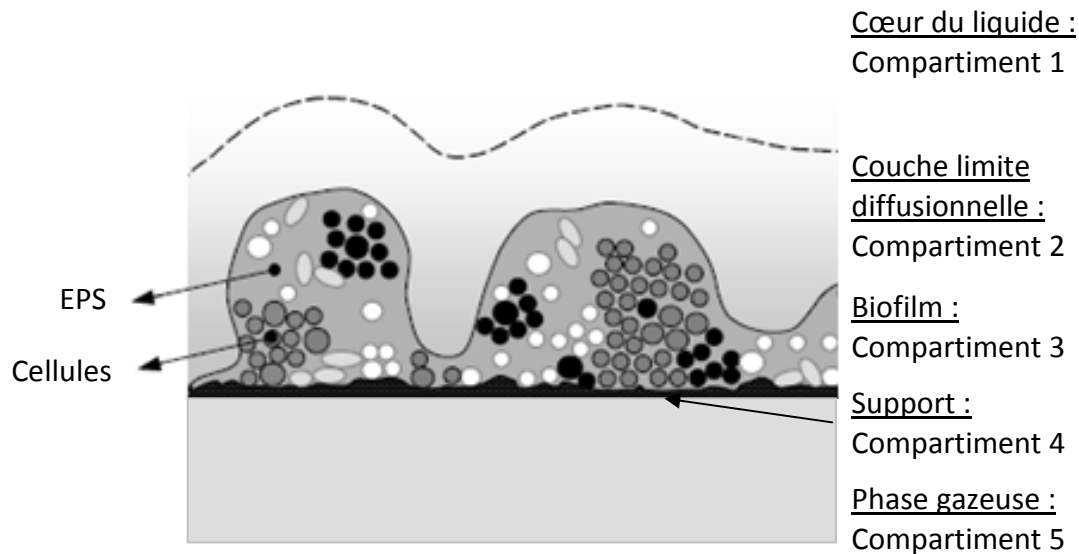
### 2.1 Description des compartiments

Les deux modèles utilisés dans le cadre de cette étude divisent le réacteur à biofilm aéré sur membrane en cinq compartiments. Chacun de ces compartiments est représenté Figure IV-1.

---

<sup>2</sup> Department of Civil Engineering de l'University of Minnesota

<sup>3</sup> School of Chemical and Bioprocess Engineering, Engineering and Material Science Centre de l'University College Dublin.



**Figure IV-1: Les cinq compartiments définis dans les modèles de réacteurs à biofilm aérés sur membrane étudiés. Ces compartiments sont : le cœur du liquide, la couche limite diffusionnelle, le biofilm, le support et la phase gazeuse. EPS : ExoPolySaccharide (Modifié à partir de Wanner et al., 2006)**

Les modèles utilisés dans le cadre de cette étude simplifient le compartiment biofilm par rapport à la réalité et le considèrent comme ayant une géométrie plane et une structure interne homogène. Le cœur de la phase liquide est considéré comme parfaitement agité et de volume constant.

De nombreuses études expérimentales (Stoodley et al., 1994, De Beer et Stoodley, 1995, 1996) montrent de forts gradients de concentrations proche de la surface du biofilm quand des composés sont produits ou consommés par les microorganismes du biofilm. Cette couche limite diffusive est le lieu d'importantes résistances au transfert de matière (Wanner et al., 2006).

Dans le modèle écrit par l'équipe de M.J. Semmens, la surface du biofilm est plane, l'épaisseur de la couche limite est considérée constante et d'épaisseur uniforme sur toute la surface du biofilm.

Dans le modèle d'E. Casey, la couche limite diffusionnelle est négligée pour certains solutés, à cause des forts gradients de concentration dans le biofilm et d'une concentration importante en soluté dans le cœur du liquide. Cette approximation est appuyée par les résultats expérimentaux du chapitre III qui montrent que la résistance au transfert entre les phases liquide et gaz se situe essentiellement dans le biofilm et non dans la phase liquide.

Dans le cas d'un biofilm aéré sur membrane, cette dernière constitue le support du biofilm qu'elle sépare de la phase gazeuse. La membrane dans le cas présent n'est ni réactive, ni sélective, mais permet les échanges par diffusion de gaz entre le biofilm et la phase gazeuse (Wanner et al., 2006).

Dans les modèles utilisés, la phase gazeuse est supposée parfaitement agitée. La couche limite diffusionnelle entre le cœur de la phase gazeuse et le compartiment support a été négligée, ce qui est en accord avec nos résultats expérimentaux présentés au chapitre III.

## 2.2 Les composés

Dans les modèles décrivant les biofilms, on distingue deux catégories de composés :

- Les composés solubles. Ce sont les espèces dissoutes telles que les substrats et les métabolites.
- Les composés particuliers. Ils forment la phase solide du biofilm, tels que les débris cellulaires et les cellules. Ils sont physiquement attachés les uns aux autres ou au support solide. Il y en a aussi en suspension dans la phase liquide.

### 2.2.1 Les composés solubles

Les composés solubles englobent les substrats, les métabolites intermédiaires et les produits issus de l'activité microbienne. Le taux de croissance est fonction du taux de consommation du substrat le plus limitant. Il n'est pas nécessaire de considérer les substrats qui ne sont pas limitants. Si plusieurs d'entre eux sont limitants, leurs concentrations respectives doivent être calculées simultanément (Wanner et al., 2006). Ce cas se présente dans les réacteurs à biofilm aérés sur membrane étudiés ici. La matière organique est consommée par les bactéries hétérotrophes du biofilm en présence d'oxygène. Les deux substrats (matière carbonée et oxygène) sont susceptibles d'être limitant dans le biofilm et sont donc tous deux pris en compte dans les modèles. Les autres substrats en excès par rapport à la consommation maximale de la matière organique ne sont pas pris en considération dans les cinétiques de réaction.

### 2.2.2 Les composés particuliers

La catégorie des composés particuliers englobe les bactéries actives, inertes ou mortes, les EPS, et tous autres composés particuliers, organiques ou inorganiques, piégés dans la matrice biofilm.

## 2.3 Processus et transfert de matière

Au sein d'un biofilm, les phénomènes de réaction et de transfert de matière sont étroitement liés : l'utilisation du substrat dans le biofilm génère des gradients de concentration qui influencent les phénomènes de diffusion. Donc, les microorganismes sont exposés à différentes concentrations en substrats, en conséquence l'activité et la vitesse de croissance des microorganismes varient avec la position dans le biofilm.

Le coefficient de diffusivité relative est utilisé pour comparer la diffusion de la molécule d'intérêt dans le biofilm à sa valeur dans l'eau. Il permet de prendre en compte les phénomènes de transport subis par la molécule.

Dans les modèles étudiés, on suppose le biofilm en régime permanent. La phase d'adhésion de la biomasse n'est pas prise en compte et l'intérêt ne se porte pas sur les phénomènes de transfert de la biomasse mais plutôt sur le transfert des nutriments une fois le biofilm établi.

### **3 DESCRIPTION DES MODELES**

Avant d'être étudiés dans le cadre de ce travail, les deux modèles sont présentés et comparés.

#### **3.1 Procédés de transformation biologiques**

Dans chacun des modèles, les biofilms consomment de la matière organique en présence de bactéries hétérotrophes mais les processus réactionnels mis en jeu sont différents. Le modèle écrit par Semmens prend en compte, en plus de la croissance bactérienne, les processus de lyse de la biomasse et l'hydrolyse des composés organiques peu solubles (Figure IV-2). C'est pourquoi dans la suite de l'étude nous appellerons ce modèle : le modèle RTR pour : Réaction – Transformation – Régénération. L'autre modèle qui ne prend en compte que les réactions de consommation de la DCO est appelé modèle RT pour : Réaction – Transformation. Cependant, les constantes de ce modèle ont été calibrées expérimentalement par les auteurs directement sur un réacteur à biofilm. Elles prennent donc indirectement en compte les réactions de régénération de la biomasse.

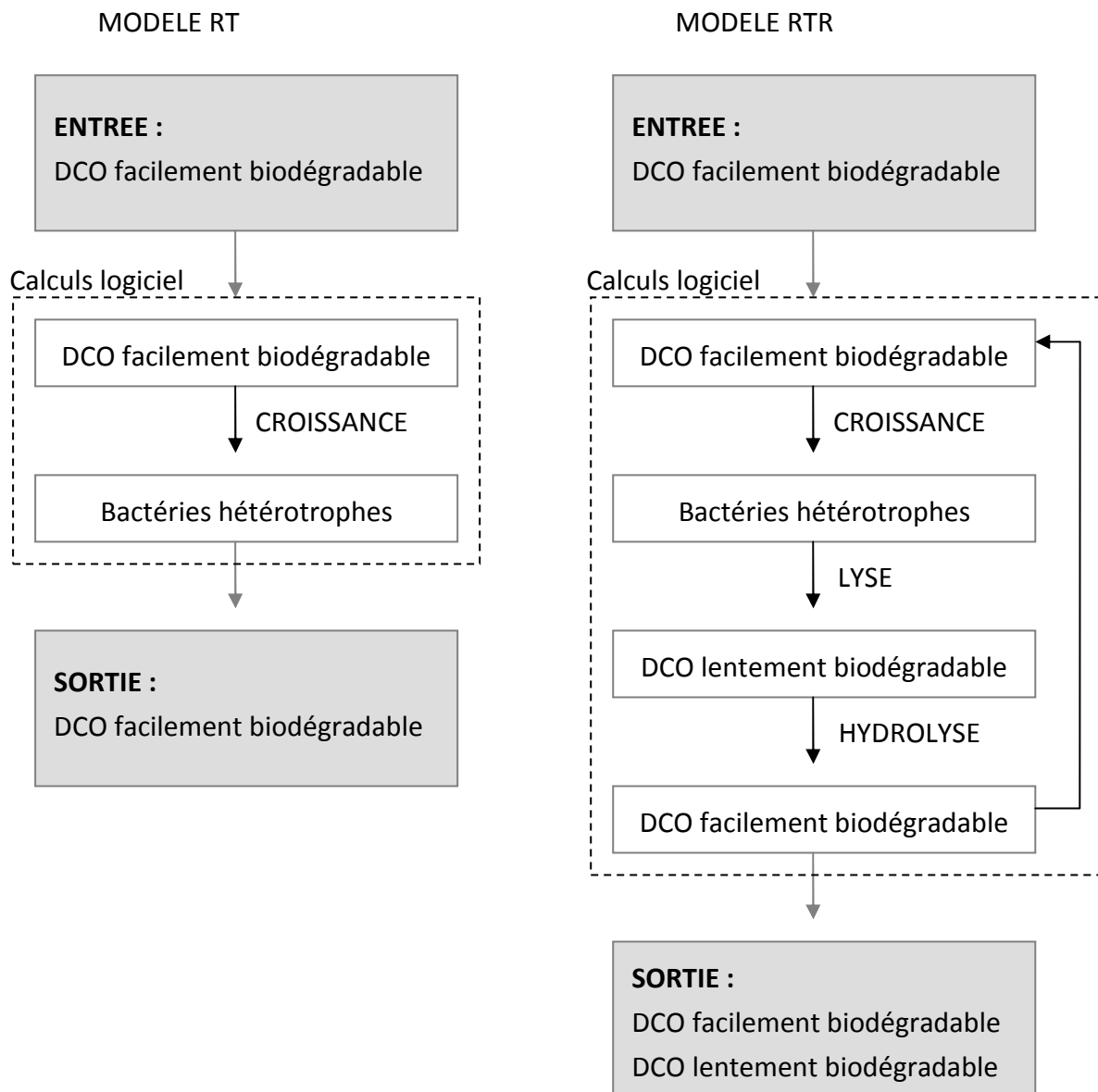


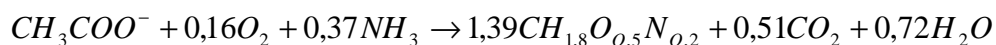
Figure IV-2 : Schéma des procédés de transformation pour les modèles RT et RTR pour les réactions de DCO

Les différentes étapes de transformation de la matière organique (croissance, lyse et hydrolyse) prises en compte dans les modèles sont expliquées ci-dessous.

### 3.1.1 Etapes de transformation de la matière organique

#### a) Croissance hétérotrophe

La matière organique facilement biodégradable est consommée par les bactéries hétérotrophes. La réaction de consommation est présentée Équation IV-1. (Casey et al., 2000b)



Équation IV-1

Les résultats expérimentaux présentés chapitre III, Figure III-25, montrent une consommation d'oxygène, signe de la présence de bactéries hétérotrophes aérobies. Les gaz issus du pilote présentent des traces de méthane. Ces traces sont le signe de croissances bactériennes hétérotrophes anaérobies.

Ceci est en accord avec le fait que les bactéries ont pour origine les boues activées aérobies de station d'épuration. Par des bilans matières, les modèles ont permis de quantifier que la quantité de bactéries anaérobies dans le biofilm représente moins de 2% des bactéries. Elles seront prises en compte dans les modèles pour vérification de leur influence.

#### b) Lyse cellulaire

Le modèle RTR prend en compte la lyse bactérienne ou mort des bactéries. Ce mécanisme est responsable d'une diminution de la quantité de la biomasse. Il libère *in situ* de la matière organique sous forme de DCO complexe qui sera transformée ensuite en DCO soluble via un processus d'hydrolyse qui a lieu à la surface des bactéries. Cette DCO sera ensuite consommée par la biomasse. C'est le concept de « mort-régénération ».

#### c) Processus d'hydrolyse

La matière organique peut être soluble, et donc directement assimilable, ou particulaire et alors nécessiter une hydrolyse (catalysée par des enzymes extracellulaires) avant d'être consommée. Dans l'étude expérimentale présentée ici, l'effluent synthétique est composé uniquement de substrats solubles (Acétate de sodium) facilement assimilables. Les substrats hydrolysables, s'il y en a, ne proviennent donc que de la lyse cellulaire.

La lyse bactérienne et l'hydrolyse impactent donc négativement la consommation de la matière organique entrant dans le pilote puisqu'ils sont une source de matière organique facilement assimilable.

### 3.1.2 Bilan des processus biologiques et valeurs des paramètres retenus pour les modèles

#### a) Bilan des variables prises en compte dans chaque modèle

Les composés solubles et particulaires utilisés dans les modèles RT et RTR sont décrits dans le Tableau IV-1.



	<b>Modèle RTR</b>	<b>Modèle RT</b>
<b>Variables relatives aux composés solubles</b>	<p><math>S_O</math> : Concentration en oxygène dissous</p> <p><math>S_S</math> : Concentration en substrat organique rapidement biodégradable</p> <p><math>S_{CO_2}</math> : Concentration en dioxyde de carbone</p> <p><math>S_{CH_4}</math> : Concentration en méthane</p> <p><math>S_{Neon}</math> : Concentration en néon</p>	<p><math>S_O</math> : Concentration en oxygène dissous</p> <p><math>S_S</math> : Concentration en substrat organique rapidement biodégradable</p> <p><math>S_{neon}</math> : Concentration en néon</p>
<b>Variables relatives aux composés particuliers</b>	<p><math>X_H</math> : Concentration en biomasse hétérotrophe aérobie</p> <p><math>X_{HA}</math> : Concentration en biomasse hétérotrophe anaérobie</p> <p><math>X_S</math> : Concentration en substrat lentement biodégradable</p>	<p><math>X_H</math> : Concentration en biomasse hétérotrophe aérobie</p>

**Tableau IV-1 : Variables utilisées représentant les composés solubles et particuliers en fonction des modèles RT et RTR**

b) Processus pris en compte

Le modèle RTR prend en compte la croissance et la lyse des bactéries hétérotrophes aérobies et anaérobies ainsi que les réactions d'hydrolyse. Les auteurs ont suivis le modèle ASM1 excepté pour la réaction d'hydrolyse qui est d'ordre zéro dans le cas présenté. Le modèle RT prend en compte uniquement la réaction de croissance des bactéries hétérotrophes aérobies. La cinétique de croissance des bactéries hétérotrophes aérobies a été écrite de la même manière, en suivant une loi de Monod, par les différents auteurs. Les constantes nécessaires à l'écriture des cinétiques ont été soit déterminées expérimentalement soit issues du modèle RTR. Ces constantes ont ensuite été utilisées dans les deux modèles.

Les cinétiques de chaque processus sont décrites dans le Tableau IV-2.

c) « Stœchiométrie » des processus considérés

Les coefficients « stœchiométriques » des composés considérés pour chaque processus sont présentés dans le Tableau IV-3.

	Processus gMVS m <sup>-3</sup> j <sup>-1</sup>	Cinétiques	Modèle RTR	Modèle RT
$\rho_1$	Croissance des bactéries hétérotrophes aérobies	$\mu_H \cdot X_H \cdot \frac{S_S}{S_S + K_S} \cdot \frac{S_O}{S_O + K_{O_2}}$	X	X
$\rho_2$	Croissance des bactéries hétérotrophes anaérobies	$Y_{HA} \cdot k_{HA} \cdot X_{HA} \cdot \frac{S_S}{S_S + K_{S,HA}} \cdot \left( \frac{K_{in\_O_2}}{S_O + K_{in\_O_2}} \right)^{100}$	X	
$\rho_3$	Lyse des bactéries hétérotrophes aérobies	$b_H \cdot X_H$	X	
$\rho_4$	Lyse des bactéries hétérotrophes anaérobies	$b_{HA} \cdot X_{HA}$	X	
$\rho_5$	Hydrolyse	$\frac{k_H \cdot X_S}{K_x}$	X	

Tableau IV-2 : Cinétiques retenues des processus dans les modèles RTR et RT. Les variables utilisées sont décrites au paragraphe suivant

Processus sur le composé d'intérêt	S <sub>O</sub>	S <sub>S</sub>	S <sub>CO2</sub>	S <sub>CH4</sub>	X <sub>H</sub>	X <sub>HA</sub>	X <sub>S</sub>
$\rho_1$ Croissance des bactéries hétérotrophes aérobies	$-\frac{O_2\_COD}{Y\_H}$	$-\frac{1}{Y\_H}$			1		
$\rho_2$ Croissance des bactéries hétérotrophes anaérobies		$-\frac{1}{Y\_HA}$		$\frac{1-Y\_HA}{Y\_HA}$		1	
$\rho_3$ Lyse des bactéries hétérotrophes aérobies					-1		1,42
$\rho_4$ Lyse des bactéries hétérotrophes anaérobies						-1	1,42
$\rho_5$ Hydrolyse		1					-1

Tableau IV-3 : Coefficients « stœchiométriques » des processus considérés dans les modèles RTR et RT. Les signes « - » indiquent une consommation de la molécule, et les signes « + » une production

#### d) Détermination des constantes

Dans les modèles RT et RTR, les auteurs ont développé expérimentalement des populations bactériennes différentes. Nous avons adapté les constantes utilisées pour les cinétiques de réaction du Tableau IV-2 à une biomasse issue de boue activée. Comme celle utilisée par Shanahan et Semmens (2004) d'où vient le modèle RTR. Les constantes utilisées sont présentées Tableau IV-4.

Symbole	Définition	Valeur modèle	Origine
<b>Bactéries hétérotrophes aérobies</b>			
$\mu_H$	Vitesse de croissance maximale	$5,3 \text{ j}^{-1}$	Expérimentale (Vernay, 2010)
$K_S$	Constante de demi-saturation pour la DCO	$43,8 \text{ g m}^{-3}$	Expérimentale (Vernay, 2010)
$K_O$	Constante de demi-saturation pour l'oxygène	$0,15 \text{ g m}^{-3}$	Shanahan et Semmens (2004)
$b_H$	Vitesse de mortalité spécifique	$0,06 \text{ j}^{-1}$	Shanahan et Semmens (2004)
$O2\_COD$	Ratio d'oxygène consommé par DCO consommé	$0,473 \text{ gO}_2 \text{ gDCO}^{-1}$	Shanahan et Semmens (2004)
$Y\_H$	Taux de conversion	$0,6 \text{ gMVS gDCOconsommé}^{-1}$	Shanahan et Semmens (2004)
<b>Bactéries hétérotrophes anaérobies</b>			
$k_{HA}$	Vitesse d'utilisation spécifique	$3,27 \text{ gDCO gMVS}^{-1} \text{ j}^{-1}$	Shanahan et Semmens (2004)
$K_{S,AH}$	Constante de demi-saturation pour la DCO	$28 \text{ g m}^{-3}$	Shanahan et Semmens (2004)
$K_{in\_O2}$	Constante d'inhibition par l'oxygène	$0,15 \text{ g m}^{-3}$	Shanahan et Semmens (2004)
$b_{HA}$	Vitesse de mortalité spécifique	$0,03 \text{ j}^{-1}$	Shanahan et Semmens (2004)
$Y\_AH$	Taux de conversion	$0,053 \text{ gMVS gDCO}^{-1}$	Shanahan et Semmens (2004)
<b>Autres paramètres</b>			
$k_H$	Constantes de vitesse de la lyse cellulaire	$3 \text{ gDCOcomplexe gDCOcellulaire}^{-1} \text{ j}^{-1}$	Shanahan et Semmens (2004)
$K_X$	Constante de demi-saturation pour l'hydrolyse des cellules lysées	$0,03 \text{ gDCO complexe gDCOcellulaire}^{-1}$	Shanahan et Semmens (2004)
	Concentration en matière solide du biofilm	$48\,000 \text{ gMVS m}^{-3}$	Shanahan et Semmens (2004)

**Tableau IV-4 : Liste des différents paramètres cinétiques des modèles. MVS : Matières Volatiles en Suspensions**

Les valeurs des constantes présentées dans le tableau précédent sont soit déterminées expérimentalement dans un réacteur batch avec une culture de cellules libres (Vernay, 2010), soit reprises du modèle RTR. Les auteurs avaient utilisé des valeurs issues d'une moyenne des valeurs déterminées dans la bibliographie (Metcalf et Eddy, 1991 ; Bradley et Brodkorb, 1999 ; Rittman et Manem, 1992 ; Gujer et Henze, 1991 ; Chen et al., 1988 ; Essila et al., 2000).

Pour les constantes  $\mu_H$  et  $K_S$  des cinétiques de la croissance de la biomasse hétérotrophe aérobie, les ordres de grandeurs déterminés expérimentalement sont identiques à ceux qui avaient été choisis dans le modèle RTR par les auteurs.

### 3.2 Processus physiques

#### 3.2.1 Sous-couche diffusionnelle

L'épaisseur de la sous-couche diffusionnelle liquide est déduite de mesures expérimentales réalisées en absence de biofilm sous les mêmes conditions hydrodynamiques que celles dans lesquelles le biofilm est développé.

#### 3.2.2 Transport dans le biofilm

Le code d'Aquasim<sup>®</sup> prend en compte les phénomènes de convection liés à la croissance et à la lyse bactérienne dans la matrice biofilm. En effet dans ce modèle, les microorganismes, lors de leur croissance, déplacent l'eau contenue dans les pores du biofilm, ces déplacements sont compensés par des flux d'eau. Ce mécanisme a été quantifié dans notre cas et s'est avéré négligeable par rapport à la diffusion calculée par le modèle et au vu de nos vitesses de réactions.

Ensuite, le code d'Aquasim<sup>®</sup> prend en compte les phénomènes de diffusion en les pondérant par la fraction d'eau dans le biofilm (Reichert, 1998), ceci correspond à la diffusion dans les pores du biofilm et non dans le biofilm entier.

Le modèle RT prend en compte le transfert de matière dans le biofilm comme étant égal au coefficient de diffusion dans l'eau corrigé du coefficient de diffusivité relative. Celui-ci est déterminé par l'équation de Fan et al. (1990), citée au chapitre I et rappelé ci-dessous.

$$D_{eff} = \frac{D_{biofilm}}{D_{eau}} = 1 - \frac{0,43 \cdot \rho_{biofilm}^{0,92}}{11,19 + 0,27 \cdot \rho_{biofilm}^{0,99}}$$

Équation IV-2

### 3.2.3 Valeurs des coefficients de diffusion

Les valeurs retenues des coefficients de diffusion dans l'eau des composés solubles pour nos calculs sont reportées dans le Tableau IV-5.

Symbole	Définition	Valeur modèle	Source
$D_{O_2}$	Diffusion de l'oxygène	$2,0 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$	Haynes, (2010)
$D_{DCO}$	Diffusion de la DCO	$9,5 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$	Shanahan et Semmens, (2004)
$D_{Neon}$	Diffusion du Néon	$3,6 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$	Haynes, (2010)

**Tableau IV-5 : Coefficients de diffusion des espèces solubles dans l'eau**

### 3.2.4 Valeurs des constantes de Henry utilisées

Les valeurs retenues des constantes de Henry d'équilibre entre les phases gazeuses et liquide de l'oxygène et du néon pour nos calculs sont reportées dans le Tableau IV-6.

Symbole	Définition	Valeur modèle	Source
$H_{O_2}$	Constante de Henry de l'oxygène	$1,3 \times 10^{-3} \text{ mol L}^{-1} \text{ atm}^{-1}$	Sander, (1999)
$H_{Neon}$	Constante de Henry du néon	$4,5 \times 10^{-4} \text{ mol L}^{-1} \text{ atm}^{-1}$	Sander, (1999)

**Tableau IV-6 : Constantes de Henry des espèces gazeuses entre l'eau et la phase gazeuse**

## 4 VALIDATION DES MODELES

Avant toute exploitation des modèles, l'adéquation entre les résultats calculés et expérimentaux doit être évaluée. La comparaison porte dans un premier temps sur le transfert de la molécule traceur (le néon) de la phase liquide à la phase gazeuse. Ceci afin d'adapter les transferts de matière si besoin. Dans un deuxième temps, la consommation de la DCO et d'oxygène par le biofilm ont été comparés.

Pour rappel, chaque expérience a été menée avec plusieurs cellules en parallèle. Chaque expérience correspond à un jeu de conditions hydrodynamiques sauf l'expérience 2 qui présente deux jeux de conditions. Les couples de propriétés physiques du biofilm déterminés expérimentalement (épaisseur du biofilm et diffusivité relative) pour ces expériences et utilisés dans chaque modèle sont rappelés Tableau IV-7. Pour les expériences où plus de deux cellules ont été utilisées en parallèle, seuls les résultats de deux cellules ont été retenues, soit parce que les résultats n'ont pas été mesurés expérimentalement, soit parce que les épaisseurs et diffusivité relative sont très proches de celles présentées.

Les cellules dans le pilote expérimental sont en parallèle et sont reliées entre elles par la phase liquide via une boucle de recirculation. C'est pourquoi les transferts sont déterminés pour chaque cellule mais les vitesses de consommations de la DCO dans la phase liquide sont calculées pour l'ensemble des cellules.

Les conditions des expériences ainsi que les couples de résultats (épaisseur et diffusivité relative) sur les caractéristiques du biofilm sont rappelées Tableau IV-7.

Expériences	Cellule	Nombre de Reynolds	Contrainte de cisaillement (Pa)	Epaisseur du biofilm (mm)	Diffusivité relative (-)
1	Cellule 1	1880	$6,1 \times 10^{-2}$	2,7	0,74
	Cellule 2			2,1	0,55
2	Cellule 1	1880	$6,1 \times 10^{-2}$	1,35	0,56
	Cellule 2	643	$2,1 \times 10^{-2}$	1,5	0,46
3	Cellule 1	3190	$1,8 \times 10^{-1}$	1,4	1,65
	Cellule 2			1,3	1,17
4	Cellule 1	2885	$6,1 \times 10^{-2}$	2,1	0,65
	Cellule 2			2,2	0,79

Tableau IV-7: Récapitulatif des propriétés du biofilm : épaisseur et diffusivité relative pour chacune des expériences menées

#### 4.1 Validation du calcul de transfert de matière

##### 4.1.1 Mise en œuvre des modèles

En introduisant les résultats expérimentaux (épaisseur du biofilm et de la couche limite) dans les modèles, nous calculons avec les modèles RT et RTR les flux de néon. Ces résultats sont comparés aux valeurs expérimentales Figure IV-3.

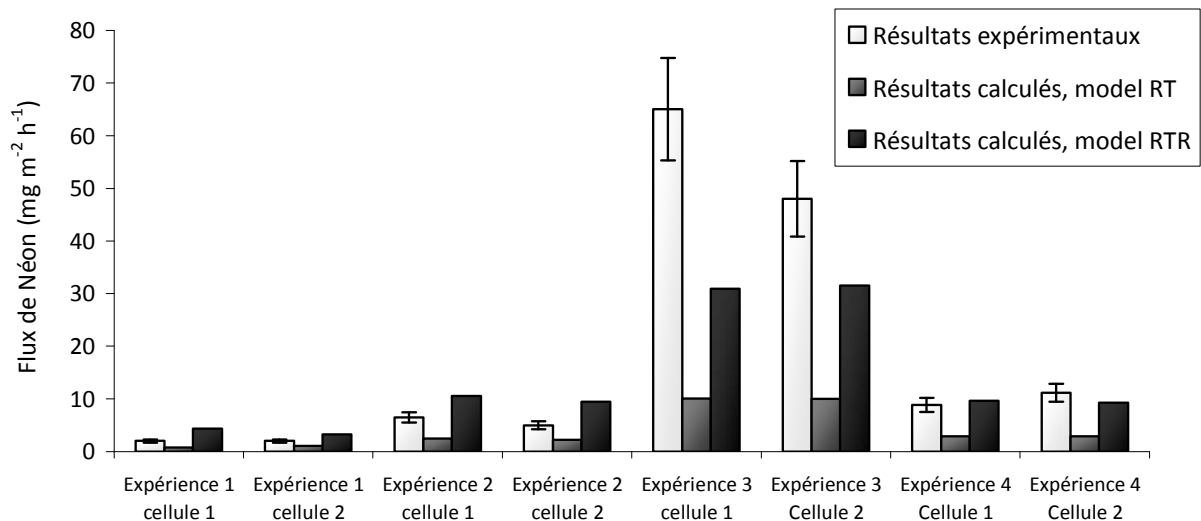


Figure IV-3 : Résultats expérimentaux et calculés du transfert de néon pour chaque cellule par les modèles RT et RTR tel qu'utilisés par les équipes de M. Semmens et E. Casey

Les résultats de la Figure IV-3 montrent que le modèle RT sous-estime les résultats expérimentaux. Le modèle RTR est plus proche des résultats expérimentaux, mais reste très

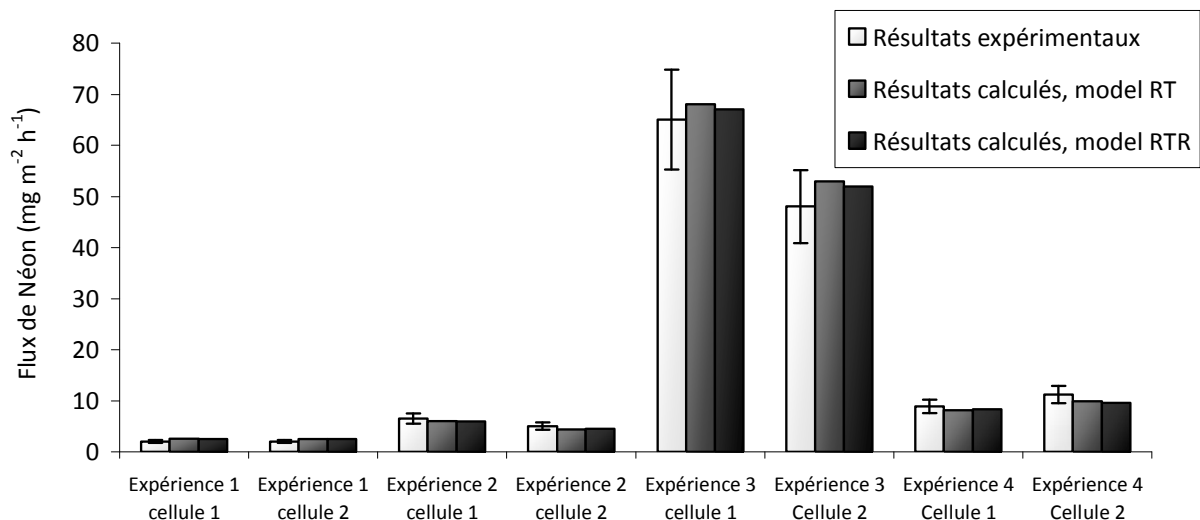
éloigné pour l'expérience 3. En effet, cette expérience est celle où le coefficient de diffusivité relative est le plus élevé.

Ces résultats s'expliquent par les valeurs du coefficient de diffusivité relative calculées par les modèles. Pour la cellule 1 de l'expérience 4 par exemple, nous trouvons expérimentalement une valeur de 0,6 alors que la diffusivité relative calculée sous le modèle RT est de 0,3. Le flux de néon calculé par le modèle RT est donc plus faible. Le modèle RTR prend en compte le transfert de matière à travers la porosité du biofilm et considère une diffusivité relative de 0,9. Le modèle RTR surestime donc le transfert de néon dans ce cas.

Nous avons introduit les coefficients de diffusivités relatives mesurés (chapitre III) dans les modèles et examinons les résultats à nouveau Figure IV-4.

#### 4.1.2 Utilisation de la diffusivité relative expérimentale dans les modèles de biofilms

Les valeurs expérimentales de diffusivité relative ont été introduites dans les modèles au lieu des valeurs calculées. Les résultats sont présentés Figure IV-4.



**Figure IV-4 : Résultats expérimentaux et calculés du transfert de néon par les modèles RTR et RT avec l'utilisation de la diffusivité relative déterminée expérimentalement**

On voit que l'utilisation du coefficient de diffusivité relative expérimental dans les deux modèles rapproche les résultats calculés des deux modèles qui sont maintenant en accord avec les résultats expérimentaux. Les résultats calculés du flux à travers les deux modèles sont très proches.

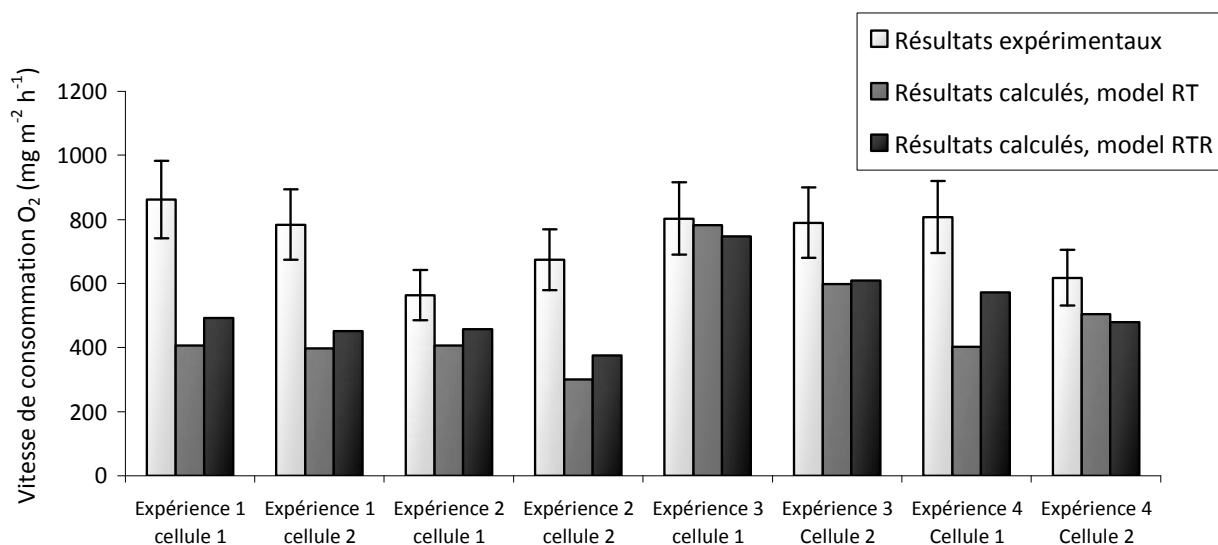


Les résultats calculés pour le transfert de matière à travers le biofilm par les modèles RT et RTR nécessitent donc une détermination directe des transferts radiaux ou une meilleure loi d'estimation de la valeur de la diffusivité relative que celle correspondant à l'Équation IV-2.

Le transfert de matière est maintenant validé. L'étape suivante consiste à confronter les résultats calculés aux mesures de vitesses de consommation de l'oxygène et de la DCO.

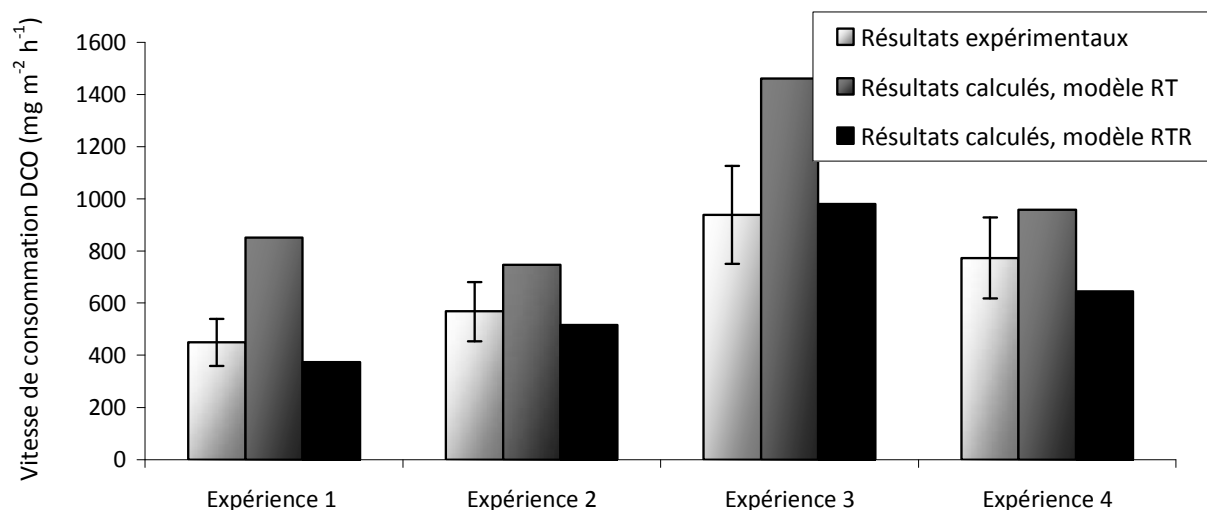
#### 4.2 Validation de la consommation du carbone organique et de l'oxygène

Les Figure IV-5 et Figure IV-6 comparent les résultats calculés en utilisant les diffusivités relatives déterminées expérimentalement avec les vitesses de consommation en DCO et de l'oxygène expérimentales.



**Figure IV-5 : Comparaison des résultats expérimentaux et des résultats calculés avec les modèles RT et RTR pour la vitesse de consommation de l'oxygène. Les résultats des modèles ont été calculés avec les propriétés déterminées expérimentalement sur le biofilm (épaisseur et diffusivité relative)**

La consommation d'oxygène calculée par les deux modèles n'est pas significativement différente (Figure IV-5). Une seule expérience sur les six présentées a des résultats expérimentaux proches des résultats calculés : la cellule 1 de l'expérience 3. Pour les expériences 2, 3 et 4, l'écart entre les flux d'oxygène mesurés et calculés est de 35% maximum pour le modèle RTR et 60% pour le modèle RT. Pour l'expérience 1, l'écart est de 75% et 111% pour les deux cellules modélisées sous RTR et RT respectivement. Le biofilm développé dans cette cellule contient une quantité importante de champignons filamenteux. Leur présence pourrait expliquer cette différence. L'expérience 2, cellule 1, est l'exacte reproduction pour les conditions expérimentales de la condition 1. Le biofilm contient visiblement moins de champignons dans le deuxième cas et les résultats expérimentaux et calculés sont en adéquation, ce qui est une indication de la validité de cette hypothèse.



**Figure IV-6 : Comparaison des résultats expérimentaux et des résultats calculés avec les modèles RT et RTR pour la vitesse de consommation de la DCO. Les résultats des modèles ont été calculés avec les propriétés déterminées expérimentalement sur le biofilm (épaisseur et diffusivité relative)**

La Figure IV-6 représente la comparaison entre les consommations de DCO expérimentales et calculées. Les résultats obtenus sous le modèle RT surestiment la consommation de la DCO jusqu'à 90% (condition 1), par contre, le modèle RTR sont en adéquation avec les valeurs expérimentales. L'absence de prise en compte de la DCO complexe dans le biofilm semble donc pénaliser le modèle RT, alors que le modèle RTR reproduit bien (à l'incertitude près) la consommation de DCO mesurée.

### 4.3 Conclusion

Les différences entre les consommations de l'oxygène et de la DCO expérimentales et calculées sont plus importantes pour le modèle RT que pour le modèle RTR. Les auteurs du modèle RT ont observé que pour des concentrations DCO inférieure à 500 mg L<sup>-1</sup>, le modèle était très cohérent avec leurs résultats expérimentaux. Ils montrent que lorsque les concentrations en DCO augmentent, le modèle surestime la vitesse de réaction. Cette différence augmente d'autant plus avec la concentration en DCO. Les auteurs travaillent à des faibles concentrations, ce modèle est donc bien adapté au réacteur des auteurs et à l'utilisation qu'ils en ont.

Dans le cas présent nous avons comparé les résultats expérimentaux avec un modèle plus complet au vue du nombre de réactions, en utilisant les mêmes constantes issues de la bibliographie. Il s'est avéré être plus représentatif dans nos conditions expérimentales de nos résultats et retenu pour montrer l'activité du biofilm à l'échelle microscopique dans nos conditions expérimentales.

## 5 ANALYSE LOCALE DU FONCTIONNEMENT D'UN BIOFILM SUR MEMBRANE

### 5.1 Profils de concentration de l'oxygène et de la DCO dans le biofilm

A l'aide des modèles, il est possible de simuler les profils de concentrations en oxygène et en DCO dans le biofilm pour chacune des cellules des expériences menées précédemment. A titre de rappel, dans ces expériences, les charges volumiques en DCO sont gardées constantes, seules les conditions hydrodynamiques sont modifiées et leur influence a été étudiée expérimentalement sur deux propriétés du biofilm : diffusivité relative et épaisseur. Le Tableau IV-8 récapitule les vitesses expérimentales d'élimination de la DCO pour chaque condition hydrodynamique appliquée au biofilm. Les caractéristiques et les propriétés du biofilm liées à ces vitesses sont rappelées Tableau IV-7. Les profils de concentration en oxygène et en DCO calculés sont présentés sur les Figure IV-7 et Figure IV-8. Ces figures montrent les profils de concentrations pour les deux cellules de chaque condition hydrodynamique testée en fonction des vitesses de consommation de la DCO.

	Cellule	Vitesse d'élimination de la DCO ( $\text{mg m}^{-2} \text{h}^{-1}$ )
Expérience 1	Cellule 1	480
	Cellule 2	
Expérience 3	Cellule 1	938
	Cellule 2	
Expérience 4	Cellule 1	773
	Cellule 2	

Tableau IV-8: Récapitulatif de la vitesse expérimentale d'élimination de la DCO pour chacune des expériences menées

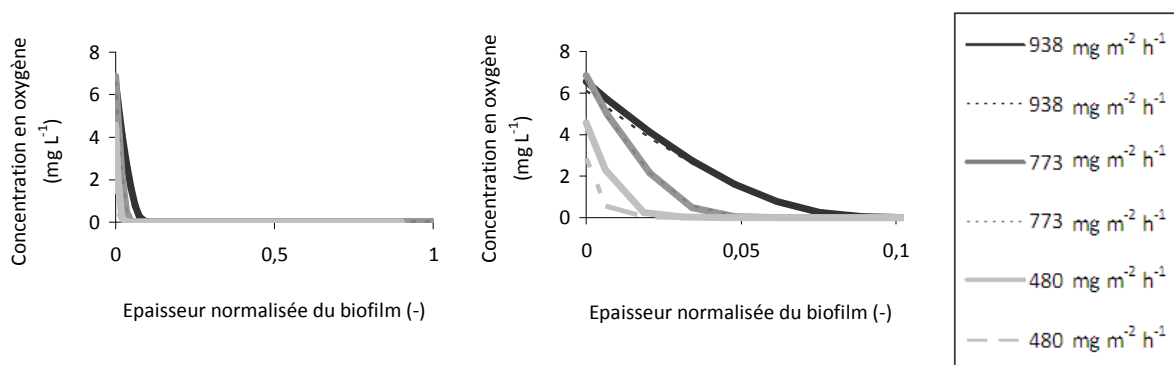
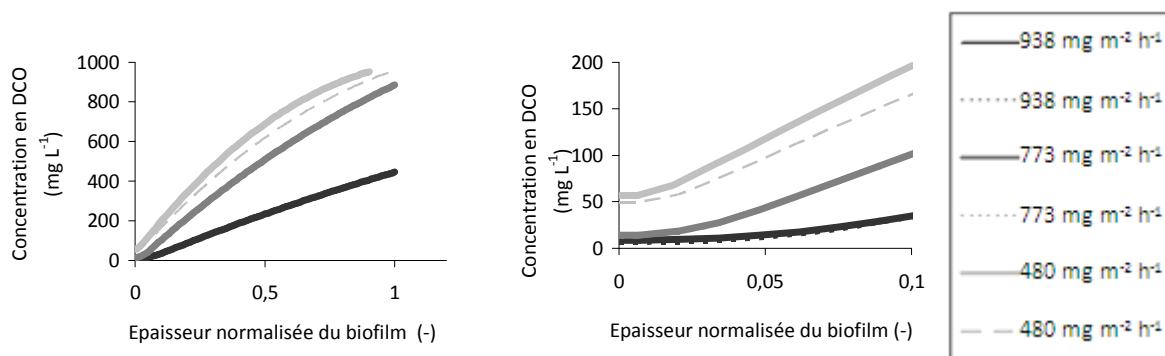


Figure IV-7 : Profils de concentration de l'oxygène dans le biofilm en fonction de l'épaisseur normalisée du biofilm et pour les différentes vitesses expérimentales de consommation de la DCO observées. L'abscisse «0» correspond à l'interface membrane - biofilm, l'abscisse «1» correspond à l'interface biofilm - liquide. Figure de gauche : toute l'épaisseur du biofilm est représentée. Figure de droite : les premiers 10% sont représentés



**Figure IV-8 : Profil de concentration de la DCO dans le biofilm, selon l'épaisseur normalisée du biofilm en fonction de la vitesse expérimentale de consommation de la DCO. L'abscisse « 0 » correspond à l'interface membrane - biofilm, l'abscisse « 1 » correspond à l'interface biofilm - liquide. A gauche : toute l'épaisseur du biofilm est représentée. A droite : les premiers 10% sont représentés**

La Figure IV-7 montre que l'oxygène diffuse à moins de 10 % de l'épaisseur totale du biofilm à partir de l'interface membrane - biofilm. La Figure IV-8 montre que la DCO diffuse sur toute l'épaisseur du biofilm, de la phase liquide jusqu'à la membrane. La réaction de consommation aérobie de la DCO et de l'oxygène par les bactéries a donc lieu proche de l'interface biofilm - membrane là où les deux substrats sont présents.

Le profil de concentration de la DCO n'est pas linéaire ; ceci est caractéristique des profils de diffusion-réaction. En effet, les réactions successives, de dégradation, de lyse et d'hydrolyse consomment ou produisent de la DCO, ce qui donne ce profil courbé à la concentration en DCO.

Afin de mettre en évidence l'importance du transfert de matière dans les flux de DCO et d'oxygène, le Tableau IV-9 rappelle le rapport de l'épaisseur du biofilm par la diffusivité relative. Ces deux valeurs influencent fortement le transfert.

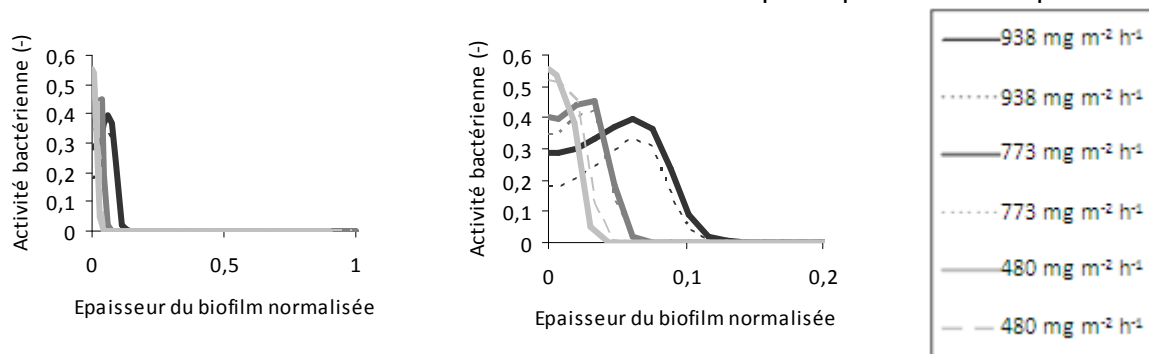
Vitesse d'élimination de la DCO (mg m <sup>-2</sup> h <sup>-1</sup> )	Epaisseur du biofilm (mm)	Diffusivité relative (-)	Rapport épaisseur du biofilm par la diffusivité relative	Conditions expérimentales	
938	1,4	1,65	0,8	Expérience 3	Cellule 1
	1,3	1,17	1,1		Cellule 2
773	2,1	0,65	3,2	Expérience 4	Cellule 1
	2,1	0,79	2,8		Cellule 2
480	2,7	0,74	3,6	Expérience 1	Cellule 1
	2,1	0,55	3,8		Cellule 2

**Tableau IV-9 : Comparaison du rapport de l'épaisseur expérimentale du biofilm par la diffusivité relative expérimentale dans le biofilm pour chaque condition hydrodynamique testée à la vitesse d'élimination de la DCO**

Les Figure IV-7 et Figure IV-8 ainsi que le Tableau IV-9 montrent que plus le rapport de l'épaisseur du biofilm par la diffusivité relative est petit, plus les profils de concentration de l'oxygène sont étalés dans le biofilm et plus ceux de la DCO décroissent rapidement dans l'épaisseur du biofilm du fait d'une plus grande consommation par les bactéries (rappel figure III-24)

## 5.2 Profils de l'activité bactérienne dans les biofilms

La Figure IV-9 montre les profils d'activité dans le biofilm (calculé selon l'Équation I-5, chapitre I) en fonction de la vitesse de consommation expérimentale de la DCO pour chacune des expériences menées. Les propriétés de chaque biofilm (diffusivité relative et épaisseur) étudiées expérimentalement au chapitre III ont été prises en compte dans les modèles. Comme précédemment, chaque condition hydrodynamique testée est représentée par sa vitesse de consommation et l'activité de deux cellules par expérience est représentée.



**Figure IV-9 : Profil de l'activité bactérienne dans le biofilm sur l'épaisseur de celui-ci. L'abscisse « 0 » correspond à l'interface membrane / biofilm, l'abscisse « 1 » correspond à l'interface biofilm / liquide. Figure de gauche : toute l'épaisseur du biofilm est représentée. Figure de droite : les premiers 15% du biofilm sont représentés**

La Figure IV-9 est déduite des Figure IV-7 et Figure IV-8 sur les profils de concentrations en oxygène et en DCO. Les profils d'activités sont fonction de la présence des deux substrats dans le biofilm.

La Figure IV-9 montre que dans les cas expérimentaux traités (même charge en DCO, même pression partielle mais conditions hydrodynamiques différentes), l'efficacité du biofilm est améliorée pour des profils d'activité dont les maximums sont plus faibles mais dont l'activité est plus étalée dans l'épaisseur du biofilm. L'activité totale est donc plus importante.

### 5.3 Conclusion

Ces résultats de simulation montrent que plus le rapport de l'épaisseur du biofilm par la diffusivité relative est petit plus le profil d'activité de la biomasse dans le biofilm est étalé sur l'épaisseur et plus la vitesse de consommation de la DCO est élevée.

## 6 EXPLOITATION DES MODELES

Le modèle RTR est utilisé par la suite pour évaluer l'impact de paramètres expérimentaux sur l'élimination de la DCO. Les quatre paramètres expérimentaux étudiés sont : la pression partielle en oxygène dans la phase gazeuse, la concentration en DCO dans l'alimentation de la phase liquide, la diffusivité relative dans le biofilm puis son épaisseur. Ils sont étudiés successivement.

### 6.1 Effets de la pression partielle en oxygène

#### 6.1.1 Conditions opératoires

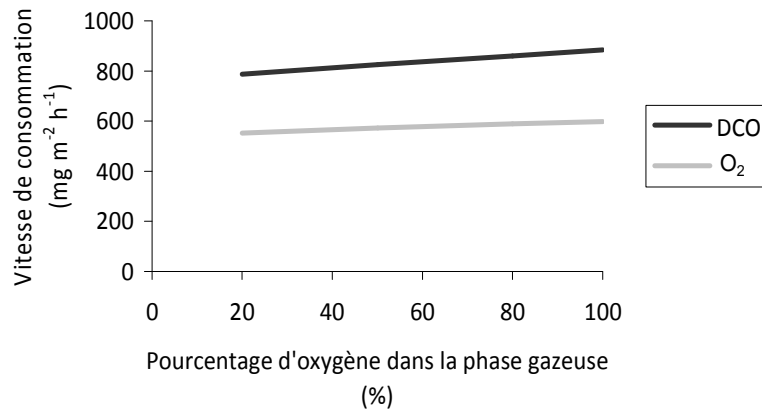
Une variation de la pression partielle en oxygène dans la phase gazeuse est simulée, les autres paramètres du procédé (volume du réacteur, surface de membrane, temps de séjour hydraulique) et du biofilm (épaisseur, diffusivité relative, concentration en biomasse) sont inchangés. Ils sont récapitulés Tableau IV-10.

Variable d'entrée	Valeur
Concentration en DCO dans l'alimentation	1400 puis 10 000 mg L <sup>-1</sup>
Epaisseur du biofilm	1,5 mm
Charge en DCO	52 puis 370 mg L <sup>-1</sup> h <sup>-1</sup>
Diffusivité relative	1
Porosité du biofilm	79 %

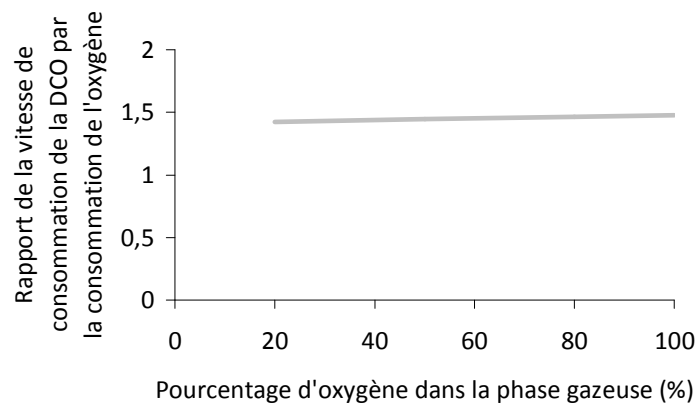
**Tableau IV-10 : Récapitulatif des données d'entrée du modèle utilisées pour observer les effets de la variation de la pression partielle en oxygène**

#### 6.1.2 Effet sur la vitesse de consommation de la DCO à concentration en DCO limitante

Les pressions partielles en oxygène choisies balayent une gamme allant de 20% (concentration dans l'air) à 100 % d'oxygène dans la phase gazeuse. Les résultats calculés des vitesses de consommation de la DCO et de l'oxygène sont présentés Figure IV-10. Le rapport de ces deux consommations est présenté Figure IV-11.



**Figure IV-10 : Effet de la concentration en oxygène dans la phase gazeuse sur la vitesse de consommation de la DCO et de l'oxygène dans la phase liquide**

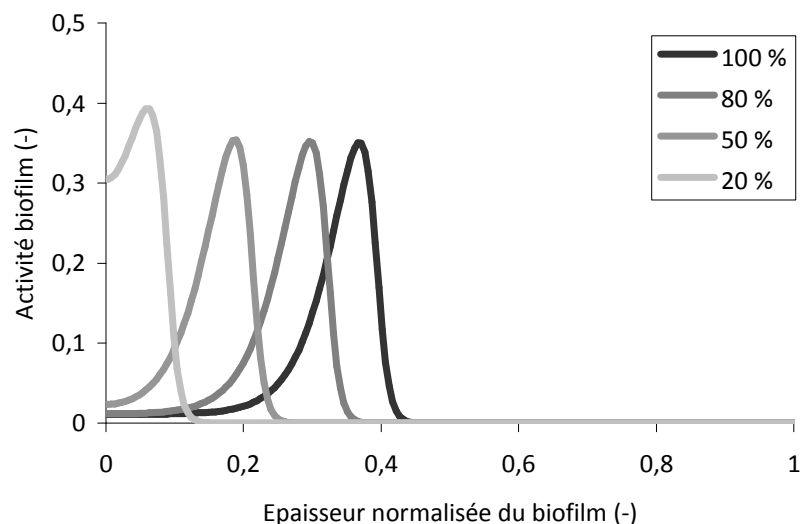


**Figure IV-11 : Rapport de la vitesse de consommation de la DCO par la vitesse de consommation de l'oxygène pour différentes concentration en oxygène dans la phase gazeuse**

La Figure IV-10 montre que lorsque la concentration en oxygène augmente de 400%, la consommation de la DCO n'augmente que de 12% et celle de l'oxygène de 8%. Les rapports de la consommation de la DCO par la consommation de l'oxygène augmentent légèrement de 4% (Figure IV-11). Ce rapport a une valeur moyenne de 1,5.

Ces résultats montrent qu'il n'est pas économique d'alimenter la phase gazeuse avec de l'oxygène pur pour cette concentration en DCO.

La Figure IV-12 montre les profils d'activité à l'intérieur du biofilm donc de la localisation de la réaction biologique pour les différentes pressions partielles en oxygène simulées.



**Figure IV-12 : Profil d'activité dans le biofilm en fonction de la pression partielle en oxygène dans la phase gazeuse. En abscisse, le point 0 correspond à l'interface membrane - biofilm**

La Figure IV-12 montre que plus la pression partielle en oxygène dans la phase gazeuse augmente, plus le maximum du profil d'activité dans le biofilm se déplace de l'interface membrane - biofilm vers la phase liquide pour finir au-delà du tiers de l'épaisseur. L'oxygène diffuse donc plus loin dans le biofilm avec l'augmentation de la pression partielle dans la phase gazeuse et est consommé plus loin dans le biofilm.

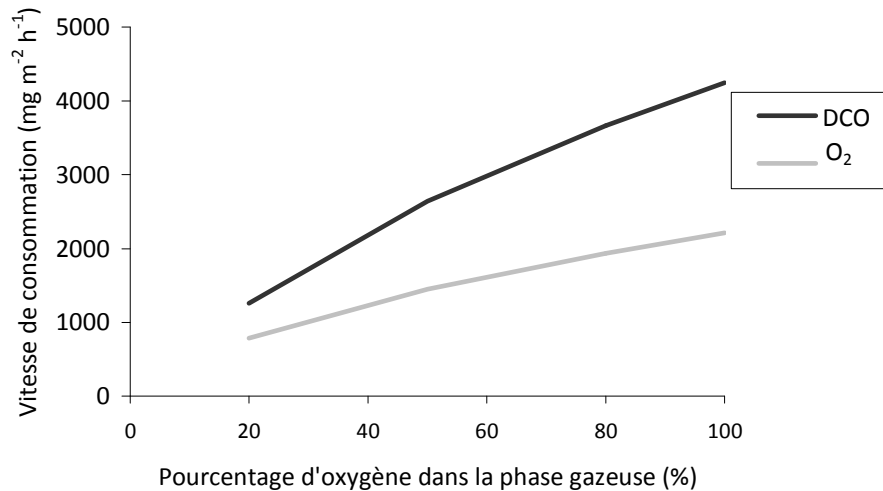
Le pic d'activité maximal varie très peu avec la pression partielle en oxygène. Dans le cas d'une pression partielle de 20% en oxygène, celui-ci est consommé directement à l'interface membrane - biofilm, ce qui explique un pic d'activité important.

La production de DCO soluble à partir des réactions de lyse bactérienne et d'hydrolyse de la DCO complexe est liée à deux équilibres. Le premier, la somme de la DCO complexe et de la biomasse est une constante. Le deuxième indique que la production de DCO complexe par la réaction de lyse a lieu en présence de bactéries uniquement, donc sur toute l'épaisseur du biofilm. De plus, elle est fonction de la concentration en bactéries. Par ailleurs, la réaction de consommation de la DCO produit des bactéries. Ainsi, plus le biofilm consomme de la DCO, plus il produit de la biomasse, donc plus il produit de la DCO soluble consommable par le biofilm en présence d'oxygène (Tableau IV-2).

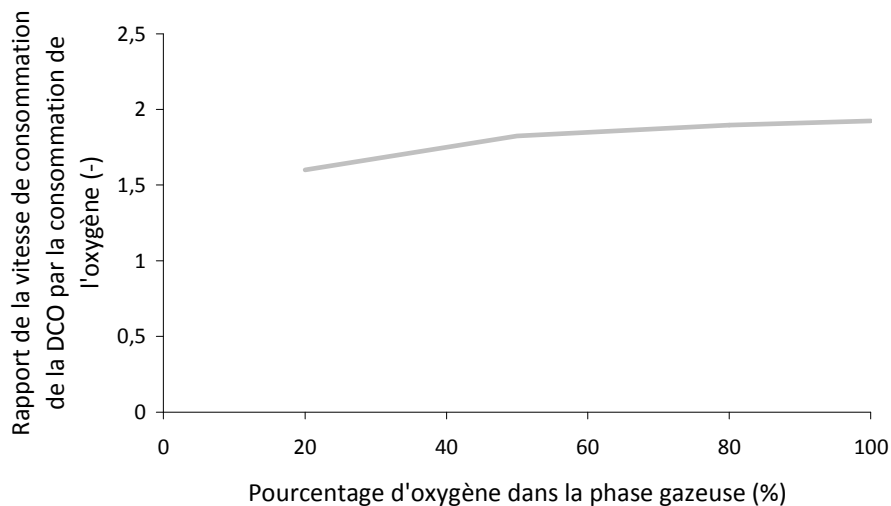
Ces observations expliquent que pour des pressions partielles en oxygène de 50% et plus, l'activité du biofilm est non nulle du côté de l'interface membrane - biofilm, avant le pic d'activité. Le biofilm consomme de la DCO soluble issue de la lyse bactérienne en présence d'oxygène. Après le pic d'activité, du côté de l'interface biofilm - liquide, il n'y a pas d'oxygène et l'activité bactérienne est nulle.



6.1.3 Effet sur la vitesse de consommation de la DCO à concentration en DCO non limitante  
De la même manière que précédemment, pour une gamme de pression partielle en oxygène de 20 à 100%, la vitesse de consommation de la DCO est tracée mais pour une concentration en DCO dans l'alimentation de  $10\,000\text{ mg L}^{-1}$ . Les résultats sont présentés Figure IV-13 et Figure IV-14.



**Figure IV-13 : Effet de la concentration en oxygène dans la phase gazeuse sur la vitesse de consommation de la DCO et de l'oxygène dans la phase liquide. Conditions expérimentales : épaisseur du biofilm = 1,5 mm ; diffusivité relative = 1 ; fraction d'eau dans le biofilm = 0,79 ; temps de séjour hydraulique = 1,125 j ; charge en DCO =  $370\text{ mg L}^{-1} \text{h}^{-1}$**



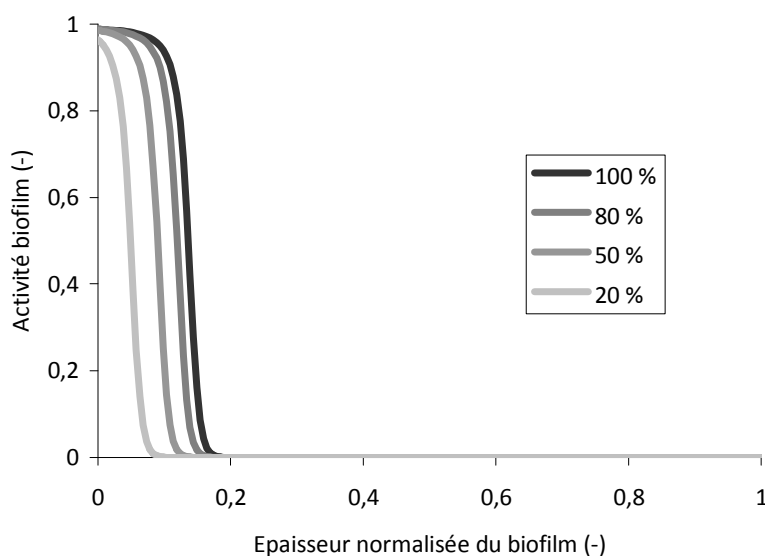
**Figure IV-14 : Rapport de la vitesse de consommation de la DCO par la vitesse de consommation de l'oxygène pour différentes concentrations en oxygène dans la phase gazeuse**

La Figure IV-13 montre que lorsque la pression partielle en oxygène augmente de 400 % à une concentration où la DCO n'est pas limitante, la vitesse de consommation de la DCO augmente de 240%. Les rapports de consommation de la DCO par l'oxygène augmentent de

20% pour se rapprocher de 2, signe d'une utilisation de la DCO de l'alimentation plutôt que la DCO issue de la DCO complexe (Figure IV-14).

Ces résultats montrent qu'à des concentrations en DCO élevées, il peut être intéressant d'augmenter la pression partielle en oxygène pour une meilleure élimination.

La Figure IV-15 montre les profils d'activité à l'intérieur du biofilm, donc la localisation de la réaction biologique, pour les différentes pressions partielles en oxygène simulées à des charges en DCO plus élevées dans l'alimentation.



**Figure IV-15 : Profil d'activité dans le biofilm en fonction de la pression partielle en oxygène dans la phase gazeuse. En abscisse, le point 0 correspond à l'interface membrane - biofilm**

La Figure IV-15 montre qu'à fortes concentrations en DCO, quelle que soit la pression partielle en oxygène, l'activité du biofilm a lieu du côté de l'interface membrane - biofilm. De plus, cette figure met en évidence que plus la pression partielle en oxygène augmente plus l'activité totale du biofilm augmente.

A l'échelle du réacteur, si le biofilm était purement diffusif avec un débit de liquide suffisamment élevé pour permettre une concentration en oxygène nulle dans la phase liquide, alors selon la loi de Fick, une augmentation de 400% de la pression partielle en oxygène devrait permettre de la même manière une augmentation du flux d'oxygène de 400%. Cependant, le flux d'oxygène calculé en présence d'un biofilm n'augmente que de 8% (Figure IV-10). La réactivité du biofilm modifie les flux. En effet, le flux de DCO transfère du liquide vers la membrane, il est consommé dans le biofilm. Les substrats sont en contre-diffusion.

#### 6.1.4 Conclusion

Sans considération de la réactivité d'un système biologique, donc en prenant en compte uniquement les phénomènes physiques, l'augmentation de la pression partielle en oxygène implique que l'oxygène diffuse plus loin sur l'épaisseur du biofilm et entraîne une très légère augmentation de la consommation en DCO pour des concentrations en DCO limitantes. Pour des concentrations en DCO élevées, l'augmentation de la pression partielle en oxygène va permettre d'augmenter la vitesse de consommation de la DCO. Le couplage des effets combinés de la pression partielle en oxygène et de la concentration en DCO est discuté au paragraphe 6.5. En effet, l'intérêt de l'augmentation de la pression partielle semble dépendre de la concentration en DCO. A l'échelle industrielle, la variation de la composition de la phase gazeuse a un coût important.

### 6.2 Effets de la concentration en DCO

#### 6.2.1 Conditions opératoires

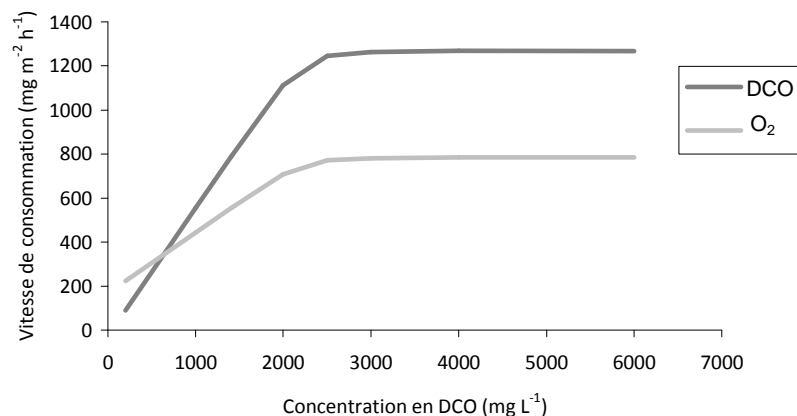
De la même manière que pour l'oxygène, le modèle RTR est utilisé pour simuler l'effet de la concentration en DCO dans l'alimentation sur les performances des RBAM. Plusieurs situations sont modélisées où seule la concentration en DCO est modifiée d'une simulation à l'autre. Les conditions opératoires sont présentées Tableau IV-11.

Variable d'entrée	Valeur
Temps de séjour hydraulique	1,125 j
Epaisseur du biofilm	1,5 mm
Composition de la phase gazeuse	20 %
Diffusivité relative	1
Porosité du biofilm	79 %

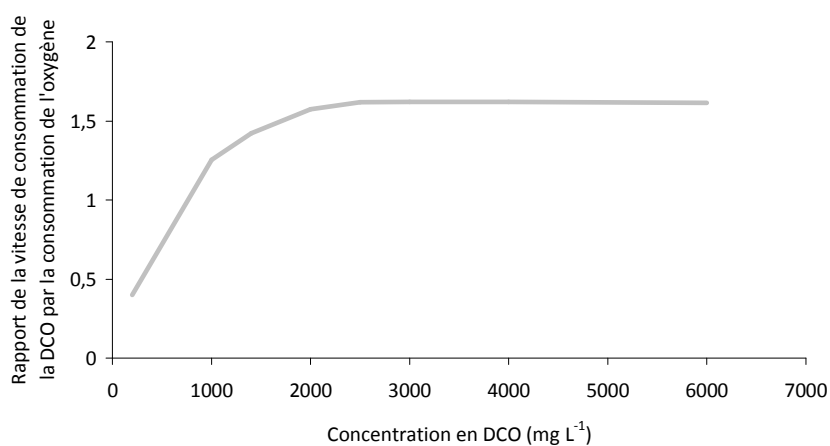
**Tableau IV-11 : Récapitulatif des données d'entrée du modèle utilisées pour observer les effets de la variation de la concentration en DCO**

#### 6.2.2 Effet sur la vitesse d'élimination de la DCO

Les concentrations en DCO testées balayent une gamme de concentrations de 200 mg L<sup>-1</sup> (concentration de la DBO<sub>5</sub> des eaux résiduaires urbaines), à 6 000 mg L<sup>-1</sup> (concentration en DBO<sub>5</sub> d'eaux issues de l'industrie) (Degremont, 1995). Les résultats sont présentés Figure IV-16 et Figure IV-17.



**Figure IV-16 : Vitesse de consommation de la DCO et de l'oxygène en fonction de la concentration en DCO en entrée**



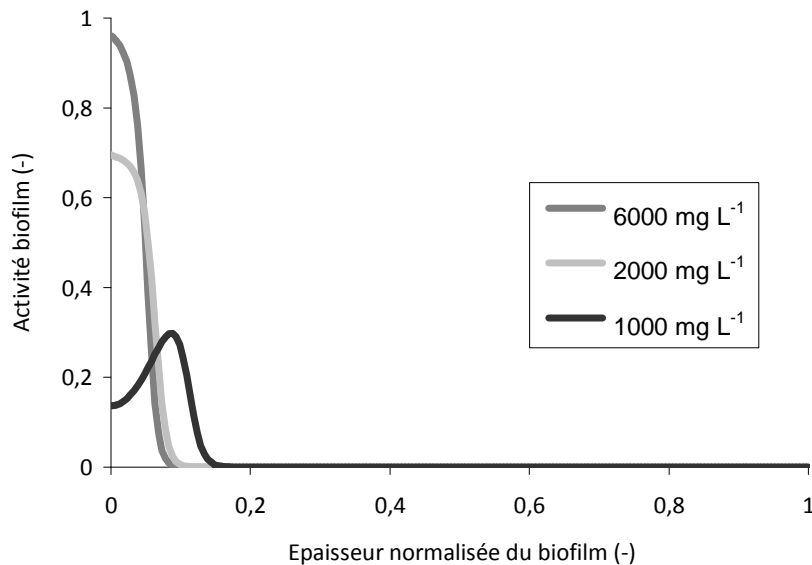
**Figure IV-17 : Rapport de la vitesse de consommation calculée de la DCO par la vitesse de consommation calculée de l'oxygène en fonction de la concentration en DCO dans l'alimentation**

La Figure IV-16 montre que pour des concentrations en DCO allant de 200 à 2500 mg L<sup>-1</sup> soit une augmentation de 1150%, les vitesses de consommation de la DCO et de l'oxygène augmentent de 1300% et 250% respectivement. Au-delà de 2500 mg L<sup>-1</sup>, les vitesses de consommation augmentent légèrement : pour une augmentation de 100% de la DCO, la vitesse de consommation de la DCO augmente de 1,7% et celle de l'oxygène de 1,6%.

La Figure IV-17 montre que le rapport de la consommation de la DCO par la consommation de l'oxygène augmente jusqu'à 1,6 pour une concentration en DCO de 2500 mg L<sup>-1</sup> et reste constante pour des concentrations en DCO supérieures. A forte concentration, l'oxygène est donc plus utilisé à dégrader la DCO issue de l'alimentation que celle issue de l'hydrolyse de la DCO complexe.

### 6.2.3 Effet sur les profils d'activités dans le biofilm

La Figure IV-18 représente les profils d'activités pour trois concentrations en DCO.



**Figure IV-18 : Résultats simulés du profil de concentration de l'activité bactérienne dans le biofilm pour différentes concentrations en DCO**

Plus la concentration en DCO est élevée plus l'activité a lieu dans le biofilm proche de l'interface membrane - biofilm (Figure IV-18). Pour des concentrations en DCO au-delà de 2500 mg L<sup>-1</sup>, valeur du seuil à laquelle la vitesse maximale est atteinte, l'activité est maximale et est située à la base du biofilm. Ce profil d'activité témoigne d'un profil de concentration de la DCO étalé dans le biofilm de l'interface biofilm - liquide jusqu'à l'interface biofilm - membrane. Ceci témoigne d'une augmentation du flux de DCO avec l'augmentation de la concentration. A l'inverse, l'oxygène est consommé directement à la base du biofilm et disparaît très rapidement lorsqu'il pénètre dans le biofilm à partir de la membrane.

La vitesse de réaction d'un RBAM est donc plus importante lorsque la concentration en DCO dans la phase liquide augmente. En effet, à forte concentration, la DCO diffuse jusqu'à la base du biofilm, ce qui entraîne une consommation de l'oxygène dès qu'il a transféré dans le biofilm, et donc une augmentation du transfert. La vitesse de consommation de la DCO est alors maximale, constante et indépendante de la concentration en DCO.

### 6.2.4 Conclusion

Les résultats calculés de la vitesse de consommation de la DCO augmentent jusqu'à une valeur seuil à partir de laquelle la vitesse d'élimination est maximale et constante. Ceci signifie qu'un biofilm développé en dessous de la valeur seuil de concentration, sera capable d'augmenter sa vitesse de consommation de la DCO et de répondre à une augmentation brutale de la concentration en DCO dans l'alimentation.

Si le biofilm est développé dans des conditions de concentration en DCO supérieure à ce seuil (ici de l'ordre de  $2000 \text{ mg L}^{-1}$ ), le réacteur ne sera pas en mesure de s'adapter à une augmentation de la charge.

### 6.3 Effets de la variation de la diffusivité relative dans le biofilm

#### 6.3.1 Conditions opératoires

L'objectif est d'utiliser le modèle RTR afin d'évaluer l'intérêt de favoriser expérimentalement la diffusivité relative en vu d'une amélioration des performances des RBAM, notamment en modifiant l'hydrodynamique de la veine liquide (chapitre III, paragraphe 3.3)

Comme précédemment, les paramètres de procédé (volume du réacteur, surface de membrane, temps de séjour hydraulique, charge en DCO) et du biofilm (épaisseur, concentration en biomasse) sont inchangés entre les modélisations. Les conditions opératoires sont rappelées dans le Tableau IV-12.

Variable d'entrée	Valeur
Concentration en DCO dans l'alimentation	$1400 \text{ mg L}^{-1}$
Epaisseur du biofilm	1,5 mm
Composition de la phase gazeuse	20 %
Charge en DCO	$52 \text{ mg L}^{-1} \text{ h}^{-1}$
Porosité du biofilm	79 %

Tableau IV-12 : Récapitulatif des données d'entrée du modèle utilisées pour observer les effets de la variation de la diffusivité relative dans le biofilm

#### 6.3.2 Effet sur la vitesse de consommation de la DCO et de l'oxygène

Les résultats calculés sont présentés Figure IV-19.

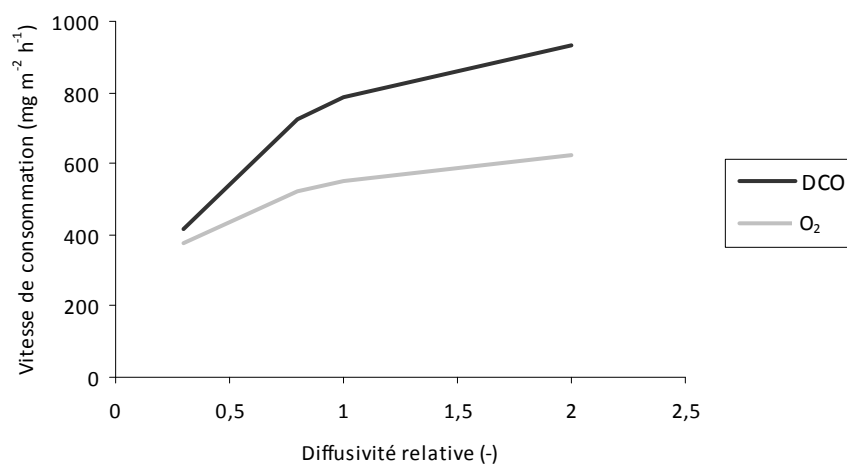
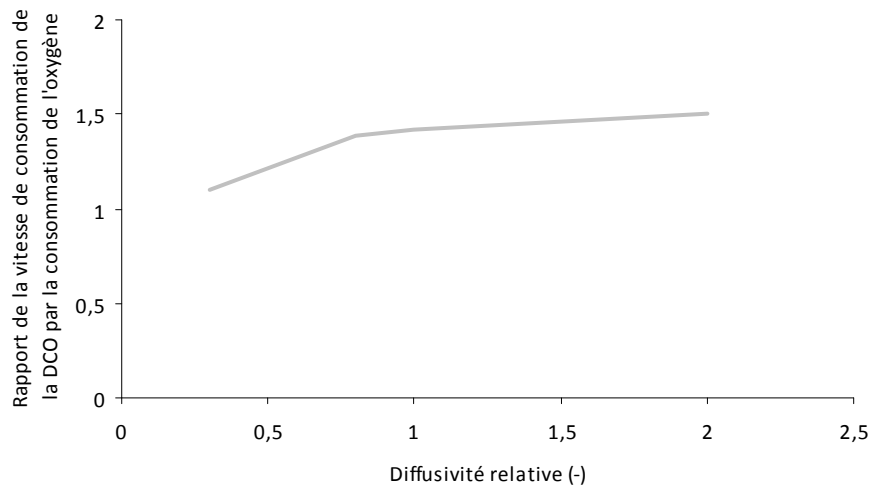


Figure IV-19 : Effet de la diffusivité relative dans le biofilm sur la vitesse de consommation de la DCO et de l'oxygène dans la phase liquide

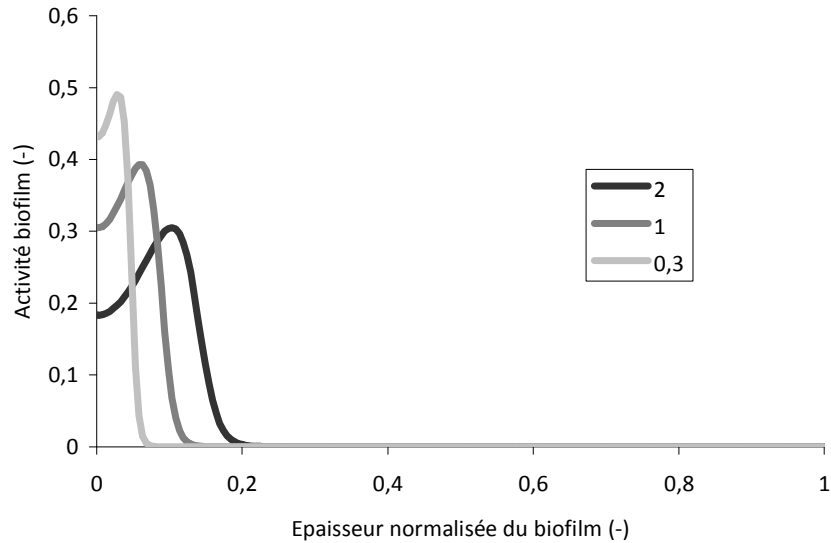


**Figure IV-20 : Effet de la diffusivité relative dans le biofilm sur le rapport de la vitesse de consommation de la DCO par celle de l'oxygène**

La Figure IV-19 montre que, pour des conditions expérimentales données, une augmentation de 560% de la diffusivité relative dans le biofilm conduit à une augmentation de 120% de la consommation de la DCO. En effet, avec l'augmentation de la vitesse de transfert de matière dans le biofilm, la DCO de la phase liquide pénètre plus rapidement dans le biofilm, et ce jusqu'à l'interface membrane - biofilm. La concentration en DCO soluble élevée à la membrane entraîne une consommation par le biofilm, qui induit une activité bactérienne intense à cet endroit et il en résulte un flux d'oxygène plus important à travers la membrane. Ainsi, la Figure IV-20 montre que le rapport de la consommation de la DCO par la consommation de l'oxygène augmente avec la diffusivité relative. En effet, plus la DCO est proche de la membrane, plus elle est consommée ; et moins il y a d'oxygène pour dégrader la DCO issue de la lyse de la DCO complexe qui doit diffuser du biofilm vers la membrane.

### 6.3.3 Effets sur les profils d'activité dans le biofilm

La Figure IV-21 représente le profil d'activité dans le biofilm pour différentes diffusivités relatives.



**Figure IV-21 : Profil d'activité dans le biofilm pour différentes diffusivités relatives**

La Figure IV-21 montre que plus la diffusivité relative dans le biofilm est élevée, plus le profil d'activité dans le biofilm est étalé sur l'épaisseur du biofilm et éloigné de l'interface membrane - biofilm. Par ailleurs, le pic d'activité maximal diminue avec l'augmentation de la diffusivité relative.

#### 6.3.4 Conclusion

Les résultats de modélisation indiquent qu'une augmentation de la diffusivité relative dans le biofilm induit une augmentation de la consommation de la DCO (Figure IV-19) et une meilleure élimination de la DCO issue de l'alimentation (Figure IV-20).

Il a été montré expérimentalement au chapitre III qu'une augmentation de la diffusivité relative dans le biofilm est la conséquence d'une augmentation de l'hydrodynamique de la veine liquide appliquée sur le biofilm. Ceci est valable pour la gamme de conditions laminaires à transitoires étudiée. Industriellement, le gain attendu de l'augmentation de la diffusivité relative serait à pondérer par l'augmentation du coût énergétique liée à l'augmentation du débit et de la perte de charge.

## 6.4 Effets de la variation de l'épaisseur du biofilm

### 6.4.1 Conditions opératoires

Les effets de l'épaisseur du biofilm sur la consommation de la DCO et de l'oxygène dans le RBAM ont été simulés. Les conditions opératoires sont identiques entre les simulations et sont présentées Tableau IV-13.



Variable d'entrée	Valeur
Concentration en DCO dans l'alimentation	1400 mg L <sup>-1</sup>
Diffusivité relative	1
Composition de la phase gazeuse	20 %
Charge en DCO	52 mg L <sup>-1</sup> h <sup>-1</sup>
Porosité du biofilm	79 %

Tableau IV-13 : Récapitulatif des données d'entrée du modèle utilisées pour observer les effets de la variation de la diffusivité relative dans le biofilm

#### 6.4.2 Effet sur la vitesse d'élimination de la DCO

Les résultats calculés de la vitesse de consommation de la DCO en fonction de l'épaisseur du biofilm sont présentés Figure IV-22.

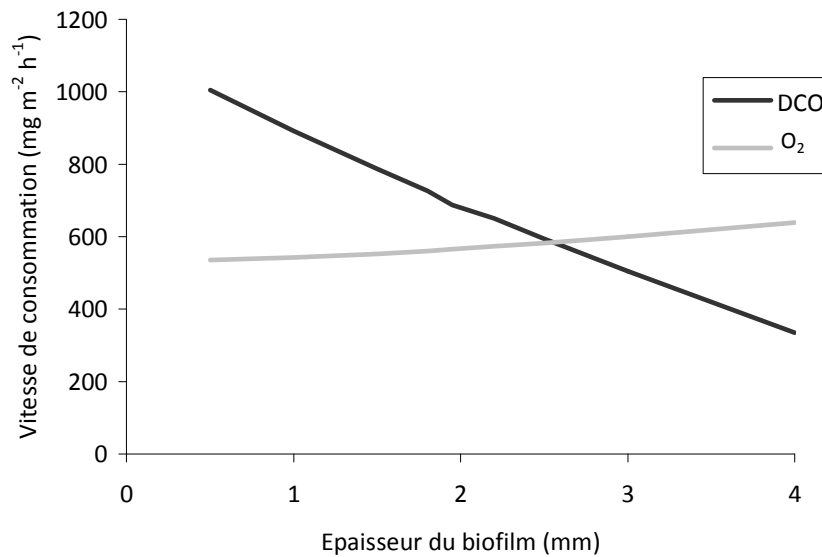
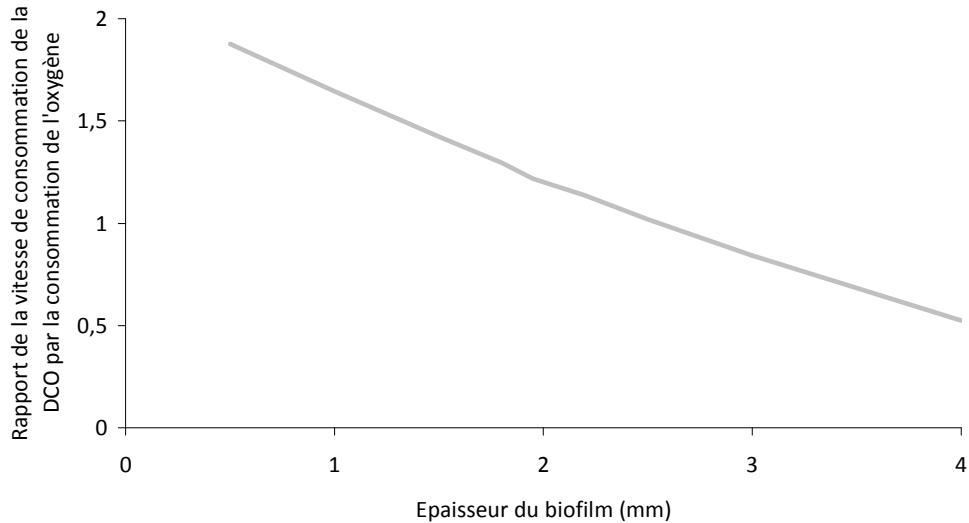


Figure IV-22 : Résultats calculés des effets de l'épaisseur du biofilm sur la vitesse de consommation de la DCO et de l'oxygène

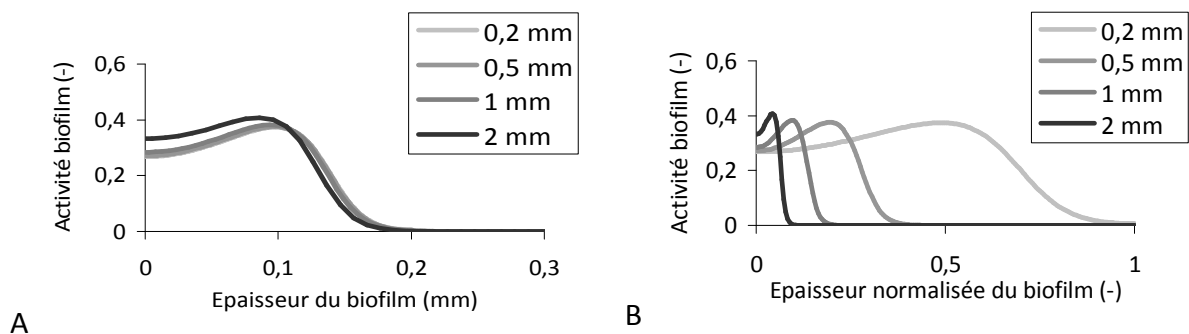


**Figure IV-23 : Rapport de la vitesse de consommation de la DCO par celle de l'oxygène pour différentes épaisseurs de biofilm pour les résultats calculés**

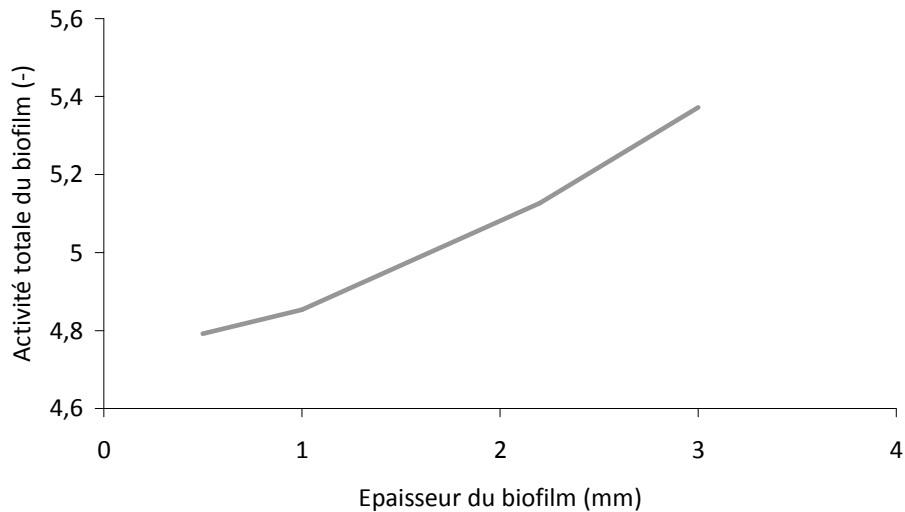
Les résultats calculés de la consommation de la DCO et de l'oxygène en fonction de l'épaisseur du biofilm (Figure IV-22) montrent que la vitesse de consommation de la DCO diminue avec l'augmentation de l'épaisseur du biofilm. La vitesse de consommation de l'oxygène augmente légèrement avec l'épaisseur du biofilm. Ainsi, le rapport de la consommation de la DCO par l'oxygène diminue avec l'augmentation de l'épaisseur du biofilm (Figure IV-23). La diminution de ce rapport avec l'augmentation de l'épaisseur du biofilm indique que plus l'épaisseur augmente, plus le biofilm consomme de la DCO issue de la lyse de la DCO complexe.

#### 6.4.3 Effet sur les profils d'activités dans le biofilm

L'étude des profils d'activité dans le biofilm indiquent la position de l'activité dans le biofilm ainsi que son intensité en fonction de la position. Ces profils sont présentés Figure IV-24 et exploités Figure IV-25.



**Figure IV-24 : Profil d'activité dans le biofilm en fonction de l'épaisseur du biofilm pour différentes épaisseurs de biofilm. L'abscisse "0" situe l'interface membrane-biofilm**



**Figure IV-25 : Activité totale en fonction de l'épaisseur du biofilm**

Le profil d'activité dans le biofilm en fonction de l'épaisseur de celui-ci indique que quelle que soit l'épaisseur, l'activité a lieu jusqu'à 250  $\mu\text{m}$  maximum (Figure IV-24-A). Le pourcentage de biofilm actif diminue donc avec l'augmentation de son épaisseur totale (Figure IV-24-B). La quantité de biofilm actif diminue, c'est pourquoi dans ce cas, il est intéressant de comparer les aires des profils d'activités en fonction de l'épaisseur du biofilm (Figure IV-25). L'aire de l'activité du biofilm, c'est-à-dire l'épaisseur totale du biofilm augmente légèrement avec l'épaisseur. Cependant, la vitesse de consommation de la DCO diminue (Figure IV-23) avec l'augmentation de l'épaisseur. En effet, son augmentation implique aussi que l'accroissement de la quantité de biomasse et donc de DCO soluble à partir de la lyse bactérienne.

#### 6.4.4 Conclusion

Les résultats de simulation montrent que, si les caractéristiques du biofilm restent inchangées à l'exception de l'épaisseur du biofilm, la vitesse de consommation de la DCO diminue avec l'augmentation de l'épaisseur ; ceci malgré une augmentation de l'activité totale du biofilm. Avec l'augmentation de l'épaisseur du biofilm, il devient une résistance au transfert de matière, de plus la présence d'une quantité de biomasse plus importante crée plus de DCO soluble issue de la lyse bactérienne.

### 6.5 Couplage des différents paramètres testés

Les résultats calculés des effets combinés des conditions opératoires (diffusivité relative, épaisseur du biofilm, pression partielle en oxygène et concentration en DCO dans l'alimentation) sont présentés Figure IV-26.

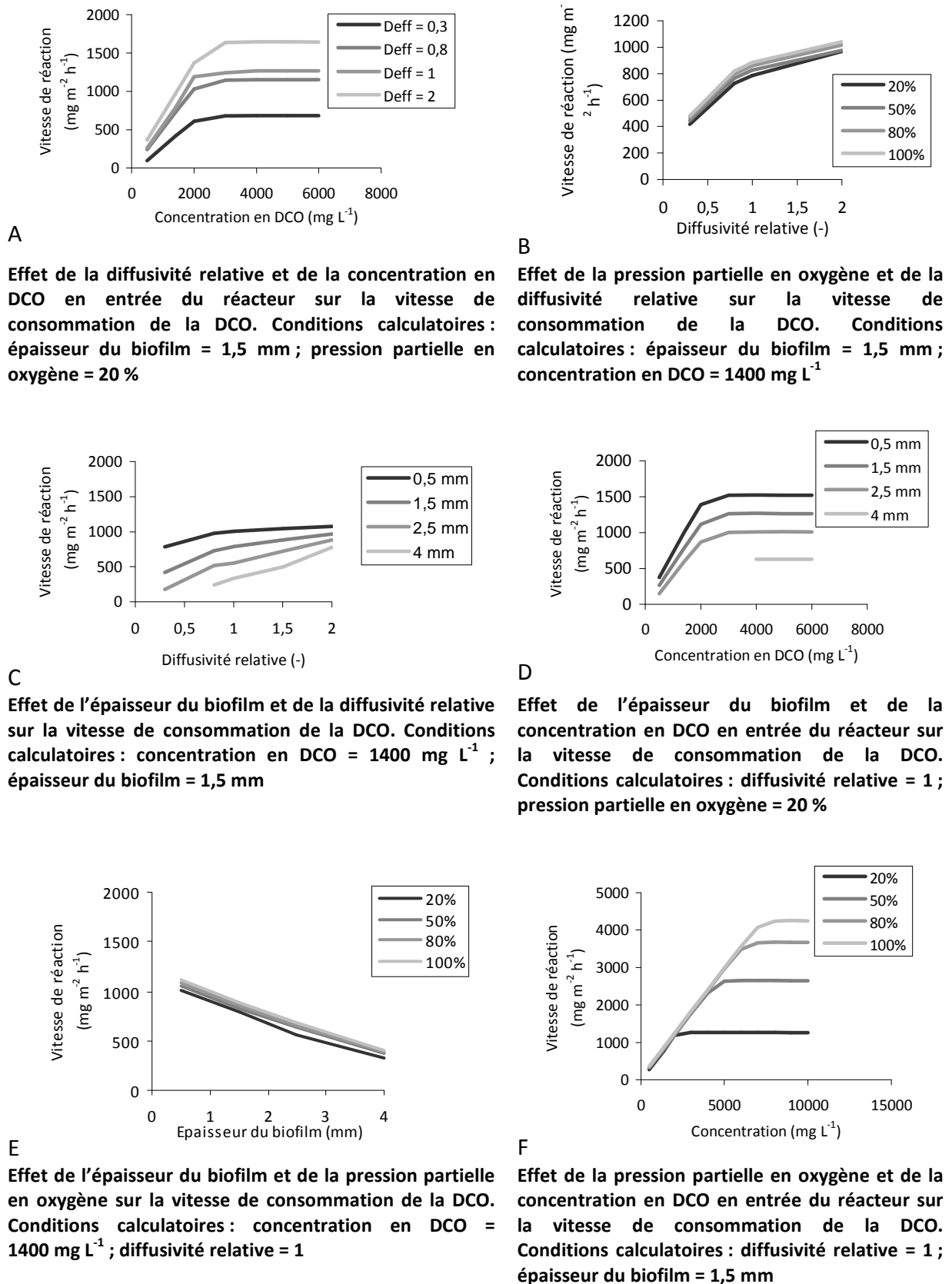


Figure IV-26 : Effets combinés de la pression partielle en oxygène, de la diffusivité relative, de l'épaisseur du biofilm et de la concentration en DCO dans l'alimentation

Sur la Figure IV-26, chacun des quatre paramètres étudiés (épaisseur du biofilm, diffusivité relative, pression partielle en oxygène et concentration en DCO) est testé en regard des trois autres.

Sur la Figure IV-26-C, lorsque l'épaisseur du biofilm est fixée à 4 mm et que la diffusivité relative est choisie à 0,3, la vitesse de lyse bactérienne est supérieure à la vitesse de croissance bactérienne. L'épaisseur de 4 mm n'est jamais réellement atteinte lors du calcul, ce qui indique que de telles épaisseurs ne peuvent être générées. La courbe pour une épaisseur de biofilm de 4 mm n'est dessinée qu'à partir d'une diffusivité relative, de l'ordre de 0,7, permettant d'atteindre une épaisseur de 4 mm. Il en est de même pour la Figure D pour un biofilm de 4 mm à faible concentration en DCO.

Les effets des concentrations en substrat (oxygène et DCO) dans chaque phase fluide sont testés. La Figure IV-26-F combine les effets de ces deux concentrations. Pour chaque augmentation de la pression partielle en oxygène, la vitesse de consommation de la DCO augmente jusqu'à atteindre un palier pour une concentration en DCO. La valeur du palier augmente avec la pression partielle. Avant le palier, les vitesses de consommation sont légèrement supérieures aux vitesses de consommation avec des pressions partielles plus faibles. Quand la concentration palier est atteinte, c'est le substrat limitant qui change (l'oxygène après le palier, la DCO avant). Celui-ci impose la vitesse de consommation de la DCO. Ainsi, lorsque les capacités de transfert du biofilm s'accroissent avec l'augmentation de la diffusivité relative ou une diminution de l'épaisseur du biofilm (diminution de la couche limite diffusionnelle due aux bactéries non réactive du biofilm), la vitesse de consommation de la DCO augmente (Figures A, B, C, D et E). A noter que l'épaisseur du biofilm influence la quantité de biomasse présente et donc la production de DCO soluble. C'est-à-dire que les valeurs paliers atteintes aux Figures A et D seraient plus importantes avec l'augmentation de la pression partielle.

En conclusion, il existe une valeur seuil de concentration en DCO à partir de laquelle la vitesse de consommation du biofilm est maximale. Cette valeur augmente avec la pression partielle en oxygène dans la phase gazeuse. Donc, lors d'une application industrielle, la pression partielle en oxygène pourra être choisie en fonction des potentiels d'augmentation de la charge de la DCO dans l'alimentation afin que le biofilm puisse y répondre. Mais la modification de la composition de la phase gazeuse implique des installations importantes et propre à la technologie. Il faut donc bien sûr prendre un compte un aspect économique non considéré dans ce travail.

Comme attendu, la vitesse de consommation de la DCO augmente avec l'augmentation du transfert de matière. Celui-ci est observé soit par une diminution de l'épaisseur du biofilm

soit par une augmentation de la diffusivité relative. Expérimentalement, il a été montré qu'influer sur ces deux paramètres peut se faire via la vitesse du liquide. Mais, le fait d'impacter sur cette vitesse a un coût à l'échelle industrielle.

Afin d'évaluer les coûts de fonctionnement d'une station d'épuration utilisant un RBAM, une première étude de l'influence de la capacité de transfert du biofilm à travers la vitesse du liquide est proposée.

## **7 APPLICATION A L'ECHELLE DE LA STATION D'EPURATION**

Les résultats obtenus ont été utilisés pour proposer des ordres de grandeur d'installations de RBAM pour le traitement de la DCO entrant dans les stations d'épurations.

### **7.1 Hypothèses de fonctionnement de la station d'épuration**

#### **7.1.1 Données d'entrées de la station d'épuration et objectifs recherchés**

La station d'épuration considérée a une capacité de traitement de la pollution pour 100 000 Equivalents Habitants. Le débit est de  $650 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  et la pollution en  $\text{DBO}_5$  en entrée de  $400 \text{ mg L}^{-1}$ . Pour respecter la réglementation, la concentration de sortie de la  $\text{DBO}_5$  doit être de  $25 \text{ mg L}^{-1}$  au maximum.

#### **7.1.2 Dimension d'un module de RBAM**

Pour ce dimensionnement, nous considérons un RBAM composé de plusieurs modules de RBAM. Chaque module contient 200 cellules membranaires fait d'une membrane de 1 m de large par 1 m de long. L'épaisseur choisie de la cellule est de 10 mm (valeur identique à nos conditions opératoires)

Un module contient donc  $200 \text{ m}^2$  de membrane.

Ces modules sont imaginés positionnés sur 30 étages en parallèle avec pour chaque étage des modules en séries. L'objectif est de déterminer le nombre de modules nécessaires par rapport aux vitesses de consommation de la DCO liées aux vitesses de liquide appliquées. Ensuite, il s'agit d'en déduire la surface de membrane nécessaire par Equivalent Habitants, ainsi que le coût énergétique impliqué.

Les vitesses de réaction des RBAM choisies ont été multipliée d'un facteur quatre par rapport à nos résultats expérimentaux. En effet, dans l'étude expérimentale, les membranes reposent sur une grille de porosité 22%. Cette grille va diminuer le transfert par rapport à un transfert sans grille support. Industriellement, ces supports peuvent avoir des porosités de 80% environ, il y a donc près de quatre fois plus de membrane disponible pour transférer de l'oxygène que dans le cas de notre étude. Nous travaillerons alors avec des vitesses de

consommation de la DCO quatre fois supérieures à celles que nous avons trouvées expérimentalement.

## 7.2 Résultats

Deux cas ont été considérés et sont présentés ensuite dans les Tableau IV-14 et Tableau IV-15 :

- Dans le premier cas, le débit d'alimentation impose la vitesse du liquide et donc les propriétés d'épaisseur et de diffusivité relative du biofilm. A travers celles-ci, c'est la vitesse de consommation du biofilm qui en découle.
- Dans un deuxième cas, la vitesse de circulation du liquide dans les modules est imposée par une pompe de recirculation. C'est le cas où comme dans le pilote expérimentale, une boucle de recirculation permet de découpler la vitesse du liquide dans les modules du temps de séjour hydraulique. Ce cas permet donc d'imposer au biofilm la vitesse de liquide voulue et donc la vitesse de consommation de la DCO qui en découle.

Les résultats sont présentés Tableau IV-14 pour l'ensemble de la station de traitement et Tableau IV-15 pour un traitement en Equivalent Habitants.

	Vitesse du liquide ( $\text{m s}^{-1}$ )	Vitesse de réaction du biofilm ( $\text{mg m}^{-2} \text{j}^{-1}$ )	Surface de membrane nécessaire ( $\text{m}^2$ )	Nombres de modules en série nécessaire	Débit total de recirculation ( $\text{m}^3 \text{j}^{-1}$ )
<b>Sans boucle de recirculation</b>	0,003	23	$2,4 \times 10^5$	41	
<b>Avec boucle de recirculation</b>	0,29	86	$6,7 \times 10^4$	11	$1,5 \times 10^6$
	0,03	41	$1,4 \times 10^5$	23	$1,6 \times 10^5$
	0,012	31	$1,9 \times 10^5$	31	$6,2 \times 10^4$

Tableau IV-14 : Nombre de modules et surface de membrane nécessaire en fonction de la vitesse du liquide

	Vitesse du liquide (m s <sup>-1</sup> )	Surface de membrane par équivalent habitant (m <sup>2</sup> E.H. <sup>-1</sup> )	Perte de charge par équivalent habitants (Pa E.H. <sup>-1</sup> )	Energie nécessaire due à la perte de charge par équivalent habitant (€ E.H. <sup>-1</sup> an <sup>-1</sup> )
<b>Sans boucle de recirculation</b>	0,003	2,4	0,9	0,02
<b>Avec boucle de recirculation</b>	0,29	0,7	23,4	63,7
	0,03	1,4	5	1,4
	0,012	1,9	2,7	0,3

**Tableau IV-15 : Surface de membrane nécessaire par Equivalent Habitants et coûts engendrés par la perte de charge sur cette surface de membrane. Le prix de l'électricité est considéré égal à 0,075 € kW<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>. E.H. : Equivalent Habitants**

Les résultats montrent que le nombre de modules pour le traitement d'une telle station est important. De plus, la vitesse de consommation de la DCO considérée pour établir les tableaux précédents a été choisie comme maximale. Cependant, cette vitesse est fonction de la concentration en DCO, elle décroît avec la concentration dans le milieu liquide et sera donc différente entre les extrémités de la série de module. Le nombre de modules nécessaire est probablement sous estimé ici.

Il est à noter qu'il existe des systèmes de modules membranaires (fibres creuses, par exemple) plus compacts que ceux imaginés ici, qui permettraient de diminuer le nombre de modules nécessaire tout en gardant la surface de membrane constante.

Pour une gamme de vitesses de liquide en-dessous du Nombre de Peclet de transition dans le biofilm, les coefficients de diffusivité relative semblent constants dans le biofilm (Figure III-17). Il n'y a donc pas d'intérêt à augmenter la vitesse du liquide pour modifier la diffusivité relative. Mais nous n'avons pas d'informations sur l'épaisseur du biofilm dans cette gamme de vitesses de liquide. Nous pouvons supposer qu'elle aura tendance à diminuer avec l'augmentation de la contrainte de cisaillement, ce qui permet une augmentation de la vitesse de réaction (Figure IV-26-C). Une solution pour une vitesse de réaction du biofilm dans ces gammes de vitesses de liquide, serait de travailler avec une faible vitesse de liquide et une épaisseur de canal petite. Il n'y aura pas vraiment de gains attendus pour une vitesse



de liquide inférieur au Nombre de Peclet de transition. Cette vitesse est représentée dans les Tableau IV-14 et Tableau IV-15, par la plus petite :  $0,003 \text{ m s}^{-1}$ .

A l'inverse, lorsque le Nombre de Peclet dans le biofilm dépasse le Nombre de Peclet de transition via, la vitesse du liquide dans la veine liquide, alors la diffusivité relative augmente, l'épaisseur du biofilm diminue et un gain de vitesse de réaction est attendu. Comme présenté dans les Tableau IV-14 et Tableau IV-15, la surface de membrane nécessaire pour traiter l'influent diminue, ce qui permet une diminution du coût d'investissement, mais l'énergie utilisée, et donc le coût de fonctionnement augmente. Il existe un optimum économique entre ces coûts d'investissement et de fonctionnement.

## 8 CONCLUSION

Dans ce chapitre, les modèles des équipes de M.J. Semmens et E. Casey ont été comparés entre eux et avec nos résultats expérimentaux. Dans un premier temps, ils ont été comparés au transfert de matière dans le biofilm sans réactions. Cette comparaison a montré que les méthodes utilisées par chacun des auteurs n'est pas en adéquation avec les résultats expérimentaux. Ainsi, les résultats des coefficients de diffusivités relatives expérimentaux ont été introduits et les résultats calculés par les modèles se sont montrés en parfaite adéquation avec les résultats expérimentaux. Cette valeur expérimentale a donc permis de s'affranchir des corrélations de la bibliographie qui ne sont pas toujours adaptées à nos résultats expérimentaux. Les constantes de croissance de la biomasse ont été déterminées expérimentalement et introduites dans les modèles. La comparaison des vitesses de consommation de la DCO expérimentales et calculées pour chacun des modèles a montré que le modèle développé par l'équipe de Semmens, dit modèle RTR parce que plus complet en termes de réactions biologiques impliquées, est plus en adéquation avec les résultats expérimentaux que le modèle RT. Ainsi, après une validation macroscopique (vitesse de transfert, de consommation de la DCO et de l'oxygène) du fonctionnement du RBAM expérimental, le modèle RTR a été utilisé pour comprendre et visualiser les profils de concentration et d'activité à l'échelle microscopique pour les expériences menées. Dans les conditions opératoires où la charge carbonée est constante et lorsque le RBAM a une meilleure efficacité, les profils de concentration en substrats dans le biofilm sont étalés.

Le modèle RTR a été utilisé pour examiner une large gamme de paramètres opératoires et de propriétés du biofilm susceptibles d'être rencontrés dans un RBAM utilisé pour le traitement des eaux. On observe qu'une augmentation de 20 à 100% de la pression partielle en oxygène permettrait une légère augmentation de l'efficacité d'un RBAM lorsque la concentration en DCO est limitante. Pour des concentrations en DCO élevées, une telle augmentation de la pression partielle permettrait une augmentation de 240% de la vitesse de consommation. Les résultats montrent que pour améliorer la vitesse d'élimination

surfacique d'un RBAM, il faudrait diminuer l'épaisseur du biofilm, augmenter la diffusivité relative ou la concentration en DCO jusqu'à une valeur seuil. Au-delà de cette valeur, la vitesse de croissance de la biomasse devient limitante et la consommation en DCO est constante et maximale. Ces observations dénotent l'importance de la résistance au transfert de la couche supérieure non réactive du biofilm et la limitation par la croissance de la biomasse.

Ces résultats sont des moyens de compréhension de l'influence des paramètres sur l'efficacité des RBAM. Ils ont été traités séparément dans un système complexe de biofilm. Cependant, expérimentalement, impacter sur un facteur du bioréacteur ou une propriété des biofilms influence d'autres caractéristiques du biofilm qui s'impactent entre elles et sur la vitesse de consommation globale. C'est pourquoi, une étude expérimentale est donc nécessaire pour valider les hypothèses présentées ici. Dans cet objectif, il serait pertinent de réaliser des tests expérimentaux, à savoir modifier les conditions hydrodynamiques appliquées au biofilm. Les biofilms ont été développés expérimentalement sous des régimes laminaires à transitoires. En conséquence, le régime turbulent serait à tester. De telles conditions hydrodynamiques permettront de modifier les propriétés du biofilm : épaisseur et diffusivité relative et donc de compléter les données expérimentales de cette thèse. Ensuite, les effets de la concentration en DCO dans l'alimentation sont à tester. Plus la concentration est élevée moins le biofilm semble dense. C'est pourquoi la concentration pourrait affecter la diffusivité relative dans le biofilm et donc son efficacité.

Pour finir, une première étude de dimensionnement à été menée afin de rendre compte d'ordre d'idée de surface de membrane et de taille de réacteur qu'il faudrait pour traiter les flux de DCO entrants dans une station d'épuration. La vitesse de consommation de la DCO par le biofilm considérée a été déterminée en fonction de la vitesse du débit de liquide dans la veine liquide via le coefficient de diffusivité relative. L'énergie utilisée pour traiter l'influent d'une station augmente plus rapidement que la surface de membrane nécessaire pour traiter la pollution. Pour réellement exploiter ces résultats à l'échelle industrielle, il faudrait les comparer avec les coûts d'investissements et de fonctionnement de procédés déjà existant, type les procédés à boues activées.

**Conclusion et perspectives**

---



Les réacteurs dits « à biofilm sur membrane » sont des procédés innovants de traitement des eaux. Dans ces réacteurs, le biofilm se développe sur une membrane et est alimenté par des substrats contenus dans les phases de part et d'autres de la membrane. Lorsqu'une de ces phases est gazeuse et est utilisée pour sa capacité à transférer de l'oxygène, on parle de Réacteur à Biofilm Aéré sur Membrane (RBAM).

Cette thèse s'est concentrée sur l'étude de biofilm développé sur une membrane poreuse plane en polypropylène ayant la propriété de dégrader des molécules carbonées de la phase liquide contenues dans un milieu de culture et alimenté en oxygène à travers la membrane.

Dans cette configuration particulière, les nutriments (l'oxygène et les molécules carbonées) sont transférés en contre-diffusion ce qui génère une stratification du biofilm spécifique pour ces réacteurs. Celle-ci est différente des biofilms de type conventionnel sur support solide où tous les nutriments proviennent de la phase liquide. Cette particularité de transfert des substrats dans un réacteur à biofilm sur membrane implique, pour une optimisation des performances, de maîtriser ce transfert entre le biofilm et les fluides. L'analyse des études publiées montre que le transfert de matière dépend de nombreux paramètres tels que la structure physique du biofilm, sa rugosité, les conditions hydrodynamiques de la phase liquide dans laquelle il se développe, les concentrations en substrats... Ces études ont été essentiellement conduites pour des biofilms de type conventionnel et très peu d'études portent sur le transfert de matière, et la maîtrise de celui-ci, dans des RBAM. Il est donc pertinent d'étudier le transfert dans des RBAM afin d'identifier les spécificités liées à la stratification des RBAM et de le relier aux vitesses de consommation des substrats, première mesure de la performance des RBAM.

En vue d'évaluer les potentialités de cette technologie dans un contexte industriel de traitement d'eaux usées, l'étude a porté sur l'influence de l'hydrodynamique (facteur de coût) lors de la mise en œuvre d'un biofilm mixte (plusieurs population de microorganismes) issu de boues activées de la station d'épuration de Brax (Haute Garonne). L'étude de ce type de biofilm dans un RBAM est peu rapportée dans la littérature.

Cette étude consiste en une partie expérimentale complétée par une modélisation des RBAM.

La partie expérimentale a été conduite à l'aide un pilote développé pour la circonstance par le Laboratoire de Génie Chimique (LGC) et construit par Arias. Il a été conçu pour permettre d'étudier simultanément le transfert de matière sur cinq modules membranaires fonctionnant dans des conditions hydrodynamiques différentes avec la biomasse issue de la même station d'épuration et la même charge en nutriments.

Le transfert de matière non réactif a été étudié, en présence et en absence de biofilm avec le néon, un gaz traceur inactif vis-à-vis des microorganismes. Les expériences ont montré que la résistance au transfert en l'absence de biofilm était située dans la phase liquide et que les pores de la membrane étaient probablement remplis de gaz. En présence de celui-ci, le transfert est contrôlé par le biofilm. Les couches formées à l'interface biofilm – membrane semblent particulièrement résistantes au transfert comme le montre l'augmentation de la résistance d'une membrane ayant vu son biofilm éliminé par rapport à la membrane neuve sans biofilm.

Le transfert au sein du biofilm a été quantifié à l'aide du coefficient de diffusivité relative qui compare le coefficient de diffusion apparent dans le biofilm à celui dans l'eau. L'évolution de ce coefficient en fonction du Nombre de Reynolds de la couche liquide circulant au-dessus du biofilm a permis de montrer que le transfert dans le biofilm se fait, au moins en partie, par convection. A l'aide d'un modèle simple en considérant le biofilm comme un solide poreux suivant la loi de Kozeny-Carman, nous avons pu estimer que la vitesse du liquide dans le biofilm est de l'ordre de quelques pourcents de la vitesse du liquide dans la veine liquide. Les expériences associées à ce modèle permettent de montrer l'existence d'un Nombre de Peclet de transition à partir duquel la convection domine. La valeur (entre 0,9 et 50) du Nombre de Peclet de transition dépend des hypothèses de calcul. Il n'est donc pas possible d'en donner une valeur.

Ceci nous a permis de confirmer sur une gamme étroite de résultats expérimentaux, les résultats des simulations décrits par Aspa et al. (2011). Et nous avons pu observer la transition entre un régime purement diffusif et un régime convectif dans le biofilm en fonction du Nombre de Peclet. Etant donné que nous avons montré par un modèle d'écoulement simplifié que la vitesse moyenne dans le biofilm est proportionnelle à celle dans la veine liquide adjacente, cette transition est importante car elle sépare la gamme des conditions de vitesse de l'effluent en deux parties très distinctes :

- Dans l'une, la vitesse ne change rien au transfert à travers le biofilm (ceci correspond au régime purement diffusif, le Nombre de Peclet est petit).
- Dans l'autre, augmenter la vitesse augmente le transfert de matière. La diffusivité relative change avec un exposant qu'Aspa prévoit d'environ 1,6 (ceci correspond au régime convectif, le Nombre de Peclet est supérieur au Nombre de Peclet de transition).

La présence de transport par convection des espèces au travers du biofilm induit alors une forte augmentation de la vitesse de consommation du substrat carboné (DCO) avec l'augmentation du Nombre de Reynolds.

Parallèlement et de manière complémentaire aux expériences, deux modèles numériques ont été comparés et modifiés. Le premier, développé par l'équipe de E. Casey et nommé RT, ne prend en compte que le transfert de matière et la réaction de consommation de la DCO. Le deuxième dit RTR, développé par l'équipe de M.J. Semmens, plus complet, prend en compte le transfert, la réaction de consommation de la DCO mais aussi le processus de mort régénération qui conduit à une production de DCO par le biofilm. Ces modèles ont été adaptés en prenant pour la diffusion relative les résultats expérimentaux en lieu et place des corrélations de la bibliographie qui décrivent mal nos observations. En effet, l'équation de Fan et al. (1990) souvent utilisée dans la bibliographie implique que la diffusivité relative est fonction uniquement de la concentration en matière sèche. Ceci va à l'encontre de nos résultats expérimentaux, qui mettent en évidence l'importance des conditions hydrodynamique sur le développement des biofilms. Ensuite, les cinétiques du consortium bactérien ont été déterminées expérimentalement et utilisées dans ces modèles.

Les calculs montrent que le modèle RTR simule très correctement les résultats expérimentaux macroscopiques (flux d'oxygène, de néon, vitesse de consommation de la DCO). Ce modèle a permis de mettre en évidence qu'aux conditions étudiées, l'activité bactérienne dans le biofilm se situe du côté de l'interface membrane – biofilm. La partie supérieure du biofilm agit donc comme une couche non réactive et est une résistance au transfert de matière. L'analyse des concentrations lorsque la diffusivité relative est élevée montre que les profils de concentration sont plus plats au sein du biofilm, l'activité maximum des bactéries est plus faible mais plus étalée au sein du biofilm. Il en résulte une activité moyenne plus élevée et des vitesses de consommation de la DCO maximisées, ce qui a été observé expérimentalement.

Le modèle RTR modifié a été utilisé pour évaluer l'impact de quatre paramètres sur l'efficacité du réacteur en modifiant uniquement leur valeur numérique successivement en laissant les autres identiques. Les points étudiés sont : les concentrations en DCO et en oxygène dans les phases liquide et gaz, l'épaisseur du biofilm et sa diffusivité relative. Ces deux derniers paramètres sont impliqués dans la résistance au transfert de matière. Les résultats ont montré que, pour l'oxygène comme pour la DCO, il existe un palier de concentration à partir duquel la vitesse d'élimination de la DCO est maximale et constante. Ces maximums sont le reflet d'un nutriment qui devient limitant. Ainsi, la concentration en DCO au début du palier augmente avec l'augmentation de la pression partielle en oxygène. Une diminution de la résistance au transfert dans le biofilm, soit par l'augmentation de la diffusivité relative, soit par la diminution de l'épaisseur du biofilm, permet une meilleure élimination de la DCO. Ainsi un biofilm fin (0,5 mm maximum) avec une faible diffusivité relative (0,3) est toujours plus efficace qu'un biofilm épais (4 mm) avec une diffusivité relative élevée (2). Ces résultats, issus de modélisation, nécessitent une validation

expérimentale mais permettent dans un premier temps d'évaluer indépendamment l'impact de chacun, même si expérimentalement ils ne sont pas dissociables.

A partir de ces conclusions, une première approche du dimensionnement d'un RBAM a été effectuée sur deux cas: un RBAM avec recirculation (situation du pilote de cette étude) ou sans recirculation. Sur la base d'un module plan, le calcul montre qu'il est nécessaire, pour atteindre un objectif de concentration, d'avoir une série de module en parallèle. La surface de membrane nécessaire pour le traitement est comprise entre 0,7 et 2,5 m<sup>2</sup> par Equivalent-Habitant selon la vitesse imposée au liquide. Le coût énergétique lié à la perte de charge est compris entre 0,02 et 64 € par an et par Equivalent-Habitant. Ce coût de fonctionnement est inversement proportionnel à la surface de membrane nécessaire, donc au coût d'investissement. Le nombre de module et la surface sont importants. L'utilisation de modules fibres creuses plus compacts pourrait permettre de réduire le volume de l'installation mais des problèmes d'encrassement par le biofilm sont envisagés. Pour compléter ce dimensionnement, il faudrait comparer ces résultats avec les données d'investissement et de coûts d'exploitation de réacteurs actuellement utilisés tels que les réacteurs à boues activées.

Dans le cadre de ce travail, nous avons testé le comportement du biofilm dans des conditions d'écoulement du liquide au-dessus du biofilm d'un régime laminaire à un début de régime transitoire. Ceci ouvre des nouvelles pistes de recherche. En effet, une étude du comportement du biofilm sous des régimes turbulents viendrait compléter la présente étude. Une étude structurale tridimensionnelle d'un biofilm sur membrane permettrait d'obtenir des modèles, probablement, plus adaptés à la simulation d'écoulement dans les biofilms que les modèles utilisés par Aspa et al. (2011). Ils permettraient de mieux comprendre les variations de la diffusivité relative expérimentalement observées. De la même manière, la détermination des vitesses expérimentales de circulation du liquide dans les biofilms permettrait d'avoir accès à des valeurs fiables de Nombres de Peclet de transition dont l'existence a été montrée numériquement par Aspa et al. (2011) et expérimentalement dans le cadre de cette étude.

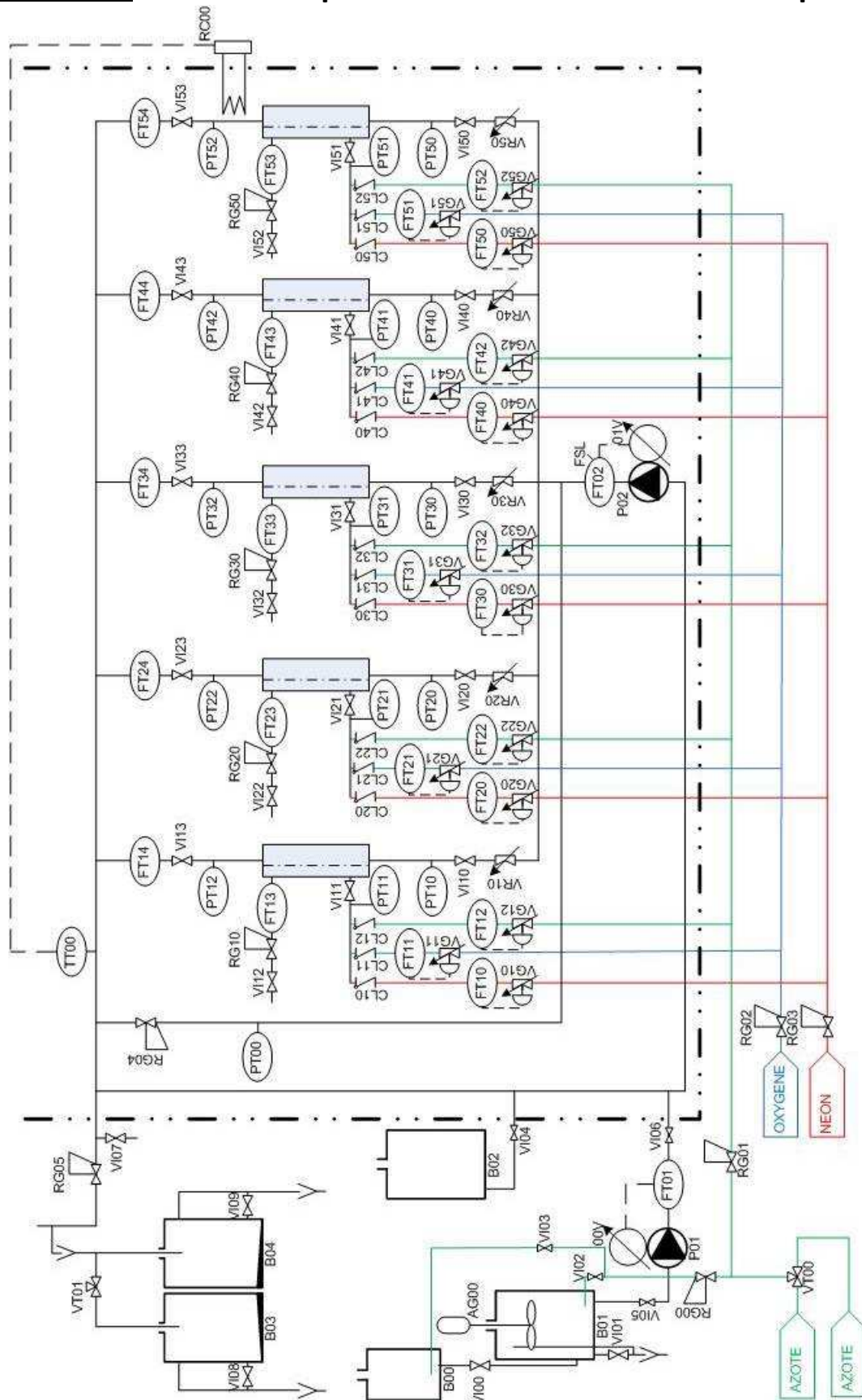


**Annexes**

---



## Annexe A : Schéma de procédé et d'instrumentation du pilote



<b>Texte affiché</b>	<b>Nature</b>	<b>Caractéristiques</b>
00V	Variateur de fréquence	
01V	Variateur de fréquence	
AG00	Agitateur	volume du bac 20 litres - vitesse variable 0-1500 tr/min
B00	Réservoir	5 litres, polyéthylène
B01	Réservoir	20 litres utiles. Polyéthylène avec couvercle. Vanne de vidange fond de cuve et sur verse
B02	Réservoir	5 litres utiles. Polyéthylène avec couvercle
B03	Réservoir	un de 5 litres et un de 20 litres utiles. Polyéthylène avec couvercle. Vanne de vidange fond de cuve et surverse
B04	Réservoir	un de 5 litres et un de 20 litres utiles. Polyéthylène avec couvercle. Vanne de vidange fond de cuve et surverse
CL10	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL11	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL12	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL20	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL21	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL22	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL30	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL31	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL32	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL40	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL41	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL42	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL50	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL51	Clapet anti-retour	PVC, DN2
CL52	Clapet anti-retour	PVC, DN2

<b>Texte affiché</b>	<b>Nature</b>	<b>Caractéristiques</b>
FT01	Débitmètre liquide	Electromagnétique inox 0 – 0,2 L h <sup>-1</sup>
FT02	Débitmètre liquide	Electromagnétique inox 0 - 1500 L h <sup>-1</sup>
FT10	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 5 NmL min <sup>-1</sup> - fluide : néon
FT11	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT12	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT13	Débitmètre gaz	Massique. 0 - 100 NmL h <sup>-1</sup>
FT14	Débitmètre liquide	électromagnétique, Inox, 0 - 300 L h <sup>-1</sup> , 0 - 2 bars
FT20	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 5 NmL min <sup>-1</sup> - fluide : néon
FT21	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT22	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT23	Débitmètre gaz	Massique. 0 - 100 NmL h <sup>-1</sup>
FT24	Débitmètre liquide	électromagnétique, Inox, 0 - 300 L h <sup>-1</sup> , 0 - 2 bars
FT30	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 5 NmL min <sup>-1</sup> - fluide : néon
FT31	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT32	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT33	Débitmètre gaz	Massique. 0 - 100 NmL h <sup>-1</sup>
FT34	Débitmètre liquide	électromagnétique, Inox, 0 - 300 L h <sup>-1</sup> , 0 - 2 bars
FT40	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 5 NmL min <sup>-1</sup> - fluide : néon
FT41	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT42	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT43	Débitmètre gaz	Massique. 0 - 100 NmL h <sup>-1</sup>
FT44	Débitmètre liquide	électromagnétique, Inox, 0 - 300 L h <sup>-1</sup> , 0 - 2 bars
FT50	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 5 NmL min <sup>-1</sup> - fluide : néon

<b>Texte affiché</b>	<b>Nature</b>	<b>Caractéristiques</b>
FT51	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT52	Capteur de Débit	Débitmètre massique - diamètre - 0 - 25 NmL min <sup>-1</sup> - fluide oxygène
FT53	Débitmètre gaz	Massique. 0 - 100 NmL h <sup>-1</sup>
FT54	Débitmètre liquide	électromagnétique, Inox, 0 - 300 L h <sup>-1</sup> , 0 - 2 bars
P01	pompe	pompe à engrenage - 0 - 0.2 L h <sup>-1</sup> / 0.2 bar - fluide liquide viscosité 0.0007 à 0.007 Pa.s
P02	pompe	pompe à palette - 0 - 1500 L h <sup>-1</sup> / 0-2 bars - liquide, 0.0007 à 0.007 Pa.s
PT00	Capteur de pression	Fluide : liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT10	Transmetteur de pression	Liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT11	Transmetteur de pression	Fluide gaz - type de montage - 0 - 2 bars
PT12	Transmetteur de pression	Fluide liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT20	Transmetteur de pression	Liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT21	Transmetteur de pression	Fluide gaz - type de montage - 0 - 2 bars
PT22	Transmetteur de pression	Fluide liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT30	Transmetteur de pression	Liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT31	Transmetteur de pression	Fluide gaz - type de montage - 0 - 2 bars
PT32	Transmetteur de pression	Fluide liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT40	Transmetteur de pression	Liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT41	Transmetteur de pression	Fluide gaz - type de montage - 0 - 2 bars
PT42	Transmetteur de pression	Fluide liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT50	Transmetteur de pression	Liquide - type de montage - 0 - 2 bars
PT51	Transmetteur de pression	Fluide gaz - type de montage - 0 - 2 bars
PT52	Transmetteur de pression	Fluide liquide - type de montage - 0 - 2 bars
RC00	Cryothermostat	20 - 50 °C

<b>Texte affiché</b>	<b>Nature</b>	<b>Caractéristiques</b>
RG00	Détendeur	0 - 4 bars
RG01	Détendeur	0-2 bars
RG02	Détendeur	0-2 bars
RG03	Détendeur	0-2 bars
RG04	Déverseur	0 - 2 bars, 0 - 1500 L h <sup>-1</sup>
RG05	Déverseur	0 - 2 bars, 0 – 0,2 L h <sup>-1</sup>
RG10	Déverseur	0-2 bars
RG20	Déverseur	0-2 bars
RG30	Déverseur	0-2 bars
RG40	Déverseur	0-2 bars
RG50	Déverseur	0-2 bars
TT00	Capteur de température	PT100 - 0 à 100°C
VG10	Vanne de régulation	
VG11	Vanne de régulation	
VG12	Vanne de régulation	
VG20	Vanne de régulation	
VG21	Vanne de régulation	
VG22	Vanne de régulation	
VG30	Vanne de régulation	
VG31	Vanne de régulation	
VG32	Vanne de régulation	
VG40	Vanne de régulation	
VG41	Vanne de régulation	

<b>Texte affiché</b>	<b>Nature</b>	<b>Caractéristiques</b>
VG42	Vanne de régulation	
VG50	Vanne de régulation	
VG51	Vanne de régulation	
VG52	Vanne de régulation	
VI00	vanne d'isolement	DN 10 - PVC
VI01	vanne d'isolement	DN 10 - PVC
VI02	Vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI03	Vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI04	Vanne d'isolement	DN 10 - PVC
VI05	Vanne d'isolement	DN 4 - PVC
VI06	Vanne d'isolement	DN 4 - PVC
VI07	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI08	vanne d'isolement	DN 10 - PVC
VI09	vanne d'isolement	DN 10 - PVC
VI10	vanne d'isolement	DN 8 - PVC
VI11	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI12	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI13	vanne d'isolement	DN 8 - PVC
VI20	vanne d'isolement	DN 8 - PVC
VI21	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI22	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI23	vanne d'isolement	DN 8 - PVC
VI30	vanne d'isolement	DN 8 - PVC



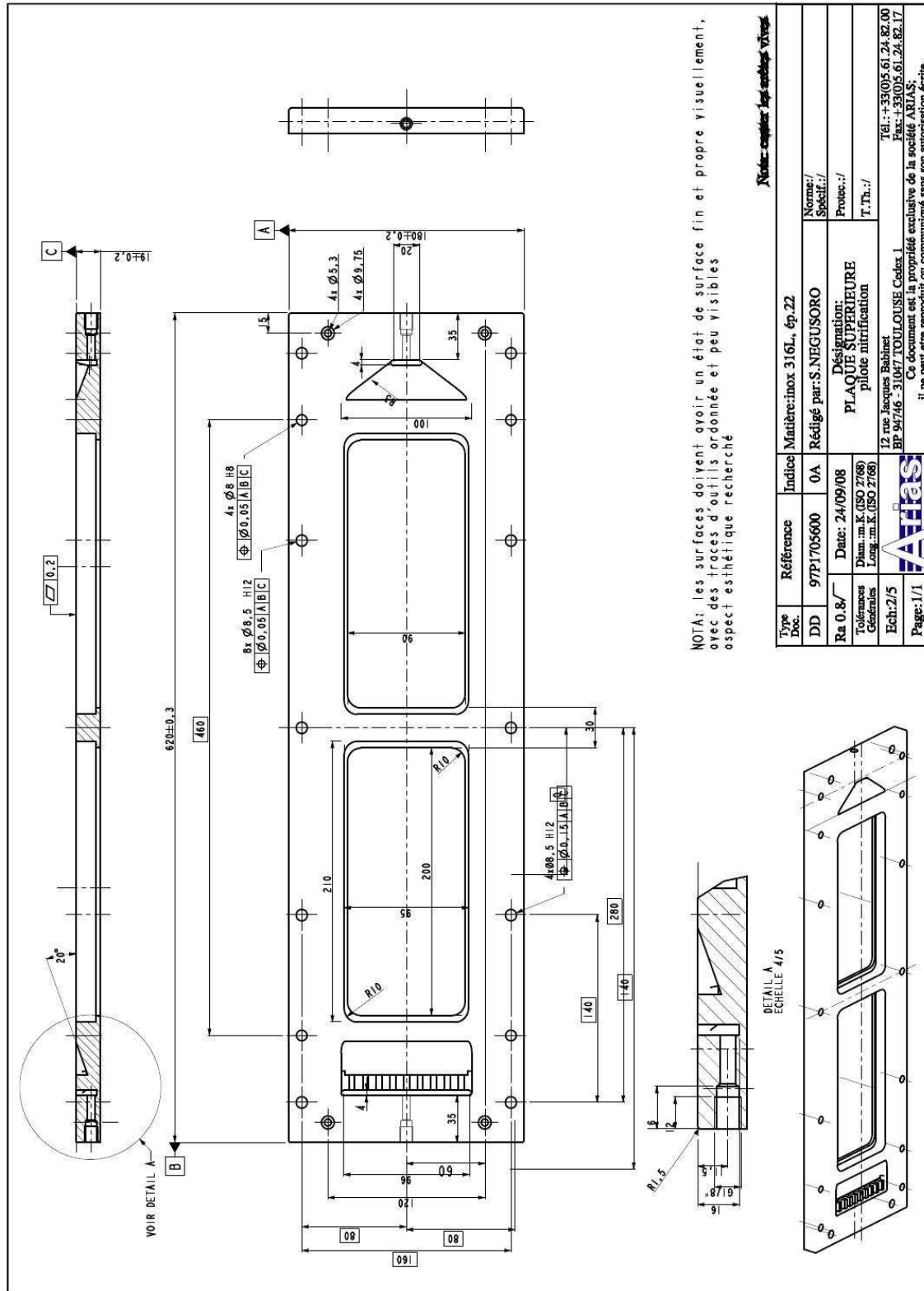
<b>Texte affiché</b>	<b>Nature</b>	<b>Caractéristiques</b>
VI31	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI32	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI33	vanne d'isolement	DN 8 - PVC
VI40	vanne d'isolement	DN 8 - PVC
VI41	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI42	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI43	vanne d'isolement	DN 8 - PVC
VI50	vanne d'isolement	DN 8 - PVC
VI51	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI52	vanne d'isolement	DN 2 - PVC
VI53	vanne d'isolement	DN 8 - PVC
VR10	Vanne de régulation	Vanne à membrane manuelle
VR20	Vanne de régulation	Vanne à membrane manuelle
VR30	Vanne de régulation	Vanne à membrane manuelle
VR40	Vanne de régulation	Vanne à membrane manuelle
VR50	Vanne de régulation	Vanne à membrane manuelle
VT00	Vanne trois voies	DN 2 - PVC
VT01	Vanne trois voies	DN 4 - PVC

PVC : Poly(Vinyl chloride)

DN : Diamètre Nominal

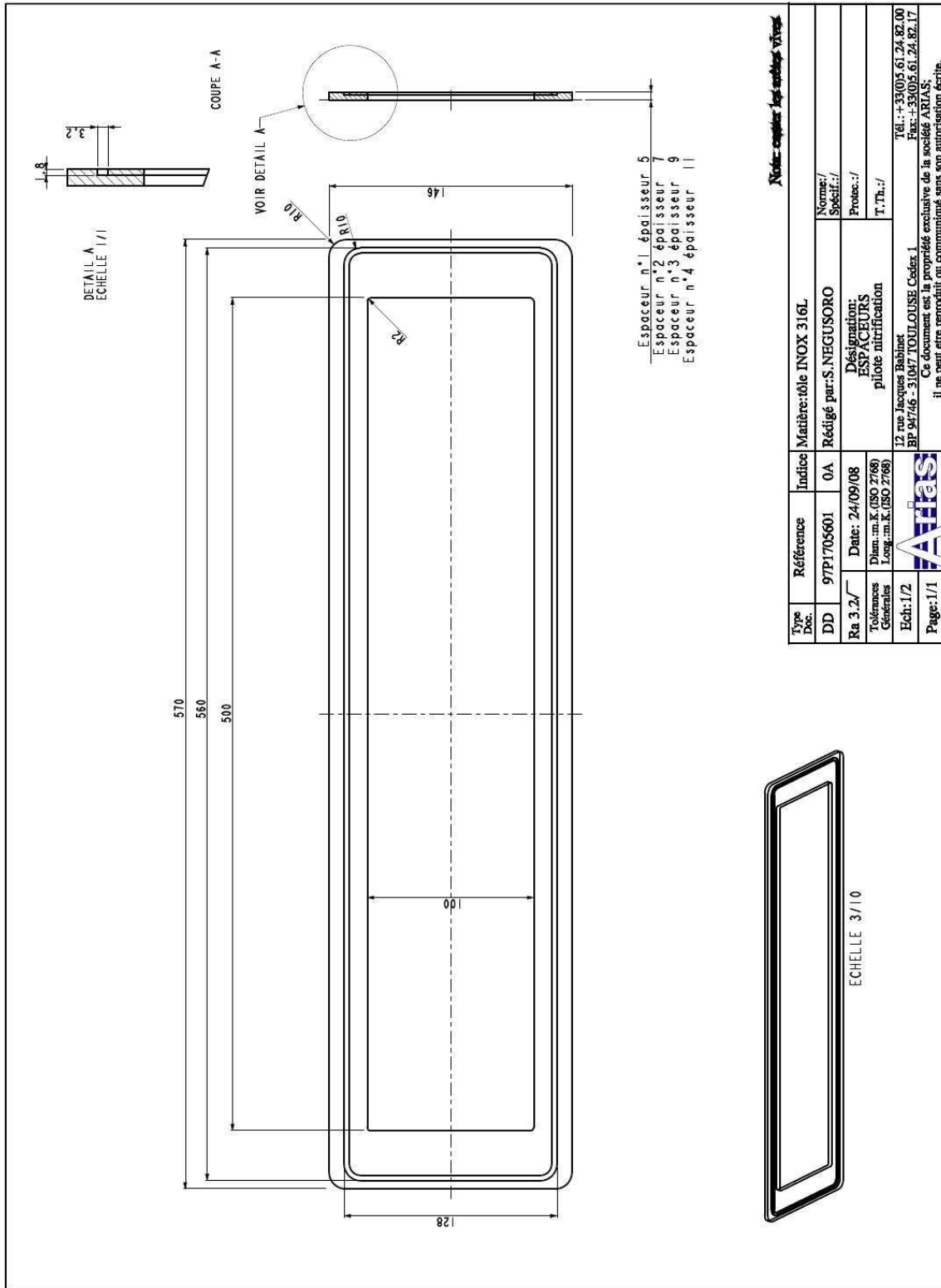
## Annexe B : Quotation des plaques supérieures et inférieures et des espaceurs des cellules membranaires

### 1 - Quotation de la plaque supérieure





### 3 - Quotation des espaceurs



## **Annexe C : Dosage des gaz dissous dans l'eau : « méthode des ampoules »**

### **MATERIELS**

- Chromatographie phase gazeuse (CPG),
- Azote pur,
- Ampoule à décanter de 1 L équipée de 2 robinets (haut et bas),
- Ampoule à décanter de 1 L équipée d'un robinet bas,
- Agitateur,
- 1 sac à gaz "TEDLAR" (ou équivalent) de 1 L muni d'un robinet,
- Éprouvette graduée de 250 mL (> à 100 mL),
- Une pompe à vide.

### **REPLISSAGE DES AMPOULES (CF. FIGURE 1)**

A partir d'un circuit d'eau : relier le circuit avec le bas de l'ampoule. Ouvrir les robinets haut et bas de l'ampoule. Lorsque le liquide déborde à partir de la partie haute de l'ampoule, fermer le robinet bas de l'ampoule et chasser les bulles (il ne doit plus y avoir de gaz). Fermer le robinet haut de l'ampoule puis la déconnecter du circuit.

### **EXTRACTION DES GAZ DISSOUS (CF. FIGURE 2)**

Placer l'éprouvette graduée sous l'ampoule. Remplir le sac à gaz d'1 L d'azote et le connecter sur le robinet haut de l'ampoule. Ouvrir dans l'ordre le ballon, le robinet haut puis le robinet du bas de l'ampoule et laisser couler environ 100 mL de la solution de l'ampoule dans l'éprouvette. Dès que les 100 mL sont obtenus, fermer le robinet bas puis haut de l'ampoule, déconnecter le sac à gaz et mesurer précisément ces 100 mL. Agiter l'ampoule avec l'agitateur pendant 5 minutes.

### **ANALYSE DE LA TENEUR EN GAS DISSOUS (CF. FIGURE 3)**

Remplir entièrement la deuxième ampoule avec de l'eau non dopée (ampoule B). Relier les 2 ampoules par le bas. Ouvrir le robinet bas de l'ampoule B et remplir le tuyau reliant les deux ampoules d'eau de l'ampoule B (pas de volume de gaz emprisonné).

Connecter le haut de l'ampoule A contenant la solution dopée à la poche à gaz préalablement vidée de tous gaz. Ouvrir dans l'ordre le robinet haut puis bas de l'ampoule dopée et ensuite le robinet bas de l'ampoule B. Remplir la poche à gaz avec le ciel gazeux

jusqu'à arrivée du niveau d'eau sous le robinet de l'ampoule dopée. Fermer la poche à gaz et les robinets.

Connecter la poche à gaz avec la CPG et mesurer les gaz dissous.

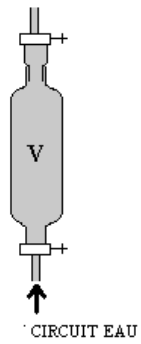


Figure 1

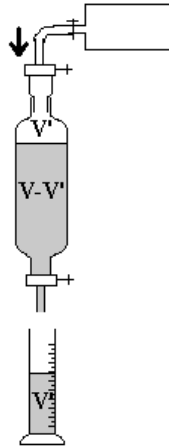


Figure 2

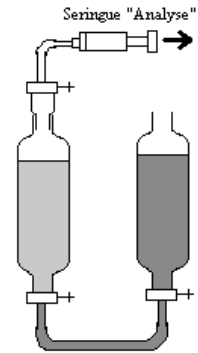


Figure 3

## **Références bibliographiques**

---





**A**hmadi Motlagh A.R., Voller V.R., Semmens M.J. (2006) Advective flow through membrane-aerated biofilms. Modeling results. *Journal of Membrane Science* 273 (1-2), 143-151.

Ahmed T., Semmens M.J. (1992) The use of independently sealed microporous hollow fibre membranes for oxygenation of water: model development. *Journal of Membrane Science* 69 (1-2), 11-20.

Aptel P., Semmens M.J. (1996) *Water Treatment; Membrane Processes*. Chapter 8 : Multiphase membrane processes. American Water Works Research Foundation, Lyonnaise des eaux, Water Research commission of South Africa. McGraw-Hill, New York, ISBN : 0070015597. 320p.

Aspa Y., Debenest G., Quintard M. (2011) Effective dispersion in channelled biofilms. *International Journal of environmental and waste Management* 7 (1-2), 112-131.

Atcharyawut S., Jiratananon R., Wang R. (2007) Separation of CO<sub>2</sub> from CH<sub>4</sub> by using gas-liquid membrane contacting process. *Journal of Membrane Science* 304, 163-172.

Attaway H., Gooding C.H., Schmidt M.G. (2002) Comparison of microporous and nonporous membrane bioreactor systems for the treatment of BTEX in vapour streams. *Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology* 28 (5), 245-251.

**B**agley B.M., Brodkorb T.S. (1999) Modelling microbial kinetics in an anaerobic sequencing batch reactor-Model development an experimental validation. *Water Environment Research* 71 (7), 1320-1332.

Beuling E.E., Van Dusschoten D., Lens P., Van Den Heuvel J.C., Van As H., Ottengraf S.P.P. (1998) Characterization of the diffusive properties of biofilms using pulsed field gradient-nuclear magnetic resonance. *Biotechnology and Bioengineering* 60 (3), 283-291.

Beyenal H., Lewandowski Z. (2000) Combined effect of substrate concentration and flow velocity on effective diffusivity in biofilms. *Water Research* 34 (2), 528-538.

Beyenal H., Lewandowski Z. (2002) Internal and external mass transfer in biofilms grown at various flow velocities. *Biotechnology Progress* 18 (1), 55-61.

Beyenal H., Lewandowski Z. (2005) Modelling mass transport and microbial activity in stratified biofilms. *Chemical Engineering Science* 60, 4337-4348.

Beyenal H., Tanyolaç A. (1994) The calculation of simultaneous effective diffusion coefficients of the substrates in a fluidized bed biofilm reactor. *Water Science and Technology* 29, 463-470.

Beyenal H., Tanyolac A., Lewandowski Z. (1998) Measurement of local effective diffusivity in heterogeneous biofilms. *Water Science and Technology* 38 (8-9), 171-178.

Bird R.B., Stewart W.E., Lightfoot E.N. (2001) *Transport phenomena*. Wiley international edition, ISBN : 0-471-41077-2. 780 p.

Bishop P.L., Gibbs J.T., Cunningham B.E. (1997) Relationship between concentration and hydrodynamic boundary layers over biofilms. *Environmental Technology* 18 (4), 375-386.

Bishop P.L., Zhang T.C., Fu Y.C. (1995) Effects of biofilm structure, microbial distributions and mass transport on biodegradation process. *Water Science and Technology* 31, 143-152.

Boeglin J.C. (1998) Traitements biologiques des eaux résiduaires. *Techniques de l'ingénieur*, J3942.

Bougard D. (2004) Traitement biologique d'effluents azotés avec arrêt de la nitrification au stade nitrite. Thèse Ecole Nationale Supérieure Agronomique de Montpellier.

Brindle K., Stephenson T., Semmens M.J. (1998) Nitrification and oxygen utilisation in a membrane aeration bioreactor. *Journal of Membrane Science* 144 (1-2), 197-209.

Brindle K., Stephenson T., Semmens M.J. (1999) Pilot-plant treatment of a high-strength brewery wastewater using a membrane-aeration bioreactor. *Water Environment Research* 71 (6), 1197-1204.

Brookes P.R., Livingston A.G. (1993) Point source detoxification of an industrially produced 3,4-dichloroaniline-manufacture wastewater using a membrane bioreactor. *Applied Microbiology and Biotechnology* 39, 764-771.

Brusseau M.L., Jessup R.E., Rao P.S.C. (1992) Modelling solute transport influenced multiprocess nonequilibrium and transformation reactions. *Water Resources Research* 28 (1), 175-82.

Bryers J.D., Drummond F. (1998) Local Macromolecule Diffusion Coefficients in structurally Non-Uniform bacterial biofilms using fluorescence recovery after photobleaching. *Biotechnology and Bioengineering* 60 (4), 462-473.

Casey E., Glennon B., Hamer G. (1999) Oxygen mass transfer characteristics in a membrane aerated biofilm reactor. *Biotechnology and Bioengineering* 62, 183-193.

Casey E., Glennon B., Hamer G. (2000a) Biofilm development in a membrane-aerated biofilm reactor: effect of intra-membrane oxygen pressure on performance. *Bioprocess and Biosystems Engineering* 23, 457-465.

Casey E., Glennon B., Hamer G. (2000b) Biofilm development in a membrane aerated biofilm reactor: effect of flow velocity on performance. *Biotechnology and Bioengineering* 67 (4), 476-486.

Celmer D., Oleszkiewicz J.A., Cicek N. (2008) Impact of shear force on the biofilm structure and performance of a membrane biofilm reactor for tertiary hydrogen-driven denitrification of municipal wastewater. *Water Research* 42, 3057-3065.

Chang C.M., Kemblowski M.W., Urroz G.E. (1999) Transient stochastic analysis of biodegradable contaminant transport: first-order decay. *Transport in Porous Media* 35 (1), 1-14.

- Characklis, W.G., Marshall, K.C. (1990) *Biofilms*; John Wiley and Sons: New York, ISBN: 0471826634. 816 p.
- Chen G.H., Ozaki H., Terashima Y. (1988) Modeling of the simultaneous removal of organic substances and nitrogen in a biofilm. *Water Science and Technology* 21, 791-804.
- Chung J., Li X., Rittmann B.E. (2007) Bio-reductive dechlorination of 1,1,1-trichloroethane and chloroforme using a hydrogen-based membrane biofilm reactor. *Biotechnology and Bioengineering* 97 (1), 52-60.
- Clapp L.W., Regan J.M., Ali F., Newman J.D., Park J.K., Noguera D.R. (1999) Activity, structure, and stratification of membrane-attached methanotrophic biofilms comatabolically degrading trichloroethylene. *Water Science and Technology* 39 (7), 153-161.
- Coeuret F., Stork A. (1993) *Eléments de génie électrochimique, Techniques et documentation* Lavoisier. ISBN : 2-85206-243-7. 402 p.
- Costerton J.W. (1999) Introduction to biofilm. *International Journal of Antimicrobial Agents* 11, 217-221.
- Costerton J. W., Lewandowski Z., Caldwell D.E., Korber D.R., Lappin-Scott H.M. (1995) Microbial biofilms. *Annual Review of Microbiology* 49, 711-745.
- Cote P., Bersillon J.L., Huyard A. (1989) Bubble-free aeration using membranes: mass transfer analysis. *Journal of Membrane Science* 47, 91-106.
- Coutte F., Lecouturier D., Yahia S.A., Leclère V., Bechet M., Jacques P., Dhulster P. (2010) Production of surfactin and fengycin by *Bacillus substilis* in a bubbleless membrane bioreactor. *Applied Microbiology Biotechnology* 87 (2), 499-507.
- Cunningham J.A., Mendoza-Sanchez I. (2006) Equivalence of two models for biodegradation during contaminant transport in groundwater. *Water Resources Research* 42: W02416.
- Cussler E.L. (1997) *Diffusion. Mass transfer in fluid systems*, second edition. Cambridge university press. ISBN : 2852062437. 580 p.
- D**avit Y., Debenest G., Wood B.D., Quintard M. (2010) Modeling non-equilibrium mass transport in biologically reactive porous media. *Advances in water resources* 33, 1075-1093.
- Dawson A.D., Trass O. (1972) Mass transfer at rough surfaces. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 15, 1317-1336.
- De Beer D., Stoodley P. (1995) Relation between the structure of an aerobic biofilm and transport phenomena. *Water Science and Technology* 32 (8), 11-18.
- De Beer D., Stoodley P., Lewandowski Z. (1994) Liquid flow in heterogeneous biofilms. *Biotechnology and Bioengineering* 44, 636-641.

De Beer D., Stoodley P., Lewandowski Z. (1996) Liquid flow and mass transport in heterogeneous biofilms. *Water Research* 30 (11), 2761-2765.

De Beer D., Stoodley P., Roe F., Lewandowski Z. (1994) Effects of biofilm structures on oxygen distribution and mass transfer. *Biotechnology and Bioengineering* 43, 1131-1138.

De Bo I., Van Langenhove H., Heynan J. (2002) Removal of dimethyl sulfide from waste air in a membrane bioreactor. *Desalination* 148, 281-287.

Debus O. (1995) Transport and reaction of aromatics O<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> within a membrane-bound biofilm in competition with suspended biomass. *Water Science and Technology* 31 (1), 129-141.

Degrémont (2005) Memento technique de l'eau, tome 1 et 2. ISBN : 2-7430-0717-6. 1874p.

Di Stefano A., D'Aurizio E., Trubiani O., Grande R., Di Campeli E., Di Giulio M., Di Bartolomeo S., Sozio P., Lannitelli A., Nostro A., Cellini L. (2009) Viscoelastic properties of *Staphylococcus aureus* and *Staphylococcus epidermidis* mono-microbial biofilms. *Microbial Biotechnology* 2 (6), 634-641.

Downing L.S., Nerenberg R. (2007) Kinetics of microbial bromate reduction in a hydrogen-oxidizing denitrifying biofilm reactor. *Biotechnology and Bioengineering* 98 (3), 543-550.

Downing L.S., Nerenberg R. (2006) Bromate reduction in a hydrogen-based hollow fibre membrane biofilm reactor. *Aquatech*, Amsterdam, 30 september-3 October 2006, 7p.

Dunne W.M. (2002) Bacterial adhesion: seen any good biofilms lately? *Clinical Microbiology Reviews* 15, 155-166.

Eberl H.J., Picioreanu C., Heijnen J.J., Van Loosdrecht M.C.M. (2000) A three-dimensional numerical study on the correlation of spatial structure, hydrodynamic conditions, and mass transfer and conversion on biofilms. *Chemical Engineering Science* 55, 6209-6222.

Elskens M. (2010) Analyse des eaux résiduaires, Mesure de la pollution. *Techniques de l'ingénieur*, P4200v2.

Emanuelsson E.A.C., Arcangeli J.P., Livingston A.G. (2003) The anoxic extractive membrane bioreactor. *Water Research* 37, 1231-1238.

Emanuelsson E.A.C., Livingston A.G. (2004) Overcoming oxygen limitations in membrane-attached biofilms – investigation of flux and diffusivity in an anoxic biofilm. *Water Research* 38, 1530-1541.

Ergas S.J., Reuss A.F., (2001) Hydrogenotrophic denitrification of drinking water using a hollow fibre membrane bioreactor. *Journal of Water Supply : research and technology – Aqua* 50 (3), 161-171.

Essila N., Voller V.R., Semmens M.J. (2000) Modeling biofilms on gas-permeable supports. Activity and concentration profiles. *Journal of Environmental Engineering* 126, 250-257.

Essila N.J., Semmens M.J. (2001) Biofilms on gas permeable membrane and solid supports 2. Substrate flux limitations. *Journal of Environmental Engineering* 127 (2), 126-134.

**F**an L.S., Leyva-Ramos R., Wisecarver K.D., Zehner B.J. (1990) Diffusion of phenol through a biofilm grown on activated carbon particles in a draft tube three-phase fluidized bed bioreactor. *Biotechnology and Bioengineering* 47, 90-95.

Fang Y., Novak P.J., Hozalski R.M., Cussler E.L., Semmens M.J. (2004) Condensation studies in gas permeable membranes. *Journal of Membrane Science* 231, 47-55.

Freitas dos santos L.M., Pavasant P., Strachan L.F., Pistikopoulos E.N., Livingston A.G. (1997) Membrane attached biofilms of waste treatment – Fundamentals and applications. *Pure and Applied Chemistry* 69 (11), 2459-2469.

Fu Y.C., Zhang T.C., Bishop P.L. (1994) Determination of effective oxygen diffusivity in biofilms grown in a completely mixed biodrum reactor. *Water Science and Technology* 29, 455-462.

**G**abelman A., Hwang S.T. (1999) Hollow fibre membrane contactors. *Journal of Membrane Science* 159, 61-106.

Garcia Lopez L.A., Veiga M.C., Nogueira R., Aparicio A., Melo L.F. (2003) A technique using a membrane flow cell to determine average mass transfer coefficients and tortuosity factors in biofilms. *Water Science and Technology* 47 (5), 61-67.

Gong Z., Yang F., Liu S., Bao H., Hu S., Furukawa K. (2007) Feasibility of a membrane-aerated biofilm reactor to achieve single-stage autotrophic nitrogen removal based on Anammox. *Chemosphere* 69, 776-784.

Gray W.G. (1975) A derivation of the equations for multiphase transport. *Chemical Engineering Science* 30 (3), p229–33.

Guillemot G., Despax B., Raynaud P., Schmitz P., Mercier-Bonin M. (2007) Prévention de l'adhésion des micro-organismes par plasma. *Techniques de l'ingénieur*, RE83.

Gujer W., Henze M. (1991) Activated sludge modelling and simultaneous removal of organic substances and nitrogen in a biofilm. *Water Science and Technology* 21, 791-804.

**H**age J.C., Van Houten R.T., Tramper J., Hartmans S. (2004) Membrane-aerated biofilm reactor for the removal of 1,2-dichloroethane by *Pseudomonas* sp strain DCA1. *Applied Microbiology and Biotechnology* 64 (5), 718-725.

Hannon J.A., Lopez C., Madec M.N., Lortal S. (2006) Altering renneting pH changes microstructure, cell distribution and lysis of *Lactococcus lactis* AM2 in cheese made from ultrafiltered milk. *Journal of dairy science* 89 (3), 812-823.

Haynes W.M. (2010) Handbook of chemistry and physics, 91<sup>st</sup> editions. Hardback. ISBN : 0981439820773. 2610 p.

Henze M., Gujer W., Mino T. (2007) Activated sludge models ASM1, ASM2, ASM2D and ASM3. IWA Publishing. ISBN : 1900222248. 128p.

Hinsin R.K., Kocher W.M. (1996) Model for effective diffusivities in aerobic biofilm. *Journal of Environmental Engineering* 122, 1023-1030.

Horn H., Hempel D.C. (1995) Mass transfer coefficients for an autotrophic and heterotrophic biofilm system. *Water Science and Technology* 32 (8), 199-204.

Hornemann J.A., Lysova A.A., Codd S.L., Symour J.D., Busse S.C., Stewart P.S., Brown J.R. (2008) Biopolymer and water dynamics in microbial biofilm extracellular polymeric substance. *Biomacromolecules* 9, 2322-2328.

**J**ouenne T. (2008). Biofilms bactériens. *Techniques de l'ingénieur*, BIO600.

**K**lapper I., Rupp C.J., Cargo R., Purvedorj B., Stoodley P. (2002) Viscoelastic fluid description of bacterial biofilm material properties. *Biotechnology and Bioengineering* 80 (3), 289-296.

Kugaprasatham S., Nagaoka H., Ohgaski S. (1992) Effect of turbulence on nitrifying biofilms at non-limiting substrate conditions. *Water Research* 26 (12), 1629-1638.

Kwok W.K., Picioreanu C., Ong S.L., Van Loosdrecht M.C.M., Ng W.J., Heijnen J.J. (1998) Influence of biomass production and detachment forces on biofilm structures in a biofilm airlift suspension reactor. *Biotechnology and Bioengineering* 58, 400-407.

**L**allemand A. (2000) *Ecoulement des fluides, Dynamique des fluides réels. Techniques de l'ingénieur* BE8157.

LaPara T.M., Cole A.C., Shanahan J.W., Semmens M.J. (2006) The effects of organic carbon, ammoniacal-nitrogen, and oxygen partial pressure on the stratification of membrane-aerated biofilms. *Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology* 33, 315-323.

Lau P.C.Y., Dutcher J.R., Beveridge T.J., Lam J.S. (2009) Absolute quantitation of bacterial biofilm adhesion and viscoelasticity by microbead force spectroscopy. *Biophysical journal* 96 (7), 2935-2948.

Lawrence J.R., Wolfaardt G.M., Korber D.R. (1994) Determination of diffusion coefficients in biofilms by confocal laser microscopy. *Applied and Environmental Microbiology* 60 (4), 1166-1173.

Lee K.C., Rittmann B.E. (2002) Applying a novel autohydrogenotrophic hollow-fiber membrane biofilm reactor for denitrification of drinking water. *Water Research* 36, 2040-2052.

Lee K.C., Rittmann B.E. (2003) Effets of pH and precipitation on autohydrogenotrophic denitrification usign the hollow-fibre membrane-biofilm reactor. *Water Research* 37, 1551-1556.

Lens P., Moran A.P., Mahony T., Stoodely P., O'Flaherty V. (2003) *Biofilms in Medicine, Industry and Environmental Biotechnology – Characteristics, Analysis and Control*: IWA Publishing. ISBN: 1843390191. 608p.

Lewandowski Z. (2000) Notes on biofilm porosity. *Water Research* 34 (9), 2620-2624.

Li T., Liu J., Bai R., Wong F.S. (2008) Membrane aerated biofilm reactor for the treatment of acetonitrile wastewater. *Environmental Science and Technology* 42 (6), 2099-2104.

Lim J.Y., La H.J., Sheng H., Forney L.J., Hovde J. (2010) Influence of Plasmid pO157 on *Escherichia coli* O157:H7 Sakai biofilm formation. *Applied and Environmental Microbiology* 76 (3), 963-966.

Livingston A.G. (1993a) A novel membrane bioreactor for detoxifying industrial wastewater : I. Biodegradation of phenol in a synthetic concocted wastewater. *Biotechnology and Bioengineering* 41, 915-926.

Livingston A.G. (1993b) A novel membrane bioreactor for detoxifying industrial wastewater : II. Biodegradation of 3-chloronitrobenzene in an industrially produced wastewater. *Biotechnology and Bioengineering* 41, 927-936.

Loh K.C., Chung T.S., Ang W.F. (2000) Immobilized-cell membrane bioreactor for high-strength phenol wastewater. *Journal of Environmental Engineering* 126, 75-79.

**M**atcalf E. (1991) *Wastewater Engineering Treatment. Disposal and Reuse*. McGraw-Hill: Boston, MA. ISBN : 0070418780. 1848p.

Matos C.T., Velizarov S., Reis M.A.M., Crespo J.G. (2008) Removal of bromates from drinking water using the ion exchange membrane bioreactor concept. *Environmental Science and Technology* 42, 7702-7708.

Matsumoto S., Terada A., Tsuneda S. (2007) Modelling of membrane-aerate biofilm : effect of C/N ratio, biofilm thickness and surface loading of oxygen on feasibility of simultaneous nitrification and denitrification. *Biochemical Engineering Journal* 37, 98-107.

Mayer C., Moritz R., Kirschner C., Borchard W., Maibaum R., Wingender J., Flemming H.C. (1999) The role of intermolecular interactions studies on model systems for bacterial biofilms. *International Journal of Biological Macromolecules* 26 (1), 3-16.

Melo L.F. (2005) Biofilm physical structure, internal diffusivity and tortuosity. *Water Science and Technology* 52 (7), 77-84.

Melo L.F., Viera M.J. (1999) Physical stability and biological activity of biofilms under turbulent flow and low substrate concentration. *Bioprocess Engineering* 20, 363-368.

Miquel G. (2003) *La qualité de l'eau et de l'assainissement en France. Origine de la saisine : Commission des Finances, de l'Economie générale et du Plan de l'Assemblée nationale ; Référence Assemblée nationale : 705 (12ème législature) ; Référence Sénat : 215 (2002-*

2003). Disponible à l'adresse suivante : <http://www.senat.fr/notice-rapport/2002/l02-215-1-notice.html>

**N**erenberg R., Kawagoshi Y., Rittmann B.E. (2007) Microbial ecology of a perchlorate-reducing, hydrogen-based membrane biofilm reactor. *Water Research* 42 (4-5), 1151-1159.

Nerenberg R., Rittmann B.E., Najm I. (2002) Perchlorate reduction in a hydrogen-based membrane biofilm reactor. *Journal AWWA* 94 (1), 103-114.

Nguyen P.T. (2011) Contacteurs à membranes denses pour les procédés d'absorption gaz-liquide intensifiés. Application à la capture du CO<sub>2</sub> en post combustion. Thèse, Institut National Polytechniques de Lorraine. 253p.

Noguera D.R., Okabe S., Picioreanu C. (1999) Biofilm modelling : present status and future directions. *Water Science and Technology* 39 (7), 273-278.

**O**choa J.C., Coufort C., Escudie R., Line A., Paul E. (2007) Influence of a non-uniform distribution of shear stress on aerobic biofilms. *Chemical Engineering Science* 62, 3672-3684.

Ohandja D.G., Stuckey D.C. (2006) Development of a membrane-aerated biofilm reactor to completely mineralise perchloro-ethylene in wastewaters. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology* 81 (11), 1736-1744.

Ohashi A., Koyama T., Syutsubo K., Harada H. (1999) A novel method for evaluation of biofilm tensile strength resisting to erosion. *Water Science and Technology* 39 (7), 261-268.

Ohl A.L., Horn H., Hempel D.C. (2004) Behaviour of biofilm systems under varying hydrodynamic conditions. *Water Science and Technology* 49 (11-12), 345-351.

**P**ankhania M., Brindle K., Stephenson T. (1999) Membrane aeration bioreactors for wastewater treatment: completely mixed and plug-flow operation. *Chemical Engineering Journal* 73 (2), 131-136.

Pankhania M., Stephenson T., Semmens M.J. (1994) Hollow fibre bioreactor for waste-water treatment using bubbleless membrane aeration. *Water Research* 28 (10), 2233-2236.

Parvatiyar M.G., Govind R., Bishop D.F. (1996a) Biodegradation of toluene in a membrane biofilter. *Journal of Membrane Science* 119, 17-24.

Parvatiyar M.G., Govind R., Bishop D.F. (1996b) Treatment of trichloroethylene (TCE) in a membrane biofilter. *Biotechnology and Bioengineering* 50, 57-64.

Picioreanu C., Van Loosdrecht M.C.M., Heijnen J.J. (2000) A theoretical study on the effect of surface roughness on mass transport and transformation in biofilms. *Biotechnology and Bioengineering* 68 (4), 355-369.

Picioreanu C., Van Loosdrecht M.C.M. (2003) Use of mathematical modelling to study biofilm development and morphology. In : Lens P., O'Flaherty V., Moran A.P., Stoodley P., Mahony



T., editors. *Biofilms in medicine, industry and environmental biotechnology – Characteristics, analysis and control*. IWA Publishing. p 413- 437.

Picioreanu C., Van Loosdrecht M.C.M., Heijnen J.J. (1998) Mathematical modelling of biofilm structure with a hybrid differential-discrete cellular automaton approach. *Biotechnology and Bioengineering* 58 (1), 101-116.

Pons M.N., Belhani M., Bourgeois J., Dupuit E. (2008) Analyse du cycle de vie, Epurations des eaux usées urbaines. *Techniques de l'ingénieur*, G5820.

**R**asmussen K., Lewandowski Z. (1998) Microelectrode measurements of local mass transport rates in heterogeneous biofilms. *Biotechnology and Bioengineering* 59 (3), 302-309.

Reed B.W., Semmens M.J., Cussler E.L. (1995) *Membrane Separation Technology. Principles and Applications*. Chapitre 10: Membrane contactors. Elsevier, ISBN : 044481633X, 738p.

Reichert P. (1998) *AQUASIM 2.0, User Manual*. Computer Program for the Identification and Simulation of Aquatic Systems. Swiss Federal Institute for Environmental Science and Technology (EAWAG), Dübendorf, Switzerland

Remigy J.C., Desclaux S. (2007) Filtration membranaire (OI, NF, UF) – Présentation des membranes et modules. *Techniques de l'ingénieur* J2791.

Renslow R.S., Majors P.D., McLean J.S., Fredrickson J.K., Ahmed B., Beyenal H. (2010) In situ effective diffusion coefficient profiles in live biofilms using pulsed-field gradient nuclear magnetic resonance. *Biotechnology and Bioengineering* 106 (6), 928-937.

Rishell S., Casey E., Glennon B., Hamer G. (2004) Characteristics of a methanotrophic culture in a membrane-attached biofilm reactor. *Biotechnology Progress* 20, 1082-1090.

Rittman B.E., Manem J.A. (1992) Development and experimental evaluation of a steady state, multispecies biofilm model. *Biotechnology and Bioengineering* 39, 914-922.

Rittmann B.E., Nerenberg R., Lee K.C., Najm I., Gillogly T.E., Lehman G.E., Adham S.S. (2004) The hydrogen based hollow fiber membrane biofilm reactor for removing oxidized contaminants. *Water Science and Technology* 4, 127-133.

Rittmann B.E., Pettis M., Reeves H.W., Stahl D.A. (1999) How biofilms clusters affect substrate flux and ecological selection. *Water Science and Technology* 39 (7), 99-105.

Rupp C.J., Fux C.A., Stoodley P. (2005) Viscoelasticity of *Staphylococcus aureus* biofilms in response to fluid shear allows resistance to detachment and facilitates rolling migration. *Applied and Environmental Microbiology* 71 (4), 2175-2178.

**S**ander R. (1999) Compilation of Henry's law constants for inorganic and organic species of potential importance in environmental chemistry. <http://www.mpch-mainz.mpg.de/~sander/res/henry.html> (date de dernière consultation : mai 2011).

- Satoh H., Ono H., Rulin B., Kamo J., Okabe S., Fukushi K.I. (2004) Macroscale and microscale analyses of nitrification and denitrification in biofilms attached on membrane aerated biofilm reactors. *Water Research* 38, 1633-1641.
- Semmens M.J., Dahm K., Shanahan J., Christianson A. (2003) COD and nitrogen removal by biofilms growing on gas permeable membranes. *Water Research* 37, 4343-4350.
- Semmens M.J., Essila N.J. (2001) Modelling biofilm on gas-permeable supports: flux limitations. *Journal of Environmental Engineering* 127, 126-133.
- Semmens M.J., Gantzer C.J. (1993) Gas transfer Using Hollow Fibre Membranes. *Water environment Federation 66th Annual Conference and exposition, Anaheim, CA, october 1993.* 395-405.
- Shanahan J.W., Semmens M.J. (2004) Multipopulation model of membrane-aerated biofilms. *Environmental Science and Technology* 38, 3176-3183.
- Shanahan J.W., Semmens M.J. (2006) Influence of a nitrifying on local oxygen fluxes across a micro-porous flat sheet membrane. *Journal of Membrane Science* 277, 65-74.
- Siegrist H., Gujer W. (1985) Mass transfer mechanism in a heterotrophic biofilm. *Water Research* 19, 1369-1378.
- Spendiani A., Moreira de Sa J.A.G.C., Jorge R., Nicoletta C., Livingston A.G., Hughes K., Cook S. (2000) Development of an extractive membrane bioreactor for degradation of 3-chloro-4-methylanilin : from lab bench to pilot scale. *Environmental Progress* 19 (1), 18-27.
- Stewart P.S. (1998) A review of experimental Measurements of effective diffusive permeabilities and effective diffusion coefficients in biofilm. *Biotechnology and Bioengineering* 59 (3), 261-272.
- Stewart P.S. (2003) Diffusion in biofilms. *Journal of bacteriology* 185 (5), 1485-1491.
- Stoodley P., Boyle J.D., Dodds I., Lappin-Scott H.M. (1997) Consensus Model of Biofilm Structure. In: "Biofilms: community interactions and control". Edited by Wimpenny, J.W.T., Handley, P.S., Gilbert, P., Lappin-Scott, H.M., and Jones, M. BioLine, Cardiff, UK. 318p.
- Stoodley P., Yang S., Lappin-Scott H., Lewandowski Z. (1997) Relationship between mass transfer coefficient and liquid flow velocity in heterogeneous biofilms using microelectrodes and confocal microscopy. *Biotechnology and Bioengineering* 59 (6), 681-688.
- Stoodley P., De Beer D., Lewandowski Z. (1994) Liquid flow in biofilm systems. *Applied and Environmental Microbiology* 60 (8), 2711-2716.
- Stoodley P., Lewandowski Z., Boyle J.D., Lappin-Scott H.M. (1998) Oscillation characteristics of biofilm streamers in turbulent flowing water as related to drag and pressure drop. *Biotechnology and Bioengineering* 57 (5), 536-544.

- Stoodley P., Yang S., Lappin-Scott H., Lewandowski Z. (1997) Relationship between mass transfer coefficient and liquid flow velocity in heterogeneous biofilms using microelectrodes and confocal microscopy. *Biotechnology and Bioengineering* 56 (6), 681-688.
- Sun Y., Lu X. (2005) A screening model for evaluating the degradation and transport of mtbe and other fuel oxygenates in groundwater. *Transport in Porous Media* 60, 75-88.
- Sutherland I.W. (2001) Biofilm exopolysaccharides: a strong and sticky framework. *Microbiology* 147, 3-9.
- Suzuki Y., Miyahara S., Takeishi K. (1993) Oxygen-supply method using gas-permeable membrane film for waste-water treatment. *Water Science and Technology* 28 (7), 243-250.
- Syron E., Casey E. (2007) Membrane-aerated biofilms for high rate biotreatment: performance appraisal, engineering principles, scale-up, and development requirements. *Environmental Science and Technology* 42 (6), 1833-1844.
- Syron E., Casey E. (2008) Model-based comparative performance analysis of membrane aerated biofilm reactor configuration. *Biotechnology and Bioengineering* 99 (6), 1361-1373.
- Syron E., Kelly H., Casey E. (2009) Studies on the effect of concentration of a self-inhibitory on biofilm reaction rate under co-diffusion and counter-diffusion configurations. *Journal of Membrane Science* 335, 76-82.
- T**erada A. (2006) Design of material surface for rapid biofilm formation and application to membrane aerated biofilm reactor for simultaneous nitrification and denitrification. Thèse, Waseda University, 168 p.
- Terada A., Hibiya K., Nagai J., Tsuneda S., Hirata A. (2003) Nitrogen removal characteristics and biofilm analysis of a membrane-aerated biofilm reactor applicable to high-strength nitrogenous wastewater treatment. *Journal of Bioscience and Bioengineering* 95 (2), 170-178.
- Terada A., Kaku S., Matsumoto S., Tsuneda S. (2006) Rapid autohydrogenotrophic denitrification by a membrane biofilm reactor equipped with a fibrous support around a gas permeable membrane. *Biochemical Engineering Journal* 31, 84-91.
- Terada A., Lackner S., Tsuneda S., Smets B.F. (2007) Redox stratification controlled biofilm (ReSCoBi) for completely autotrophic nitrogen removal: the effect of co- versus counter-diffusion on reactor performance. *Biotechnology and Bioengineering* 97 (1), 40-51.
- Tijhuis L., Hijman B., Van Loosdrecht M.C.M., Heijnen J.J. (1995) Influence of detachment, substrate loading rate and reactor scale on the formation of biofilms in airlift reactors. *Applied Microbiology and Biotechnology* 45 (1-2), 7-17.
- Tijhuis L., Van Loosdrecht M.C.M., Heijnen J.J. (1994) Formation and growth of heterotrophic aerobic biofilms on small suspended particles in airlift reactors. *Biotechnology and Bioengineering* 44, 595-608.

**V**an Benthum W.A.J., Derissen B.P., Van Loosdrecht M.C.M., Heijnen J.J. (1998) Nitrogen removal using nitrifying biofilm growth and denitrifying suspended growth in a biofilm airlift suspension reactor coupled with a chemostat. *Water Research* 32, 2009-2018.

Van Loosdrecht M.C.M., Eikelboom D., Gjaltema A., Mulder A., Tjihuis L., Heijnen J.J. (1995) Biofilm structures. *Water Science and Technology* 32 (8), 35-43.

Van Loosdrecht M.C.M., Heijnen J.J., Eberl H., Kreft J., Picioreanu C. (2002) Mathematical modelling of biofilm structures. *Antonie van Leeuwenhoek* 81, 245-256.

Van Loosdrecht M.C.M., Henze M. (1999) Maintenance, endogenous respiration, lysis, decay and predation. *Water Science and Technology* 39, 107-117.

Vernay R. (2010) Stage de 3<sup>ème</sup> Année IPBS, Effectuée au LGC, Département GIMD.

Villiermaux J. (1994) Réacteurs chimiques, Principes. *Techniques de l'ingénieur*, J4010.

**W**ang R., Zhang H.Y., Feron P.H.M., Liang D.T. (2005) Influence of membrane wetting on CO<sub>2</sub> capture in microporous hollow fiber membrane contactors. *Separation and Purification Technology* 46, 33-40.

Wanner O., Eberl H., Morenroth E., Noguera D., Picioreanu C., Rittman B., Van Loosdrecht M.C.M. (2006) Mathematical modelling of biofilms. IWA Scientific and Technical Report N°18, IWA Publishing, ISBN 1843390876. 199p.

Wäsche S., Horn H., Hempel D.C. (2002) Influence of growth conditions on biofilm development and mass transfer at the bulk/biofilm interface. *Water Research* 36, 4775-4784.

Westrin B.A., Axelsson A. (1991) Diffusion in gels containing immobilized cells: A critical review. *Biotechnology and Bioengineering* 38, 439-446.

**Z**hang T.C., Bishop P.L. (1994) Evaluation of tortuosity factors and effective diffusivities in biofilms. *Water Research* 28, 2279-2287.

Zhang T.C., Bishop P.L. (1994b) Density, porosity, and pore structure of biofilms. *Water Research* 28 (11), 2267-2277.

## **Nomenclature**



**Lettres latines**

A	Constante	(-)
B	Vitesse de mortalité spécifique	(j <sup>-1</sup> )
b <sub>x</sub>	Cinétique de décès de la biomasse	(mg L <sup>-1</sup> j <sup>-1</sup> )
C <sub>liquide</sub>	Concentration dans la phase liquide	(mol m <sup>-3</sup> )
D	Coefficient de diffusion	(m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )
D <sub>eff</sub>	Diffusivité relative	(-)
D <sub>H</sub>	Diamètre hydraulique	(m)
E	Epaisseur	(m)
f	Facteur de forme, constante semi-empirique	(-)
H	Constante de Henry	(mol m <sup>-3</sup> Pa <sup>-1</sup> )
H'	Constante de Henry adimensionnelle	(-)
K	Constante de Monod	(mg L <sup>-1</sup> )
k	Coefficient de transfert local	(m s <sup>-1</sup> )
K <sub>D</sub>	Coefficient de partage du soluté dans la membrane	(-)
K <sub>G</sub>	Coefficient de transfert global	(m s <sup>-1</sup> )
k <sub>H</sub>	Constante de vitesse de la lyse cellulaire	(gDCO complexe gDCO cellulaire <sup>-1</sup> j <sup>-1</sup> )
k <sub>HA</sub>	Vitesse d'utilisation spécifique	(gDCO gMVS <sup>-1</sup> j <sup>-1</sup> )
K <sub>in_O2</sub>	Constante d'inhibition par l'oxygène	(g m <sup>-3</sup> )
K <sub>X</sub>	Constante de demi-saturation pour l'hydrolyse des cellules lysées	(g DCO complexe g DCO cellulaire <sup>-1</sup> )
L	Longueur de la cellule	(m)
l	Diamètre des canaux dans le biofilm	(m)
l <sub>pénétration</sub>	Longueur de pénétration de l'oxygène dans le biofilm	(m)
m <sub>biof humide</sub>	Masse de l'échantillon biofilm humide	(kg)
m <sub>biof sec</sub>	Masse de l'échantillon biofilm sec	(kg)
<i>ṅ</i>	Débit molaire	(mol s <sup>-1</sup> )
O2_COD	Ratio d'oxygène consommé par DCO consommée	(gO <sub>2</sub> gDCO <sup>-1</sup> )
P	Pression	(Pa)
Q	Débit volumique	(m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> )
R	Constante des gaz parfaits (8,314 J mol <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )	(J mol <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )
R <sub>d</sub>	Résistance spécifique	(m kg <sup>-1</sup> )
Res	Résistance	(s m <sup>-1</sup> )
r <sub>p</sub>	Vitesse de génération des produits	(mg L <sup>-1</sup> j <sup>-1</sup> )
r <sub>pore</sub>	Rayon du pore	(m)
r <sub>S</sub>	Vitesse de consommation du substrat	(mg L <sup>-1</sup> j <sup>-1</sup> )
r <sub>X</sub>	Vitesse de croissance de la biomasse	(mg L <sup>-1</sup> j <sup>-1</sup> )
S	Variable soluble	(mg L <sup>-1</sup> )
S <sub>mb</sub>	Surface de membrane	(m <sup>2</sup> )
T	Température	(K)
T <sub>CPG</sub>	Température du gaz introduit dans la CPG	(K)
v°	Vitesse du liquide dans les pores du biofilm	(m s <sup>-1</sup> )

$V_{CPG}$	Volume de gaz introduit dans la CPG	$(m^{-3})$
$v_{liquide}$	Vitesse moyenne du liquide	$(m\ s^{-1})$
$X$	Variable particulaire	$(mg\ L^{-1})$
$Y$	Fraction molaire	$(-)$
$Y_{AH}$	Taux de conversion anaérobies	$(gVSS\ gDCO\ consommé^{-1})$
$Y_H$	Taux de conversion	$(gVSS\ gDCO\ consommé^{-1})$
$R_d$	Résistance du milieu poreux	$(m^{-1})$
$M_d$	Masse de matière par unité de surface	$(kg\ m^{-2})$
$A_p$	Aire spécifique des particules composant le milieu poreux	$(m^{-1})$

### Lettres grecques

$\gamma$	Tension interfaciale	$(J\ m^{-2})$
$\sigma$	Tension de surface	$(J\ m^{-2})$
$\theta$	Angle de contact entre les deux phases	Radian
$\Phi$	Flux	$(mol\ s^{-1})$
$\tau$	Contrainte de cisaillement	$(Pa)$
$\tau_R$	Tortuosité	$(-)$
$\mu$	Vitesse de croissance spécifique	$(j^{-1})$
$\mu_{max}$	Vitesse de croissance maximale spécifique	$(j^{-1})$
$\alpha$	Constante semi-empirique	$(-)$
$B$	Constante semi-empirique	$(-)$
$\Delta C$	Différence de concentration	$(mol\ m^{-3})$
$\Delta C$	Variation de pression	$(Pa)$
$\Delta C_{ln}$	Différence de concentration logarithmique	$(mol\ m^{-3})$
$\varepsilon$	Porosité	$(-)$
$K$	Constante de réaction du premier ordre	$(-)$
$\alpha_R$	Résistance spécifique	$(m\ kg^{-1})$
$\rho$	Masse volumique	$(kg\ m^{-3})$

### Nombres adimensionnels

$Pe$	Nombre de Peclet
$Re$	Nombre de Reynolds
$Sc$	Nombre de Schmidt
$Sh$	Nombre de Sherwood
Thiele	Nombre de Thiele

### Indices et exposants

Biofilm	Phase biofilm
Calculé	Calculé
$CH_4$	Méthane
$CO_2$	Dioxyde de carbone
DCO	Demande chimique en oxygène
Eau	Phase liquide : eau
Expérimental	Expérimental
Gaz	Phase gazeuse



H	Bactéries hétérotrophes aérobies
HA	Bactéries hétérotrophes anaérobies
membrane	Phase membrane
Néon	Néon
O <sub>2</sub>	Oxygène
S	Substrat (DCO)
S1	Substrat 1
S2	Substrat 2
Transféré	Transféré

**Abréviations**

BTEX	Benzène Toluène Ethylbenzène Xylène
CPG	Chromatographie phase gazeuse
DCO	Demande Chimique en Oxygène
DTS	Distribution des Temps de Séjours
E.H.	Equivalent-Habitant
EPS	ExoPolySaccharide
MVS	Matières Volatiles en Suspension
TCE	TriChloroEthylène



### **Transfert de matière dans un biofilm aéré sur membrane**

Les réacteurs à biofilm aéré sur membrane sont des procédés innovants de traitement de l'eau. Les substrats nécessaires à la croissance bactérienne sont en contre-diffusion dans le biofilm. Ainsi, pour maîtriser la capacité de traitement de ces réacteurs, il est nécessaire de comprendre le transfert de matière dans ces biofilms.

Ce travail présente les résultats expérimentaux du transfert de matière mesuré par un traceur non réactif dans des biofilms mixtes hétérotrophes aérobies. Plusieurs conditions hydrodynamiques ont été appliquées pour la croissance des biofilms. La présence de convection dans les canaux de celui-ci a été mise en évidence au-delà d'un Nombre de Peclet de transition. Ensuite, la prise en compte de la convection via le coefficient de diffusivité relative vient compléter le transfert de matière dans les modèles de croissance de biofilm. Les résultats expérimentaux ont montré que la vitesse de consommation de la matière organique augmente avec le Nombre de Reynolds liée à une augmentation de la capacité de transfert des biofilms.

**Mots clés :** biofilm aéré sur membrane, contacteur gaz-liquide, transfert de matière, contre-diffusion, convection, diffusion, modélisation

### **Mass transfer in a membrane aerated biofilm**

Aerated biofilms reactors represent an innovative process to treat water. Substrates required for bacterial growth are in counter-diffusion towards the biofilm. In order to control biological kinetics, it is fundamental to understand mass transfer in these biofilms. This work presents experimental results of a mass transfer measured by a non reactive tracer in mixed aerobic and heterotrophic biofilms. Various hydrodynamic conditions were applied to grow the biofilms. Beyond a Peclet Number of transitions, convection in the channels was observed. Biofilm growth models were then completed taking account this convection via the effective diffusivity coefficient. Experimental results showed that organic mass consumption kinetic grows with the Reynolds Number associated with an increase in the mass transfer capacity of the biofilms.

**Key words :** membrane aerated biofilm, gas/liquid contactor, mass transfer, counter-diffusion, convection, diffusion, modelling