

**Titre:** Efficacité des lavages physiques de membranes de nanofiltration à fibres creuses  
Title: fibres creuses

**Auteur:** Analita Payant  
Author:

**Date:** 2016

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Payant, A. (2016). Efficacité des lavages physiques de membranes de nanofiltration à fibres creuses [Master's thesis, École Polytechnique de Montréal].  
Citation: PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/2125/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**  
Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/2125/>  
PolyPublie URL:

**Directeurs de recherche:** Benoit Barbeau  
Advisors:

**Programme:** Génie civil  
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

EFFICACITÉ DES LAVAGES PHYSIQUES DE MEMBRANES DE  
NANOFILTRATION À FIBRES CREUSES

ANALITA PAYANT

DÉPARTEMENT DES GÉNIES CIVIL, GÉOLOGIQUE ET DES MINES

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION  
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES

(GÉNIE CIVIL)

AVRIL 2016

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

EFFICACITÉ DES LAVAGES PHYSIQUES DE MEMBRANES DE  
NANOFILTRATION À FIBRES CREUSES

présenté par : PAYANT Analita

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. COMEAU Yves, Ph. D., président

M. BARBEAU Benoit, Ph. D., membre et directeur de recherche

M. BÉRARD Jean-François, M. Sc. A., membre

## REMERCIEMENTS

Je voudrais commencer par remercier mon directeur de recherche, Benoît Barbeau, de m'avoir acceptée à la maîtrise sous sa supervision, mais aussi pour son expertise précieuse tout au long du projet. Je le remercie également pour sa présence, pour toutes les fois je suis passée à son bureau à l'improviste et aussi pour sa rapidité de réaction.

Je voudrais ensuite remercier au grand complet le CREDEAU, autant le personnel, que les techniciens, les étudiants, les stagiaires et les professeurs. Mes nombreuses heures passées au laboratoire ont été bonifiées par la facilité de coopération avec tous, mais aussi la qualité de l'environnement de travail.

Un merci spécial à Mireille Blais qui m'a aidée à modifier plusieurs fois mon montage, réparer des pièces brisées et répondre à mes interrogations tout au long du projet. Ta présence est une aide précieuse, surtout au démarrage du projet quand on se sent le plus vulnérable.

Une deuxième mention spéciale pour Jacinthe Mailly pour toutes les analyses COT nécessaires au projet, mais surtout pour sa patience pendant les mois où la qualité des échantillons était douteuse.

Je voudrais aussi remercier Roumaïda, qui a passé seulement quelques mois à Poly, mais avec qui j'ai eu la chance d'apprendre à opérer les montages avant même de commencer mon projet.

Je voudrais saluer tous mes collègues de bureau et quelques étudiants de deuxième cycle avec qui j'ai fait des cours à la Polytechnique : Sara Kazza, Émile Sylvestre, Simon l'Heureux et Sophie Lévesque.

Finalement, je voudrais souligner le soutien de ma famille, plus particulièrement mes parents qui m'encouragent inconditionnellement dans mes projets personnels et Luc pour son soutien moral pendant ces deux dernières années. Sans vous, le projet m'aurait paru beaucoup plus long.

## RÉSUMÉ

Les membranes de nanofiltration à fibres creuses (HFNF) sont une innovation dans l'industrie de l'eau potable. Bien que le colmatage soit encore un enjeu majeur pour le procédé, la qualité de l'eau obtenue par ce type de filtration est attrayante (faible turbidité, faible teneur en carbone organique dissous, etc.). L'objectif de cette recherche est d'étudier l'efficacité des nettoyages physiques sur les membranes HFNF tout en examinant le rôle de l'hydrodynamique sur la performance du lavage physique. Un dernier volet s'est intéressé à l'énergie consommée par les différents protocoles de lavage physique ainsi qu'au mode d'opération d'une membrane HFNF à l'échelle industrielle.

Les membranes utilisées (HFNF et ultrafiltration à fibres creuses (HFUF) à titre de référence) sont des mini-modules de type intérieur/extérieur (*inside/out*) fournis par le manufacturier qui permettent l'expérimentation en laboratoire. Les membranes ont été colmatées par une eau synthétique contenant deux colmatants soit l'alginate de sodium et une argile (kaolin). Les tests se sont déroulés à flux constant pour trois cycles de filtration/lavage. Au total, six stratégies de nettoyage physiques (3 vitesses d'eau et 2 des vitesses d'air) ont été testées sur la membrane HFNF et quatre sur la HFUF, le tout en filtration tangentielle. Le protocole le plus performant a ensuite été testé sous d'autres conditions d'opération (flux élevé et filtration frontale). Deux méthodes ont été utilisées pour comparer la performance des lavages physiques soit la récupération de perméabilité après un lavage physique et un bilan de masse des colmatants. De plus, l'étude du rôle de l'hydrodynamique s'est fait par deux paramètres : le nombre de Reynolds et la contrainte de cisaillement à la paroi.

Les résultats préliminaires ont permis de valider un mécanisme de colmatage dominant selon les modèles d'Hermia seulement pour les essais en filtration frontale. Les résultats obtenus ont démontré que le mécanisme dominant est la formation de gâteau. La récupération de perméabilité comme méthode d'analyse de la performance des lavages n'a pas été suffisamment sensible pour comparer l'ensemble des résultats. Le bilan de masse s'est avéré une meilleure méthode pour l'analyse comparative.

Aucune différence d'efficacité du nettoyage physique n'a été observée pour les deux types de membranes soumises à une filtration tangentielle (CF). Les résultats ont démontré qu'une vitesse d'eau élevée et l'ajout d'air améliorent la performance du nettoyage. L'écoulement tangentiel

contrôle le colmatage, en effet, la majorité des colmatants a été retrouvée dans le concentrat (75-86%) alors qu'une petite fraction seulement a été récupérée dans les eaux de lavages (moins de 8%). Le contrôle du colmatage en filtration tangentielle (vitesse tangentielle plus lavages physiques) est supérieur à celui atteint par lavage physique en filtration frontale. Les résultats ont démontré qu'une hausse du flux de 20 à 80 LMH sur la membrane HFUF n'a pas eu d'impact sur la performance du lavage physique le plus performant, mais elle a détérioré la qualité du perméat.

L'analyse hydrodynamique a démontré que le nombre de Reynolds maximum est un meilleur indicateur de performance du nettoyage que la contrainte de cisaillement théorique. Le nombre de Reynolds maximum calculé pour le mélange eau-air a obtenu la meilleure corrélation. Pour la membrane HFNF, les coûts énergétiques de lavage estimés sont marginaux par rapport à ceux d'exploitation en raison de la haute pression d'opération et de la recirculation nécessaire à la filtration tangentielle. Cependant, l'énergie de lavage peut être améliorée par une durée de rétro-lavage plus courte et des rinçages assistés d'air.

Un article contenant les détails des résultats obtenus a été soumis le 6 avril 2016 à la revue *Desalination and Water Treatment*.

## ABSTRACT

Hollow fiber nanofiltration (HFNF) is an innovative technology in the drinking water industry. Although fouling is still a major issue for the process, the treated water quality is attractive for the market (low turbidity, low dissolved organic carbon, etc.). The aim of this research was to study the efficacy of physical cleaning on HFNF and assess the role of hydrodynamic conditions on the efficacy. Also, the energy consumed by the various physical cleaning protocols and the operation mode of an industrial scale HFNF membrane were investigated.

The membranes used (HFNF and hollow fiber ultrafiltration (HFUF) as a reference) are inside-out mini-modules provided by the manufacturer for lab-scale experimentation. The membranes were fouled by synthetic water containing two main foulants, sodium alginate and kaolin clay. The tests were conducted at constant flux for three cycles of filtration/cleaning. A total of six physical cleaning strategies (3 water velocities and 2 air velocities) were tested on the HFNF membrane and four on the HFUF operated in crossflow mode. The most efficient protocol was then tested under different operating conditions (high flux and dead-end operation). Two methods were used to compare the cleaning protocols efficacy (i) the permeability recovery after a physical cleaning and (ii) a mass balance analysis of the foulants. In addition, the role of hydrodynamic conditions were studied by two parameters: the Reynolds number and the wall shear stress.

Preliminary results have validated a dominant fouling mechanism based on Hermia's model only for dead-end filtration. The results showed that the dominant mechanism was the cake formation. The permeability recovery method was not sensitive enough to compare all the assays. The mass balance analysis was a better method to compare the protocols efficacy.

No difference in cleaning efficacy was observed for both types of membranes subjected to crossflow filtration (CF). The results showed that high water velocities and air addition improved cleaning performance. The crossflow reduced fouling as the majority of kaolin and alginate were found in the concentrate (75-86%), while only a small fraction was recovered in the cleaning waters (below 8%). Crossflow contribution added to physical cleaning showed a greater total efficacy than the physical cleaning in dead-end operation. Results showed that increasing the flux from 20 to 80 LMH on HFUF membrane had no impact on the efficacy of the most efficient protocol, but deteriorates the permeate quality.

The hydrodynamic analysis showed that the maximum Reynolds number was better correlated to the cleaning efficacy than the maximum theoretical shear stress. The maximum mixture Reynolds number obtained the best overall correlation. For HFNF membrane, the energy costs of cleaning were marginal compared those of operating (high operating pressure and recirculation), but they could be improved by using a shorter backwash duration and air assisted forward flush.

A manuscript containing the results details was submitted on April 6<sup>th</sup>, 2016 to *Desalination and Water Treatment* journal.

## TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS .....	III
RÉSUMÉ.....	IV
ABSTRACT .....	VI
TABLE DES MATIÈRES .....	VIII
LISTE DES TABLEAUX.....	XI
LISTE DES FIGURES.....	XII
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS .....	XIV
LISTE DES ANNEXES.....	XVII
CHAPITRE 1 INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE 2 REVUE CRITIQUE DE LA LITTÉRATURE .....	5
2.1 Les procédés membranaires .....	5
2.1.1 Les membranes de nanofiltration .....	6
2.2 Mécanismes et modèles de colmatage .....	8
2.2.1 Mécanismes de colmatage.....	8
2.2.2 Les quatre modèles de Hermia .....	10
2.3 Agents colmatants majeurs dans les eaux de surface .....	12
2.3.1 Substances humiques.....	13
2.3.2 Biopolymères .....	13
2.4 Types de colmatage et stratégies de lavage (membrane HFNF).....	13
2.4.1 Colmatage réversible physiquement .....	15
2.4.2 Colmatage réversible chimiquement.....	22
2.4.3 Colmatage irréversible .....	22
2.5 Utilisation des eaux synthétiques pour l'étude du colmatage .....	23

CHAPITRE 3	MÉTHODOLOGIE DE RECHERCHE.....	25
3.1	Membranes .....	25
3.2	Eau synthétique .....	26
3.3	Montage expérimental.....	29
3.4	Lavages physiques.....	30
3.5	Performance des lavages par mesure de la perméabilité.....	32
3.6	Performance des lavages par évaluation de bilans de masse .....	33
3.7	Nombre de Reynolds et cisaillement.....	35
3.8	Analyse énergétique .....	37
CHAPITRE 4	RÉSULTATS PRÉLIMINAIRES.....	39
4.1	Stabilité du flux d'opération.....	39
4.2	Validation du mécanisme de colmatage.....	40
4.3	Performance des lavages par mesure de la perméabilité.....	42
4.4	Impact du flux .....	44
CHAPITRE 5	ARTICLE 1: PHYSICAL CLEANING EFFICACY OF HOLLOW FIBER NANOFILTRATION MEMBRANES IN DRINKING WATER APPLICATIONS.....	46
5.1	Introduction .....	47
5.2	Materials and methods .....	49
5.2.1	Membrane modules.....	49
5.2.2	Synthetic waters .....	49
5.2.3	Experimental set-up.....	49
5.2.4	Operation mode and physical cleaning protocols .....	50
5.2.5	Assessment of physical cleaning efficacy.....	52
5.2.6	Hydrodynamic conditions .....	52
5.2.7	Energy consumption.....	55

5.3	Results .....	55
5.3.1	Physical cleaning efficacy for crossflow operation.....	55
5.3.2	Impact of operation mode: crossflow vs dead-end.....	56
5.3.3	Shear and Reynolds number as indicators of physical cleaning efficacy .....	58
5.3.4	Energy consumption.....	61
5.4	Conclusions .....	63
5.5	Acknowledgements .....	63
5.6	Nomenclature .....	64
5.7	References .....	65
CHAPITRE 6 DISCUSSION .....		68
6.1	Mécanisme de colmatage .....	68
6.2	Efficacité des lavages physiques en filtration tangentielle.....	69
6.3	Impact du mode de filtration .....	69
6.4	Impact du flux d'opération .....	70
6.5	Indicateur de performance pour les protocoles de lavage .....	71
6.6	Analyse écoénergétique.....	72
6.7	Limites de l'étude et pistes d'amélioration .....	72
CONCLUSION .....		74
BIBLIOGRAPHIE .....		77
ANNEXES .....		84

## LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2-1 : Mécanismes de colmatage et agents colmatants.....	9
Tableau 2-2 : Modèles de colmatage et équations adaptés de Hermia.....	11
Tableau 2-3 : Vitesses superficielles et fraction volumétrique des écoulements eau-air.....	17
Tableau 2-4 : Protocoles de lavage physique de membranes UF/NF commercialement disponibles sur le marché .....	21
Tableau 2-5 : Substances utilisées pour modéliser de l'eau naturelle .....	23
Tableau 3-1 : Membranes utilisées et leurs conditions d'opération typique.....	25
Tableau 3-2 : Conditions d'opération et protocoles testés.....	30
Tableau 3-3 : Détails des protocoles de lavage physiques à l'étude .....	32
Tableau 3-4 : Régime d'écoulement selon le nombre de Reynolds .....	35
Tableau 4-1 : Valeur de flux réel, écart-type et variance .....	39
Tableau 4-2 : Résistances des membranes et du gâteau.....	42
Tableau 4-3 : Récupération de la perméabilité, filtration frontale sur la membrane UF .....	43
Table 5-1 : Physical cleaning protocols .....	51
Table 5-2 : Shear stresses and Reynolds numbers achieved during each individual cleaning step .....	59
Table 5-3 : Total energy demand for the various cleaning protocols applied to HFNF .....	62
Tableau A-1 : Caractéristiques de la phase liquide et gazeuse .....	84
Tableau A-2 : Propriétés de la membrane.....	84

## LISTE DES FIGURES

Figure 2-1 : Classification des procédés de filtration membranaire selon la porosité (Staff, 2007)	6
Figure 2-2 : Schéma d'un module de membrane spiralée (Schrotter & Bozkaya-Schrotter, 2010)	7
Figure 2-3 : Effet du colmatage sur la perméabilité et types de colmatage .....	15
Figure 2-4 : Types d'écoulement diphasique adapté de Mayer, Braun et Fuchs (2006) .....	16
Figure 2-5 : Type d'écoulement selon les vitesses superficielles (Triplett et al., 1999).....	18
Figure 3-1 : Mini-module HFNF.....	25
Figure 3-2 : Diamètre équivalent des particules de kaolin.....	26
Figure 3-3 : Résultats de HPLC-SEC (analyses réalisées à UBC).....	28
Figure 3-4 : Schéma global du système de filtration membranaire.....	29
Figure 3-5 : Schéma des étapes de lavage ( <b>a</b> : Étape 1 : Rinçage avec ou sans air, <b>b</b> : Étape 2 : Rétro-lavage et rinçage simultané, <b>c</b> : Étape 3 : Rinçage sans air) .....	31
Figure 3-6 : Absorbance du kaolin en fonction de la longueur d'onde .....	33
Figure 3-7 : Courbes de calibration d'absorbance pour le kaolin en suspension.....	34
Figure 3-8 : Schéma de filtration tangentielle à deux étages .....	38
Figure 4-1 : Modèle de colmatage et UMF1 pour les essais en filtration frontale .....	41
Figure 4-2 : Récupération de la perméabilité en filtration frontale sur UF (20 et 80 LMH) .....	43
Figure 4-3 : Perméabilité en fonction du volume spécifique filtré pour la membrane HFNF. Protocole de lavage : 3 avec air.....	44
Figure 4-4 : Impact du flux sur l'efficacité du lavage physique et la qualité du perméat (filtration frontale; protocole de lavage 3 avec ajout d'air).....	45
Figure 5-1 : Experimental set-up.....	50
Figure 5-2 : Physical cleaning steps ( <b>a</b> : forward flush with or without air; <b>b</b> : backwash with forward flush; <b>c</b> : forward flush without air).....	51

Figure 5-3 : Fractions of foulants (alginate & kaolin) recovered from physical cleaning for HFUF and HFNF membranes (Flux 20 LMH and CF of 0.5 m/s; error bars provide the min-max deviations from triplicate filtration tests.).....	56
Figure 5-4 : Impact of operation mode on physical cleaning efficacy (Flux 20 LMH, CF of 0.5 m/s vs DE; physical cleaning (protocol P3 with air): average water velocity of 0.27 m/s with air addition 0.51 m/s; masses of foulants fed to the membranes in CF and in DE were 52 and 39 mg, respectively) .....	57
Figure 5-5 : Shear and Reynolds number as indicators of physical cleaning efficacy for HFNF and HFUF membranes (Flux 20 LMH and CF of 0.5 m/s; error bars provide the min-max deviations).....	61

## LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

$\Phi_L^2$	Facteur multiplicateur
$\mu_L$	Viscosité dynamique du liquide (Pa·s)
$\mu_m$	Viscosité dynamique du mélange (Pa·s)
BP	Biopolymère
BW	Rétro-lavage ( <i>backwash</i> )
C	Facteur empirique Chisholm
CEBW	Rétrolavage assistés d'agents chimiques
CF	Filtration tangentielle ( <i>crossflow</i> )
COOH	Groupe carboxyle
D	Diamètre intérieur de la fibre (m)
Da	Daltons
DE	Filtration frontale ( <i>dead-end</i> )
$f_D$	Coefficient de Darcy
$f_F$	Coefficient de friction
g	Accélération gravitationnelle (m/s <sup>2</sup> )
HCl	Acide chlorhydrique
HFNF	Nanofiltration à fibres creuses ( <i>hollow fiber nanofiltration</i> )
HFUF	Ultrafiltration à fibres creuses ( <i>hollow fiber ultrafiltration</i> )
HPLC-SEC	Chromatographie à phase liquide à haute performance d'exclusion stérique
$H_T$	Perte de charge (m)
$J_s$	Flux spécifique
$K$	paramètre adimensionnel caractérisant la résistance du système
LMH	Unité abrégé pour litre par m <sup>2</sup> de surface de filtration par heure

$L_0^*$	Constante de Laplace
$L_p$	perméabilité à un temps donné (LMH/bar)
$L_{p0}$	perméabilité initiale (LMH/bar)
MON	Matière organique naturelle
MWCO	Seuil de coupure (Molecular weight cut off)
$n$	paramètre adimensionnel caractérisant le type de colmatage
NaOH	Soude caustique
NF	Nanofiltration
$P_{op}$	Pression d'opération
PTM	Pression transmembranaire (bar)
$PTM_0$	Pression transmembranaire initiale (bar)
$Q$	Débit ( $m^3/h$ )
$Q_{A1}$	Débit d'alimentation du premier étage
$Q_{A2}$	Débit d'alimentation du deuxième étage
$Q_{in}$	Débit d'alimentation
$Q_p$	Débit de perméat
$Q_{purge}$	Débit de purge
$Q_{re1}$	Débit de recirculation du premier étage
$Q_{re2}$	Débit de recirculation du deuxième étage
$Re_m$	Nombre de Reynolds du mélange
$Re_{LS}$	Nombre de Reynold pour la phase liquide entre deux bulles d'air
$R_F$	Résistance du colmatage ( $m^{-1}$ ).
$R_M$	Résistance de la membrane ( $m^{-1}$ )
RO	Reverse osmosis

$R_T$	Résistance totale ( $m^{-1}$ )
SH	Substances humiques
t	temps (s)
UF	Ultrafiltration
$U_G$	Vitesse superficielle du gaz (m/s)
$U_L$	Vitesse superficielle du fluide (m/s)
$U_m$	Vitesse superficielle du mélange (m/s)
UMFI	Unified modified fouling index
UTN	Unité de turbidité néphélométrique
V	volume de perméat ( $m^3$ )
$V_s$	Volume spécifique
X	Paramètre empirique
$\alpha$	fraction volumétrique du gaz
$\Delta L$	Longueur de la fibre (m)
$\Delta P$	Perte de pression par friction (Pa)
$\rho_m$	Masse volumique du mélange ( $kg/m^3$ )
$\rho_G$	Masse volumique du gaz ( $kg/m^3$ )
$\rho_L$	Masse volumique du fluide ( $kg/m^3$ )
$\sigma$	Tension superficielle eau-air ( $N \cdot m^{-1}$ )
$\tau_{wall}$	Cisaillement à la paroi (Pa)
$\eta$	Rendement de la pompe (%)

**LISTE DES ANNEXES**

Annexe A – Exemple de calcul du cisaillement diphasique .....	84
---	----

## CHAPITRE 1 INTRODUCTION

Divers traitements d'oxydation chimique, telle que la chloration, sont utilisés pour la purification de l'eau à des fins de consommation, notamment pour l'inactivation des organismes pathogènes. Cependant, la réaction de la matière organique naturellement présente dans les eaux de surface avec des oxydants entraîne la formation de sous-produits de désinfection ayant des effets négatifs connus ou possibles sur la santé humaine. D'ailleurs, le *Règlement sur la qualité de l'eau potable* du Québec tend vers des normes de plus en plus strictes pour certains de ces composés (MDDELCC, 2012c). Dans la même lignée, l'évolution des méthodes analytiques permet aujourd'hui la détection de molécules à des concentrations infimes dans l'eau consommée (Staff, 2007). Plusieurs de ces molécules sont considérées comme des contaminants d'intérêt émergent. On note, entre autres, les perturbateurs endocriniens, les produits pharmacologiques et les pesticides. La possibilité d'une future norme pour ces composés (ou d'un resserrement des normes existantes) fait tendre l'industrie de l'eau vers des technologies avancées telles que la filtration membranaire.

La filtration membranaire est un procédé de séparation physique pour lequel il existe plusieurs possibilités de porosités du filtre (microfiltration, ultrafiltration, osmose inverse, etc.) et configurations des modules membranaires (spiralée, submergée, tubulaire, etc.). Le choix de la porosité dépend principalement des objectifs de traitement (Howe, Hand, & Crittenden, 2012). Ce projet se concentre sur les membranes de nanofiltration à fibres creuses (communément nommée *Hollow Fiber Nanofiltration* ou HFNF). Ces membranes ont comme avantage de retenir une fraction importante de la matière organique naturelle à l'origine de la formation des sous-produits d'oxydation ainsi que certains contaminants présents à l'état de traces tels que les pesticides, les toxines algales et les produits pharmaceutiques (Staff, 2007). Les membranes à fibres creuses ont comme particularité intéressante d'être rétro-lavables ce qui offre un mode de contrôle efficace du colmatage, un enjeu incontournable pour maintenir les performances du système et allonger sa durée de vie. Ce sont des modules compacts pouvant remplacer plusieurs étapes du traitement conventionnel en plus de produire une eau de qualité.

Malgré que les membranes NF soient performantes au niveau de la purification de l'eau, leur colmatage reste une problématique majeure (Matthias & Fangang, 2011). Le colmatage est un phénomène complexe induit par plusieurs mécanismes : la formation d'un gâteau, le blocage des

pores, l'adsorption, etc. (Field, 2010). Il est influencé autant par les caractéristiques de l'eau brute que par les conditions d'opération des membranes (flux, filtration tangentielle, etc.). Il est contrôlé entre autres à l'aide de l'application de lavages. En industrie, il existe deux principaux lavages pour nettoyer les membranes HFNF, soit le lavage physique et le lavage chimique. Le lavage physique a lieu minimalement toutes les heures et il sert, entre autres, à déloger la matière accumulée à la surface de la membrane. Les lavages chimiques se font par le trempage de la membrane dans des solutions acides et/ou basiques et/ou oxydantes. Ils sont moins fréquents et peuvent endommager l'intégrité de la membrane à long terme. Un lavage physique efficace permet donc de réduire la fréquence d'occurrence des lavages chimiques ce qui permet de prolonger la vie utile des membranes.

### **Hypothèses, objectifs et contribution de recherche**

Le projet s'inscrit dans le cadre des travaux de recherche et de développement de RES'EAU-WaterNET, un réseau CRSNG stratégique visant le développement de solutions innovantes pour l'alimentation en eau potable des petites communautés rurales canadiennes (WaterNET, 2016). Les membranes de HFNF offrent en effet plusieurs caractéristiques intéressantes pour l'alimentation de petites communautés. D'une part, ces membranes requièrent un prétraitement minimal (ce qui réduit les coûts en capitalisation) et ne nécessitent pas d'injection de coagulant en amont (ce qui simplifie l'opération). De plus, leur utilisation simplifie la chaîne de traitement puisque les membranes HFNF sont en mesure de réaliser plusieurs objectifs de traitement au sein d'une seule étape (désinfection, abattement du COT, abattement de la turbidité et élimination de contaminants traces). Le projet se déroule en collaboration avec un partenaire industriel fournisseur de membranes de nanofiltration.

L'objectif général du projet est d'étudier l'efficacité des lavages physiques de membrane de nanofiltration à fibres creuses. La littérature scientifique portant sur le colmatage membranaire est abondante, mais aucune étude n'a évalué l'efficacité du décolmatage physique de membranes de nanofiltration à fibres creuses soumises à une filtration tangentielle. La totalité des études porte en effet sur le décolmatage des membranes d'ultrafiltration (HFUF). Si les lavages physiques développés et documentés pour les HFUF s'avèrent performants pour les membranes HFNF, ils serviront de point de départ pour le développement de procédures de lavage optimal des membranes HFNF. Ensuite, il sera possible d'évaluer l'impact des conditions de filtration sur

la performance du décolmatage. Cependant, il est important de noter que plusieurs différences importantes existent entre les membranes de HFNF et celles de HFUF. Les membranes d'UF sont typiquement opérées en mode frontal alors que les membranes de NF le sont plutôt en mode de filtration tangentielle. Les flux d'opération sont beaucoup plus élevés pour les membranes d'UF. Enfin, la rétention des contaminants (et donc les caractéristiques du gâteau) diffère entre les deux types de membranes en raison de seuils de coupure plus faibles sur la NF (200-1000 Da) que sur l'UF (150 -250 kDa). Il semble donc pertinent de mettre en œuvre ce projet afin de confirmer si les stratégies de lavage utilisées en HFUF sont adéquates pour le cas de la HFNF.

Les objectifs spécifiques du mémoire se résument comme suit :

1. Évaluer l'efficacité de différents protocoles de lavages physiques pour décolmater des membranes à fibres creuses de HFNF et HFUF.
2. Comparer l'efficacité du protocole le plus performant utilisé avec :
  - a. Différents modes d'opération (filtration tangentielle ou frontale);
  - b. Différents flux d'opération (20 et 80 LMH) pour la membrane HFUF.
3. Évaluer des indicateurs potentiels de performance pour les protocoles :
  - a. Nombre de Reynolds diphasique;
  - b. Cisaillement induit à la surface.
4. Analyse écoénergétique :
  - a. Efficacité énergétique des protocoles de lavage;
  - b. Efficacité énergétique du procédé HFNF

Plusieurs hypothèses sont émises pour mener à terme cette étude, la principale étant la suivante : le colmatage sur la membrane de HFNF est principalement dû à une accumulation à la surface de la membrane (formation de gâteau) laquelle peut être contrôlée par des lavages physiques équivalents à ceux mis en œuvre dans les procédés d'ultrafiltration. Le principal type de colmatage peut être validé selon les modèles de colmatage de Hermia (1982).

Les hypothèses spécifiques quant aux performances attendues selon les conditions testées sont les suivantes :

1. L'utilisation de l'air permet d'obtenir une meilleure performance de lavage en raison de la hausse de cisaillement induit à la surface des membranes HFNF.
2. La filtration tangentielle limite la formation de gâteau à la surface de la membrane HFNF ce qui diminue la quantité d'agents colmatants récupérée lors des lavages.
3. L'efficacité du lavage des membranes de HFNF est identique à celui des membranes d'HFUF lorsqu'elles sont opérées dans des conditions identiques.

Le développement d'un protocole performant de lavage physique pour les membranes de nanofiltration à fibres creuses aura plusieurs effets concrets sur l'industrie de l'eau potable. D'abord, il réduit les coûts d'énergie et les pertes en eau liées au décolmatage des membranes, ce qui rend par le fait même le procédé plus abordable. De plus, l'étude de l'impact des conditions d'opération sur l'efficacité du nettoyage permettra de déterminer les conditions optimales d'opération pour les municipalités désirant se procurer ce procédé. Finalement, une analyse des coûts énergétiques des différents protocoles selon leur performance permettra de statuer sur les avantages de l'utilisation de l'air.

## CHAPITRE 2 REVUE CRITIQUE DE LA LITTÉRATURE

Ce chapitre dresse un tableau de la documentation scientifique en cinq volets : les procédés membranaires, les mécanismes et modèles de colmatage, les agents colmatants majeurs, les stratégies de lavage et la préparation d'eau synthétique pour les besoins d'essais de colmatage.

### 2.1 Les procédés membranaires

Les membranes sont de fines couches de matériaux capables de séparer des molécules ou des particules de sa solution en fonction de leurs propriétés physico-chimiques lorsqu'une pression force la solution à la traverser (Mallevalle et al., 1996). Parmi les premiers procédés membranaires, l'osmose inverse fut développée au cours des années 60 et visait la désalinisation de l'eau de mer à des fins de consommation (Staff, 2007). Depuis, ces procédés se sont diversifiés autant dans les caractéristiques des membranes que dans leurs applications. Ils sont de nos jours appliqués communément dans le domaine de l'eau potable et de l'épuration des eaux, mais sont aussi présents dans l'industrie agroalimentaire et pharmacologique (Mohammad et al., 2015). Ces technologies ont rapidement gagné en popularité depuis les années 1990 et elles font maintenant une forte concurrence aux traitements conventionnels de traitement de l'eau potable (Baker, 2012).

Il existe plusieurs catégories de membrane généralement classées par la taille des pores. Typiquement, la microfiltration a des pores inférieurs à 1  $\mu\text{m}$ , l'ultrafiltration des pores inférieurs à 0,1  $\mu\text{m}$  et la nanofiltration des pores inférieurs à un nanomètre. Il est aussi courant de caractériser les procédés de nanofiltration selon leur seuil de coupure (MWCO) ce qui correspond typiquement à la taille de molécules en dalton (Da) éliminé à 90% par une membrane. Cette définition n'est cependant pas standardisée dans l'industrie.

Comme il est possible de l'observer sur la Figure 2-1, les procédés de microfiltration retiennent les particules, les algues et les bactéries. L'ultrafiltration ajoute à cette liste une partie des colloïdes en plus des virus. Avec un seuil de coupure encore plus faible, la nanofiltration ne laisse traverser que des sels dissous, des ions métalliques et de très petites molécules organiques.

Size, $\mu\text{m}$	Ionic	Molecular	Macromolecular	Microparticle	Macroparticle		
	0.001	0.01	0.1	1.0	10	100	1,000
Approximate Molecular Weight	100 200 1,000	10,000 20,000	100,000 500,000				
Relative Size of Various Materials in Water	Dissolved Solids	Humic Acids	Viruses	Clays	Silt	Cysts	Sand
Separation Process	ED/EDR	RO	NF	Ultrafiltration	Microfiltration		

Figure 2-1 : Classification des procédés de filtration membranaire selon la porosité (Staff, 2007)

### 2.1.1 Les membranes de nanofiltration

La nanofiltration présente des capacités de rétention intéressantes pour le traitement de l'eau de surface. En effet, elle retient la majorité de la matière organique précurseur des sous-produits de désinfection, la couleur et certains pesticides tout en laissant traverser une partie des ions monovalents et divalents ce qui évite d'avoir à complètement reminéraliser l'eau pour la consommation (Howe et al., 2012). Le seuil de coupure typique des NF ayant des pores d'environ 1 nm est de l'ordre de 300-500 Da (Mohammad et al., 2015). Elles opèrent généralement à des pressions d'alimentation comprises entre 5 et 15 bars pour un flux typique situé entre 15 et 25 LMH (Schrotter & Bozkaya-Schrotter, 2010). Le procédé nécessite une étape de prétraitement qui est typiquement un filtre de 5  $\mu\text{m}$  lorsque l'eau brute est de bonne qualité (Staff, 2007). Il existe deux principales configurations des membranes NF, les modules spiralés et les modules à fibres creuses (HF) qui sont décrits dans les sections subséquentes.

### 2.1.1.1 La NF spiralée

Les membranes spiralées sont constituées d'une longue membrane roulée sur elle-même. L'eau à traiter circule d'un bout à l'autre du module entre deux épaisseurs de membrane séparées par un espaceur (voir Figure 2-2). Le perméat, lui, circule à l'intérieur de la membrane jusqu'au centre du module puis est récupéré à l'extrémité.

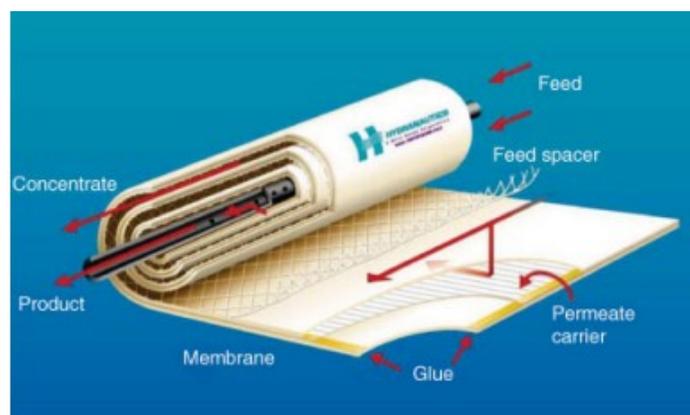


Figure 2-2 : Schéma d'un module de membrane spiralée (Schrotter & Bozkaya-Schrotter, 2010)

Ce type de membrane domine actuellement le marché des membranes de nanofiltration. Elles sont opérées avec un écoulement tangentiel faible correspondant au débit d'alimentation. Aucune recirculation du concentrat n'est faite. Les membranes spiralées sont modulables et peuvent être installées en série les unes à la suite des autres. Elles sont soumises à des nettoyages chimiques périodiques pour limiter le colmatage dont la fréquence est de l'ordre de 1 fois par 12 mois selon la vitesse de colmatage observée. Le nettoyage physique (hydraulique) n'est pas possible dans cette configuration.

### 2.1.1.2 La NF à fibres creuses (HFNF)

Les procédés à fibres creuses, comme le nom l'indique, se composent d'un nombre impressionnant de fibres plutôt que d'être sous forme de feuille. Le diamètre des fibres varie selon les technologies entre 50 et 3000  $\mu\text{m}$  (Baker, 2004). Si l'alimentation en eau brute se fait de l'intérieur des fibres, le perméat est alors récupéré à l'extérieur, il s'agit de membrane de type *inside-out*. À l'inverse, il existe sur le marché des membranes alimentées en eau brute à l'extérieur de la fibre, elles sont dites de type *outside-in*. Les membranes opèrent alors sous pression ou à l'aide d'un vacuum comme c'est le cas pour les membranes submergées.

Les NF à fibres creuses sont alimentées soit en mode frontal ou avec un écoulement tangentiel typiquement compris entre 0,5 et 1 m/s (Howe et al., 2012). L'écoulement tangentiel limite le colmatage ce qui permet une opération à flux plus élevé et réduit la fréquence des lavages physiques (Baker, 2012). Par contre, il nécessite un système de recirculation d'eau qui engendre des frais d'exploitation supplémentaires.

La membrane utilisée dans ce projet est la seule membrane de nanofiltration à fibres creuses actuellement disponible sur le marché (PENTAIR, X-Flow HFW1000). Les fibres sont composées de polyéthersulfone (PES) résistantes au chlore et chaque module industriel contient une superficie de filtration de 40 m<sup>2</sup>. Ce procédé permet de réduire la turbidité à l'eau traitée en deçà de 0,1 UTN en plus de procurer un enlèvement de 4 log pour les bactéries et les virus (Pentair, 2016b). Un modèle réduit ayant une surface membranaire de 0,07 m<sup>2</sup> fourni par le manufacturier a été testé dans le cadre de ce mémoire.

## **2.2 Mécanismes et modèles de colmatage**

Le colmatage est un enjeu de taille pour les procédés membranaires dû aux coûts associés. C'est un phénomène complexe influencé entre autres par le seuil de coupure de la membrane, les conditions d'opération et les caractéristiques de l'eau brute. Les principaux mécanismes de colmatage, les fractions de l'eau naturelle responsables ainsi que des modèles mathématiques décrivant le phénomène sont définis dans les prochaines sections.

### **2.2.1 Mécanismes de colmatage**

Les mécanismes de colmatage membranaire et les composants de l'eau naturelle associés sont brièvement décrits au Tableau 2-1. Bien entendu, le mécanisme de colmatage d'une molécule dépend de sa grandeur par rapport au seuil de coupure de la membrane ainsi que de ses caractéristiques physico-chimiques. De plus, les propriétés intrinsèques de la membrane telles que sa rugosité, son hydrophobicité et sa charge initiale jouent aussi un rôle dans les mécanismes de colmatage (Chang, Yang, Huang, Liang, & Chiang, 2011).

Tableau 2-1 : Mécanismes de colmatage et agents colmatants

<i>Mécanismes</i>	<i>Description</i>	<i>Agents colmatants</i>
<b>Adsorption</b>	L'adsorption se définit comme la fixation d'une molécule ou d'une particule à une surface qui est dans ce cas-ci la membrane. L'adsorption se produit à la surface de la membrane, mais aussi à l'intérieur de ses pores.	Matières organiques colloïdales et dissoutes Métaux (e.g. Fe et Al)
<b>Formation d'un gâteau</b>	Au cours de la filtration, une couche plus ou moins compacte de molécules et de particules se dépose sur la membrane.	Matières en suspension, Toutes molécules plus grandes que les pores de la membrane.  Certaines molécules plus petites peuvent être piégées dans le gâteau.
<b>Obstruction des pores</b>	L'obstruction des pores peut être en partie due à l'adsorption, telle que mentionnée plus haut, mais aussi à la déposition de petits colloïdes à l'intérieur des pores de la membrane.	Petits colloïdes
<b>Concentration par polarisation</b>	La concentration de molécules forme un gradient à l'intérieur de l'écoulement (concentration plus forte près de la paroi). Ce gradient existe à l'intérieur d'une zone nommée couche limite alors que la concentration au cœur de l'écoulement reste constante. C'est un mécanisme problématique puisqu'il détériore la qualité de l'effluent.	Matières organiques colloïdales et sels dissous
<b>Biocolmatage</b>	Le biocolmatage est dû à la prolifération de micro-organismes dans le procédé. Il s'agit d'un enjeu majeur pour les applications en épuration des eaux. La concentration de substrat est un facteur important pour expliquer le biocolmatage.	Micro-organismes
<b>Précipitation</b>	La précipitation survient lorsque la concentration de saturation d'un sel est dépassée à la surface de la membrane (Field, 2010). Ce problème est principalement observé pour les derniers étages de systèmes membranaires à haute pression.	Sels dissous

### 2.2.2 Les quatre modèles de Hermia

Les modèles d'Hermia (1982) sont des modèles mathématiques qui ont été proposés pour modéliser le phénomène de colmatage membranaire. L'équation de base de ce modèle est la suivante :

$$\frac{d^2t}{dV^2} = k \left( \frac{dt}{dV} \right)^n \quad \text{Équation 2-1}$$

Où :

- $t$  : temps (s) ;
- $V$  : volume de perméat ( $m^3$ ) ;
- $k$  : paramètre adimensionnel caractérisant la résistance du système ;
- $n$  : paramètre adimensionnel caractérisant le type de colmatage.

Ce modèle a été développé pour des systèmes opérés à pression constante, alors que la majorité des systèmes membranaires sont plutôt opérés à flux constant. Les quatre modèles d'Hermia (Tableau 2-2) ont été adaptés par Huang, Young et Jacangelo (2007) pour mieux correspondre à l'opération à flux constant. Le modèle met en relation l'indice de colmatage standard UMFI (*unified modified fouling index*), le volume spécifique ( $V_s$ ) et le flux spécifique ( $J_s$ ). Dans ces équations, le volume spécifique correspond au volume de perméat par surface de membrane et le flux spécifique est un ratio entre la pression transmembranaire initiale et finale.

Tableau 2-2 : Modèles de colmatage et équations adaptés de Hermia

<i>Modèle de colmatage</i>	<i>n</i>	<i>Équation</i>	<i>Schéma</i>
<p><b>Obstruction complète</b> L'obstruction est modélisée en supposant que chacune des molécules présentes en solution bloque un pore fonctionnel. Aucune accumulation ni agglomération n'est prise en compte dans ce modèle.</p>	2	$J_s = 1 - UMFI \times V_s$	
<p><b>Obstruction interne</b> Les molécules sont suffisamment petites pour entrer dans les pores de la membrane et elles s'y accumulent soit par déposition ou par adsorption. Le diamètre des pores est donc réduit.</p>	1,5	$J_s^{0.5} = 1 + \frac{UMFI}{2} \times V_s$	
<p><b>Obstruction intermédiaire</b> Une partie des molécules bloquent directement des pores alors que d'autres s'accumulent sur les molécules déjà à la surface de la membrane. Plus il y a de pores obstrués, plus il y a de chance que la molécule suivante s'agglomère.</p>	1	$\frac{1}{J_s} = e^{-UMFI \times V_s}$	
<p><b>Formation de gâteau</b> Accumulation de molécules à la surface de la membrane qui forment un gâteau. La hausse de résistance observée provient non des pores obstrués, mais de la faible porosité de ce gâteau qui entraîne une réduction du flux.</p>	0	$\frac{1}{J_s} = 1 + UMFI \times V_s$	

L'indice de colmatage standard (UMFI) déduit de ces modèles permet de quantifier le caractère colmatant d'une eau dans le but de permettre la comparaison entre différents résultats indifféremment du type d'eau et des conditions d'opération (Huang et al., 2007). Ces modèles s'appliquent lorsqu'un des mécanismes prédomine sur les autres, car en réalité plusieurs mécanismes peuvent se produire simultanément ou successivement (Trussell & Hand, 2012). Pour ce projet, il est supposé que le mécanisme principal de colmatage est la formation de gâteau puisque les agents colmatants attendus sont des particules en suspension et des macromolécules organiques (Cho, Amy, & Pellegrino, 1999; Hong & Elimelech, 1997; Howe & Clark, 2002). Il est également possible de déterminer la résistance causée par le colmatage à partir de l'équation suivante qui est basée sur la loi de Darcy qui stipule que le flux est proportionnel à la pression appliquée.

$$J_{20} = \frac{PTM}{\mu_{20}R_T} \quad \text{Équation 2-2}$$

Où  $J_{20}$  est le flux à 20°C (m/s) et  $R_T$  la résistance totale du système ( $m^{-1}$ ). La résistance totale est la somme entre la résistance de la membrane ( $R_M$ ) et celle due au colmatage ( $R_F$ ). Lorsque la membrane est soumise à un test avec de l'eau ultra-pure, la résistance de colmatage est nulle et il est possible de déterminer la résistance de la membrane selon cette même équation.

### 2.3 Agents colmatants majeurs dans les eaux de surface

La matrice des eaux naturelles est complexe, puisqu'elle contient un éventail de molécules organiques, inorganiques et particules à des concentrations variables selon les saisons. La matière organique naturelle (MON) est une fraction importante de cette matrice en proportion, mais aussi, car elle est liée au problème de sous-produits de désinfection. La plupart des études s'entendent pour dire qu'elle est la principale source de colmatage pour les procédés membranaires (Staff (2005); Tang, Kwon et Leckie (2007); Chang et al. (2011)). De plus, des études ont démontré que la MON en présence d'ions di- ou trivalents favorise le colmatage tout comme un pH faible et une force ionique élevée (Tang et al. (2007); Al-Amoudi (2010); Hong et Elimelech (1997)). Les ions divalents, plus particulièrement le calcium, augmentent le colmatage dû à son affinité pour les groupes carboxyles de la MON et à sa capacité à créer des liens entre des macromolécules (Tang, Chong, & Fane, 2011).

### **2.3.1 Substances humiques**

Les substances humiques (SH) sont des molécules naturellement abondantes dans les eaux de surface (typiquement 2-15 mg C/L) provenant de la décomposition partielle de matières organiques (Staff, 2005). Elles représentent la plus grande fraction de la matière organique non particulaire (Mostofa, Yoshioka, & Mottaleb, 2013). Plusieurs chercheurs ont démontré le caractère colmatant des substances humiques pour des membranes de nanofiltration (Hong et Elimelech (1997); Tang et Leckie (2007)) et d'ultrafiltration (Yuan & Zydney, 2000).

### **2.3.2 Biopolymères**

Les biopolymères, tels que les protéines et les polysaccharides, sont des macromolécules dissoutes, leur poids moléculaire est de l'ordre de quelques centaines à quelques milliers kDa (Tang et al., 2011), soit des tailles beaucoup plus importantes que les substances humiques. Ils sont aussi présents naturellement dans les eaux de surface, mais en moins grande concentration (typiquement moins de 1 mg C/L) que les substances humiques. Par ailleurs, il a été constaté dans certaines études que les biopolymères causent un colmatage plus sévère que les SH dues à leur plus grande masse moléculaire. En effet, une étude de Her, Amy, Plottu-Pecheux et Yoon (2007) sur un pilote de nanofiltration dans une usine d'eau potable a conclu que les biopolymères (polysaccharides et les protéines) étaient les principales sources de colmatage bien que les acides humiques soient aussi colmatants pour certaines conditions physico-chimiques. D'autres publications appuient qu'ils soient des agents colmatants majeurs pour les procédés membranaires (Cho, Amy, Pellegrino et Yoon (1998); Jermann, Pronk, Meylan et Boller (2007)). Récemment, cette affirmation a été confirmée sur la base d'essais réalisés sur différentes eaux de surface japonaises (Kimura, Tanaka, & Watanabe, 2015). Compte tenu de l'importance des biopolymères sur le colmatage des membranes UF, l'utilisation d'un biopolymère (alginate de sodium) a été retenue comme agent de colmatant lors de la préparation des eaux synthétiques nécessaires à la réalisation de ce projet.

## **2.4 Types de colmatage et stratégies de lavage (membrane HFNF)**

Pour les procédés opérés à flux constant (le cas typique dans l'industrie), le colmatage se traduit par une hausse de pression dans le temps. À court terme (15-60 min), ces hausses sont gérées par la mise en œuvre de rétro-lavage hydraulique (incluant ou pas de l'air). À moyen terme, les

lavages physiques sont insuffisants et la pression après lavage physique continue d'augmenter jusqu'à atteindre une pression maximale, à laquelle un lavage chimique est déclenché. Les lavages chimiques peuvent aussi être déclenchés sur la base d'un volume filtré (L/m<sup>2</sup> de membrane) plutôt que d'une pression maximale.

Comme la pression d'opération dépend à la fois de la viscosité de l'eau et du flux, il est courant de privilégier d'évaluer l'état d'une membrane en calculant sa perméabilité (Boussu et al.) selon l'équation suivante :

$$L_p \left( \frac{LMH}{bar} \right) = \frac{J_{20}}{PTM} \quad \text{Équation 2-3}$$

Où :

- $L_p$  : Perméabilité à 20°C (LMH/bar);
- $J_{20}$  : flux à 20°C (LMH) ;
- $PTM$  : pression transmembranaire (bar) ;

Le flux à 20°C est calculé à partir du flux mesuré à une température  $T$  corrigée à l'aide de l'équation ci-après tirée d'un guide sur les membranes de l'USEPA (2005) :

$$J_{20} = \frac{J_T \mu_T}{\mu_{20}} = J_T [1,784 - 0,0575T + 0,0011T^2 - 10^{-5}T^3] \quad \text{Équation 2-4}$$

Où :

- $J_T$  : flux à une température  $T$  (LMH) ;
- $\mu_{20}$  : viscosité à 20°C ;
- $\mu_T$  : viscosité à une température  $T$  (°C) ;
- $T$  : Température de l'eau (°C)

La perméabilité de la membrane chute au fur et à mesure que la membrane se colmate (Figure 2-3). La figure illustre les trois catégories de colmatage qui seront détaillées dans les sections qui suivent. Une attention particulière est portée au nettoyage physique puisque ce projet de maîtrise s'est attardé spécifiquement à étudier l'optimisation de cette stratégie de lavage.

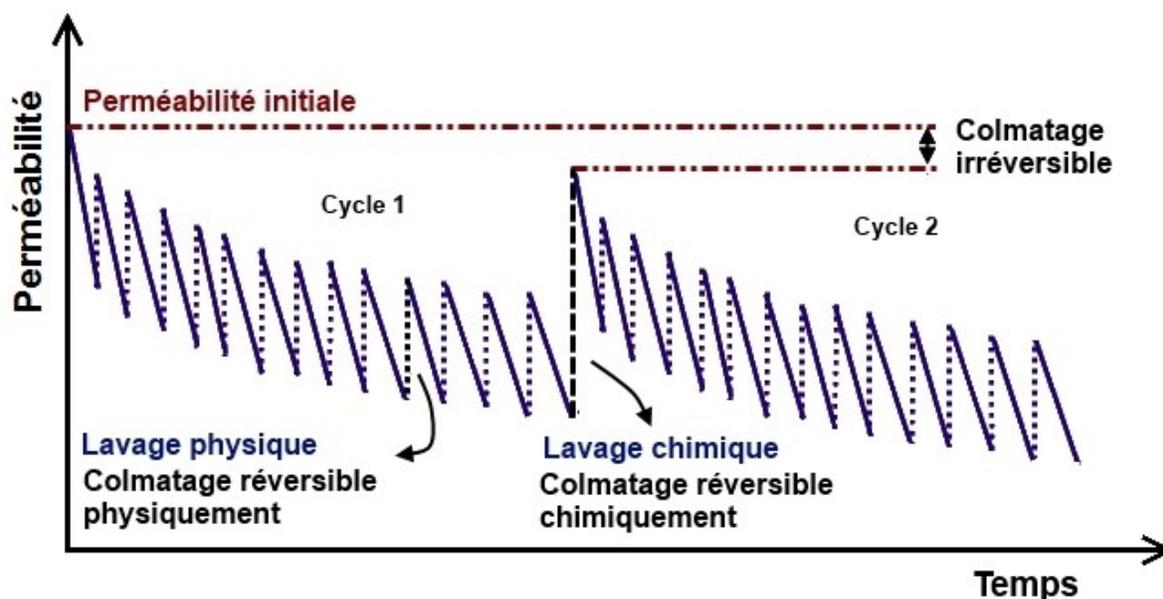


Figure 2-3 : Effet du colmatage sur la perméabilité et types de colmatage

### 2.4.1 Colmatage réversible physiquement

Comme mentionné auparavant, le nettoyage physique est crucial puisqu'il réduit l'occurrence des lavages chimiques ce qui prolonge la longévité du système (Robinson, Abdullah, Bérubé, & Le-Clech, 2016). Il aide aussi à contrer la hausse de pression dans le système qui engendre des frais d'exploitation supplémentaires. Le colmatage réversible physiquement est celui causé par la formation d'un gâteau (Schäfer, Fane, & Waite, 2005) et la polarisation de concentration (Schäfer et al., 2005). Les stratégies de nettoyage pour ces mécanismes de colmatage consiste à utiliser des vitesses d'écoulement élevées afin de causer un cisaillement à la surface de la membrane ce qui permet de déloger les agents colmatants. Pour y arriver, on peut favoriser l'utilisation de rinçages, de l'air ou l'inversion du sens de filtration (rétro-lavage). Le lavage physique typique s'effectue environ toutes les heures pour une durée d'une à deux minutes. Il comprend des étapes de rinçage et de rétro-lavage. Le rinçage est un écoulement d'eau brute du côté concentrat qui est parfois assisté d'air. Le rétro-lavage est défini dans le présent document comme étant l'étape durant laquelle de l'eau traitée circule dans le sens inverse de l'écoulement normal de filtration. La fin du rétro-lavage est parfois marquée d'une deuxième brève période de rinçage.

Parmi les stratégies communes utilisées pour limiter le colmatage, l'utilisation d'un écoulement diphasique (i.e. air-eau) est une option efficace. Elle s'emploie de diverses façons selon la

configuration d'opération de membranes. Le sujet est bien documenté pour les UF à fibres creuses contrairement à son homologue NF. La revue de littérature qui suit résume l'information disponible pour les membranes à fibres creuses UF et NF, mais elle présente d'abord brièvement les types d'écoulement eau-air.

#### 2.4.1.1 Type d'écoulement liquide-gaz

Les écoulements diphasiques à l'intérieur de tube sont liés à de nombreux paramètres : température, pression appliquée, géométrie, etc. Dans ce mémoire, l'intérêt est centré sur l'écoulement eau-air dans un tube circulaire de petit diamètre (fibres  $D=0,8$  mm) à température ambiante et à pression atmosphérique. La Figure 2-4 illustre trois principales formes que peut prendre l'écoulement diphasique dans un tube.

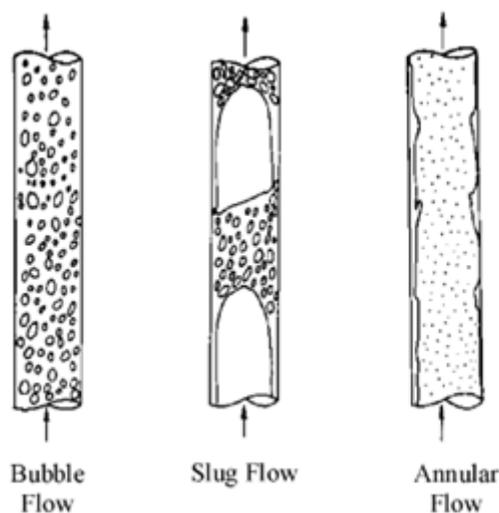


Figure 2-4 : Types d'écoulement diphasique adapté de Mayer, Braun et Fuchs (2006)

L'écoulement à bulles (*bubble flow*) se caractérise par la présence de petites bulles d'air dispersées dans un écoulement liquide. L'écoulement piston (*slug flow*) contient des bulles d'air espacées par un écoulement liquide contenant ou non de plus petites bulles d'air dispersées. L'écoulement annulaire (*annular flow*) se distingue par un écoulement liquide au pourtour du tube et un écoulement continu de gaz en son centre. Le type d'écoulement dépend de la vitesse superficielle de chacune des phases, mais aussi de leur fraction respective dans le mélange. Cabassud, Laborie et Lainé (1997) ont étudié le mélange eau-air dans des fibres d'ultrafiltration

de diamètre de 0,93 mm. Selon leurs observations, le type d'écoulement varie selon la fraction volumétrique du gaz ( $\alpha$ ) calculé à l'aide de l'équation 1-6.

$$\alpha = \frac{U_G}{U_G + U_L} \quad \text{Équation 2-5}$$

Où :

- $U_L$  : vitesse superficielle du liquide (m/s) ;
- $U_G$  : vitesse superficielle du gaz (m/s).

Toujours selon ces auteurs, l'écoulement est de type *slug flow* lorsque la fraction volumétrique du gaz ( $\alpha$ ) est comprise entre 0,2 et 0,9. Les vitesses superficielles d'eau et d'air résumées au Tableau 2-3 ont permis de calculer la fraction volumétrique du gaz durant les lavages physiques qui ont été testés durant ce projet. L'écoulement, selon les observations de Cabassud et al. (1997), est de type *slug flow* pour les protocoles 2 et 3. Le protocole 1 obtient une fraction volumétrique du gaz à la limite entre l'écoulement de type piston et annulaire.

Tableau 2-3 : Vitesses superficielles et fraction volumétrique des écoulements eau-air

<i>Caractéristiques</i>	<i>Protocole 1</i>	<i>Protocole 2</i>	<i>Protocole 3</i>
<b>Vitesse superficielle de l'eau - <math>U_L</math> (m/s)</b>	0,05	0,11	0,17
<b>Vitesse superficielle de l'air - <math>U_G</math> (m/s)</b>	0,51	0,51	0,51
<b>Fraction volumétrique du gaz (<math>\alpha</math>)</b>	0,91	0,82	0,75

Parmi les auteurs qui se sont intéressés au type d'écoulement diphasique Triplett, Ghiaasiaan, Abdel-Khalik et Sadowski (1999) ont observé des mélanges eau-air à l'intérieur de tube horizontal circulaire de 1,01 mm de diamètre. Ils ont produit un schéma du type d'écoulement selon les vitesses superficielles des deux phases (Figure 2-5). Les résultats suggèrent aussi que pour les trois protocoles, l'écoulement est de type piston (*slug*).

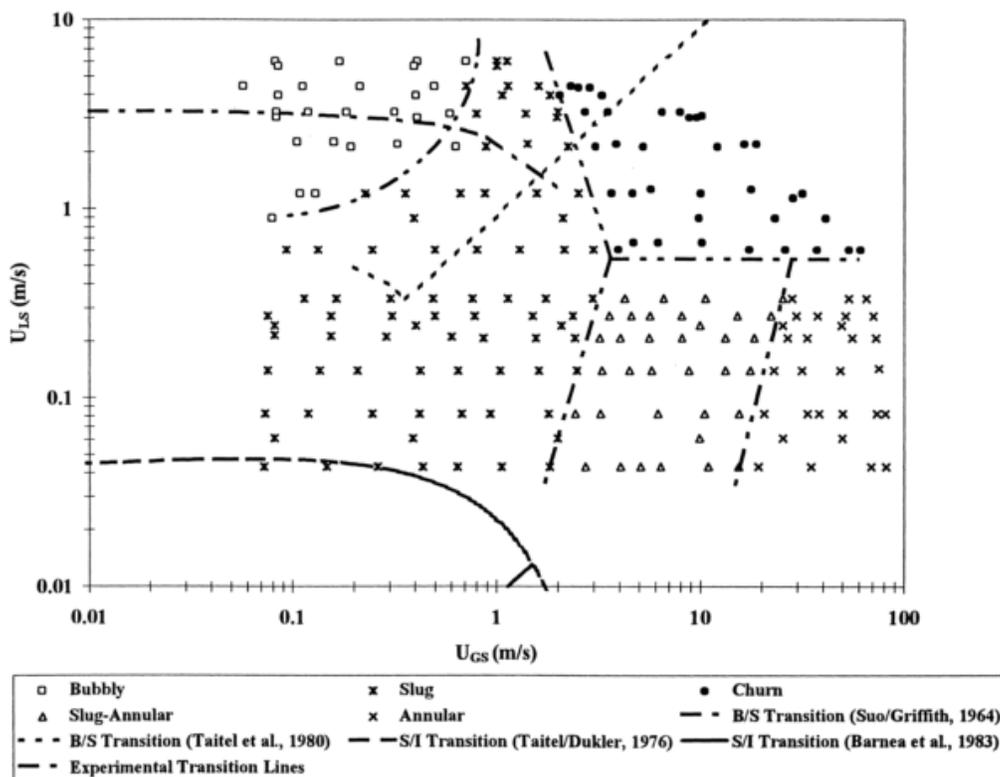


Figure 2-5 : Type d'écoulement selon les vitesses superficielles (Triplett et al., 1999)

#### 2.4.1.2 Utilisation de l'air dans les modules à fibres creuses

D'abord, il est possible d'injecter de l'air du côté concentrat pendant la filtration pour les modèles UF submergés (*outside-in*). Bien que l'air injecté dans ces systèmes submergés, de type bioréacteurs, ait une double utilité en traitement des eaux usées (oxygénation et nettoyage physique), son application pour des procédés visant la purification d'eau de surface s'avère aussi efficace face au colmatage (Tian, Xu, Chen, Nan, & Li, 2010). Il a été démontré que cette stratégie peut réduire la fréquence des lavages physiques ainsi que diminuer les coûts d'exploitation (Li, L., Wray, Andrews, & Bérubé, 2014). Dans cette même étude, la performance du décolmatage a été liée au cisaillement créé par les bulles d'air. D'autres chercheurs ont aussi observé cette corrélation (Xia, Law et Fane (2013); Tian et al. (2010)).

D'autres études se sont plutôt intéressées à l'ajout d'air dans l'eau d'alimentation de fibres creuses d'UF de type *inside-out* opérées en filtration tangentielle. Des études ont démontré que l'air améliorerait le flux de perméat puisqu'il limite la concentration-polarisation (Cui, Z. F. et Wright (1996); Laborie, Cabassud, Durand-Bourlier et Lainé (1997); Cui, Z. et Taha (2003);

Cheng et Wu (2003)). La publication de Cui, Z. F. et Wright (1996) conclut que le type d'écoulement liquide-gaz joue un rôle clé dans la performance de cette technique. Les travaux de Laborie et al. (1997) et Cui, Z. et Taha (2003) suggèrent qu'il y ait un lien entre la hausse du flux et le cisaillement induit par l'écoulement de type *slug*. Une étude similaire sur une membrane HFNF a été réalisée par Verberk et van Dijk (2006). La membrane testée était de type *inside-out* et elle a été soumise à une eau synthétique saline. L'étude conclut que l'ajout d'air dans l'alimentation en écoulement tangentiel augmente le flux de perméat en réduisant la polarisation de concentration. Le gain de performance obtenu par le mélange eau-air est économique énergétiquement par rapport à un écoulement monophasique.

Finalement, la performance des rétro-lavages physiques assistés d'air a fait l'objet de plusieurs travaux pour les membranes à fibres creuses UF. Serra et al. (1999) ont étudié l'efficacité des lavages physiques pour des membranes HFUF *outside-in* sous pression opérées en filtration frontale. L'air est ajouté pendant la période de rétro-lavage ou pendant le rinçage. La performance de l'étape de rinçage a grandement été améliorée par la présence d'air qui réduit la durée de drainage et, par le fait même, la quantité d'eau traitée utilisée pour le lavage. Bessiere, Guigui, Remize et Cabassud (2009) ont examiné l'utilisation d'air pendant les lavages de membranes UF *inside-out*. Selon cette étude, le lavage le plus performant est celui comprenant un rétro-lavage assisté d'air suivi d'un rinçage. Cette approche permettrait de diminuer les coûts d'exploitation. Plus récemment, le même groupe de chercheurs a démontré qu'il était préférable d'utiliser un bilan de masse sur les agents colmatants pour évaluer l'efficacité d'un lavage physique (Remize, Guigui, & Cabassud, 2010) plutôt que la récupération de la perméabilité.

Globalement, l'utilisation de l'air est une méthode efficace pour limiter le colmatage. L'objectif de la présente recherche sera de valider, plus spécifiquement, si le lavage diphasique est une option écoénergétique et performante pour les membranes HFNF. Des valeurs typiques pour les différentes étapes de lavages physiques de membranes à fibres creuses disponibles sur le marché sont présentées au Tableau 2-4 .

L'analyse comparative des protocoles de lavage fait ressortir que les membranes UF sont fréquemment opérées en filtration frontale et que le lavage physique se déclenche toutes les 20 à 60 minutes. Pour la membrane NF qui est opérée en filtration tangentielle, la fréquence des nettoyages physiques est réduite à une fois toutes les 1 à 2 heures (jusqu'à 6 fois moins souvent).

La plupart des technologies ont un flux de rétro-lavage supérieur au flux de filtration (jusqu'à 2,5 fois). Par ailleurs, comme le flux de filtration de la UF est supérieur à celui de la NF, le flux de rétro-lavage l'est également. Seulement trois des protocoles répertoriés utilisent de l'air lors des nettoyages, les débits d'air sont de l'ordre de 0,1 à 0,4 Nm<sup>3</sup>/h par mètre carré de surface de filtration. En comparaison, le lavage de filtres granulaires utilise un débit d'air de 50 à 70 Nm<sup>3</sup>/h par m<sup>2</sup>.

Tableau 2-4 : Protocoles de lavage physique de membranes UF/NF commercialement disponibles sur le marché

Modèle	Pentair <i>Aquaflex</i> (ancien Norit)	Pentair <i>HFV1000</i>	DOW <i>SFP-2680</i>	GE <i>ZeeWeed</i> <i>1000</i>	H <sub>2</sub> O Innov. <i>HSF-2020</i>	Nitto <i>HYDRAcap 60</i>	Siemens <i>Memcor XS10</i>
Type	UF	NF	UF	UF	UF	UF	UF
Mode d'opération	<i>Inside-out</i>	<i>Inside-out</i>	<i>Outside-in</i>	<i>Outside-in</i>	<i>Outside-in</i>	<i>Inside-out</i>	<i>Outside-in</i>
Mode de filtration	frontale ou tangentielle	tangentielle	frontale	frontale *Submergée	frontale	frontale ou tangentielle	frontal
Flux de filtration à 20°C (LMH)	50 à 120	10 à 25	40 à 120	55 à 110	55 à 90	59 à 145	96 à 113
Rétro-lavage :							
• Fréquence (min)	20 à 60	60 à 120	20 à 60	20 à 60	Minimum	20 à 60	20 à 45
• Durée (s)	25	30 à 60	40 à 120	30 à 60	30 à 120	30 à 60	15
• Flux de rétro-lavage (nombre de fois le flux de filtration)	2,5 à 5,0	1,2 à 4,0	1,3 à 2,5	1,0	1,5	1,8 à 2,9	1,1
Rinçage :							
• Durée (s)	30	40 à 60	-	-	-	-	60
• Débit (LMH/m <sup>2</sup> )	Flux de filtration	Flux de filtration	-	-	-	-	Flux de filtration
Récuration à l'air :							
• Durée (s)	10	-	20 à 60	-	60	-	30 à 120
• Débit d'air (Nm <sup>3</sup> /h/m <sup>2</sup> )	0,25	-	0,11 à 0,27	-	0,08	-	0,32 à 0,43
Références	(Norit, communication personnelle, septembre 2008)	(Pentair, communication personnelle, 2015)	(DOW, 2016)	(MDDELCC, 2014) (Water, 2015)	(MDDELCC, 2012b)	(Hydraunautics, 2014)	(MDDELCC, 2012a)

### **2.4.2 Colmatage réversible chimiquement**

Les nettoyages chimiques (CIP) visent à éliminer les molécules organiques/inorganiques et les petits colloïdes qui ont tendance à s'adsorber à l'intérieur des pores des membranes (Scott, 1998). Pendant ce nettoyage, les modules sont en arrêt de production pour être trempés dans des agents chimiques. Les CIP ont généralement lieu d'une à 4 fois par année et durent quelques heures. Parmi les agents chimiques utilisés fréquemment, on retrouve l'acide chlorhydrique, l'acide citrique, l'hypochlorite de sodium et la soude caustique (Staff, 2007). Les agents chimiques à pH élevé visent à déloger les matières organiques, alors que ceux à pH faible servent à éliminer les sels inorganiques et les métaux (Howe et al., 2012). L'hypochlorite de sodium permet d'attaquer la MON, mais aussi de contrôler la croissance bactériologique. Le choix de l'agent chimique doit tenir compte du matériau de fabrication de la membrane, car certains matériaux sont sensibles aux valeurs de pH extrêmes et aux oxydants.

Il existe aussi des nettoyages physiques assistés d'agents chimiques (CEBW). Ce sont des rétro-lavages durant lesquels un agent chimique est ajouté, typiquement à une concentration de quelques dizaines à centaines de milligrammes par litre, soit des concentrations inférieures à celles utilisées lors d'un CIP standard. L'objectif principal est de réduire le bio-colmatage, d'oxyder les matières organiques adsorbées, les sels inorganiques et les métaux (Staff, 2005). Leur fréquence est de l'ordre d'une fois par jour (Howe et al., 2012). Cette stratégie de lavage est plus récente. Elle vise à espacer la fréquence de lavage CIP grâce à des lavages chimiques moins agressifs, mais plus fréquents.

### **2.4.3 Colmatage irréversible**

Malgré les lavages physiques et chimiques, une partie de la matière reste adsorbée ou coincé dans les pores de la membrane. Ce colmatage est irréversible et cause une perte de performance de la membrane à long terme menant à la réduction progressive de sa vie utile. La durée de vie utile des membranes polymériques est de l'ordre 5 à 10 ans. Le remplacement des modules est une fraction importante du coût d'exploitation d'une installation. Une gestion efficace du colmatage irréversible permet donc d'allonger la durée de vie des modules membranaires.

## 2.5 Utilisation des eaux synthétiques pour l'étude du colmatage

Nombreuses sont les publications scientifiques qui étudient le colmatage à l'aide d'une eau dite synthétique, i.e. dont les caractéristiques sont ajustées en laboratoire. Cette approche permet de travailler avec des caractéristiques connues, contrôlées et facilement reproductibles. En effet, la qualité d'une eau naturelle varie selon la source, les saisons, les intempéries météorologiques, etc. ce qui complexifie les études comparatives. Le Tableau 2-5 présente un résumé des substances synthétiques répertoriées dans la littérature classées selon la fraction de l'eau naturelle qu'on cherche à reproduire.

Tableau 2-5 : Substances utilisées pour modéliser de l'eau naturelle

<i>Substances naturelles</i>	<i>Substances modèles</i>	<i>Publication</i>
<b>Acides humiques</b>	Acides humiques	De Souza et Basu (2013) Hong et Elimelech (1997) Jermann et al. (2007) Katsoufidou, Yiantsios et Karabelas (2008) Li, Q. et Elimelech (2004) Seidel & Elimelech, (2002) Tang, Kwon, & Leckie, (2009) Tian, Ernst, Cui et Jekel (2013) Yuan et Zydney (2000)
<b>Biopolymères</b>	Alginate de sodium	Jermann et al. (2007) Katsoufidou et al. (2008) Ma, Yu, Liu et Qu (2014)
	Dextrane	Ghosh, Raja (2006) Serra et al. (1999) Smith et Cui (2004) Tian et al. (2013)
	Cellulose	De Souza et Basu (2013)
	Albumine de sérum bovin	Tian et al. (2013)
<b>Matières inorganiques en suspension</b>	Kaolin	De Souza et Basu (2013)
	Bentonite	Laborie et al. (1997) Remize et al. (2010) Serra et al. (1999)

Les substances humiques sont les molécules les plus fréquemment utilisées pour représenter la MON en laboratoire. C'est probablement dû à la grande proportion de la MON qu'elle représente. Elles proviennent de milieux aquatiques ou terrestres et sont disponibles commercialement suite à leur extraction/purification. Leurs caractéristiques dépendent de leur origine. Quatre différents biopolymères (BP) soit l'alginate de sodium, le dextrane, la cellulose et l'albumine de sérum bovin ont été répertoriés comme substance modèle. Le dextrane, la cellulose et l'alginate de sodium sont des polysaccharides, un choix courant pour modéliser les BP. Le dextrane provient de l'activité des micro-organismes, alors que la cellulose est un composé de la paroi cellulaire des plantes et l'alginate de sodium provient des algues marines (Venugopal, 2011). L'albumine de sérum bovin est une protéine plus répandue pour la modélisation du colmatage par des eaux usées. Les matières inorganiques en suspension utilisées comme modèle sont des argiles, les plus petites particules trouvées dans les sols, car elles sont susceptibles de traverser le prétraitement. À cet égard, la bentonite, le kaolin ou la montmorillonite sont souvent utilisés comme source de particules fines pour produire des eaux synthétiques.

## CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE DE RECHERCHE

Ce chapitre détaille la méthodologie utilisée pour répondre aux divers objectifs du projet. Dans un premier temps, les caractéristiques des membranes et de l'eau synthétique sont décrites. Par la suite, les schémas d'opération, les protocoles de lavages physiques ainsi que les méthodes d'analyse retenues pour quantifier les agents colmatants (requis pour les bilans de masse) sont présentés.

### 3.1 Membranes

Les deux membranes utilisées sont des modèles à fibres creuses de type *inside-out* de Pentair. Elles ont exactement les mêmes caractéristiques physiques (le diamètre intérieur des fibres (0,8 mm), la surface de filtration (0,07 m<sup>2</sup>) et la hauteur du module (30 cm) hormis le seuil de coupure (UF vs NF). De plus, elles sont composées du même polymère, le polyéthylène sulfone (PES) ce qui permet de les comparer. Les conditions d'opération typiques diffèrent aussi d'un module à l'autre (voir Tableau 3-1); c'est pourquoi l'efficacité des lavages physiques est évaluée selon deux modes d'opération et pour deux valeurs de flux (pour la membrane UF seulement).



Figure 3-1 : Mini-module HFNF

Tableau 3-1 : Membranes utilisées et leurs conditions d'opération typique

<i>Membrane</i>	<i>MWCO</i>	<i>Mode d'opération normale</i>	<i>Flux d'opération typique</i>
<b>XFlow, Pentair, NF</b>	1 kDa	Filtration tangentielle	15-20 LMH
<b>XFlow, Pentair, UF</b>	150-200 kDa	Filtration frontale	50-120 LMH

## 3.2 Eau synthétique

Le choix s'est arrêté sur une eau synthétique pour plusieurs raisons : la constance de ces caractéristiques qui permet de reproduire des essais, la facilité de préparation en laboratoire et pour simplifier l'analyse comparative par bilan de masse. Les caractéristiques de l'eau synthétique ont été choisies de manière à imiter une eau naturelle, soit l'eau brute de l'usine de Ste-Rose qui a une concentration en carbone organique total (COT) de 6-8 mg/L et une turbidité modérée (5-10 UTN). La matrice de l'eau synthétique finale retenue comprend seulement deux agents colmatants : un agent organique et un inorganique. Toutes les solutions sont préparées à partir d'eau ultra-pure produite par un système de purification en laboratoire (Milli-Q®).

**Agent colmatant inorganique :** Les particules inorganiques sont représentées par du kaolin (argile) à une concentration de 15 mg/L, ce qui correspond à une turbidité de 16,4 UTN. Une filtration séquentielle sur des filtres de cellulose de Millipore (SCWP040700) a permis de déterminer la taille des particules du kaolin. La majorité (61%) des particules ont un diamètre équivalent de 8-10  $\mu\text{m}$  (Figure 3-2). Le pourcentage de particules d'argile de diamètre inférieur à 8  $\mu\text{m}$  est de 6 %. Le kaolin est ajouté à l'eau synthétique immédiatement avant le début de l'essai à partir d'une solution mère (3000 mg/L) qui a été préalablement placée dans un bain à ultrason pendant 30 minutes afin d'assurer une même distribution des tailles des particules pour tous les essais.

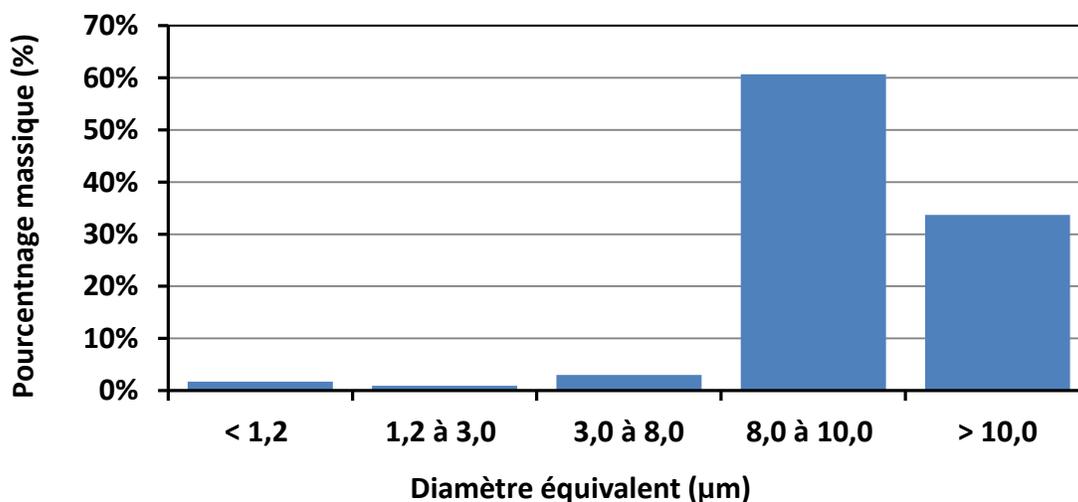


Figure 3-2 : Diamètre équivalent des particules de kaolin

**Agent colmatant organique** : Ensuite, les matières organiques dissoutes sont modélisées par de l'alginate de sodium (Sigma-Aldrich, CAS : 9005-38-3). L'alginate de sodium est une macromolécule dont la taille moléculaire varie dans la littérature entre 32 et 200 kDa (Venugopal, 2011). Le choix d'une macromolécule se justifie tout d'abord par son rôle important dans le colmatage membranaire, tel que discuté au chapitre précédent. Ensuite, cette substance a été fréquemment utilisée par d'autres chercheurs pour modéliser des eaux naturelles (voir Tableau 2-5). La concentration en alginate de sodium dans l'eau synthétique a été fixée à 5 mg C/L et elle est ajoutée avant le début des essais à partir d'une solution mère de 1 375 mg C/L. Cette valeur (5 mg C/L) est nettement supérieure à la concentration en biopolymères retrouvée dans les eaux naturelles (< 0,5 mg C/L, voir Figure 3-3). Néanmoins, cela se justifie par la nécessité de permettre une bonne sensibilité lors du bilan de masse fait par des analyses de carbone organique total (COT) en laboratoire. Il était également désiré d'utiliser une concentration qui permettait de détecter un colmatage à court terme sur la base des mesures de perméabilité. Enfin, une valeur de COT de 5 mg C/L à l'eau naturelle est typique pour les eaux de surfaces comme des rivières ou des lacs (Thurman, 2012).

**Caractérisation de la fraction dissoute** : La fraction dissoute de l'eau synthétique a été soumise à une chromatographie à phase liquide à haute performance d'exclusion stérique (HPLC-SEC). La Figure 3-3 illustre aussi la fraction dissoute d'une eau naturelle (eau de Sept-Îles, COD = 14.4 mg C/L) et les résultats d'analyse des perméats de membranes de nanofiltration et d'ultrafiltration (modèle X-Flow) ayant filtré l'eau synthétique.

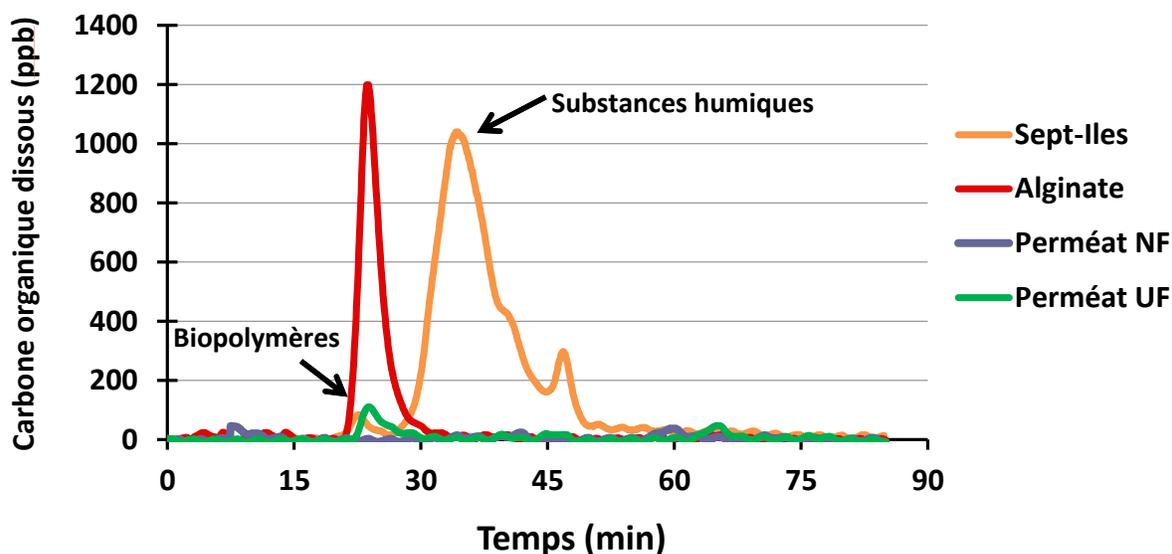


Figure 3-3 : Résultats de HPLC-SEC (analyses réalisées à UBC)

Sur la courbe de l'eau naturelle, il est possible d'identifier les pointes correspondant aux substances humiques ainsi qu'aux biopolymères. La courbe de l'eau synthétique n'a qu'une pointe élevée qui correspond à l'alginate de sodium en solution vis-à-vis le pic des biopolymères de l'eau de surface. Ce pic est évalué approximativement à 54 500 Da<sup>1</sup>. Il est aussi possible d'observer sur cette figure que la membrane NF retient pratiquement tout l'alginate étant donné son seuil de coupure faible (1000 Da), alors qu'une petite fraction arrive à traverser la membrane UF dont le seuil de coupure est supérieur (150 kDa). Ces valeurs ont été observées alors que la composition de l'eau synthétique contenait aussi 50 mg/L CaCO<sub>3</sub> de dureté calcique. La dureté calcique a été enlevée de la composition de l'eau synthétique, car l'alginate de sodium a tendance à favoriser la gélification lorsqu'il est en présence de cations divalents (Venugopal, 2011) ce qui complique l'analyse en laboratoire du COT.

**Minéralisation :** L'alcalinité de l'eau est ajustée à l'aide de bicarbonate de sodium (50 mg CaCO<sub>3</sub>/L). Le pH de l'eau est ajusté à environ 7,0 par l'ajout d'acide chlorhydrique.

<sup>1</sup> Log MW = (87,6-t)/13,64 selon une courbe de calibration.

### 3.3 Montage expérimental

**Équipements :** Le montage est constitué d'une pompe à engrenage magnétique en amont de la membrane (Ismatec, BVP-Z) qui fournit la pression d'opération nécessaire à l'obtention du flux de perméat et l'écoulement tangentielle, lorsque requis. Une pompe péristaltique (Masterflex, L/S) est installée à la sortie perméat du module et maintient le flux d'opération constant pendant la filtration. Des sondes de pressions (PX409-100GUSB et PX409-030GUSB) placées à l'entrée dans le module ainsi qu'à la sortie du perméat permettent d'acquérir automatiquement les données à l'aide du logiciel OMEGA. Le perméat est récupéré sur une balance qui transmet les informations au système d'acquisition. De plus, une sonde mesure la température à l'eau brute et un système de refroidissement (VWR 1171PD) conserve l'eau d'alimentation à  $20 \pm 0,5^\circ\text{C}$  durant l'expérimentation. Le montage contient aussi une ligne d'air pressurisé connectée à la conduite d'alimentation en eau brute. Le débit d'air a été calibré par un débitmètre pour gaz (Gilmont) et il a été validé avec un débitmètre à bulle de gaz pour de l'air à température ambiante ( $22^\circ\text{C}$ ) et pression atmosphérique (101 kPa). Le montage comprend aussi une conduite de drainage où sont récoltées les eaux de lavage physique.

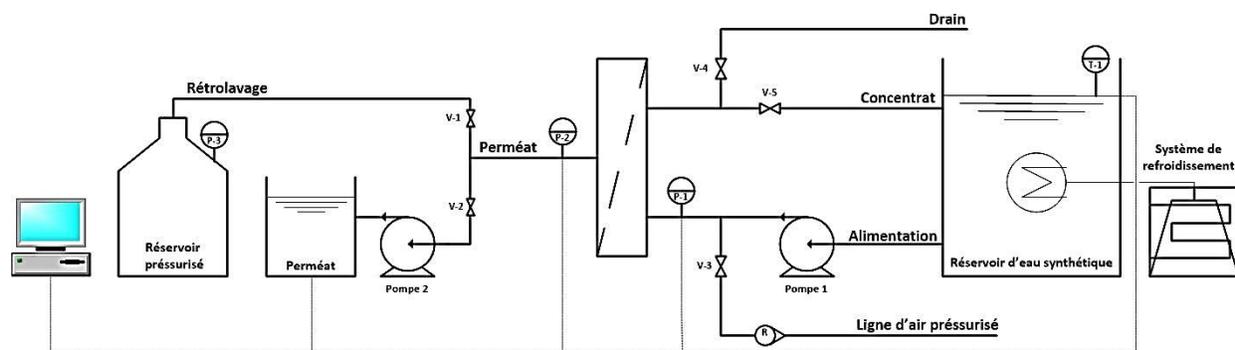


Figure 3-4 : Schéma global du système de filtration membranaire

**Déroulement d'un essai de colmatage :** Tous les essais se composent de trois cycles de filtration à un flux constant suivis chacun d'un lavage physique (décrits à la section 3.4). Le lavage physique est déclenché lorsqu'un volume spécifique de  $20 \text{ L/m}^2$  a été filtré (15 à 60 min selon le flux d'opération).

Pour le premier objectif qui cherche à évaluer l'efficacité de différents lavages physiques pour la membrane HFNF, six protocoles de lavage ont été testés en filtration tangentielle à un flux de 20 LMH (voir détails au Tableau 3-3). Quatre des six protocoles de lavages physiques ont aussi été

appliqués à la membrane UF opérée sous les mêmes conditions. Suite aux résultats obtenus, le lavage le plus performant a été appliqué aux deux modules opérés en filtration frontale toujours à un flux constant de 20 LMH. Finalement, le protocole le plus performant a aussi été testé sur la membrane UF en filtration frontale soumise à un flux de 80 LMH, soit une condition d'opération typique pour la UF. Le Tableau 3-2 résume les protocoles de lavage testés selon les conditions d'opération et le type de membrane. Il est à noter que la NF ne peut être opérée à un flux de 80 LMH, car les pressions d'opération seraient alors trop élevées pour le module membranaire.

Tableau 3-2 : Conditions d'opération et protocoles testés

	<i>HFNF</i>		<i>HFUF</i>		
<b>Mode de filtration</b>	Tangentielle	Frontale	Tangentielle	Frontale	Frontale
<b>Flux (LMH)</b>	20	20	20	20	80
<b>Protocoles testés</b>	Tous (P1 à P3)	Le plus efficace (P3+air)	Deux des trois (P1 et P3)	Le plus efficace (P3+air)	Le plus efficace (P3+air)

### 3.4 Lavages physiques

Tous les lavages physiques se déroulent en trois étapes : (i) un rinçage suivi (ii) d'un rétro-lavage assisté d'un rinçage le tout terminé par (iii) une deuxième période de rinçage. **La première étape** est un rinçage durant laquelle a eu lieu ou non l'injection d'air dans la conduite d'alimentation en eau (Figure 3-5a). L'eau utilisée pour tous les rinçages est de l'eau synthétique (incluant les agents colmatants) afin de reproduire ce qui est aussi réalisé en usine. **La deuxième étape** est une période de rinçage assisté d'un rétro-lavage (Figure 3-5b). L'eau utilisée pour les rétro-lavages est de l'eau synthétique sans alginat de sodium, ni kaolin ce qui s'apparente au perméat, soit la solution qui serait utilisée en industrie. **La troisième et dernière étape** est un rinçage identique au premier, mais sans ajout d'air (Figure 3-5c). Le montage est ensuite remis en mode filtration.

Une fois que l'essai est terminé, la membrane est nettoyée chimiquement avec de l'eau Milli-Q, de la soude caustique (1 mM NaOH) à 20°C pendant 30 min et une solution d'acide chlorhydrique (1 mM HCl) à 20°C pendant 30 min. Elle est ensuite conservée dans une solution de bisulfite de sodium (200 mg NaHSO<sub>3</sub>/L) à la noirceur dans un réfrigérateur à 4°C. Enfin,

l'intégrité de la membrane a été confirmée avant chaque essai par un test de perte de pression ( $P_0 = 1 \text{ bar (15 PSI)}$ ). Aucun problème d'intégrité n'a été observé durant le projet.

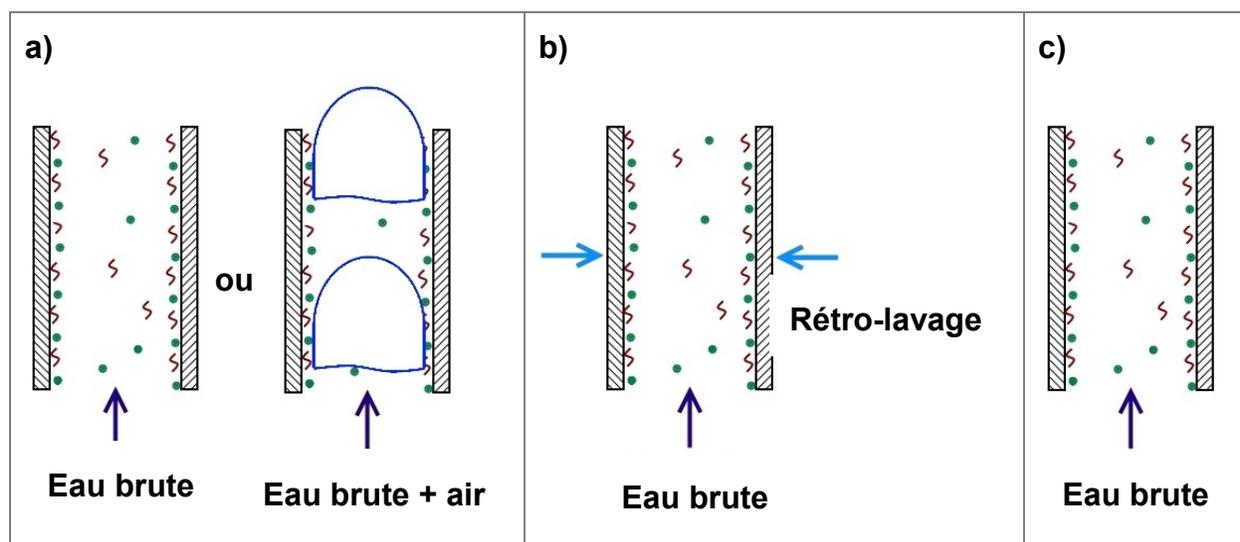


Figure 3-5 : Schéma des étapes de lavage (**a**: Étape 1 : Rinçage avec ou sans air, **b**: Étape 2 : Rétro-lavage et rinçage simultané, **c**: Étape 3 : Rinçage sans air)

Les paramètres des lavages physiques sont basés sur les recommandations du fabricant pour les membranes HFNF et HFUF, mais ils ont été adaptés pour reproduire, le plus fidèlement possible, les conditions hydrauliques réelles à l'intérieur des mini-modules utilisés. Pour ce faire, le paramètre de comparaison entre l'échelle industrielle et celle de laboratoire est la vitesse d'écoulement de l'eau ou de l'air dans les fibres. Il faut noter que lors de l'étape de rétro-lavage une partie du débit provient de l'écoulement à travers la fibre ce qui fait que la vitesse varie sur la hauteur du module. Pour cette étape, la vitesse de référence choisie est la vitesse moyenne théorique sur la hauteur de la fibre industrielle. Il en résulte deux principaux lavages auxquels il est possible d'ajouter de l'air lors de la première étape de rinçage. Un troisième lavage avec des valeurs de vitesses moyennes a été aussi testé sur la NF. L'addition de l'air se fait toujours au premier rinçage pour une durée de 10 secondes. La valeur de flux de rétro-lavage utilisée pour les deux membranes est celle recommandée pour la membrane NF (40 LMH), car le flux est limité par sa faible perméabilité. Les durées des étapes de rinçage du protocole 1 ont été prolongées par rapport à celle du fabricant de 30 secondes pour permettre de récupérer un volume d'eau suffisant pour les analyses. La durée du rétro-lavage assisté d'un rinçage est dans la gamme de temps du

manufacturier. Les durées des étapes des protocoles 2 et 3 sont celles du fabricant tel quel. Le détail des protocoles se trouve au tableau ci-après.

Tableau 3-3 : Détails des protocoles de lavage physiques à l'étude

<i>Protocole</i>	<i>Étapes</i>	<i>Durée (s)</i>	<i>Vitesse de l'eau (m/s)</i>	<i>Vitesse de l'air (m/s)</i>	<i>Vitesse moyenne de l'eau (m/s)*</i>
<b>1</b>	Rinçage avec ou sans air	55	0,05	0,51	0,06
	Rétro-lavage avec rinçage	60	0,08	0	
	Rinçage	55	0,05	0	
<b>2</b>	Rinçage avec ou sans air	20	0,11	0,51	0,16
	Rétro-lavage avec rinçage	25	0,23	0	
	Rinçage	10	0,11	0	
<b>3</b>	Rinçage avec ou sans air	20	0,17	0,51	0,27
	Rétrolavage avec rinçage	25	0,38	0	
	Rinçage	10	0,17	0	

\*vitesse moyenne pondérée en fonction de la durée

### 3.5 Performance des lavages par mesure de la perméabilité

Comme il a été mentionné à la section 2.4, il est possible de mesurer le colmatage indirectement par la mesure de perméabilité dans le temps. Cette mesure de perméabilité permet, dans un deuxième temps, d'évaluer l'efficacité du lavage physique en comparant la perméabilité initiale ( $L_{p0}$ ) de la membrane à celle retrouvée après un lavage (Boussu et al.). Les perméabilités sont calculées conformément à l'Équation 2-3 et la performance s'évalue selon :

$$\text{Récupération } L_p \text{ (\%)} = \frac{L_{p0} \text{ à } 20^\circ\text{C} \left( \frac{\text{LMH}}{\text{bar}} \right)}{L_p \text{ à } 20^\circ\text{C} \left( \frac{\text{LMH}}{\text{bar}} \right)} \quad \text{Équation 3-1}$$

Un lavage efficace enlève les agents colmatants qui causent la hausse de pression dans le système et comme la perméabilité après lavage redevient similaire à celle initiale, sa performance se traduit par un pourcentage de récupération élevé.

### 3.6 Performance des lavages par évaluation de bilans de masse

Les bilans de masses ont été réalisés séparément pour les deux agents colmatants utilisés. Il a été démontré dans la littérature (Manook, 1988) qu'il est possible d'estimer la concentration de matières en suspension par des mesures d'absorbance à des longueurs d'onde élevées. Le bilan de masse du kaolin s'est donc fait selon cette méthode. Le kaolin en solution (15 mg/L) a été soumis à des longueurs d'onde variant entre 700 et 900 nm, dans le but de déterminer la longueur d'onde à laquelle l'absorbance est maximale ce qui améliore la sensibilité des résultats. L'absorbance maximale est observée à une longueur d'onde de 861 nm (Figure 3-6).

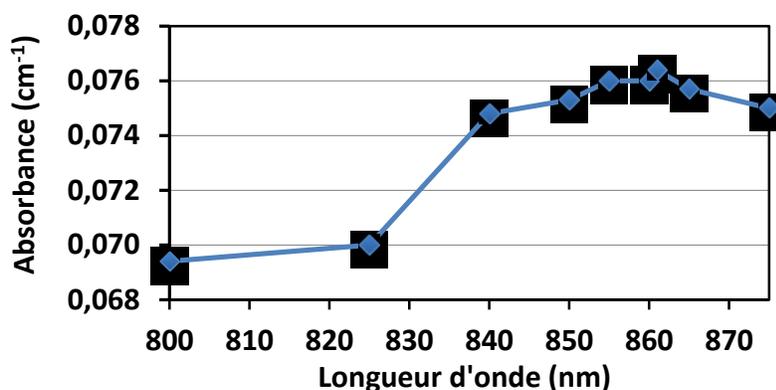


Figure 3-6 : Absorbance du kaolin en fonction de la longueur d'onde

À partir de cette longueur d'onde, des courbes de calibration mettant en relation la concentration de kaolin en solution et l'absorbance ont été produites pour les deux appareils de spectrophotométrie utilisés (HACH DR 5000 et Cary 100 UV-Vis) avec les mêmes solutions standards et une cellule de 1 cm (Figure 3-7). La linéarité de la relation est excellente et un seuil de détection de l'ordre de 0,6 mg/L est observé ce qui est largement inférieur, comme nous le verrons plus loin, aux concentrations de kaolin présent dans les eaux brutes (15 mg/L), les eaux de concentrat ou les eaux de lavage (>15 mg/L).

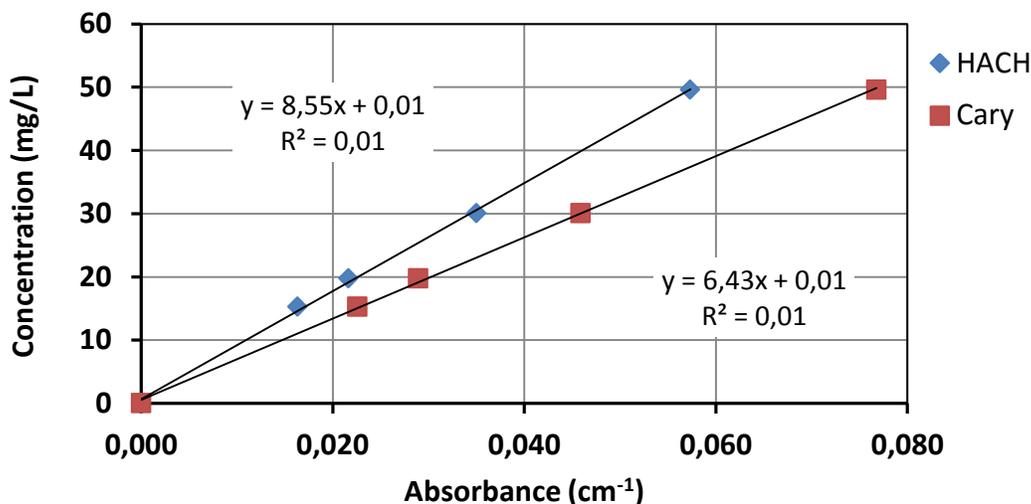


Figure 3-7 : Courbes de calibration d'absorbance pour le kaolin en suspension

Ces courbes permettent de déduire la concentration en kaolin dans à l'eau brute, dans le concentrat et dans les eaux de lavage pour en faire un bilan de masse. La concentration de kaolin dans le perméat est posée comme nulle puisque la taille des particules est au-delà des seuils de coupure des deux membranes. Les ions en solution n'interfèrent pas avec à la méthode (du moins aux concentrations utilisées). De plus, une courbe d'absorbance de l'alginate en fonction de sa concentration indique que l'incertitude induite sur les valeurs de kaolin causée par la présence d'alginate est négligeable (0,3 %).

Le bilan de masse de l'alginate de sodium est fait à partir de mesures de COT en laboratoire à l'aide d'un appareil prévu à cet effet (Sievers 5310C Laboratory TOC Analyzer, GE®). La limite de détection est estimée à 0,07 mg C/L.

L'efficacité des protocoles de lavage est évaluée à partir d'un pourcentage massique de la somme des colmatants récupérés dans les eaux de lavage physique calculée selon l'équation suivante :

$$\text{Pourcentage de colmatants récupérés}(\%) = \frac{m_{\text{lavage physique}}}{m_{\text{eau brute}} - m_{\text{perméat}}} \quad \text{Équation 3-2}$$

Où  $m_{\text{lavage physique}}$  est la masse récupérée dans les eaux de lavage (mg),  $m_{\text{eau brute}}$  est la masse initiale à l'eau brute dans les eaux de lavage (mg) et  $m_{\text{perméat}}$  est la masse présente dans le perméat (mg).

### 3.7 Nombre de Reynolds et cisaillement

**Nombre de Reynolds :** Le nombre de Reynolds ( $Re$ ) caractérise le type d'écoulement d'un fluide (laminaire, transitoire ou turbulent) à l'intérieur d'une conduite telle qu'une fibre membranaire. Il se calcule à partir de l'équation suivante :

$$Re = \frac{\rho U_m D}{\mu} \quad \text{Équation 3-3}$$

Où  $D$  est le diamètre hydraulique (diamètre intérieur de la fibre) (m),  $\mu$  est la viscosité dynamique (Pa.s),  $\rho$  est la masse volumique ( $\text{kg/m}^3$ ) et  $U_m$  est la vitesse superficielle du mélange (m/s) qui est défini par :

$$U_m = U_G + U_L \quad \text{Équation 3-4}$$

Où  $U_L$  et  $U_G$  sont respectivement les vitesses superficielles de la phase liquide et gazeuse (m/s). Le nombre de Reynolds du mélange eau-air ( $Re_m$ ) a été calculé à l'aide de l'équation 2-3 avec une masse volumique et une viscosité dynamique pondérées en fonction du ratio eau-air tel que défini par le modèle de mélange homogène (Holland & Bragg, 1995). Un nombre de Reynolds a aussi été calculé pour la phase liquide ( $Re_{LS}$ , Équation 3-5) entre les bulles d'air dans l'écoulement de type *slug* selon le modèle de Ghosh, R. et Cui (1999) en supposant qu'il n'y ait pas de bulles dispersées dans la phase liquide (Laborie, Cabassud, Durand-Bourlier, & Lainé, 1999).

$$Re_{LS} = \frac{\rho_L U_m D}{\mu_L} \quad \text{Équation 3-5}$$

Où  $\rho_L$  est la masse volumique du liquide ( $\text{kg/m}^3$ ) et  $\mu_L$  est la viscosité dynamique du liquide (Pa.s). Le régime d'écoulement est ensuite déterminé par la valeur du nombre de Reynolds Tableau 3-4.

Tableau 3-4 : Régime d'écoulement selon le nombre de Reynolds

Régime laminaire	$Re < 2000$
Régime transitoire	$2000 < Re < 4000$
Régime turbulent	$Re > 4000$

**Cisaillement :** Pour les écoulements monophasiques, le cisaillement à la paroi ( $\tau_{wall}$ ) de la membrane est calculé à partir de l'équation de Darcy-Weisbach :

$$\tau_{wall} = \frac{f_f U_L \rho}{2} \text{ où } f_f = \frac{f_D}{4} \quad \text{Équation 3-6}$$

Il est une fonction du coefficient de frottement ( $f_f$ ) qui est lié au coefficient de perte de charge de Darcy ( $f_D$ ). Le coefficient de Darcy, en régime laminaire, se calcule comme suit :

$$f_D = \frac{64}{Re} \quad \text{Équation 3-7}$$

Pour l'écoulement diphasique, le cisaillement est calculé à partir de la perte de pression par frottement ( $\Delta P$ ) le long de la fibre ( $\Delta L$ ).

$$\tau_{wall} = \frac{D \Delta P}{4 \Delta L} \quad \text{Équation 3-8}$$

Cette perte de pression est estimée à l'aide du modèle à phase séparée de Lockhart et Martinelli (1949). Les pertes de pressions pour chacune des phases sont d'abord calculées à partir de la même équation :

$$\frac{\Delta P}{\Delta L} = \frac{f_D \rho U^2}{2D} \quad \text{Équation 3-9}$$

Puis, le modèle propose des corrélations entre les pertes de pression à l'aide d'un facteur multiplicateur  $\Phi_L^2$  et le paramètre X (voir Annexe A). Une autre relation est nécessaire pour estimer ces deux paramètres, celle de Chisholm (1967) qui intègre un troisième paramètre ( $C$ ) est l'une des plus utilisées. La relation de Mishima-Hikibi est l'une des plus connues pour les tubes de petits diamètres (Chen, 2014). Plus récemment, cette relation a été modifiée pour tenir compte de la tension superficielle ( $\sigma$ ) qui n'est pas négligeable pour les écoulements dans un tube de petit diamètre (Zhang, Hibiki, & Mishima, 2010).

$$C = 21(1 - e^{-0,674/Lo^*}) \quad \text{Équation 3-10}$$

$$Lo^* \equiv \frac{\sigma}{(g(\rho_L - \rho_G)D^2)^{0,5}} \quad \text{Équation 3-11}$$

L'équation 2-10 est applicable pour des diamètres hydrauliques compris entre 0,014 et 6,25 mm. Le coefficient 0,674 est celui recommandé pour mélange liquide-gaz adiabatique en régime

laminaire. Comme la variation de perte de pression obtenue d'un modèle à l'autre varie considérablement, le choix d'un modèle est basé sur des conditions d'opération, une géométrie, un fluide et un gaz le plus similaire que possible à ceux étudiés (Kandlikar, Garimella, & Li, 2013).

### 3.8 Analyse énergétique

Une analyse énergétique est faite dans le but de baser le choix d'un protocole sur sa performance et ses coûts d'opération. Les calculs sont faits pour un module industriel puisque le mini-module en laboratoire sous-estime la production par rapport au débit de recirculation. Les caractéristiques du module industriel ainsi que les hypothèses d'opération sont énumérées ci-après :

- Module NF industriel : 40 m<sup>2</sup> de surface, fibres de 1,54 m de hauteur ;
- Filtration tangentielle 0,5 m/s ;
- Flux de 20 LMH ;
- Pression d'opération : 2,4 bar (35 PSI) ;
- Cycles de 1 h de filtration suivie d'un lavage physique ;
- Les lavages physiques se font à pression atmosphérique
- Rétro-lavage : 40 LMH à 4,8 bar (70 PSI);
- Deux étages en usine, taux de récupération de 85 %.

La puissance nécessaire pour chacune des étapes de lavage est estimée à l'aide de l'équation 2-12.

$$Puissance (W) = \frac{\rho g Q H_T}{\eta} \quad \text{Équation 3-12}$$

Où  $g$  est l'accélération gravitationnelle (m/s<sup>2</sup>),  $Q$  est le débit (m<sup>3</sup>/h),  $\eta$  est le rendement de la pompe fixé à 75% et  $H_T$  est la perte de charge (m) définie par l'équation :

$$H_T = \frac{f_D \Delta L U_m^2}{D 2g} \quad \text{Équation 3-13}$$

Le coefficient  $f_D$  et la vitesse du mélange  $U_m$  sont calculés selon les équations préalablement définies à la section 3.7. L'énergie totale consommée pendant un lavage est donc égale à la somme des puissances unitaires requises multipliées par la durée de chaque étape ( $E_t = \sum P_i \times t_i$ ).

**Filtration tangentielle :** Le schéma d'écoulement pour la filtration tangentielle (Figure 3-8) est complexe comparativement à la filtration frontale puisqu'il inclut des débits de recirculation ( $Q_{re}$ ) et de purge ( $Q_{purge}$ ) supplémentaires.

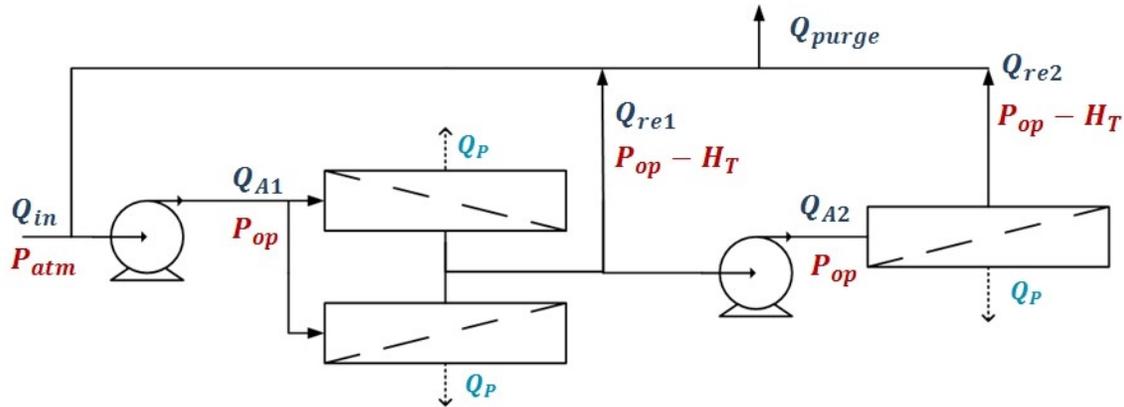


Figure 3-8 : Schéma de filtration tangentielle à deux étages

Le taux de récupération typique de 85 % permet de calculer le débit d'alimentation ( $Q_{in}$ ) à partir du débit total de perméat ( $3Q_p$ ) (Équation 3-14).

$$\text{Récupération} = \frac{3Q_p}{Q_{in}} = 85\% \quad \text{Équation 3-14}$$

Les débits d'alimentation ( $Q_{A1}$  et  $Q_{A2}$ ) doivent répondre à la vitesse d'écoulement tangentielle voulue. Une fois les débits déterminés, la puissance requise se calcule à l'aide de l'Équation 3-12, mais en trois volets. D'abord, une première puissance est calculée pour débit d'alimentation ( $Q_{in}$ ) et une perte de charge égale à la pression d'opération ( $P_{op}$ ). Ensuite, une deuxième puissance est calculée pour le débit de recirculation ( $Q_{re1} + Q_{re2}$ ) moins l'eau purgée ( $Q_{purge}$ ) avec une perte de charge égale à la différence de pression entre l'eau recirculée et celle d'opération ( $H_T$ ). Cette différence est due à la friction dans les modules et elle est calculée à partir de l'Équation 3-13. Ensuite, une dernière puissance est calculée à l'aide du débit d'alimentation du deuxième étage ( $Q_{A2}$ ) et la perte de charge par friction calculée dans les modules ( $H_T$ ). L'énergie consommée est la somme de ces puissances multipliée par une heure de production.

## CHAPITRE 4 RÉSULTATS PRÉLIMINAIRES

Ce chapitre présente les résultats préliminaires qui ne sont pas discutés dans l'article scientifique.

### 4.1 Stabilité du flux d'opération

Les données retenues pour faire les analyses statistiques ci-dessous sont toutes les valeurs de flux à l'exception des 5 premières minutes d'opération de chaque cycle pendant lesquelles le système n'est pas stable.

Tableau 4-1 : Valeur de flux réel, écart-type et variance

<i>Mode de filtration</i>	<i>Membrane</i>	<i>Flux moyen (LMH)</i>	<i>Écart-type</i>	<i>Variance</i>	<i>Écart moyen p/r à la cible</i>
CF	UF	20,1	0,3	2%	0%
		20,6	0,3	1%	3%
		21,1	0,2	1%	6%
		20,3	0,2	1%	2%
CF	NF	20,3	0,6	3%	2%
		19,5	0,7	4%	-3%
		17,5	0,6	4%	-12%
		18,3	0,5	3%	-9%
		20,3	0,4	2%	2%
DE	UF	21,6	1,0	4%	8%
		20,9	0,7	3%	5%
		19,3	0,5	3%	-4%
	UF	76,5	1,8	2%	-4%

**CF : Filtration tangentielle, DE : filtration frontale, NF : nanofiltration, UF : ultrafiltration**

Pour tous les essais effectués, la variance moyenne du flux pendant un essai est de 4 %, cela confirme que le montage permet de travailler à flux constant. Néanmoins, certains tests (mis en évidence au Tableau 4-1) ont un flux moyen ayant un écart supérieur à 5% par rapport à la valeur ciblée de 20 LMH. Cet écart atteint un maximum de 12 % pour l'essai en laboratoire du 9 septembre 2015.

## 4.2 Validation du mécanisme de colmatage

Les quatre modèles de colmatage adaptés de Hermia par Huang et al. (2007) ont été utilisés pour valider l'hypothèse selon laquelle le mécanisme de colmatage dominant pour cette étude est la formation de gâteau. Voici un rappel de l'équation modélisant ce mécanisme (Tableau 2-2) :

$$\frac{1}{J_s} = 1 + U M F I \times V_s \quad \text{Équation 4-1}$$

Où le flux spécifique ( $J_s$ ), à flux constant, est calculé selon l'équation :

$$J_s = \frac{PTM_0}{PTM} \quad \text{Équation 4-2}$$

Où :

- $PTM_0$  : pression transmembranaire initiale (bar) ;
- $PTM$  : pression transmembranaire (bar).

La valeur de pression transmembranaire choisie comme valeur initiale est celle après 5 minutes de filtration ce qui laisse le temps au système de se stabiliser. Pour les essais en filtration frontale, le modèle de formation de gâteau est en effet celui qui obtient le meilleur coefficient de détermination ( $R^2$ ) (autres modèles non illustrés) ce qui confirme l'hypothèse de formation de gâteau comme mécanisme dominant de colmatage. La Figure 4-1 présente les résultats bruts pour le premier cycle de chacun des essais ainsi que les équations des régressions linéaires et leurs coefficients de détermination.

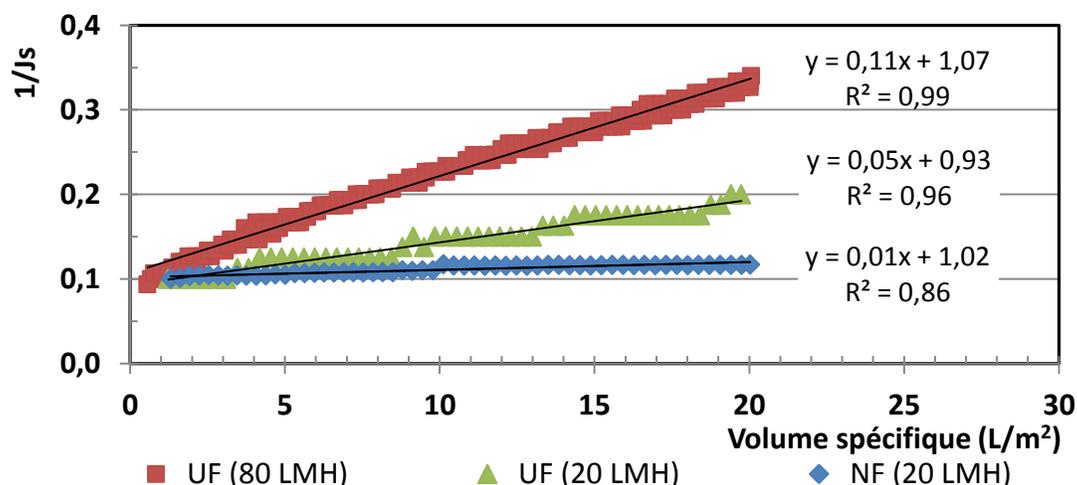


Figure 4-1 : Modèle de colmatage et UMFI pour les essais en filtration frontale

Les indices de colmatage UMFI des trois scénarios ont été déduits des régressions obtenues selon l'Équation 4-1. Pour la membrane UF, ils sont de 0,05 et 0,11 m<sup>2</sup>/L pour les flux de 20 et 80 LMH respectivement. Un flux quatre fois plus élevé entraîne donc un indice de colmatage environ deux fois plus grand sur la UF. Pour la membrane NF, l'UMFI est de 0,01 m<sup>2</sup>/L soit 5 fois plus faible que pour la membrane UF testée dans les mêmes conditions. Il faut souligner que les coefficients de détermination obtenus sont meilleurs pour les essais où le colmatage est plus sévère (Figure 4-1), ce qui s'explique par une meilleure capture du phénomène par les instruments de mesure. Comme la pression transmembranaire initiale diffère d'un module à l'autre 0,8 à 35 PSI (UF, NF respectivement) une même hausse de pression résulte en une plus faible variation du flux spécifique pour la membrane NF. Les résultats ont donc aussi été analysés en fonction de la résistance du colmatage causé uniquement par le gâteau accumulé sur la membrane. La résistance des membranes a été tout d'abord calculée conformément à l'Équation 2-2 sauf pour le test sur la membrane UF à 20 LMH. Pour ce test la perméabilité calculée est deux fois plus faible que la perméabilité réelle (400 au lieu de 800 LMH voir Figure 4-2) ce qui se traduit en une résistance totale plus élevée. La perméabilité plus faible est due à l'imprécision expérimentale qui est accentuée par le faible flux (20 LMH). La résistance choisie comme résistance de la membrane est plutôt la résistance totale en début d'essai, en supposant qu'il n'y ait pas encore eu de colmatage. La résistance du gâteau est calculée selon l'Équation 2-2 pour les trois tests (Tableau 4-2). La résistance de la membrane NF est 124 fois supérieure à celle de la membrane UF, ce qui est du même ordre de grandeur que l'écart entre leurs perméabilités

respectives (8,0 LMH/bar et 800 LMH/bar). Les résistances de colmatage obtenues par le modèle de résistances en série sont en accord avec les résultats d'UMFI. La résistance du colmatage pour la membrane de NF est plus faible que celle de la membrane UF opérée dans les mêmes conditions (en moyenne 2,7 fois moins) et la résistance du gâteau pour l'essai à flux élevé (80 LMH) est significativement supérieure à celle obtenue à un flux de 20 LHM (1,2 fois). De plus, pour deux des trois essais (NF et UF à 80 LMH) la résistance du gâteau semble augmentée au fil des cycles. Enfin, notons que la résistance du gâteau est plus élevée que la résistance de la membrane UF alors que c'est l'inverse pour la NF.

Tableau 4-2 : Résistances des membranes et du gâteau

Résistance de la membrane ( $m^{-1}$ )	Résistance du gâteau ( $m^{-1}$ )				
	Cycle 1	Cycle 2	Cycle 3	Moyenne	Écart-type standard
<b>NF</b> 4,32E+13	1,69E+10	4,45E+11	7,30E+11	3,97E+11	2,93E+11
<b>UF (20 LMH)</b> 9,21E+11	1,08E+12	1,09E+12	9,9E+11	1,05E+12	0,04E+12
<b>UF (80 LMH)</b> 3,48E+11	1,26E+12	1,29E+12	1,32E+12	1,29E+12	0,02E+12

Pour les essais en filtration tangentielle, le colmatage est largement réduit par la recirculation d'eau et les modèles de colmatage testés ne sont pas concluants, car la hausse de colmatage est trop faible. La sensibilité des mesures expérimentales était insuffisante pour obtenir des courbes représentatives. Pour obtenir des résultats comparables à ceux en filtration frontale et valider un modèle de colmatage, il faudrait opérer beaucoup plus longtemps.

### 4.3 Performance des lavages par mesure de la perméabilité

Il est possible de valider la performance du lavage en observant la récupération de perméabilité après un lavage physique, comme expliqué précédemment. La Figure 4-2 illustre l'évolution de la perméabilité dans le temps pour les essais sur la membrane UF en filtration frontale lavée selon le protocole le plus performant (protocole 3 avec ajout d'air, Tableau 3-3).

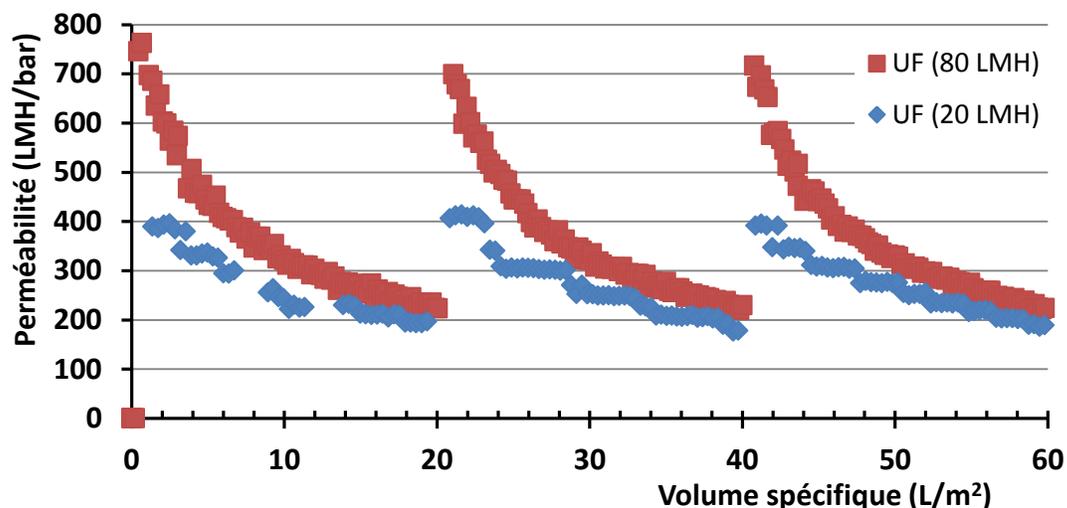


Figure 4-2 : Récupération de la perméabilité en filtration frontale sur UF (20 et 80 LMH)

Sur la Figure 4-2, les volumes spécifiques de 20, 40 et 60 L/m<sup>2</sup> correspondent aux lavages physiques après quoi, une fois la filtration redémarrée, la perméabilité est en partie retrouvée. Pour la membrane d'UF, les récupérations de perméabilité résultantes calculées selon l'Équation 3-1 sont résumées ci-dessous.

Tableau 4-3 : Récupération de la perméabilité, filtration frontale sur la membrane UF

Membrane	Flux (LMH)	Récupération de perméabilité (%)	
		Cycle 1	Cycle 2
UF	20	104%	100%
	80	92%	94%

Les valeurs de récupération observées lors de l'essai à flux élevés suggèrent que le lavage élimine efficacement, voire totalement pour le flux de 20 LMH, l'accumulation sur les membranes. Le flux élevé obtient une performance légèrement inférieure, mais non significative ( $p=0,06$ ). Ces résultats seront par la suite comparés aux performances analysées en fonction du bilan de masse (section 4.4).

En ce qui concerne la membrane NF qui est moins sensible au colmatage de l'eau synthétique, aucune hausse significative de la perméabilité n'a été observée lors de la remise en filtration qui suit le lavage physique (Figure 4-3 a). Le même problème de sensibilité a été rencontré pour les expérimentations en filtration tangentielle (e.g. Figure 4-3 b). De plus, les variations de

perméabilité au cours d'un cycle de filtration étaient du même ordre de grandeur que la variance du flux, elles ont donc été attribuées à l'incertitude expérimentale. Pour ces essais, nous pouvons donc conclure que le taux de récupération de perméabilité n'est pas une méthode efficace d'évaluer la performance du nettoyage, en particulier pour des membranes opérées en filtration tangentielle.

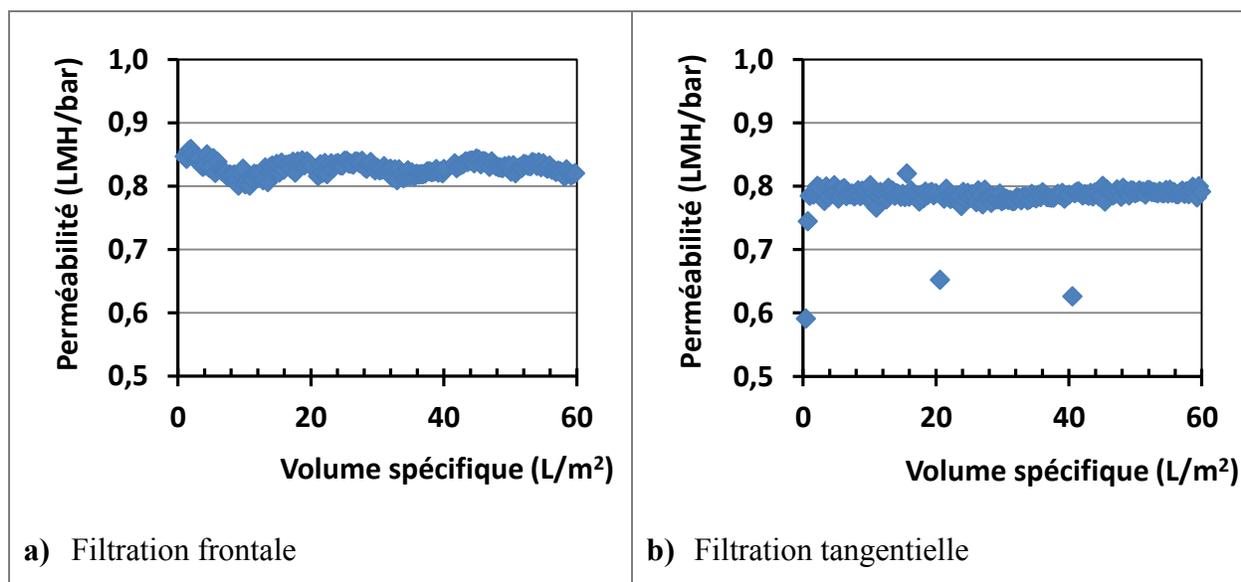


Figure 4-3 : Perméabilité en fonction du volume spécifique filtré pour la membrane HFNF. Protocole de lavage : 3 avec air.

#### 4.4 Impact du flux

L'impact du flux sur l'efficacité du lavage physique a aussi été évalué par un bilan de masse pour la membrane HFUF opérée en filtration frontale à des flux de 20 et 80 LMH (Figure 4-4). L'impact du flux sur la qualité du perméat a aussi été évalué. Les pourcentages de colmatants récupérés ne sont pas statistiquement différents entre les deux flux testés ( $p=0.07$ ), ce qui est en accord avec les résultats obtenus par l'analyse des perméabilités. L'analyse par bilan de masse a permis de d'établir que la concentration de carbone organique total (COT) dans le perméat est deux fois plus élevée lorsque le flux augmente de 20 à 80 LMH.

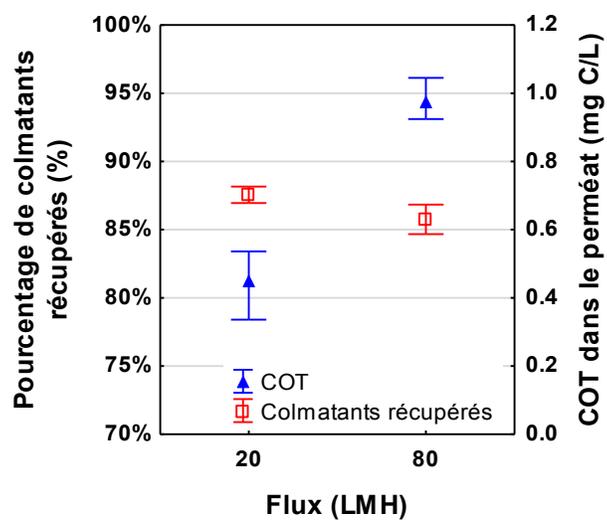


Figure 4-4 : Impact du flux sur l'efficacité du lavage physique et la qualité du perméat (filtration frontale; protocole de lavage 3 avec ajout d'air)

## CHAPITRE 5     **ARTICLE 1: PHYSICAL CLEANING EFFICACY OF HOLLOW FIBER NANOFILTRATION MEMBRANES IN DRINKING WATER APPLICATIONS**

Le chapitre qui suit présente les résultats des essais qui se sont déroulés au laboratoire du CRÉDEAU au cours des années 2015-2016. Ils sont sous la forme d'un article scientifique qui a été soumis à la revue *Desalination and Water Treatment* le 6 avril 2016 .

### **PHYSICAL CLEANING EFFICACY OF HOLLOW FIBER NANOFILTRATION MEMBRANES IN DRINKING WATER APPLICATIONS**

Analita PAYANT<sup>a</sup>, Pierre R. BÉRUBÉ<sup>b</sup> & Benoit BARBEAU<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Industrial-NSERC Chair in Drinking Water, École Polytechnique de Montréal, Département des Génies Civil, Géologique et des Mines, CP 6079, succ. Centre-Ville, Montréal, QC, Canada, H3C 3A7, Tel.: (514) 340-4711 (ext.2975), Fax: (514) 340-5918, [analita.payant@polymtl.ca](mailto:analita.payant@polymtl.ca), Tel.: (514) 340-4711 (ext.2988), Fax: (514) 340-5918, [benoit.barbeau@polymtl.ca](mailto:benoit.barbeau@polymtl.ca).

<sup>b</sup>University of British Columbia, Department of Civil Engineering, Vancouver, BC, Canada, V6T 1Z4, Tel. : (604) 822-5665, Fax: (604) 822-6901, [berube@civil.ubc.ca](mailto:berube@civil.ubc.ca).

#### ABSTRACT

Although fouling is still a major challenge for any membrane process, permeate water quality achieved by nanofiltration makes it an appealing process for drinking water treatment. The aim of this research is to study the role of hydrodynamic conditions on the efficacy of physical cleaning for hollow fiber nanofiltration (HFNF). Bench-scale inside/out HFNF membranes, as well as hollow fiber ultrafiltration (HFUF) tested as a reference, were fouled in dead-end (DE) or crossflow (CF) operation with synthetic water consisting of a mixture of sodium alginate and kaolin clay. Six physical cleaning strategies (3 water velocities  $\times$  2 air velocities) were tested after three triplicate filtration cycles. The physical cleaning efficacy was assessed by performing a mass balance recovery of the alginate and kaolin fed in the system. No difference in physical cleaning efficacy was observed for the two types of membranes in CF operation. High water

velocity and air addition improved the physical cleaning efficacy. During CF operation, alginate and kaolin were mostly (75-86%) recovered in the concentrate as opposed to physical cleaning waters (below 8%). Fouling management achieved by a combination of physical cleaning and CF operation was superior to what was achieved in DE operation with physical cleaning. For HFNF, the energy costs for physical cleaning were marginal compared to those associated with CF operation, but can be reduced by using a shorter backwash duration and air assisted forward flush.

#### KEYWORDS

Hollow fiber nanofiltration, HFNF, dual-phase flow, backwash, energy consumption, drinking water

## 5.1 Introduction

As opposed to ultrafiltration (UF), nanofiltration (NF) membranes can retain a significantly higher fraction of natural organic matter (NOM) including disinfection by-product precursors as well as trace organic contaminants, whether regulated (e.g. pesticides or algae toxins) or of emerging concern (e.g. endocrine disruptors or personal care products). However, the expansion of NF in the water industry has been limited by its relatively low flux, high energy consumption and fouling propensity compared to low-pressure membranes (e.g. microfiltration and UF). Currently, NF modules are typically configured as spiral-wound elements which cannot effectively be physically cleaned. In addition, many NF membrane materials (e.g. polyamide) cannot be cleaned with oxidants such as hypochlorite solutions, limiting the ability to control microbial and organic fouling. Therefore, adequate pre-treatment prior to spiral-wound NF is essential for the successful application of this technology (Shankararaman, Jacangelo, Bonacquisti, & Schauer). The recent development of commercial hollow fiber NF membranes (HFNF), which can be physically cleaned, as well as chemically cleaned with oxidants such as hypochlorite solutions (e.g. X-Flow HFW1000), represents a significant innovation for the water industry. The possibility to reduce the extent of pre-treatment required before HFNF could expand the application of this technology.

The use of physical cleaning is an important strategy for managing fouling of hollow fiber membranes. In HFUF, this is typically achieved by a combination of steps including single or dual-phase (i.e. air/water) rinsing (i.e. forward flush) and backwashes. To the best of our knowledge, no studies have assessed if cleaning strategies commonly used for HFUF would also be applicable for HFNF membranes. Considering the current knowledge on fouling mitigation, it is expected that the use of air could play an important role to mitigate fouling in HFNF systems. Air addition in outside/in HFUF systems during permeation is recognized as an effective approach to reduce fouling (Tian et al., 2010; Xia et al., 2013). The efficacy of fouling control has been correlated to wall shear stress induced by rising air bubbles and fiber movement. Air addition (i.e. dual-phase air/water for feed flow) was also demonstrated to be effective at reducing fouling for inside/out HFUF membranes (Cheng & Wu, 2003; Cui, Z. & Taha, 2003; Cui, Z. F. & Wright, 1996; Laborie et al., 1997). The flow pattern plays a key role with slug flow being considered as the most effective for fouling mitigation. Once again, efficacy was correlated with the shear induced by the dual-phase flow (Cui, Z. & Taha, 2003; Laborie et al., 1997). With respect to HFNF, dual-phase flow obtained by injecting air during crossflow (CF) operation was also reported to increase permeate flux while reducing the concentration-polarization induced by the synthetic water tested ( $7\text{-}12 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1} \text{ MgSO}_4\cdot 7 \text{ H}_2\text{O}$ ) (Verberk & van Dijk, 2006).

As a second option, dual-phase flow can also be used during physical cleaning rather than during permeation. The efficacy of physically-assisted air cleaning of HFUF has been shown for dead-end (DE), outside/in (Serra et al., 1999) and inside/out (Bessiere et al., 2009) operation. In the last case, the authors identified air-assisted backwash followed by a final rinsing step as the most cost-effective strategy. In a subsequent study, they recommended a mass balance analysis as the most sensitive method to estimate physical cleaning efficacy (rather than analyzing permeability loss) (Remize et al., 2010).

Although it is anticipated that air-assisted physical cleaning will also be beneficial to mitigate fouling in HFNF membranes, there are several important differences in their operation compared to that of HFUF membranes that suggest differences in the efficacy of physical cleaning strategies for HFNF and HFUF. First, commercially available HFNF membranes are operated with CF, while HFUF membranes are typically operated in DE mode for drinking water applications. CF is useful to reduce NOM concentration-polarisation (Braghetta, DiGiano, & Ball, 1998) and limit cake accumulation (Seidel & Elimelech, 2002). Second, the operating flux

of HFNF (10-25 LMH) is significantly lower than that for HFUF (50-100 LMH) systems which implies lower foulants advection to the membrane. Third, NOM retention is higher in HFNF due to the lower molecular weight cut-off of these membranes. NOM accumulation within the cake could potentially modify its physico-chemical characteristics. Consequently, the objectives of this research were to (i) compare the efficacy of various physical cleaning strategies for HFNF membranes, (ii) evaluate the impact of operating conditions on physical cleaning and (iii) explore the hydrodynamic and economic benefits of dual-phase physical cleaning.

## **5.2 Materials and methods**

### **5.2.1 Membrane modules**

The experiments were carried out using a bench-scale inside/out HFUF and HFNF membranes (Pentair, X-Flow®). The two bench-scale modules had an identical filtration surface (0.07 m<sup>2</sup>), module length (30 cm) and inner fiber diameters (0.8 mm). The molecular weight cut-offs of the HFUF and HFNF membranes are 150 and 1 kDa, respectively (Pentair, 2016a).

### **5.2.2 Synthetic waters**

All filtration experiments were conducted using a model water which contained ultrapure water (Milli-Q®), 15 mg/L of kaolin clay, 5 mg C/L of sodium alginate (Sigma-Aldrich, USA, CAS: 9005-38-3) and sodium bicarbonate (50 mg CaCO<sub>3</sub>/L). The final model water pH was adjusted to 7.0 with HCl and had a turbidity of 16.4 NTU. The kaolin was added to the water immediately before the start of the filtration tests and it was previously placed in an ultrasound bath to ensure an even distribution of particle sizes for all assays. The median kaolin particles size was estimated to be 9.6 μm by sequential filtration. The synthetic water without kaolin was subjected to size exclusion chromatography with organic carbon detection (LC-OCD). The sodium alginate in solution produced a narrow peak at 54,500 Da.

### **5.2.3 Experimental set-up**

Figure 5-1 illustrates the experimental set-up, which includes a feed pump (magnetic gear, BVP-Z, Ismatec, Germany) and peristaltic pump (Masterflex L/S, Cole-Parmer, Canada) installed on the permeate side to maintain constant flux during filtration. On-line pressure (PX409-100GUSB

and PX409-030GUSB, OMEGA, Canada) is monitored with an OMEGA software. Flow is calculated by gravimetry (with a precision of  $\pm 0.01$  mg). The temperature is monitored by a sensor located in the feed water tank and was kept at  $20 \pm 0.5^\circ\text{C}$  using a cooling system (1171PD, VWR, USA). The set-up also includes a pressurized air inlet connected to the feed line. The air flow rate was measured with a rotameter (Gilmont GF-1360, Cole-Parmer, Canada) and validated with a gas bubble flow meter. Physical cleaning waters were collected from the drainage line.

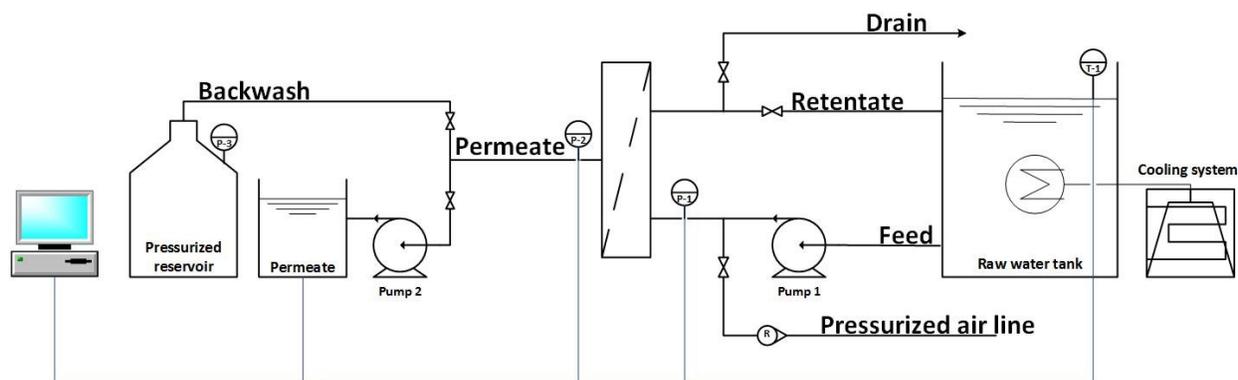


Figure 5-1 : Experimental set-up

### 5.2.4 Operation mode and physical cleaning protocols

Every filtration experiments consisted of a series of three permeation cycles, each followed by a physical cleaning. Each physical cleaning was initiated after that  $20 \text{ L/m}^2$  of permeate had been filtered. The filtration experiments were conducted at constant flux (20 LMH) and either under DE or CF operation (at 0.5 m/s).

Six different physical cleanings strategies were investigated. All strategies involved three successive steps (Figure 5-2). The first step consisted of a forward flush using synthetic feed water with or without air addition (Figure 5-2a). The second step consisted of a forward flush (FF) with a backwash (BW) (Figure 5-2b). A synthetic permeate, consisting of the model raw water without sodium alginate or kaolin was used as the BW water. The third step is a forward flush without air addition (Figure 5-2c). After the third step, the filtration resumed. Physical cleaning water and air velocities were adapted from manufacturer recommendations and typical conditions prevailing in the water industry. Note that the manufacturer did not recommend air injection during the forward flush for HFNF membranes. The duration of air injection was set to

10 seconds while the BW flux was set to 40 LMH, i.e. two times the HFNF permeate flux. A summary of the physical cleaning characteristics are presented in Table 5-1.

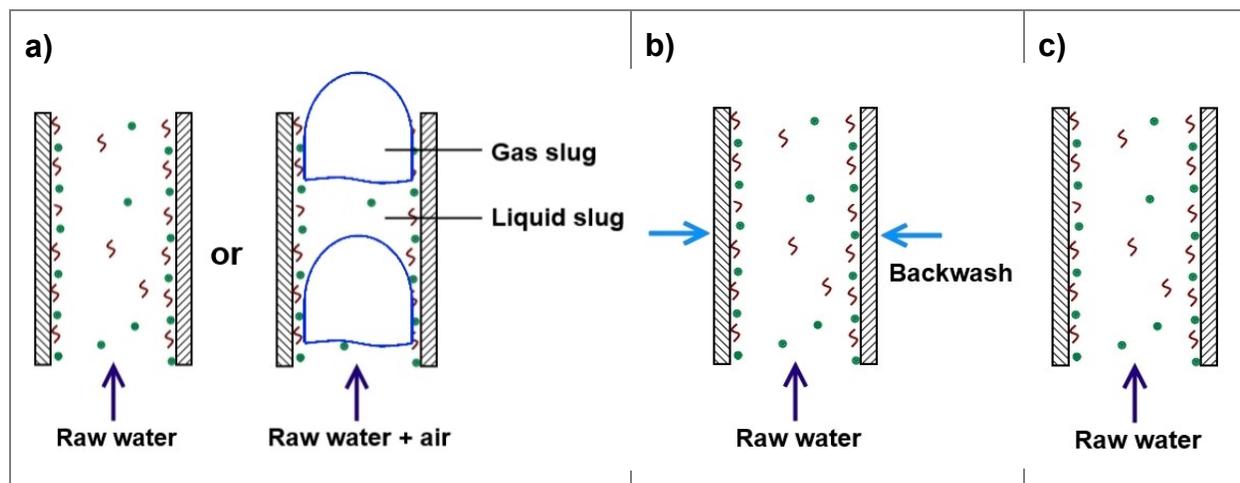


Figure 5-2 : Physical cleaning steps (a: forward flush with or without air; b: backwash with forward flush; c: forward flush without air)

Table 5-1 : Physical cleaning protocols

Protocols	Cleaning steps	Duration (s)	Water velocity (m/s)	Air velocity (m/s)	Average water velocity <sup>1</sup> (m/s)
1	Forward flush with or w/o air	55	0.05	0.51	0.06
	Backwash + forward flush	60	0.08	0.00	
	Forward flush	55	0.05	0.00	
2	Forward flush with or w/o air	20	0.11	0.51	0.16
	Backwash + forward flush	25	0.23	0.00	
	Forward flush	10	0.11	0.00	
3	Forward flush with or w/o air	20	0.17	0.51	0.27
	Backwash + forward flush	25	0.38	0.00	
	Forward flush	10	0.17	0.00	

1: Time-weighted average

Between filtration experiments, the membranes were cleaned with Milli-Q water, a sodium hydroxide solution (1 mM NaOH) and a hydrochloric acid solution (1 mM HCl) prior to storage in the dark in a NaHSO<sub>3</sub> solution (200 mg/L) at 4 ° C. The HFNF was first backwashed with ultrapure water and then soaked with recirculation for both chemical solutions (with ultrapure rinsing between the steps) while the HFUF was first backwashed with ultrapure water and then with the cleaning solutions (with ultrapure rinsing between the steps) as recommended by manufacturer. Finally, membrane integrity was confirmed prior each assay by performing a pressure-hold tests ( $P_o = 15$  psig).

### 5.2.5 Assessment of physical cleaning efficacy

Physical cleaning efficacy was not assessed using permeability recovery because this approach did not provide enough sensitivity, a conclusion that had also be drawn by Remize et al. (2010). As an alternative, a mass balance analysis was performed to assess the recoveries of foulants. The kaolin and alginate masses were measured independently. The kaolin concentration in the waters (raw, concentrate and physical cleaning waters) was indirectly measured using absorbance at 861 nm in a 1 cm spectrophotometric cell (linearity relationship between 0 and 50 mg/L,  $R^2 = 0.999$ ). The detection limit was estimated to be 0.6 mg/L. The presence of sodium alginate did not impact the measurements. The sodium alginate concentration was determined using a TOC-analyser (Sievers 5310 C Laboratory TOC Analyzer, GE®). The detection limit was estimated to be 0.07 mg C/L.

The physical cleaning efficacy was evaluated by calculating the fraction of foulants recovered (%) using Eq.(5-1 in which the kaolin and alginate loads were summed up. Physical cleaning efficacy amongst cleaning protocols were compared statistically by conducting an ANOVA (with interactions) with Statistica 10.0 (Statsoft, USA).

$$\text{Fraction of foulants recovered (\%)} = \left( \frac{\text{Physical cleaning mass}}{\text{Feed mass} - \text{Permeate mass}} \right) \times 100 \quad (5-1)$$

### 5.2.6 Hydrodynamic conditions

In order to assess the role of the hydrodynamic condition on physical cleaning efficacy, theoretical shear conditions and dual-phase Reynold numbers inside the fiber were calculated for

each cleaning protocols step. For both parameters, maximum and time-weighted averages were calculated.

### 5.2.6.1 Dual-phase Reynold number

The liquid slug Reynolds number is calculated based on Ghosh, R. et Cui (1999) model and the assumption that there is no disperse bubbles present in the liquid slug (Laborie et al., 1999):

$$Re_{LS} = \frac{\rho_L U_m D}{\mu_L} \quad (5-2)$$

where  $\rho_L$  is the liquid density ( $\text{kg/m}^3$ ),  $D$  is the fiber diameter (m),  $\mu_L$  is the liquid dynamic viscosity (Pa.s) and  $U_m$  is the mixture velocity (m/s) defined as :

$$U_m = U_G + U_L \quad (5-3)$$

where  $U_L$  and  $U_G$  are respectively the liquid and gas phase (m/s). A second Reynolds number was also investigated based on the homogenous-flow model where the dual-phase is considered as a single phase flow with average properties of the mixture (Holland & Bragg, 1995).

$$Re_m = \frac{\rho_m U_m D}{\mu_m} \quad (5-4)$$

where  $Re_m$  is the mixture Reynolds number,  $\rho_m$  is the mixture density ( $\text{kg/m}^3$ ) and  $\mu_m$  is the mixture dynamic viscosity (Pa.s).

### 5.2.6.2 Shear stress

For single phase flows, the wall shear stress ( $\tau_{wall}$ ) can be calculated from the Darcy-Weisbach equation:

$$\tau_{wall} = \frac{f_f U_L \rho_L}{2} \quad \text{where } f_f = \frac{f_D}{4} \quad (5-5)$$

where ( $f_f$ ) is a friction factor correlated to the Darcy friction factor ( $f_D$ ) which is defined by Eq. (5-6) for laminar flow conditions ( $Re < 2000$ ).

$$f_D = \frac{64}{Re} \quad (5-6)$$

The dual-phase flow wall shear stress is calculated from the pressure loss ( $\Delta P$ ) by friction along the fiber length ( $\Delta L$ ) according to:

$$\tau_{wall} = \frac{D \Delta P}{4 \Delta L} \quad (5-7)$$

The pressure loss was estimated using the separated flow model of Lockhart-Martinelli (1949). The pressure loss for each of the phases is calculated separately with the same equation:

$$\frac{\Delta P}{\Delta L} = \frac{f_D \rho U^2}{2D} \quad (5-8)$$

The model proposes correlations between pressure loss (using a multiplier factor  $\Phi_L^2$ ) and an empirical parameter ( $X$ ). A relationship is required to estimate these two parameters, the Chisholm equation (Chisholm, 1967) was used for this purpose. It includes an empirical factor ( $C$ ) that can be calculated using the Mishima-Hikibi relationship which was recently modified to take into account the surface tension ( $\sigma$ ), an important parameter for flow in small tubes (Zhang et al., 2010).

$$C = 21(1 - e^{-0.674/Lo^*}) \quad (5-9)$$

$$Lo^* = \frac{\sigma}{\sqrt{g(\rho_L - \rho_G) D^2}} \quad (5-10)$$

Eq. (5-9) is applicable for hydraulic diameters ranging from 0.014 to 6.25 mm. The coefficient of 0.674 is recommended for adiabatic laminar liquid-gas mixtures (Zhang et al., 2010).

### 5.2.7 Energy consumption

Energy consumption was calculated in order to compare cleaning protocols with respect to their cleaning efficacy, the operating costs and the volume of wastewaters produced. Calculations were made for an industrial module using the following assumptions:

- Industrial NF module: filtration surface of 40 m<sup>2</sup> and 1.54 m fiber length,
- NF membrane permeability: 8.3 LMH/bar at 20°C,
- Two stages of filtration (2+1 configuration) with a total recovery of 85%,
- Flux: 20 LMH,
- Operating feed pressure: 2.4 bar (35 psig),
- Filtration cycles of 1 h followed by a physical cleaning,
- Backwash: 40 LMH at 4.8 bar (70 psig).

## 5.3 Results

### 5.3.1 Physical cleaning efficacy for crossflow operation

To evaluate the efficacy of various physical HFNF cleaning strategies, each protocol and its variant (with or without air) was first tested in CF operation (0.5 m/s) at a constant flux of 20 LMH. Four of the six physical cleanings strategies were also evaluated on a HFUF membrane operated with the same conditions (0.5 m/s and 20 LMH).

The fractions of foulants recovered by the various physical cleaning strategies considered are reported in Figure 5-3. The fractions of foulants recovered were constantly low (< 8%) because, under crossflow operation, most of the matter contained in the feed water did not accumulate on the membrane, but was present in the concentrate (75-86 %). An ANOVA analysis revealed that the water velocity, the addition of air as well as their synergistic interaction significantly impacted the physical cleaning efficacy ( $p < 0.001$  in all three cases). The use of air and higher water velocities improved the fraction of foulants recovered by 2.5 fold compared to a low water velocity in the absence of air. Physical cleaning strategies with air recovered 1.4 to 1.7 times more foulants than equivalent physical cleaning strategies without air. The use of higher water velocities without air addition improved the fraction of foulants recovered by 1.4 fold compared

to a low water velocity. The efficacy of the physical cleaning strategies were statistically equivalent for both the HFUF and HFNF membranes ( $p = 0.78$ ).

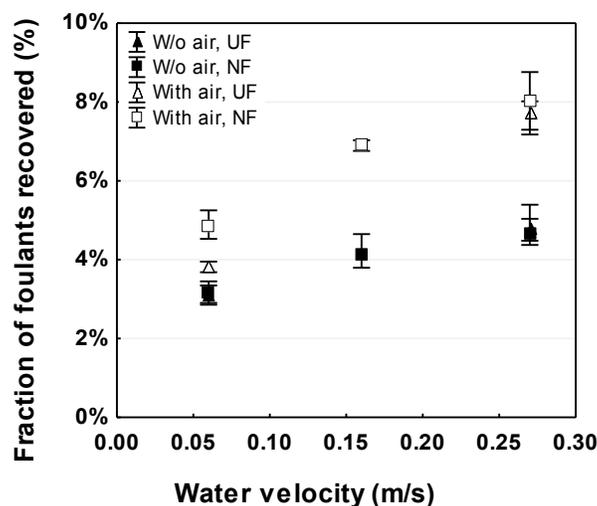


Figure 5-3 : Fractions of foulants (alginate & kaolin) recovered from physical cleaning for HFUF and HFNF membranes (Flux 20 LMH and CF of 0.5 m/s; error bars provide the min-max deviations from triplicate filtration tests.)

### 5.3.2 Impact of operation mode: crossflow vs dead-end

The most efficient cleaning protocol (Protocol 3 with air addition) was tested on both HFNF and HFUF membranes operated in DE mode with a constant flux of 20 LMH and compared with those operated with CF. As opposed to CF operation, the fraction of foulants recovered in the physical cleaning waters was very high after DE operation since no matter was recovered in the concentrate. For example, the mass of foulants that accumulated on the membranes before physical cleaning can be calculated by subtracting the concentrate and permeate masses from the raw water mass. For DE and CF operation, the accumulation prior to the physical cleaning were 37.9 mg and 11.1 mg, respectively (a 3.4-fold difference). In order to compare the fraction of foulants recovered under both modes of operation, the fraction of alginate and kaolin recovered in the concentrate (75-86%) were added to the fraction recovered during physical cleaning (<8%). Under this basis of comparison, the total fraction of foulants recovered were higher ( $p < 0.01$ ) for CF than DE operation (Figure 5-4a). For CF operation, the results were not statistically different for the HFUF and HFNF membranes ( $p = 0.34$ ). However, when operating in DE mode, the total fraction of foulants recovered was lower for the HFNF than the HFUF ( $p = 0.03$ ).

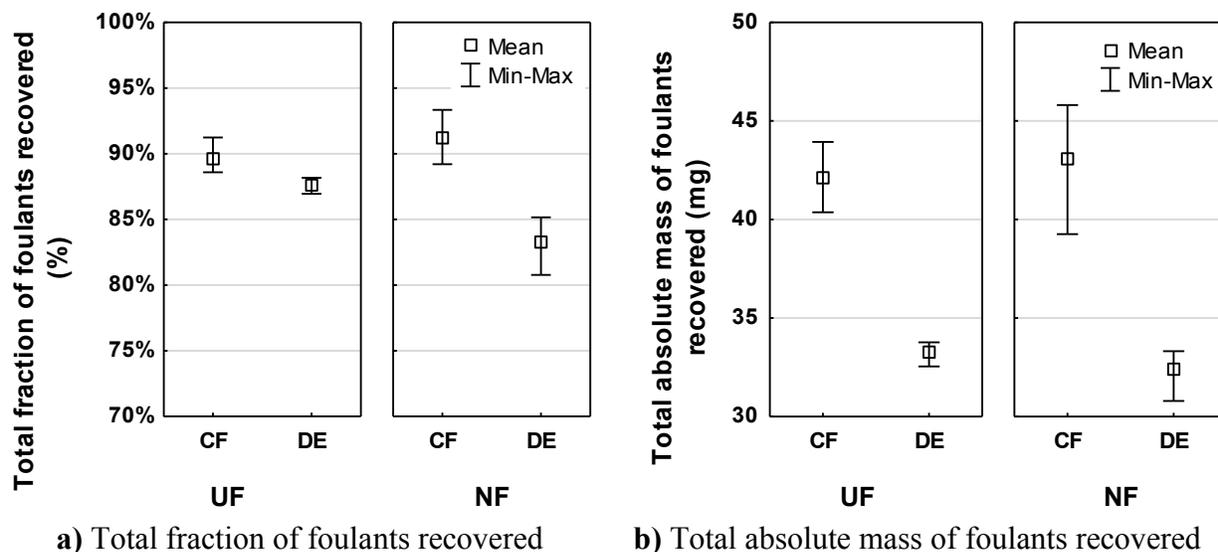


Figure 5-4 : Impact of operation mode on physical cleaning efficacy (Flux 20 LMH, CF of 0.5 m/s vs DE; physical cleaning (protocol P3 with air): average water velocity of 0.27 m/s with air addition 0.51 m/s; masses of foulants fed to the membranes in CF and in DE were 52 and 39 mg, respectively)

CF operation of HFNF has been reported to reduce permeate DOC concentrations in surface water applications (Hilal, Al-Zoubi, Darwish, Mohamma, & Abu Arabi, 2004). However, in the present study, the mode of operation did not impact the permeate water quality. Permeate kaolin concentrations were consistently below the detection limit while alginate concentrations were not statistically different for DE and CF operation ( $p = 0.97$ ). This is possibly related to the molecular weight of alginate (i.e. 55 kDa) which is too high to generate substantial concentration-polarization (Winter & Bérubé, 2015). The alginate concentration was significantly lower in the permeate from the HFNF than from the HFUF ( $p = 0.001$ ) (data not shown). Because the alginate retention between the two membranes was statistically different, the physical cleaning efficacy was also investigated by comparing the total absolute mass of foulants recovered (Figure 5-4b). The total absolute masses of foulants recovered were in agreement with the total fractions of foulants recovered, except for the efficacies of HFNF and HFUF operated in DE mode which were not statistically different ( $p=0.60$ ).

In summary, the mode of operation (i.e. CF vs DE) was the most important factor affecting the efficacy of physical cleaning. This is because CF operation can be conceptually considered as a

continuous physical cleaning during permeation. For CF operation, most of the kaolin and alginate contained in the feed was present in the concentrate. This implies that the permeation time of a filtration cycle for HFNF membranes can be greater for CF compared to DE operation. The manufacturer of the HFW1000 (HFNF) recommends that physical cleaning be performed every 60-120 minutes of permeation. This frequency is about 3 times longer than what is typically recommended for HFUF in DE mode (15-60 min) but is coherent with the reduced accumulation of foulants that we measured during this project (3.4-fold) for the CF-operated HFNF membrane. A lower physical cleaning frequency offers the benefits of reducing downtime for physical cleaning, lower wastewaters production and energy costs. The physical cleaning frequency is expected to depend on source water characteristics, CF velocity and targeted water recovery.

### **5.3.3 Shear and Reynolds number as indicators of physical cleaning efficacy**

As physical cleaning protocols involve numerous steps with variable hydrodynamic conditions, it was of interest to test if one indicator could correctly predict PC efficacy. The shear stress forces at the membrane surface and the Reynolds numbers within the hollow fiber membranes were calculated for each step of the different physical cleaning strategies considered (Table 5-2). All Reynolds numbers calculated were in the laminar regime. Air injection during the first forward flush increased the shear stress forces by 2 to 3 fold and both Reynolds number by 4 to 9 fold, compared to those for the single phase (i.e. water) flow conditions. With air injection, the maximum shear stress and Reynolds numbers were for the forward flush + air (step 1), with the exception of protocol 3, for which the maximum shear stress was for the BW + forward flush (step 2). Without air injection, the maximum values were always during BW + forward flush (step 2). As a reference, the shear stress and Reynolds numbers achieved during CF operation reached 5.0 Pa and 400, respectively. Interestingly, all maximum shear stress calculated during physical cleaning were below this number while only cleaning protocols with air achieved Re numbers above 400.

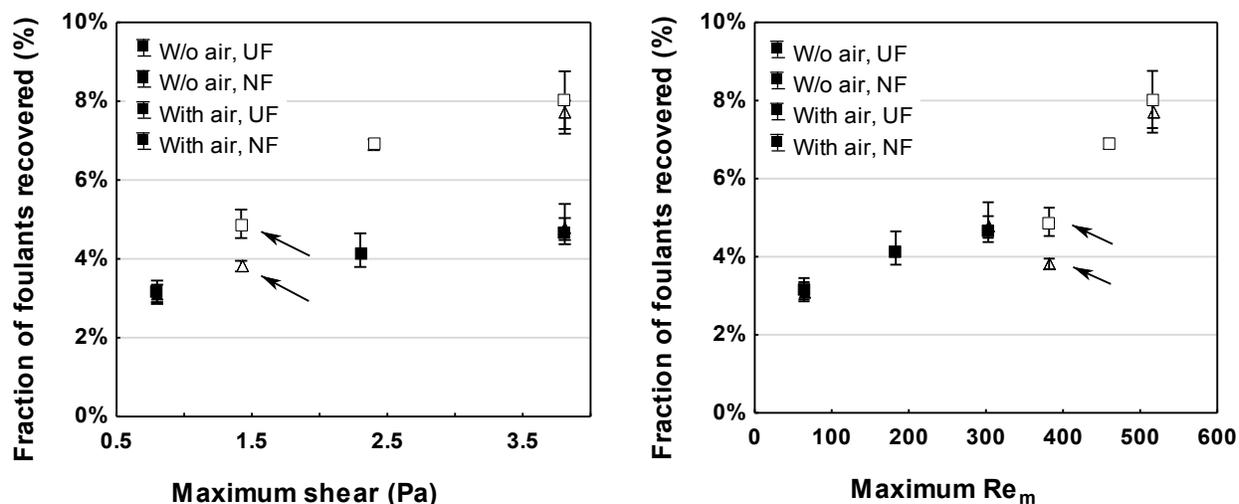
Table 5-2 : Shear stresses and Reynolds numbers achieved during each individual cleaning step

<i>Protocols</i>	<i>Cleaning steps</i>	<i>Shear (Pa)</i>	<i>Re<sub>LS</sub></i>	<i>Re<sub>m</sub></i>
<b>1</b>	Step 1 : Forward flush w/o air (with air)	0.5 (1.5)	48 (446)	48 (382)
	Step 2: Backwash + forward flush	0.8	64	64
	Step 3 : Forward flush w/o air	0.5	48	48
<b>2</b>	Step 1 : Forward flush w/o air (with air)	1.1 (2.5)	88 (494)	88 (459)
	Step 2 : Backwash + forward flush	2.3	183	183
	Step 3 : Forward flush w/o air	1.1	88	88
<b>3</b>	Step 1 : Forward flush w/o air (with air)	1.7 (3.5)	135 (542)	135 (516)
	Step 2 : Backwash + forward flush	3.8	303	303
	Step 3 : Forward flush w/o air	1.7	135	135

A number of parameters have been considered in the past to relate the hydrodynamic conditions present in membrane systems to fouling control (Cabassud, Laborie, Durand-Bourlier, & Lainé, 2001; Cui, Z. & Taha, 2003; Laborie et al., 1999; Ratkovich, Berube, & Nopens, 2011; Tian et al., 2010; Xia et al., 2013). Most of these attempts to relate a value based on the shear stress present at the surface of a membrane to fouling control (Cabassud et al., 2001; Cui, Z. & Taha, 2003; Laborie et al., 1999; Ratkovich et al., 2011). Unfortunately, the accurate determination of shear stress values theoretically or experimentally is very complex. Also, most of the shear stress based parameters considered to date do not generate a continuous relationships that can be universally applied to all hydrodynamic conditions of interest, especially when considering single phase and dual-phase flow (Chan, Bérubé, & Hall, 2011). This limitation is most likely due to the complexity of the slug flow shear pattern within a tube which induce a shear with a magnitude and direction which fluctuates with the passage of bubbles (Ratkovich et al., 2011). According to previous studies (Cabassud et al., 2001; Chan et al., 2011), the mean shear stress is not representative of the fluctuations occurring at the fiber wall. This observation also point outs to the limitations of using theoretical shear stress calculations and warrants the use of experimental shear stress measurements.

In the present study, the Reynolds number was considered as a simple parameter to relate the hydrodynamic conditions present in a membrane system to fouling control. The best correlation

was observed while using the maximum mixture Reynolds number ( $Re_m$ ) values achieved during a given protocol (Figure 5-5b), although cleaning efficacy was also correlated with the maximum shear (Fig. 5a). Without air addition, the max  $Re_m$  ranged from 48 to 135 for the conditions investigated, and a linear relationship was observed between the maximum  $Re_m$  and the fraction of foulants recovered. With air addition, the maximum  $Re_m$  ranged from 382 to 516 for the conditions investigated. Again, a linear relationship was observed between the maximum  $Re_m$  and the fractions of foulants recovered. Unlike the shear stress based parameters, a continuous relationship was observed between the  $Re_m$  and the fraction of foulants recovered for all conditions investigated (linear fitting,  $R^2 = 0.72$ ). The mixture Reynolds number was reported to be proportional to the liquid velocity in the mixture and is also a linear function of the gas slug frequency (Laborie et al., 1999). It could be a useful indicator to compare physical cleaning protocols without having to rely on filtration experiments. It would be of interest to validate if physical cleaning efficacy can also be predicted with the mixture Reynolds number under other test conditions. In this study case, the fiber diameter was small ( $D=0.8$  mm) and the hydrodynamic was influenced by viscosity (for  $D < 50 (\mu^2/\rho^2g)^{1/3} = 2.3$  mm) (Wallis, 1969), but also controlled by surface tension (for  $E\ddot{o} < 3.37$ ,  $D=5.0$  mm) (Bretherton, 1961). Therefore, it is not expected that the mixture Reynolds number would be applicable to any fiber geometry.



**a)** Fraction of foulants recovered by physical cleaning (%) vs average shear stress (Pa)      **b)** Fraction of foulants recovered by physical cleaning (%) vs maximum  $Re_m$

Figure 5-5 : Shear and Reynolds number as indicators of physical cleaning efficacy for HFNF and HFUF membranes (Flux 20 LMH and CF of 0.5 m/s; error bars provide the min-max deviations)

As expected, higher water velocities and air addition increased the wall shear stress (Ratkovich et al., 2011). Dual-phase physical cleaning conditions proved to be superior to single phase (i.e. water) cleaning. Such observations are consistent with conclusions from previous studies (Bessiere et al., 2009; Serra et al., 1999). As previously discussed, the maximum mixture  $Re$  numbers for the physical cleaning protocols with air addition were achieved during the dual-phase forward flush. For protocols without air addition, it was achieved during the backwash with forward flush. For protocol 1 (see arrows in Figure 5-5), the impact of air addition on efficacy was less important. This is potentially due to the very high void ratio (0.91) that may have favored an annular flow condition (observed above 0.90) rather than slug flow (Cabassud et al., 2001), the latter being more effective for fouling control.

### 5.3.4 Energy consumption

The specific energy consumptions (i.e. normalized for one  $m^3$  of treated water) was calculated for the different cleaning protocols investigated. The calculations assumed CF operation of a HFNF membrane at 20 LMH (20°C). The protocol P1 had the highest energy consumption (Table 5-3).

This extra energy demand comes from the longer duration (two-fold) for the backwash step at high pressure (4.8 bar) compared to those of protocols P2 and P3. The backwash alone consumes 55 to 74 % of the total cleaning energy. Air injection marginally increases the energy cost of the protocols (20%), but achieved a higher physical cleaning efficacy with less energy than water alone.

Although these differences may appear important, they are actually marginal when compared to the total energy cost of operation of a HFNF, which including filtration and crossflow. For example, the total energy demand in CF are presented in Table 5-3 for the six cleaning strategies. The cleaning energy of HFNF is negligible compared to that of operation (below 1.1%). The BW step for P1 requires 3.3 % of the treated water production for the physical cleaning while P2 and P3 only use 1.4 %.

Table 5-3 : Total energy demand for the various cleaning protocols applied to HFNF

<i>Criteria</i>	<i>Physical cleaning protocols</i>					
	<i>P1</i>	<i>P1+air</i>	<i>P2</i>	<i>P2+air</i>	<i>P3</i>	<i>P3+air</i>
<b>Mean fraction of foulants recovered by PC (%)</b>	3.1	4.3	4.1	6.9	4.7	7.8
<b>Physical cleaning specific energy (W-h/m<sup>3</sup>)</b>	3.1	3.2	1.5	1.7	1.9	2.3
<b>Total specific energy demand (W-h/m<sup>3</sup>)<sup>1</sup></b>	266	267	260	260	260	260
<b>Backwash waters (% of production)</b>	3.3%	3.3%	1.4%	1.4%	1.4%	1.4%
<b>Wastewater (m<sup>3</sup>/module)</b>	0.05	0.05	0.05	0.05	0.08	0.08

1: Total energy = Permeation + crossflow + physical cleaning energies

Dual-phase was also shown to be less energy-intensive than water alone to achieve a given physical efficacy. The HFNF membrane is limited to low BW flux due to its lower permeability. Such constraint can be mitigated by the use of air. A shorter BW duration and air addition in the forward flush could provide an enhanced physical cleaning while minimizing O&M costs of physical cleaning. With respect to energy optimization, the specific energy for the different physical cleaning strategies were in the order of 1.5-3.2 W-h/m<sup>3</sup>. The contribution of the physical cleaning strategies to the total energy demand (i.e. including CF and permeation energies) is

marginal because of the higher operation pressure required for HFNF membranes. Optimizing physical cleaning of HFNF will therefore only provide low relative energy savings.

## 5.4 Conclusions

HFNF and HFUF mini-modules of identical dimensions were fouled under dead-end and crossflow operation using synthetic waters. Various physical cleaning strategies were assessed to maximise foulant recoveries from the membrane. Experimental results led to the following conclusions:

- There was no significant difference between the physical cleaning efficacy of HFUF and HFNF membranes when operated with CF at a permeation flux typical of HFNF (20 LMH). The use of air, high water velocity or a combination of both improved the physical cleaning efficacy by 2.5 fold compared to low velocity in the absence of air addition.
- Air-assisted forward flush increased the wall shear stress and Reynolds number. Physical cleaning efficacy was best correlated to the maximum mixture Reynolds number (calculated for the cleaning step with the highest velocity).
- Air addition increases energy costs but improves the efficacy of physical cleaning with less energy than water alone and without producing extra wastewaters.
- The benefit of optimizing physical cleaning for HFNF membranes is lower than for HFUF membranes because of the higher pressure of operation and the use of CF operation required for HFNF membranes.

## 5.5 Acknowledgements

The authors would like to thank Joerg Winter for LCO-OD analysis and for some useful discussions on nanofiltration fouling. This study was performed at the CREDEAU laboratory, a CFI research infrastructure of Polytechnique Montreal. The work was supported financially by RES'EAU-WaterNET, an NSERC strategic research network dedicated to providing safe drinking water to small rural communities.

## 5.6 Nomenclature

$\alpha$	Void fraction
$C$	Chisholm empirical factor
$D$	Fiber inner diameter (m)
$f_D$	Darcy friction factor
$f_f$	friction factor
$g$	gravitational acceleration ( $m \cdot s^{-2}$ )
$Lo^*$	non-dimensional Laplace constant
$Re_{LS}$	Liquid slug Reynolds number
$Re_m$	Mixture Reynold number
$U_G$	gas velocity (m/s)
$U_L$	liquid velocity (m/s)
$U_m$	mixture velocity (m/s)
$X$	empirical parameter
$\Delta L$	fiber length (m)
$\Delta P$	pressure loss (Pa)
$\Phi_L^2$	multiplier factor
$\mu_L$	liquid dynamic viscosity (Pa·s)
$\mu_m$	mixture dynamic viscosity (Pa·s)
$\rho_G$	gas density (kg/m <sup>3</sup> )
$\rho_L$	liquid density (kg/m <sup>3</sup> )
$\rho_m$	mixture density (kg/m <sup>3</sup> )
$\sigma$	surface tension ( $N \cdot m^{-1}$ )
$\tau_{wall}$	wall shear stress (Pa)

## 5.7 References

- Bessiere, Y., Guigui, C., Remize, P. J., & Cabassud, C. (2009). Coupling air-assisted backwash and rinsing steps: a new way to improve ultrafiltration process operation for inside-out hollow fibre modules. *Desalination*, 240(1–3), 71-77. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2008.01.049>
- Braghetta, A., DiGiano, F. A., & Ball, W. P. (1998). Nom accumulation at NF membrane surface: Impact of chemistry and shear. *Journal of Environmental Engineering-Asce*, 124(11), 1087-1098. doi: Doi 10.1061/(Asce)0733-9372(1998)124:11(1087)
- Bretherton, F. P. (1961). The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics*, 10(02), 166-188. doi: doi:10.1017/S0022112061000160
- Cabassud, C., Laborie, S., Durand-Bourlier, L., & Lainé, J. M. (2001). Air sparging in ultrafiltration hollow fibers: relationship between flux enhancement, cake characteristics and hydrodynamic parameters. *Journal of Membrane Science*, 181(1), 57-69. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388\(00\)00538-X](http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388(00)00538-X)
- Chan, C. C. V., Bérubé, P. R., & Hall, E. R. (2011). Relationship between types of surface shear stress profiles and membrane fouling. *Water Research*, 45(19), 6403-6416. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2011.09.031>
- Cheng, T. W., & Wu, J. G. (2003). Quantitative Flux Analysis of Gas–Liquid Two-Phase Ultrafiltration. *Separation Science and Technology*, 38(4), 817-835. doi: 10.1081/ss-120017628
- Chisholm, D. (1967). A theoretical basis for the Lockhart-Martinelli correlation for two-phase flow. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 10(12), 1767-1778. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/0017-9310\(67\)90047-6](http://dx.doi.org/10.1016/0017-9310(67)90047-6)
- Cui, Z., & Taha, T. (2003). Enhancement of ultrafiltration using gas sparging: a comparison of different membrane modules. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 78(2-3), 249-253. doi: 10.1002/jctb.763
- Cui, Z. F., & Wright, K. I. T. (1996). Flux enhancements with gas sparging in downwards crossflow ultrafiltration: performance and mechanism. *Journal of Membrane Science*, 117(1–2), 109-116. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/0376-7388\(96\)00040-3](http://dx.doi.org/10.1016/0376-7388(96)00040-3)
- Ghosh, R., & Cui, Z. F. (1999). Mass transfer in gas-sparged ultrafiltration: upward slug flow in tubular membranes. *Journal of Membrane Science*, 162(1–2), 91-102. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388\(99\)00126-X](http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388(99)00126-X)
- Hilal, N., Al-Zoubi, H., Darwish, N. A., Mohamma, A. W., & Abu Arabi, M. (2004). A comprehensive review of nanofiltration membranes: Treatment, pretreatment, modelling, and atomic force microscopy. *Desalination*, 170(3), 281-308. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2004.01.007>

- Holland, F., & Bragg, R. (1995). *Fluid Flow for Chemical and Process Engineers*: Butterworth-Heinemann.
- Laborie, S., Cabassud, C., Durand-Bourlier, L., & Lainé, J. M. (1997). Flux enhancement by a continuous tangential gas flow in ultrafiltration hollow fibres for drinking water production: Effects of slug flow on cake structure. *Filtration & Separation*, 34(8), 887-891. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0015-1882\(97\)81413-9](http://dx.doi.org/10.1016/S0015-1882(97)81413-9)
- Laborie, S., Cabassud, C., Durand-Bourlier, L., & Lainé, J. M. (1999). Characterisation of gas-liquid two-phase flow inside capillaries. *Chemical Engineering Science*, 54(23), 5723-5735. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2509\(99\)00146-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2509(99)00146-3)
- Lockhart, R. W., & Martinelli, R. C. (1949). Proposed correlation of data for isothermal two-phase, two-component flow in pipes. *Chem. Eng. Prog.*, 45(1), 39-48. doi: citeulike-article-id:12672573
- Pentair. (2016). Ultrafiltration (UF) membrane technology. Tiré de <http://xflow.pentair.com/en/technologies/>
- Ratkovich, N., Berube, P. R., & Nopens, I. (2011). Assessment of mass transfer coefficients in coalescing slug flow in vertical pipes and applications to tubular airlift membrane bioreactors. *Chemical Engineering Science*, 66(6), 1254-1268. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ces.2010.12.034>
- Remize, P. J., Guigui, C., & Cabassud, C. (2010). Evaluation of backwash efficiency, definition of remaining fouling and characterisation of its contribution in irreversible fouling: Case of drinking water production by air-assisted ultra-filtration. *Journal of Membrane Science*, 355(1-2), 104-111. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2010.03.005>
- Seidel, A., & Elimelech, M. (2002). Coupling between chemical and physical interactions in natural organic matter (NOM) fouling of nanofiltration membranes: implications for fouling control. *Journal of Membrane Science*, 203(1-2), 245-255. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388\(02\)00013-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388(02)00013-3)
- Serra, C., Durand-Bourlier, L., Clifton, M. J., Moulin, P., Rouch, J. C., & Aptel, P. (1999). Use of air sparging to improve backwash efficiency in hollow-fiber modules. *Journal of Membrane Science*, 161(1-2), 95-113. doi: Doi 10.1016/S0376-7388(99)00106-4
- Shankararaman, C., Jacangelo, J. G., Bonacquisti, T. P., & Schauer, B. A. (1997). Effect of pretreatment on surface water nanofiltration. *American Water Works Association Journal*, 89(10), 77. Tiré de <http://search.proquest.com/docview/221616561?accountid=40695>
- Tian, J.-y., Xu, Y.-p., Chen, Z.-l., Nan, J., & Li, G.-b. (2010). Air bubbling for alleviating membrane fouling of immersed hollow-fiber membrane for ultrafiltration of river water. *Desalination*, 260(1-3), 225-230. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2010.04.026>

- Verberk, J. Q. J. C., & van Dijk, J. C. (2006). Air sparging in capillary nanofiltration. *Journal of Membrane Science*, 284(1–2), 339-351. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2006.07.050>
- Wallis, G. B. (1969). *One-dimensional two-phase flow*. New York: McGraw-Hill.
- Winter, J., & Bérubé, P. R. (2015). *NF-UF Range Membranes for Drinking Water Treatment*. Communication présentée à British Columbia Water and Waste Association Annual Conference, Kelowna, BC.
- Xia, L., Law, A. W.-K., & Fane, A. G. (2013). Hydrodynamic effects of air sparging on hollow fiber membranes in a bubble column reactor. *Water Research*, 47(11), 3762-3772. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2013.04.042>
- Zhang, W., Hibiki, T., & Mishima, K. (2010). Correlations of two-phase frictional pressure drop and void fraction in mini-channel. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 53(1–3), 453-465. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2009.09.011>

## CHAPITRE 6 DISCUSSION

L'objectif principal de ce mémoire est d'étudier l'efficacité des lavages physiques de membrane de nanofiltration à fibres creuses. Une comparaison de l'efficacité de ces protocoles selon la porosité (UF et NF) a été faite pour déterminer si les stratégies de lavage déjà développées pour les membranes HFUF s'avèrent aussi efficaces sur les modules HFNF. Ensuite, l'impact des conditions de filtration sur l'efficacité du protocole le plus performant a été évalué pour plusieurs modes d'opération (flux et filtration tangentielle vs frontale). Puis, deux indicateurs hydrodynamiques (le nombre de Reynolds et le cisaillement) ont été analysés dans l'objectif de vérifier s'ils sont corrélés à la performance du nettoyage. Finalement, les énergies de lavages physiques ainsi que l'énergie totale de production du procédé HFNF ont été comparées pour les deux modes de filtration. Les sections subséquentes discutent des résultats obtenus puis font ressortir les limites de l'étude.

### 6.1 Mécanisme de colmatage

La formation de gâteau a été validée comme mécanisme de colmatage dominant pour tous les essais en mode de filtration frontale à l'aide du modèle de Hermia. Un flux quatre fois plus élevé obtient donc un indice de colmatage environ deux fois plus grand pour l'eau synthétique testée. Huang, Young et Jacangelo (2009) ont mesuré des UMFI pour deux membranes HFUF *inside-out* sous pression soumises à trois types d'eau de surface préfiltrée pour enlever la fraction particulaire. Ils ont fait des observations en accord avec les valeurs obtenues dans le cadre de ce mémoire i.e. une hausse de l'indice UMFI en fonction du flux de perméat. Les UMFI de l'eau synthétique se retrouvent dans la plage de valeurs observées par ces auteurs (0,004 à 0,03 m<sup>2</sup>/L pour un flux de 102-109 LMH) même si leurs flux sont supérieurs. L'indice de colmatage pour la membrane HFNF est inférieur à celui d'HFUF opérée dans les mêmes conditions. Aucune valeur de référence d'UMFI n'a pu être comparée à celle de la membrane HFNF. Aussi, la résistance du colmatage a été déterminée pour les trois essais dans le but de mieux interpréter les résultats d'UMFI. Elle confirme que le colmatage est moins sévère pour la membrane HFNF que la HFUF opérée dans les mêmes conditions et qu'un flux supérieur augmente la résistance du gâteau. Le colmatage plus sévère pour la membrane HFUF opérée à 20 LMH que la membrane HFNF dans les mêmes conditions peut s'expliquer par la porosité de la membrane. Bien que le mécanisme de

colmatage dominant soit la formation de gâteau, la taille de l'alginate de sodium (55 kDa) est inférieure au seuil de coupure de la membrane UF (150 kDa) et un blocage interne des pores peut s'être produit simultanément. Cette explication s'applique aussi au colmatage plus important observé à un flux plus élevé sur la membrane HFUF. Le blocage interne des pores est plus sévère à flux élevé, car une plus grande concentration de molécules se retrouve à l'intérieur de ceux-ci. D'ailleurs, l'analyse de COT dans le perméat confirme qu'une plus grande concentration d'alginate traverse la membrane HFUF dans ces conditions d'opération. Dans ce sens, le modèle d'accumulation par formation de gâteau est mieux adapté à la filtration HFNF que la membrane HFUF.

## **6.2 Efficacité des lavages physiques en filtration tangentielle**

L'évaluation de l'efficacité s'est faite par la méthode du bilan de masse sur les agents colmatants. Les récupérations obtenues par les lavages physiques sont faibles en filtration tangentielle (< 8%) puisque la majorité des colmatants se retrouvent dans le concentrat (75 à 86%). La comparaison entre les protocoles a permis d'établir qu'en ordre d'importance la vitesse de l'eau, l'ajout d'air ainsi que leurs effets combinés améliorent significativement l'efficacité du protocole ( $p < 0,001$  dans les trois cas). Le protocole le plus performant retire une charge d'agents colmatants 2,5 fois plus grande que celui ayant la vitesse d'eau minimale et aucun ajout d'air. L'ajout d'air (0,51 m/s) à lui seul permet d'obtenir une performance 1,4 à 1,7 fois plus élevée que le même lavage sans air. Pour les quatre protocoles de lavage testés en filtration tangentielle sur les deux modules, il n'y a pas de différence significative de la performance en fonction de la porosité de la membrane ( $p = 0,78$ ). Les performances des protocoles sont en accord avec les observations faites par plusieurs chercheurs, les écoulements diphasiques sont une stratégie efficace face au colmatage (Bessiere et al., 2009; Serra et al., 1999).

## **6.3 Impact du mode de filtration**

L'impact du mode de filtration pour le lavage le plus performant a aussi été évalué par un bilan de masse. D'abord, la performance attendue du protocole de nettoyage dépend du mode de filtration puisque l'écoulement tangentiel réduit le colmatage. C'est d'ailleurs ce qui a été observé, l'écoulement tangentiel limite significativement ( $p < 0,001$ ) l'accumulation d'agents colmatants sur la membrane (158 mg/m<sup>2</sup> versus 541 mg/m<sup>2</sup>) pour un même volume spécifique

filtré et indifféremment de la porosité ( $p=0,84$ ). Comme le concentrat contient la majorité de la charge initiale d'agents colmatants la performance des lavages physiques observée en filtration tangentielle est environ 10 fois plus faible qu'en filtration frontale. Par contre, en considérant l'écoulement tangentiel comme un lavage en continu, l'enlèvement total devient significativement supérieur en filtration tangentielle ( $p<0,001$ ). En filtration tangentielle la performance est indépendante de la porosité ( $p=0,34$ ) alors qu'en filtration frontale l'efficacité du lavage est statistiquement inférieure pour la membrane NF ( $p = 0,03$ ). Ensuite, la concentration en carbone organique total (COT) dans le perméat est indifférente au mode d'opération ( $p=0,97$ ), mais varie significativement entre les deux membranes ( $p=0,001$ ). Comme la concentration en COT intervient dans le calcul de performance et que celle-ci est différente pour les deux porosités, la performance du lavage a aussi été analysée en termes de masses absolues d'agents colmatants récupérés dans les eaux de lavages. Les résultats sont cohérents avec ceux en pourcentage à l'exception qu'en masse absolue, il n'y pas de différence significative entre les deux porosités pour la filtration frontale ( $p=0,60$ ). La différence observée en pourcentage est biaisée par la concentration en COT dans le perméat.

Selon les valeurs d'accumulation, la filtration tangentielle permet d'opérer jusqu'à 3,4 fois plus longtemps avant d'atteindre un colmatage équivalent à celui de la filtration frontale. En industrie, cette différence devrait se traduire par des lavages physiques moins fréquents. C'est d'ailleurs ce qui avait été observé en comparant les protocoles de nettoyage de membrane à fibres creuses commercialement disponibles (Tableau 2-4). Malgré que l'écoulement tangentiel contrôle efficacement l'accumulation, il n'a pas eu d'impact favorable sur la qualité du perméat produit par la membrane HFNF. Ce qui peut s'expliquer par la taille de l'alginate (estimée à 55 kDa) trop grande ( $>10$  kDa) pour induire un phénomène de concentration-polarisation significatif (Winter & Bérubé, 2015). Néanmoins, l'utilité de l'écoulement tangentielle pour réduire la concentration de COT pour les applications en eau potable a été démontré (Braghetta et al., 1998).

## **6.4 Impact du flux d'opération**

L'impact du flux a été évalué sur le module HFUF en filtration frontale seulement puisque c'est son mode d'opération le plus commun. Un flux typique pour la NF est comparé celui de la UF (20 et 80 LMH respectivement). L'impact du flux est le seul paramètre qui a été possible d'évaluer par deux méthodes, d'abord par une récupération de perméabilité, puis par un bilan de

masse. Dans les deux cas, la hausse du flux n'a pas entraîné de différence significative ( $p=0,06$  et  $p=0,07$ ) sur l'efficacité du lavage. Les valeurs d'UMFI et de la résistance du colmatage démontrent qu'effectivement le colmatage est plus sévère pour un flux supérieur. Par contre, l'importance du colmatage n'a pas réduit significativement la performance du lavage. Par ailleurs, la détérioration du COT du perméat pour des flux plus élevés est en accord avec des observations faites par d'autres auteurs (Tang et al., 2007). Elle résulte d'une hausse de la concentration de contaminants à la surface de la membrane qui favorise le transport à travers la membrane.

## 6.5 Indicateur de performance pour les protocoles de lavage

Le cisaillement et le nombre de Reynolds moyens ont été pauvrement corrélés aux efficacités obtenues comparativement aux valeurs maximums. Le cisaillement maximum augmente globalement avec la performance, mais les protocoles avec/sans air évoluent indépendamment. Néanmoins, pour l'étape de rinçage où l'air est injecté, le cisaillement induit est 2 à 3 fois plus élevé. Dans des publications antérieures, le cisaillement avait été corrélé au décolmatage ce qui a été partiellement observé dans la présente étude. L'air et les vitesses supérieures donnent effectivement un cisaillement global supérieur, mais il ne s'agit pas d'un bon indicateur de performance globale. L'écoulement de type *slug* est complexe puisqu'il crée des cisaillements qui varient en intensité et en direction au passage des bulles d'air (Ratkovich et al., 2011). L'approximation faite du cisaillement dans ce mémoire ne capture pas ces fluctuations à la paroi de la fibre. Une étude antérieure est aussi arrivée à la conclusion que le cisaillement moyen n'est pas représentatif (Cabassud et al., 2001).

L'analyse des nombre de Reynolds démontre que le régime d'écoulement pour toutes les conditions testées est laminaire. Les nombres de Reynolds maximum augmentent globalement avec l'efficacité des lavages. La meilleure corrélation a été obtenue avec le nombre de Reynolds du mélange ( $Re_m$ ) maximum (relation linéaire,  $R^2=0,72$ ). La corrélation entre le  $Re_m$  maximum et la performance observée sous-entend que la performance dépend principalement de l'étape de lavage où la vitesse est maximale. Cette vitesse maximale, pour les protocoles avec air, est celle du rinçage assisté d'air, alors que pour les autres il s'agit de l'étape de rétro-lavage avec rinçage. L'ajout d'air permet d'obtenir un nombre de Reynolds 4 à 9 fois plus grand que l'écoulement monophasique pendant l'étape de rinçage. À noter que les deux protocoles les plus efficaces ont

des  $Re_m$  supérieurs (459 et 516) à celui de l'écoulement tangentiel (400). Le  $Re_m$  s'avère un bon indicateur pour les conditions testées et il peut servir d'outil prédictif pour l'optimisation de lavage de membrane à fibres creuses pour des diamètres de fibres similaires à celui étudié ( $D=0,8$  mm).

## 6.6 Analyse écoénergétique

Le protocole 1 obtient l'énergie la plus grande par  $m^3$  d'eau produit et le moins performant. La raison est que la durée de l'étape de rétro-lavage est environ deux fois plus longue et très énergivore due à la pression d'opération nécessaire (4,8 bar). En effet, cette étape correspond à 55 - 74 % de l'énergie totale dépensée pour le lavage physique. D'ailleurs, ce rétro-lavage allongé hausse la consommation d'eau traitée pour le protocole 1 (3,3 %) par rapport aux protocoles 2 et 3 (1,4 %). L'ajout d'air augmente le coût énergétique par  $m^3$  produit du protocole (20 %), mais il obtient une efficacité de lavage plus élevée avec moins d'énergie que l'eau seule. L'énergie de lavage est négligeable par rapport à celle d'opération (au plus 1,1 %). Comme les coûts d'opération de la NF sont élevés (PTM et impact du CF), les coûts relatifs d'énergie liés au lavage sont faibles comparativement à la UF. Il semble donc moins pertinent de se passer de conditions de lavage efficaces. Un rétro-lavage moins long et l'ajout d'air pourraient permettre des économies tout en améliorant la performance du lavage physique. L'ajout d'air est probablement une meilleure stratégie pour la HFNF que pour la HFUF puisqu'une plus grande proportion des agents colmatants est retenue à sa surface et qu'elle est limitée à des faibles flux de rétro-lavage en raison de sa perméabilité.

## 6.7 Limites de l'étude et pistes d'amélioration

L'eau synthétique utilisée est une simplification de la variété de molécules et particules qui se retrouvent dans une eau naturelle. Le fait d'avoir seulement qu'une sorte de molécule organique par rapport à un éventail de tailles influence l'interaction qui pourrait avoir entre les molécules, mais aussi entre les molécules et la membrane. La taille des molécules joue un rôle important dans le mécanisme de colmatage en place. Il serait intéressant de prolonger la durée des essais pour confirmer le modèle de colmatage et, par la suite comparer l'UMFI de l'eau synthétique et celui de l'eau naturelle.

Les tests ont été réalisés sur trois cycles de filtration seulement, alors qu'idéalement on cherche à déterminer la performance à long terme des protocoles. Avec un nombre de cycles plus élevé, il serait possible de confirmer que la différence de performance entre les lavages permet effectivement d'opérer plus longtemps avant le déclenchement d'un lavage chimique.

De plus, même si les mini-modules de laboratoire partagent des caractéristiques avec les modules industriels (porosité et composition), les fibres réelles sont 5 fois plus longues que celles en laboratoire. Ce qui fait que le débit de perméat du mini-module par rapport au débit de recirculation est nettement inférieur à celui du modèle industriel. La prochaine étape serait de valider les performances obtenues sur un module ayant des fibres de pleine longueur.

Malgré une certaine stabilité du flux au cours d'un même essai, la variation du flux par rapport à l'objectif était importante pour certains tests. Cette variation découle de manipulations expérimentales, puisque l'écoulement tangentiel est contrôlé par une vanne à pointeau fermée manuellement. Un montage automatisé permettrait de limiter les manœuvres manuelles en plus de permettre d'augmenter considérablement le nombre de cycles par essai.

## CONCLUSION

Les expérimentations faites dans le cadre de ce mémoire ont permis d'atteindre chacun des objectifs du projet et de valider au moins partiellement les hypothèses posées.

### **1. Évaluer l'efficacité de différents protocoles de lavages physiques pour décolmater des membranes à fibres creuses de HFNF et HFUF.**

La méthode qui compare les performances de lavage en fonction de la récupération de perméabilité a permis de comparer seulement deux des essais. Cependant, la méthode par bilan de masse est plus sensible et a permis d'évaluer de comparer l'efficacité des protocoles. Une vitesse d'eau élevée combinée à l'ajout d'air permet d'obtenir une performance jusqu'à 2,5 fois supérieure à celle à faible écoulement sans ajout d'air. Ensuite, la question de recherche à savoir si les mêmes stratégies de nettoyage s'appliquent indifféremment de la porosité de la membrane a été répondue. Les résultats démontrent qu'effectivement l'efficacité du protocole ne dépend pas de la porosité pour les essais à 20 LMH en filtration tangentielle. L'hypothèse de formation de gâteau a pu être validée comme mécanisme de colmatage dominant seulement pour quelques essais en filtration frontale.

### **2. Comparer l'efficacité du protocole le plus performant**

L'hypothèse spécifique selon laquelle la filtration tangentielle limite la formation de gâteau à la surface de la membrane a été validée. La quantité d'agents colmatants récupérée dans les lavages dans ce mode de filtration est moindre ce qui se traduit par un pourcentage de colmatant récupérés plus faible. Par contre, la performance globale (rétro-lavage + filtration tangentielle) observée est significativement supérieure à celle en filtration frontale pour les deux membranes. La hausse du flux d'opération sur le module HFUF n'a pas eu d'impact significatif sur le décolmatage, malgré que le colmatage analysé selon l'UMFI et le modèle de résistance en série soit plus sévère.

### **3. Indicateur de performance pour les protocoles de lavage.**

Outre les meilleures performances qui découlent de l'ajout de l'air aux protocoles, l'air permet d'augmenter le cisaillement et nombre de Reynolds par rapport à son homologue sans air. L'hypothèse selon laquelle l'utilisation de l'air permet d'obtenir une meilleure performance de lavage en raison de la hausse de cisaillement induit à la surface des membranes a été validée.

Néanmoins, le cisaillement maximal est un moins bon indicateur de que le nombre de Reynolds maximum. Le nombre de Reynolds maximum (défini également comme la valeur maximale atteinte lors d'une des trois étapes de lavage) donne la meilleure corrélation ce qui suppose que la performance est fortement liée à l'étape de lavage où la vitesse est maximale.

#### **4. Analyse écoénergétique pour la HFNF**

L'ajout d'air augmente légèrement le coût énergétique du protocole, mais produit un lavage physique plus efficace et moins énergivore que l'eau seule et ce, sans produire d'eaux de lavage supplémentaires. L'énergie de lavage est négligeable (1,1%) par rapport à celle d'opération, même pour les lavages les plus performants. L'opération des membranes HFNF requière beaucoup d'énergie due à la recirculation et sa faible perméabilité. Par ailleurs, l'écoulement tangentiel permet d'opérer environ 3 fois plus longtemps avant d'atteindre un même seuil de colmatage qu'en filtration frontale.

#### **Recommandations et perspectives**

Les résultats ont démontré qu'il est possible d'améliorer la performance d'un protocole avec des vitesses d'eau plus élevées et de l'air. L'utilisation de l'air permet d'obtenir une meilleure performance avec moins d'énergie que l'eau seule et sans augmenter le volume d'eau de lavage à gérer. Dans ce sens, l'ajout d'air au protocole de lavage des HFNF est recommandé. Les résultats ont aussi fait ressortir que la durée de rétro-lavage a un impact considérable sur les coûts de lavage. Le protocole le plus performant a une durée de rétro-lavage inférieure (25 s) à la plage recommandée par le fabricant (30 à 60 s). Il est donc conseillé de réduire la durée de cette étape particulièrement si l'ajout d'air est mis en place.

L'optimisation de l'énergie de lavage pour les membranes HFNF est un enjeu économique moins important que pour le procédé HFUF puisque l'énergie est principalement consommée par la recirculation et la pression transmembranaire élevée. Néanmoins, il reste tout de même plusieurs angles possibles de recherche pour les lavages physiques. D'abord, des essais comparatifs de l'efficacité des lavages avec une eau naturelle sur des modules avec des fibres de tailles industrielles sont souhaitables. Ensuite, l'évaluation de la contribution de chacune des étapes du nettoyage permettrait d'optimiser la durée des étapes du lavage selon leur contribution à la performance globale. Aussi, l'ajout d'air a été évalué avec un seul débit, des travaux futurs permettraient d'explorer s'il existe un ratio eau-air optimal. Dans un autre ordre d'idée, comme

l'analyse écoénergétique l'a démontré, les coûts qu'engendre l'écoulement tangentiel sont substantiels. Il faut, sans aucun doute, continuer la recherche d'un optimal entre la qualité de l'effluent, le taux de récupération et l'énergie dépensée en recirculation pour les membranes HFNF.

## BIBLIOGRAPHIE

- Al-Amoudi, A. S. (2010). Factors affecting natural organic matter (NOM) and scaling fouling in NF membranes: A review. *Desalination*, 259(1–3), 1-10. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2010.04.003>
- Baker, R. (2004). *Membrane Technology and Applications (2nd Edition)*. Somerset, NJ, USA: John Wiley & Sons.
- Baker, R. (2012). *Membrane Technology and Applications (3rd Edition)*. Somerset, NJ, USA: John Wiley & Sons.
- Bessiere, Y., Guigui, C., Remize, P. J., & Cabassud, C. (2009). Coupling air-assisted backwash and rinsing steps: a new way to improve ultrafiltration process operation for inside-out hollow fibre modules. *Desalination*, 240(1–3), 71-77. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2008.01.049>
- Boussu, K., Belpaire, A., Volodin, A., Van Haesendonck, C., Van der Meeren, P., Vandecasteele, C., & Van der Bruggen, B. (2007). Influence of membrane and colloid characteristics on fouling of nanofiltration membranes. *Journal of Membrane Science*, 289(1–2), 220-230. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2006.12.001>
- Braghetta, A., DiGiano, F. A., & Ball, W. P. (1998). Nom accumulation at NF membrane surface: Impact of chemistry and shear. *Journal of Environmental Engineering-Asce*, 124(11), 1087-1098. doi: Doi 10.1061/(Asce)0733-9372(1998)124:11(1087)
- Bretherton, F. P. (1961). The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics*, 10(02), 166-188. doi: doi:10.1017/S0022112061000160
- Cabassud, C., Laborie, S., Durand-Bourlier, L., & Lainé, J. M. (2001). Air sparging in ultrafiltration hollow fibers: relationship between flux enhancement, cake characteristics and hydrodynamic parameters. *Journal of Membrane Science*, 181(1), 57-69. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388\(00\)00538-X](http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388(00)00538-X)
- Cabassud, C., Laborie, S., & Lainé, J. M. (1997). How slug flow can improve ultrafiltration flux in organic hollow fibres. *Journal of Membrane Science*, 128(1), 93-101. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388\(96\)00316-X](http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388(96)00316-X)
- Chan, C. C. V., Bérubé, P. R., & Hall, E. R. (2011). Relationship between types of surface shear stress profiles and membrane fouling. *Water Research*, 45(19), 6403-6416. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2011.09.031>
- Chang, E. E., Yang, S.-Y., Huang, C.-P., Liang, C.-H., & Chiang, P.-C. (2011). Assessing the fouling mechanisms of high-pressure nanofiltration membrane using the modified Hermia model and the resistance-in-series model. *Separation and Purification Technology*, 79(3), 329-336. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.seppur.2011.03.017>

- Chen, L. (2014). *Frontiers and Progress in Multiphase Flow I*. Cham, DEU: Springer International Publishing.
- Cheng, T. W., & Wu, J. G. (2003). Quantitative Flux Analysis of Gas–Liquid Two-Phase Ultrafiltration. *Separation Science and Technology*, 38(4), 817-835. doi: 10.1081/ss-120017628
- Chisholm, D. (1967). A theoretical basis for the Lockhart-Martinelli correlation for two-phase flow. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 10(12), 1767-1778. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/0017-9310\(67\)90047-6](http://dx.doi.org/10.1016/0017-9310(67)90047-6)
- Cho, J., Amy, G., & Pellegrino, J. (1999). Membrane filtration of natural organic matter: initial comparison of rejection and flux decline characteristics with ultrafiltration and nanofiltration membranes. *Water Research*, 33(11), 2517-2526. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0043-1354\(98\)00498-9](http://dx.doi.org/10.1016/S0043-1354(98)00498-9)
- Cho, J., Amy, G., Pellegrino, J., & Yoon, Y. (1998). Characterization of clean and natural organic matter (NOM) fouled NF and UF membranes, and foulants characterization. *Desalination*, 118(1–3), 101-108. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0011-9164\(98\)00100-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0011-9164(98)00100-3)
- Cui, Z., & Taha, T. (2003). Enhancement of ultrafiltration using gas sparging: a comparison of different membrane modules. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 78(2-3), 249-253. doi: 10.1002/jctb.763
- Cui, Z. F., & Wright, K. I. T. (1996). Flux enhancements with gas sparging in downwards crossflow ultrafiltration: performance and mechanism. *Journal of Membrane Science*, 117(1–2), 109-116. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/0376-7388\(96\)00040-3](http://dx.doi.org/10.1016/0376-7388(96)00040-3)
- De Souza, N. P., & Basu, O. D. (2013). Comparative analysis of physical cleaning operations for fouling control of hollow fiber membranes in drinking water treatment. *Journal of Membrane Science*, 436(0), 28-35. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2013.02.014>
- DOW. (2016). Ultrafiltration SFP-2680 - Product data sheet. Tiré de [http://msdssearch.dow.com/PublishedLiteratureDOWCOM/dh\\_0912/0901b8038091283a.pdf?filepath=liquidseps/pdfs/noreg/795-00012.pdf&fromPage=GetDoc](http://msdssearch.dow.com/PublishedLiteratureDOWCOM/dh_0912/0901b8038091283a.pdf?filepath=liquidseps/pdfs/noreg/795-00012.pdf&fromPage=GetDoc)
- Field, R. (2010). Fundamentals of Fouling. Dans *Membrane Technology* (p. 1-23): Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA.
- Ghosh, R. (2006). Enhancement of membrane permeability by gas-sparging in submerged hollow fibre ultrafiltration of macromolecular solutions: Role of module design. *Journal of Membrane Science*, 274(1–2), 73-82. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2005.08.002>
- Ghosh, R., & Cui, Z. F. (1999). Mass transfer in gas-sparged ultrafiltration: upward slug flow in tubular membranes. *Journal of Membrane Science*, 162(1–2), 91-102. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388\(99\)00126-X](http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388(99)00126-X)

- Her, N., Amy, G., Plottu-Pecheux, A., & Yoon, Y. (2007). Identification of nanofiltration membrane foulants. *Water Research*, 41(17), 3936-3947. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2007.05.015>
- Hermia, J. (1982). Constant pressure blocking filtration law application to powder-law non-Newtonian fluid. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 60 183-187.
- Hilal, N., Al-Zoubi, H., Darwish, N. A., Mohamma, A. W., & Abu Arabi, M. (2004). A comprehensive review of nanofiltration membranes: Treatment, pretreatment, modelling, and atomic force microscopy. *Desalination*, 170(3), 281-308. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2004.01.007>
- Holland, F., & Bragg, R. (1995). *Fluid Flow for Chemical and Process Engineers*: Butterworth-Heinemann.
- Hong, S., & Elimelech, M. (1997). Chemical and physical aspects of natural organic matter (NOM) fouling of nanofiltration membranes. *Journal of Membrane Science*, 132(2), 159-181. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388\(97\)00060-4](http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388(97)00060-4)
- Howe, K. J., & Clark, M. M. (2002). Fouling of Microfiltration and Ultrafiltration Membranes by Natural Waters. *Environmental Science & Technology*, 36(16), 3571-3576. doi: 10.1021/es025587r
- Howe, K. J., Hand, D. W., & Crittenden, J. C. (2012). *Principles of Water Treatment*. Somerset, NJ, USA: John Wiley & Sons.
- Huang, H., Young, T., & Jacangelo, J. G. (2009). Novel approach for the analysis of bench-scale, low pressure membrane fouling in water treatment. *Journal of Membrane Science*, 334(1-2), 1-8. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2009.01.049>
- Huang, H., Young, T. A., & Jacangelo, J. G. (2007). Unified Membrane Fouling Index for Low Pressure Membrane Filtration of Natural Waters: Principles and Methodology. *Environmental Science & Technology*, 42(3), 714-720. doi: 10.1021/es071043j
- Hydraunautics. (2014). HYDRACap60 Tiré de <http://www.membranes.com/docs/hydracap/HYDRACap60.pdf>
- Jermann, D., Pronk, W., Meylan, S., & Boller, M. (2007). Interplay of different NOM fouling mechanisms during ultrafiltration for drinking water production. *Water Research*, 41(8), 1713-1722. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2006.12.030>
- Kandlikar, S., Garimella, S., & Li, D. (2013). *Heat Transfer and Fluid Flow in Minichannels and Microchannels (2nd Edition)*. Jordon Hill, GBR: Butterworth-Heinemann.
- Katsoufidou, K., Yiantsios, S. G., & Karabelas, A. J. (2008). An experimental study of UF membrane fouling by humic acid and sodium alginate solutions: the effect of backwashing on flux recovery. *Desalination*, 220(1-3), 214-227. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2007.02.038>

- Kimura, K., Tanaka, K., & Watanabe, Y. (2015). Confirmation of the correlation between membrane fouling in microfiltration and biopolymer concentrations in various Japanese surface waters. *Water Science and Technology-Water Supply*, 15(2), 288-293. doi: 10.2166/ws.2014.112
- Laborie, S., Cabassud, C., Durand-Bourlier, L., & Lainé, J. M. (1997). Flux enhancement by a continuous tangential gas flow in ultrafiltration hollow fibres for drinking water production: Effects of slug flow on cake structure. *Filtration & Separation*, 34(8), 887-891. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0015-1882\(97\)81413-9](http://dx.doi.org/10.1016/S0015-1882(97)81413-9)
- Laborie, S., Cabassud, C., Durand-Bourlier, L., & Lainé, J. M. (1999). Characterisation of gas-liquid two-phase flow inside capillaries. *Chemical Engineering Science*, 54(23), 5723-5735. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2509\(99\)00146-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2509(99)00146-3)
- Li, L., Wray, H. E., Andrews, R. C., & Bérubé, P. R. (2014). Ultrafiltration Fouling: Impact of Backwash Frequency and Air Sparging. *Separation Science and Technology*, 49(18), 2814-2823. doi: 10.1080/01496395.2014.948964
- Li, Q., & Elimelech, M. (2004). Organic Fouling and Chemical Cleaning of Nanofiltration Membranes: Measurements and Mechanisms. *Environmental Science & Technology*, 38(17), 4683-4693. doi: 10.1021/es0354162
- Lockhart, R. W., & Martinelli, R. C. (1949). Proposed correlation of data for isothermal two-phase, two-component flow in pipes. *Chem. Eng. Prog*, 45(1), 39-48. doi: citeulike-article-id:12672573
- Ma, B., Yu, W., Liu, H., & Qu, J. (2014). Comparison of iron (III) and alum salt on ultrafiltration membrane fouling by alginate. *Desalination*, 354(0), 153-159. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2014.10.003>
- Mallevalle, J., Odendaal, P. E., Foundation, A. R., Wiesner, M. R., eaux-Dumez, L. d., & Commission, S. A. W. R. (1996). *Water Treatment Membrane Processes*: McGraw-Hill.
- Manook, B. A. (1988). Measurement of the concentration of suspended solids based on optical variable pathlength. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, 21(7), 686. Tiré de <http://stacks.iop.org/0022-3735/21/i=7/a=012>
- Matthias, K., & Fangang, M. (2011). Fouling in Membrane Processes Used for Water and Wastewater Treatment. Dans *Membrane Technologies and Applications* (p. 231-253): CRC Press.
- Mayer, M., Braun, R., & Fuchs, W. (2006). Comparison of various aeration devices for air sparging in crossflow membrane filtration. *Journal of Membrane Science*, 277(1-2), 258-269. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2005.10.035>
- MDDELCC. (2012a). *Fiche d'évaluation technique - Siemens-Memcor XS10*. Tiré de <http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/eau/potable/guide/Siemens-MemcorXS10.pdf>

- MDDELCC. (2012b). *Fiche d'évaluation technique - UF H2O*. Tiré de <http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/eau/potable/guide/UF-H2O.pdf>
- MDDELCC. (2012c). Règlement sur la qualité de l'eau potable. Tiré de [http://www2.publicationsduquebec.gouv.qc.ca/dynamicSearch/telecharge.php?type=2&file=/Q\\_2/Q2R40.htm](http://www2.publicationsduquebec.gouv.qc.ca/dynamicSearch/telecharge.php?type=2&file=/Q_2/Q2R40.htm)
- MDDELCC. (2014). *Fiche d'évaluation technique - ZW1000 sans coagulant*. Tiré de [http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/eau/potable/guide/ZW1000sans\\_coag.pdf](http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/eau/potable/guide/ZW1000sans_coag.pdf)
- Mohammad, A. W., Teow, Y. H., Ang, W. L., Chung, Y. T., Oatley-Radcliffe, D. L., & Hilal, N. (2015). Nanofiltration membranes review: Recent advances and future prospects. *Desalination*, 356(0), 226-254. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2014.10.043>
- Mostofa, K. M. G., Yoshioka, T., & Mottaleb, A. (2013). *Photobiogeochemistry of Organic Matter : Principles and Practices in Water Environments*. Berlin/Heidelberg, DEU: Springer.
- Pentair. (2016a). Ultrafiltration (UF) membrane technology. Tiré de <http://xflow.pentair.com/en/technologies/>
- Pentair. (2016b). XFW1000 membrane modules | X-Flow. Tiré de <http://xflow.pentair.com/en/products/HFW1000>
- Ratkovich, N., Berube, P. R., & Nopens, I. (2011). Assessment of mass transfer coefficients in coalescing slug flow in vertical pipes and applications to tubular airlift membrane bioreactors. *Chemical Engineering Science*, 66(6), 1254-1268. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ces.2010.12.034>
- Remize, P. J., Guigui, C., & Cabassud, C. (2010). Evaluation of backwash efficiency, definition of remaining fouling and characterisation of its contribution in irreversible fouling: Case of drinking water production by air-assisted ultra-filtration. *Journal of Membrane Science*, 355(1-2), 104-111. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2010.03.005>
- Robinson, S., Abdullah, S. Z., Bérubé, P., & Le-Clech, P. (2016). Ageing of membranes for water treatment: Linking changes to performance. *Journal of Membrane Science*, 503 177-187. doi: 10.1016/j.memsci.2015.12.033
- Schäfer, A. I., Fane, A. G., & Waite, T. D. (2005). *Nanofiltration – Principles and Applications*: Elsevier.
- Schrotter, J.-C., & Bozkaya-Schrotter, B. (2010). Current and Emerging Membrane Processes for Water Treatment. Dans *Membrane Technology* (p. 53-91): Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA.
- Scott, K. (1998). Section 1 - Introduction to Membrane Separations. Dans K. Scott (Édit.), *Handbook of Industrial Membranes (Second Edition)* (p. 3-185). Amsterdam: Elsevier Science.

- Seidel, A., & Elimelech, M. (2002). Coupling between chemical and physical interactions in natural organic matter (NOM) fouling of nanofiltration membranes: implications for fouling control. *Journal of Membrane Science*, 203(1–2), 245-255. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388\(02\)00013-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0376-7388(02)00013-3)
- Serra, C., Durand-Bourlier, L., Clifton, M. J., Moulin, P., Rouch, J. C., & Aptel, P. (1999). Use of air sparging to improve backwash efficiency in hollow-fiber modules. *Journal of Membrane Science*, 161(1-2), 95-113. doi: Doi 10.1016/S0376-7388(99)00106-4
- Shankararaman, C., Jacangelo, J. G., Bonacquisti, T. P., & Schauer, B. A. (1997). Effect of pretreatment on surface water nanofiltration. *American Water Works Association Journal*, 89(10), 77. Tiré de <http://search.proquest.com/docview/221616561?accountid=40695>
- Smith, S. R., & Cui, Z. F. (2004). Gas-slug enhanced hollow fibre ultrafiltration—an experimental study. *Journal of Membrane Science*, 242(1–2), 117-128. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2003.10.047>
- Staff, A. (2005). *Microfiltration and Ultrafiltration Membranes for Drinking Water (M17)*. Denver, CO, USA: American Water Works Association.
- Staff, A. (2007). *AWWA Manual, Volume 46 : Reverse Osmosis and Nanofiltration (2nd Edition)*. Denver, CO, USA: American Water Works Assoc.
- Tang, C. Y., Chong, T. H., & Fane, A. G. (2011). Colloidal interactions and fouling of NF and RO membranes: A review. *Advances in Colloid and Interface Science*, 164(1–2), 126-143. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cis.2010.10.007>
- Tang, C. Y., Kwon, Y.-N., & Leckie, J. O. (2007). Fouling of reverse osmosis and nanofiltration membranes by humic acid—Effects of solution composition and hydrodynamic conditions. *Journal of Membrane Science*, 290(1–2), 86-94. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2006.12.017>
- Tang, C. Y., & Leckie, J. O. (2007). Membrane Independent Limiting Flux for RO and NF Membranes Fouled by Humic Acid. *Environmental Science & Technology*, 41(13), 4767-4773. doi: 10.1021/es063105w
- Thurman, E. M. (2012). *Organic geochemistry of natural waters* (vol. 2): Springer Science & Business Media.
- Tian, J.-y., Ernst, M., Cui, F., & Jekel, M. (2013). Effect of particle size and concentration on the synergistic UF membrane fouling by particles and NOM fractions. *Journal of Membrane Science*, 446(0), 1-9. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2013.06.016>
- Tian, J.-y., Xu, Y.-p., Chen, Z.-l., Nan, J., & Li, G.-b. (2010). Air bubbling for alleviating membrane fouling of immersed hollow-fiber membrane for ultrafiltration of river water. *Desalination*, 260(1–3), 225-230. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2010.04.026>

- Triplett, K. A., Ghiaasiaan, S. M., Abdel-Khalik, S. I., & Sadowski, D. L. (1999). Gas–liquid two-phase flow in microchannels Part I: two-phase flow patterns. *International Journal of Multiphase Flow*, 25(3), 377-394. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0301-9322\(98\)00054-8](http://dx.doi.org/10.1016/S0301-9322(98)00054-8)
- Trussell, R. R., & Hand, D. W. (2012). *MWH's Water Treatment Principles and Design (3rd Edition)*. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons.
- USEPA. (2005). Membrane Filtration Guidance Manual Tiré de <http://nepis.epa.gov/Exe/ZyPURL.cgi?Dockkey=901V0500.txt>
- Venugopal, V. (2011). *Marine Polysaccharides : Food Applications*. Boca Raton, FL, USA: CRC Press.
- Verberk, J. Q. J. C., & van Dijk, J. C. (2006). Air sparging in capillary nanofiltration. *Journal of Membrane Science*, 284(1–2), 339-351. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2006.07.050>
- Wallis, G. B. (1969). *One-dimensional two-phase flow*. New York: McGraw-Hill.
- Water, G. P. (2015). ZeeWeed 1000 Hollow-Fiber UF membranes Tiré de <http://www.gewater.com/products/zeeweed-1000-membrane.html>
- WaterNET, R. E. (2016). Tiré de <http://www.reseauwaternet.ca/>
- Winter, J., & Bérubé, P. R. (2015). *NF-UF Range Membranes for Drinking Water Treatment*. Communication présentée à British Columbia Water and Waste Association Annual Conference, Kelowna, BC.
- Xia, L., Law, A. W.-K., & Fane, A. G. (2013). Hydrodynamic effects of air sparging on hollow fiber membranes in a bubble column reactor. *Water Research*, 47(11), 3762-3772. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2013.04.042>
- Yuan, W., & Zydney, A. L. (2000). Humic Acid Fouling during Ultrafiltration. *Environmental Science & Technology*, 34(23), 5043-5050. doi: 10.1021/es0012366
- Zhang, W., Hibiki, T., & Mishima, K. (2010). Correlations of two-phase frictional pressure drop and void fraction in mini-channel. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 53(1–3), 453-465. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2009.09.011>

## ANNEXE A – EXEMPLE DE CALCUL DU CISAILLEMENT DIPHASIQUE

Il est supposé que les caractéristiques physiques de l'eau synthétique sont celles de l'eau pure, car les concentrations de kaolin et d'alginate sont faibles. Toutes les valeurs sont pour une température de 20°C. Les tableaux ci-dessous résument les valeurs utilisées dans les calculs.

Tableau A-1 : Caractéristiques de la phase liquide et gazeuse

		Symboles	Valeurs	Unités
<b>Eau</b>	<b>Masse volumique de l'eau</b>	$\rho_L$	998,3	Kg/m <sup>3</sup>
	<b>Viscosité dynamique de l'eau</b>	$\mu_L$	1,003 x 10 <sup>-3</sup>	Pa·s
	<b>Vitesse d'écoulement de l'eau</b>	$U_L$	0,05	m/s
<b>Air</b>	<b>Masse volumique de l'air</b>	$\rho_G$	1,2	Kg/m <sup>3</sup>
	<b>Viscosité dynamique de l'air</b>	$\mu_G$	1,81 x 10 <sup>-5</sup>	Pa·s
	<b>Vitesse d'écoulement de l'air</b>	$U_G$	0,51	m/s
<b>Tension superficielle (eau/air)</b>		$\sigma$	0,0728	N/m

Tableau A-2 : Propriétés de la membrane

	Symboles	Valeurs	Unités
<b>Diamètre intérieure fibre</b>	$D$	0,8 x 10 <sup>-4</sup>	m
<b>Longueur des fibres</b>	$\Delta L$	0,3	m

**Calculs pour la phase liquide :**

$$Re = \frac{\rho U_L D}{\mu_L} = 40$$

$$f_D = \frac{64}{Re} = 1,6$$

$$\left[ \frac{\Delta P}{\Delta L} \right]_L = \frac{f_D \rho_L U_L^2}{2D} = 2505 \text{ Pa/m}$$

**Calculs pour la phase gazeuse :**

$$Re = \frac{\rho U_G D}{\mu_G} = 22$$

$$f_D = \frac{64}{\text{Re}} = 2,8$$

$$\left[ \frac{\Delta P}{\Delta L} \right]_G = \frac{f_D \rho_G U_G^2}{2D} = 556 \text{ Pa/m}$$

**Calcul du paramètre C :**

$$Lo^* \equiv \frac{\sigma}{(g(\rho_L - \rho_G)D^2)^{0,5}} = 3,39$$

$$C = 21(1 - e^{-0,674/Lo^*}) = 3,78$$

**Modèle de Lockhart et Martinelli :**

$$\left[ \frac{\Delta P}{\Delta L} \right]_L = X^2 \left[ \frac{\Delta P}{\Delta L} \right]_G \rightarrow X = 2,34$$

$$\Phi_L^2 = 1 + \frac{C}{X} + \frac{1}{X^2} \rightarrow \Phi_L^2 = 2,80$$

$$\frac{\Delta P}{\Delta L} = \Phi_L^2 \left[ \frac{\Delta P}{\Delta L} \right]_L = 7527 \text{ Pa/m}$$

**Calcul du cisaillement :**

$$\tau_{\text{wall}} = \frac{D \Delta P}{4 \Delta L} = 1,51 \text{ Pa}$$