

Titre: Développement et validation de la mesure en ligne de la
fluorescence pour la surveillance et le contrôle d'un réacteur
anaérobie mésophile/thermophile

Auteur: Emmanuel Morel

Date: 2006

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Morel, E. (2006). Développement et validation de la mesure en ligne de la
fluorescence pour la surveillance et le contrôle d'un réacteur anaérobie
mésophile/thermophile [Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal].
PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/7772/>

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

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/7772/>

**Directeurs de
recherche:** Michel Perrier, & Boris Tartakovsky

Programme: Non spécifié

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

DÉVELOPPEMENT ET VALIDATION DE LA MESURE EN LIGNE DE LA
FLUORESCENCE POUR LA SURVEILLANCE ET LE CONTRÔLE D'UN
RÉACTEUR ANAÉROBIE MÉSOPHILE/THERMOPHILE

EMMANUEL MOREL

DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIAE DOCTOR
(GÉNIE CHIMIQUE)

AOÛT 2006



Library and
Archives Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Published Heritage
Branch

Direction du
Patrimoine de l'édition

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

ISBN: 978-0-494-20834-2

Our file Notre référence

ISBN: 978-0-494-20834-2

NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.


Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée :

DEVELOPPEMENT ET VALIDATION DE LA MESURE EN LIGNE DE LA
FLUORESCENCE POUR LA SURVEILLANCE ET LE CONTRÔLE D'UN
RÉACTEUR ANAÉROBIE MÉSOPHILE/THERMOPHILE

présentée par: MOREL Emmanuel

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiae Doctor

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

M. DUBOIS Charles, Ph.D., président

M. PERRIER Michel, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. TARTAKOVSKY Boris, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. JOLICOEUR Mario, Ph.D., membre

M. BUDMAN Hector, Ph.D., membre

RÉSUMÉ

L'objectif de ce projet de recherche est de réaliser le développement et la validation de la mesure en ligne de la fluorescence pour la surveillance et le contrôle d'un réacteur anaérobie mésophile/thermophile.

Dans cette étude une méthode de mesure en continu de la demande chimique en oxygène (DCO), des acides gras (AGV) et des matières volatiles en suspension (MVS) par fluorescence à multiples longueurs d'ondes a été développée. La fluorescence est mesurée dans l'effluent d'un réacteur anaérobie. Des méthodes de régression statistique (moindres carrées partiels (PLS), régression par composante principale non-linéaire (nPCR), régression par affinements progressifs (SWR)) linéaires et non linéaires ont été utilisées pour la calibration des modèles. L'ajustement de ces trois méthodes de régression a été comparé et il en ressort que la méthode de régression PLS a démontré une meilleure précision pour l'approximation des données analytiques. La méthode de mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes a également été appliquée pour le suivi du traitement anaérobie en laboratoire de l'effluent d'une usine de production de fromage et pour la détermination de la DCO, des AGV et MVS d'échantillons de réacteur anaérobie.

Dans la deuxième partie du projet, un multi-modèle de digestion anaérobie a été développé et testé pour l'estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique du système. Les phases de fonctionnement méthanogène, de surcharge organique et acidogène sont considérées pour la modélisation multi-modèle, où à chacune des phases de fonctionnement correspondent un modèle local. L'approche multi-modèle permet la modélisation des différentes phases de fonctionnement des procédés de digestion anaérobie. La transformation des multi-modèles en multi-modèles observateurs-estimateurs a permis de réaliser l'estimation en ligne des variables d'états et des paramètres de cinétique. La sélection des modèles locaux est assurée par un système de diagnostique. Ce système de diagnostique utilise les mesures en ligne du pH et de la production de méthane pour établir une pondération des modèles locaux. Deux structures de cinétiques (cinétique de premier ordre et ordre zéro; cinétique de premier ordre et cinétique de Monod) ont été envisagées et comparées pour l'estimation et la prédiction des variables d'états. La sélection des paramètres d'ajustement des estimateurs-observateurs des multi-modèles a été analysée à l'aide de plusieurs séries de simulation avec le modèle de digestion anaérobie (Anaerobic Digestion Model n°1 (ADM1)).

La troisième et dernière partie de ce projet a permis de définir une nouvelle stratégie de contrôle pour la stabilisation de la concentration de la DCO pendant une période de surcharge organique par la modulation de la

température d'un réacteur anaérobie. Des tests préliminaires réalisés avec des bactéries anaérobies mésophiles ont permis d'évaluer l'impact de la température sur la production de méthane. Les tests d'activités ont été réalisés en bouteilles sérologiques avec l'inoculum et avec la biomasse du réacteur après deux mois d'opérations. Des variations de la production de méthane du réacteur lors des augmentations de température ont également été mesurées. Les tests d'activités et l'expérimentation avec le réacteur anaérobie ont permis d'analyser la production de méthane en fonction de la température. Le contrôle en continu de la concentration de la DCO a été réalisé par un contrôleur adaptatif multi-modèle, avec lequel la température du réacteur est modélisée par une fonction de Arrhénius. Expérimentalement, cette stratégie de contrôle a été appliquée pour la stabilisation de l'opération d'un réacteur anaérobie de laboratoire pendant une période de surcharge organique.

ABSTRACT

This research project is focused on the development and validation of a multi-wavelength fluorometry system for on-line monitoring and control of a mesophilic/thermophilic anaerobic reactor.

In the first section, multi-wavelength fluorescence-based measurements of chemical oxygen demand (COD), volatile fatty acids (VFA) and volatile suspended solids (VSS) were carried out. The concentrations were measured on-line in the effluent of a laboratory anaerobic reactor. Several regression methods (Partial Least Squares (PLS), non linear Principal Component Regression (nPCR), Stepwise Regression (SWR)) were applied for model calibration. Performances of these three statistical methods were compared and the PLS regression method showed best agreement with analytical measurements. The multi-wavelength fluorometry was applied for on-line monitoring of a cheese factory wastewater treatment in an anaerobic reactor. The multi-wavelength fluorometry was also used for measurements of COD, VFA, and VSS in the reactor.

In the second section of this project, a multi model of anaerobic digestion process was defined. The methanogenic, overload, and acidogenic process

states were considered for modeling, where each process state corresponded to a local model. The multi-model allowed for modeling of several process states. Transformation of the multi-model into a multi-model observer-based estimator (OBE) allowed for the estimation of process states and kinetic parameters. Submodel selection was carried out using a diagnosis system, by using on-line measurements of pH and biogas production to determine local model outputs. Two kinetic structures (first order and zero order; first order and Monod kinetics) were compared for process state estimation and prediction. Design parameter selection of the OBE multi-model was studied using several simulations with the ADM1 (Anaerobic Digestion Model no1).

The third section of this project consisted of defining an innovative control strategy for effluent COD stabilization during overloads by reactor temperature manipulation. Preliminary tests were carried out using mesophilic anaerobic sludge to evaluate the temperature effect on the rate of methane production. Activity tests were carried out using the inoculum biomass and the biomass after two months of operation. Methane production rates varied in response to temperature increase. On-line control of effluent COD concentration was carried out using an adaptive multi-model controller in which the reactor temperature was the manipulated variable. This control strategy was tested for reactor stabilization during reactor overloads.

TABLE DES MATIÈRES

RÉSUMÉ	IV
ABSTRACT	VII
TABLE DES MATIÈRES	IX
LISTE DES TABLEAUX.....	XII
LISTE DES FIGURES	XIV
LISTE DES SYMBOLES ET ABRÉVIATIONS	XIX
CHAPITRE 1 : INTRODUCTION.....	1
1.1 PROBLÉMATIQUE	1
1.2 OBJECTIFS	5
1.3 MÉTHODOLOGIE	7
CHAPITRE 2 : REVUE DE LITTÉRATURE	10
2.1 LE TRAITEMENT DES EAUX USÉES	10
2.2 LA DIGESTION ANAÉROBIE	11
2.2.1 Biomasse granulaire et digestion anaérobie.....	14
2.2.2 Température et digestion anaérobie.....	15
2.3 INSTRUMENTATION DE LA DIGESTION ANAÉROBIE	18
2.3.1 Mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes...	21
2.3.2 Analyses et régressions multi-variables	23
2.4 LA MODÉLISATION DE LA DIGESTION ANAÉROBIE	26

2.4.1 La modélisation multi-modèle	29
2.4.2 Les systèmes experts	31
2.5 CONTRÔLE DE LA DIGESTION ANAÉROBIE	33
CHAPITRE 3 : MATÉRIELS ET MÉTHODES.....	35
3.1 CAPTEUR DE FLUORESCENCE À MULTIPLE LONGUEURS D'ONDES.....	35
3.2 RÉACTEURS ANAÉROBIES	36
3.3 MÉTHODES ANALYTIQUES	39
3.4 TESTS D'ACTIVITÉS DE POTENTIEL DE PRODUCTION DE MÉTHANE	41
CHAPITRE 4 : RÉSULTATS ET DISCUSSION	43
4.1 MESURE EN LIGNE DE LA FLUORESCENCE À MULTIPLE LONGUEURS D'ONDES..	43
4.1.1 Calibration de la mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes	46
4.1.2 Application de la mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes pour la mesure hors-ligne de la DCO, des AGV et des MVS	57
4.1.3 Application de la mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes pour le suivi du traitement d'une eau usée agroalimentaire	61
4.1.4 Conclusions – Mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes	65
4.2 ESTIMATEUR MULTI-MODÈLE	67
4.2.1 Multi-modèle de digestion anaérobie	69
4.2.2 Système de diagnostique	71
4.2.3 Multi-modèle estimateur-observateur (OBE)	74

4.2.4 Simulations ADM1 et estimations des paramètres de cinétiques	76
4.2.5 Estimation et prédiction des paramètres de cinétique	85
4.2.6 Conclusions – Estimateur multi-modèle	95
4.3 CONTRÔLE ADAPTATIF DE LA TRAJECTOIRE DE LA TEMPÉRATURE	97
4.3.1 Définition du contrôleur adaptatif multi-modèle.....	99
4.3.2 Effet de la température sur la production de méthane.....	104
4.3.3 Contrôle de la température d'un réacteur anaérobie	111
4.3.4 Conclusions – Contrôle adaptatif de la température.....	117
CHAPITRE 5 : CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS.....	119
5.1 CONCLUSIONS.....	119
5.2 RECOMMANDATIONS	124
RÉFÉRENCES	127

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 4.1 : Pourcentage de la variance capturée avec les méthodes de régression PLS et nPCR.....	51
Tableau 4.2 : Résultats de la validation interne des modèles de régression PLS, nPCR et SWR.....	54
Tableau 4.3 : Résultats de la validation par intervalle sur 200h des modèles de régression PLS, nPCR et SWR.....	55
Tableau 4.4 : Résultats statistiques (R^2 et RMSE) de la calibration et de la validation pour les mesures hors-ligne DCO totale, AGV et MVS estimés par fluorescence.	59
Tableau 4.5 : Analyse statistique (R^2 et RMSE) avec la régression PLS pour la biodégradation anaérobie d'une eau usée d'une usine de production de fromages.....	64
Tableau 4.6 : Structure OBE#1 $r_{i,j}$ (g DCO Lr-1 d-1) composée de cinétique de premier ordre et d'ordre zéro.....	89
Tableau 4.7 : Structure OBE#2 $r_{i,j}$ (g DCO Lr-1 d-1) composée de cinétique de Monod et de premier ordre.....	89
Tableau 4.8 : Taux de biotransformation maximaux estimés au jour 10 pour les structures OBE#1 (premier ordre – ordre zéro) et OBE#2	

(cinétique de Monod – premier ordre) employés pour la prédiction des variables d'état du jour 10 au jour 20.....	93
---	----

LISTE DES FIGURES

Figure 2.1 : Principe de la digestion anaérobie.....	13
Figure 2.2 : Taux de croissance des bactéries méthanogènes vs température (Batstone et al., 2002)	17
Figure 2.3 : Fluorescence excitation-émission (Skibsted et al., 2001).....	22
Figure 3.1 : Représentation schématique des réacteurs anaérobies expérimentaux	38
Figure 4.1 : Profil de la CVA (g DCO Lr-1 d-1) pour le réacteur anaérobie de 3.5 litres alimenté avec une eau usée synthétique.	47
Figure 4.2 : Calibration et validation interne de la mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes avec la méthode de régression statistique PLS. (a) DCO et les MVS, (b) propionate et les AGV, (c) production de méthane et (d) pH dans le réacteur. (♦) représentent les mesures analytiques de COD, des AGV et du méthane alors que (x) représentent les MVS et le propionate. Les lignes pleines sont les prédictions obtenues avec la méthode PLS.....	48
Figure 4.3 : Validation par intervalle de la DCO soluble (a) et des AGV (b) pour les modèles de régression PLS, nPCR et SWR sur 200 heures d'opération du réacteur de 3.5 litres. (♦) représentent les données analytiques.	53

Figure 4.4 : Calibration (a) et validation (b) de la mesure hors-ligne de la DCO et des AGV par la mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes. (■) représentent les mesures analytiques de la DCO totale (g DCO L-1) et (□) représentent les mesures de la DCO prédites avec la méthode PLS (g DCO L-1). (♦) représentent les mesures analytiques des AGV (g DCO L-1) et (◇) représentent les mesures des AGV prédites avec la méthode PLS (g DCO L-1).....	59
Figure 4.5 : Profil du taux de dilution de l'eau usée industrielle introduite dans le réacteur anaérobie de 3.5 litres.....	62
Figure 4.6 : Application de la mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes pour le suivi de la biodégradation anaérobie d'une eau usée industrielle. (✕) et (♦) représentent les mesures analytiques. (◇) représentent les mesures analytiques de COD, des AGV et du méthane alors que (✕) représentent les MVS et le propionate. Les lignes pleines sont les prédictions obtenues avec la méthode PLS.	63
Figure 4.7 : Représentation graphique du système de diagnostique des phases méthanogène, de surcharge organique et acidogène pour un réacteur anaérobie en fonction de la mesure du pH, de la production de biogaz (L CH ₄ L ⁻¹ d ⁻¹) et du pourcentage de méthane dans le biogaz.	74
Figure 4.8 : Profil du débit d'alimentation appliqué pour la simulation avec le modèle ADM1 (a) et diagnostique du réacteur anaérobie de 1500m ³ montrant les trois phases de fonctionnement (b).....	79

Figure 4.9 : Effet des paramètres d'ajustement (w) du multi-modèle OBE sur l'estimation de la DCO (a), des AGV (b), et de la production de méthane (c). Les lignes pointillées représentent les paramètres d'ajustement optimaux..... 81

Figure 4.10 : Effet du pas d'échantillonnage du multi-modèle OBE sur l'estimation de la DCO (a), des AGV (b) et de la production de méthane (c). Les paramètres d'ajustement employés sont $w=1.5j-1$ pour la DCO, $1.5j-1$ pour les AGV et $3j-1$ pour la production de méthane, respectivement. 83

Figure 4.11 : Estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique du multi-modèle de digestion anaérobie à partir de la simulation du modèle ADM1. Les estimations et les prédictions ADM1 sont présentées en (a) DCO totale ($\hat{s}$ et s , respectivement) et les AGV ($\hat{a}$ et a , respectivement), (b) méthane ($\hat{Q}_m$ et Q_m , respectivement), (c) paramètres de cinétique estimés pour la DCO ($\hat{r}_{\max,s}$) et les AGV ($\hat{r}_{\max,a}$) et (d) paramètre de cinétique estimé pour le méthane ($\hat{r}_{\max,m}$). Les estimations de la DCO, des AGV et de la production de méthane sont superposées aux variables d'état du modèle ADM1 85

Figure 4.12 : profils de la CVA (a) et du pH dans le réacteur (b). 87

Figure 4.13 : diagnostique en ligne du réacteur anaérobie (3.5 litres) montrant les phases de fonctionnement méthanogène, de surcharge organique et acidogène. 88

Figure 4.14 : Estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique du réacteur de 3.5 litres avec les structures OBE#1 (premier ordre et ordre zéro) et OBE#2 (premier ordre et cinétique de Monod). Les estimations et les prédictions sont présentées en (a) DCO ($\hat{s}$ et s , respectivement) et les AGV ($\hat{a}$ et a , respectivement), (b) la production de méthane ($\hat{Q}_m$ et Q_m , respectivement), (c) paramètres de cinétique estimés pour la DCO ($\hat{r}_{\max,s}$) et les AGV ($\hat{r}_{\max,a}$) et (d) paramètres de cinétique estimés pour la production de méthane ($\hat{r}_{\max,m}$). Notations : les lignes pleines sont l'OBE#1, l'OBE#2 est représentée en lignes discontinues et les mesures par fluorescence sont en lignes grises continues. Les estimations des paramètres de cinétique pour les AGV pour les structures OBE#1 et OBE#2 sont superposées. 92

Figure 4.15 : Estimation (10 premiers jours) et prédiction (du jour 10 au jour 20) de la DCO (a), des AGV (b) et de la production de méthane (c) pour les structures OBE#1 et OBE#2 du multi-modèle. Notations : les lignes noires pleines représentent les OBE#1, les lignes discontinues sont les OBE#2 et les lignes grises continues sont les mesures par

fluorescence. L'estimation et la prédiction des AGV sont superposées pour les structures OBE#1 et OBE#2.	94
Figure 4.16 : Production de biogaz observée pour les tests activités (en bouteilles) préliminaires pour 15 minutes, 2 heures et 24 heures après l'inoculation pour les températures de 25°C, 35°C, 45°C et 55°C.	105
Figure 4.17 : Effet de l'augmentation de la température sur la production de méthane pour une CVA de $12 \text{ g DCO L}_R^{-1} \text{ j}^{-1}$ avec le réacteur de 10 litres, la température a été augmentée de 25°C à 35°C (gris clair), à 45°C (gris foncé) et à 55°C (noir), indépendamment.	107
Figure 4.18 : Production de méthane observée avec la biomasse du réacteur de 10 litres prélevés après 24h d'opération à 50°C et par la suite incubés en bouteille pendant pour 15 minutes et 2 heures à 25°C et 55°C..	110
Figure 4.19 : Dynamique des principaux paramètres (a-d), de la température (e) et du diagnostique du procédé (f) pour le réacteur de 10 litres contrôlé en boucle fermée (0-1.1 j) et en boucle ouverte (1.1-3 j). Les mesures analytiques de la DCO et des AGV sont représentées par des carrés.....	114
Figure 4.20 : Calibration de la mesure de la DCO (a) et des AGV (b) par fluorescence à multiple longueurs d'ondes avec les mesures analytiques correspondantes.....	115

LISTE DES SYMBOLES ET ABRÉVIATIONS

Symboles

A	surfaces d'échange thermique, (m^2)
a	concentration d'acides gras volatiles, (g DCO L^{-1})
$\hat{a}$	concentration d'acides gras volatiles, (g DCO L^{-1})
D	taux de dilution, (j^{-1})
F	vecteur des débits volumétriques d'alimentation, (L j^{-1})
$f(T)$	fonction de température
H	matrice diagonale des variables d'état, (g DCO L^{-1})
K	coefficient de transfert thermique global, ($\text{W m}^{-2} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$)
L_r	litre de réacteur, (L)
l	distance euclidienne
n	nombre de modèles locaux
m	nombre de variables d'états
Q	vecteur des débits gazeux produits, (L j^{-1})
Q_m	débit de méthane, (L j^{-1})
$\hat{Q}_m$	débit de méthane estimé, (L j^{-1})
r	vecteur des taux de biotransformation, ($\text{g DCO L}^{-1} \text{ j}^{-1}$)

$r_{\max}$	taux de biotransformation maximum
$\hat{r}_{\max}$	taux de biotransformation maximum estimé
s	concentration de la DCO, (g DCO L ⁻¹)
$\hat{s}$	concentration de la DCO estimée, (g DCO L ⁻¹)
T	température dans le réacteur, (°C)
T_{air}	température de l'air ambiante, (°C)
T_f	température de l'affluent, (°C)
T_i	température de consigne, (°C)
T_h	température de la double enveloppe du réacteur, (°C)
T_0	température de référence de la fonction de température, (°C)
T^*	température de consigne globale
U	coefficient de transfert thermique, (W m ⁻² °C ⁻¹)
V	volume du réacteur, (L)
y	vecteur des variables d'état du multi-modèle

Lettres grecques

θ	paramètre de la fonction de température
Φ_0	centre des sphères du système de diagnostique
Φ_r	rayon des sphères du système de diagnostique
α	vecteur des paramètres de cinétique

$\hat{\alpha}$	vecteur des paramètres de cinétique estimés
ζ	vecteur des variables d'état
$\hat{\zeta}$	vecteur des variables d'état estimées
ζ_{in}	vecteur des variables d'état à l'entrée
ζ^*	vecteur de la consigne des variables d'état
β	vecteur des pondération
Ω	matrice diagonale des paramètres d'ajustement des OBE
Γ	matrice diagonale des paramètres d'ajustement des OBE
ω	paramètre d'ajustement des OBE, (j^{-1})
γ	paramètre d'ajustement des OBE, (j^{-1})
λ	paramètre d'ajustement des contrôleurs adaptatifs, (j^{-1})

Abréviations

ADM1	modèle de digestion anaérobie n°1 (<i>Anaerobic Digestion Model n°1</i>)
AGV	acides gras volatiles
CVA	charge volumique appliquée
DCO	demande chimique en oxygène
DCO _{deg}	demande chimique en oxygène dégradée
IWA	association internationale de l'eau (<i>International Water Association</i>)
LV	variables latentes (<i>Latent Variables</i>)

MS	matières solides
MES	matières en suspension
MVS	matières volatiles en suspension
OBE	estimateur-observateur (<i>observer-based estimator</i>)
PLS	moindres carrés partiels (<i>Partial Least Squares</i>)
PCA	analyse par composantes principales (<i>Principal Component Analysis</i>)
PC	composantes principales (<i>Principal Components</i>)
PCR	régression par composantes principales (<i>Principal Component Regression</i>)
SS	solide en suspension
RMSE	erreur quadratique moyenne (<i>root-mean-square error</i>)
tDCO	demande chimique en oxygène totale
TSH	temps de séjour hydraulique
UASB	réacteur à haut rendement à flux ascendant (<i>Upflow Anaerobic Sludge Bed</i>)

CHAPITRE 1 : INTRODUCTION

1.1 Problématique

L'activité humaine génère une production toujours croissante de déchets divers, autant au niveau industriel que résidentiel (Hobson et Wheatley, 1993). Afin de préserver notre environnement, le traitement et le recyclage de ces déchets est essentiel, ainsi que la réduction de la consommation d'eau. Depuis 1972, la *Loi sur la qualité de l'environnement* en vigueur au Québec fixe certaines obligations concernant l'implantation d'une nouvelle industrie, la réalisation de modifications dans une industrie existante ou encore l'installation d'équipements de traitement des eaux usées. De plus, le Programme d'Assainissement des Eaux du Québec (PAEQ) et le Plan d'Action Saint-Laurent (PASL) ont été mis en place successivement. Finalement à l'automne 2002, le gouvernement du Québec s'est doté d'une politique de l'eau (L.R.Q., c. Q-2) assurant la protection de ses ressources et la gestion de l'eau dans une perspective de développement durable.

Le renforcement des normes gouvernementales sur les rejets dans le milieu naturel nécessite des procédés de traitement de plus en plus performants pour l'élimination de la pollution carbonée, azotée, et phosphorée. Afin de répondre

à ces contraintes législatives, le traitement biologique en bassins à boues activées s'est largement généralisé pour l'épuration des eaux usées industrielles et des communautés urbaines (Henze *et al.*, 1987). Néanmoins, le traitement des eaux usées fortement chargées en matière organique par méthanisation est beaucoup plus marginal à cause de son instabilité d'opération. Ce procédé produit un biogaz principalement composé de méthane, qui constitue une source d'énergie renouvelable disponible pour la cogénération ou le stockage (Batstone *et al.*, 2002).

La digestion anaérobie a été originellement employée pour le traitement des eaux urbaines dès la fin du XIX^{ème} siècle, afin de remédier à la forte odeur engendrée par une simple décantation des eaux usées. Au début du XX^{ème} siècle, seulement quelques infrastructures de digestion anaérobie ont vu le jour en Europe pour le traitement des eaux, malgré les avantages énergétiques présentés par ce procédé (Hobson et Wheatley, 1993). Aujourd'hui, la digestion anaérobie est employée pour le traitement des boues urbaines issues de la chaîne de traitement aérobie (Batstone *et al.*, 2002). Le traitement anaérobie des boues urbaines permet d'éliminer les odeurs et réduire de moitié les matières organiques contenues dans les boues aérobies. Le traitement des eaux usées industrielles fortement chargées en matière organique et facilement biodégradables, issues de l'industrie agro-alimentaire et des pâtes et papiers, constitue une autre application de la digestion anaérobie (Rintala,

1991; Lettinga *et al.*, 1997). Le métabolisme de la digestion anaérobie est structuré autour de plusieurs mécanismes biologiques complexes et interdépendants (Moletta *et al.*, 1986). Cependant, l'opération d'un digesteur anaérobie peut devenir complexe dans des situations de surcharge organique, créant une instabilité dans la réponse obtenue et conduit rapidement à une détérioration irréversible de l'efficacité du traitement (Murhammer *et al.*, 2002; Dupla *et al.*, 2004). En ce sens, une surveillance et un contrôle en temps réel accru des principaux paramètres du digesteur est nécessaire pour maximiser l'efficacité du traitement anaérobie (Steyer *et al.*, 2006).

La production de biogaz, sa teneur en méthane et le pH sont généralement mesurés en temps réel afin de permettre le suivi de l'opération des digesteurs anaérobies (Steyer *et al.*, 2006). À partir de l'analyse de ces paramètres principaux, il est possible d'élaborer des stratégies de contrôle définies à partir de modèles mathématiques pour l'optimisation du traitement (Ritzka *et al.*, 1997; Pullammanappallil *et al.*, 1998). Toutefois, la mesure de la production de biogaz représente toujours un indicateur indirect de la composition de l'effluent. Il est donc plus logique d'envisager une stratégie de contrôle établie à partir des paramètres mesurés en temps réel dans la phase liquide. Les composés solubles contenus dans l'effluent sont mesurables en ligne par dosages titrimétriques ou par mesures spectrométriques automatisés moyennant une calibration préalable (Steyer *et al.*, 2006). Cependant, les faibles coûts

d'acquisition de capteurs gazeux ne favorisent pas l'implantation à grande échelle des systèmes de mesure en temps réel des composés solubles.

L'avancement de la recherche dans le domaine de la digestion anaérobie a permis d'améliorer la compréhension du mécanisme de biodégradation de la matière organique en absence d'oxygène et l'établissement de modèles mathématiques capables de prédire les comportements d'un réacteur anaérobie (Moletta *et al.*, 1986; Guiot *et al.*, 1992; Angelidaki *et al.*, 1999). Cependant, l'élaboration d'une procédure de contrôle à partir de ces modèles mathématiques est relativement difficile, notamment à cause de leurs cinétiques complexes (Tartakovsky *et al.*, 2002; Tartakovsky *et al.*, 2005). D'autres modèles mathématiques plus simples sont plus appropriés pour la conception de contrôleurs adaptatifs dans lesquels les paramètres sont ajustés en temps réel par rapport aux mesures en ligne (Bastin et Dochain, 1990). Des multi-modèles auto-adaptatifs constitués de plusieurs modèles mathématiques ont démontré de bonnes aptitudes pour la modélisation et le contrôle des procédés chimiques et biologiques (Murray-Smith et Johansen, 1997).

La digestion anaérobie est un procédé biologique d'épuration dont les performances sont assujetties aux variations de l'eau usée à traiter, puisque celles-ci peuvent entraîner une déstabilisation irréversible du traitement et un entraînement de biomasse (Hobson et Wheatley, 1993). Pour cette raison,

l'optimisation de la digestion anaérobie est essentielle, mais cet aspect demeure encore peu exploité dans le domaine du traitement des eaux (Steyer *et al.*, 2006). En général, la composition de l'eau usée à traiter n'est pas un élément contrôlable et le débit de l'eau usée entrante est aussi difficilement maîtrisable. Ce type d'optimisation consiste à détourner partiellement l'eau à traiter et la stocker temporairement dans un bassin de rétention, uniquement pendant les périodes de débit de pointe, afin de contrôler le temps séjour dans la chaîne de traitement. Dans l'éventualité d'une surcharge organique ponctuelle, il est aussi possible d'accroître facilement les performances d'un digesteur anaérobie par une élévation de la température du système sans l'utilisation d'un dispositif physique de contournement (Speece et Kem, 1970; van Lier *et al.*, 1990; Visser et Lettinga, 1993). Toutefois, les effets de la température d'opération d'un système anaérobie possèdent ces limitations et font toujours l'objet d'une recherche intensive (van Lier *et al.*, 1990; Visser et Lettinga, 1993; Ahn et Forster, 2002; Iranpour *et al.*, 2005).

1.2 Objectifs

Les méthodes de mesure en ligne, telles que les méthodes spectrométriques, permettent d'obtenir davantage d'informations nécessaires pour une détection rapide des déséquilibres des procédés de digestion anaérobie. De plus, la modélisation de la digestion anaérobie a permis d'améliorer la compréhension

du phénomène de digestion anaérobie. La température d'opération est un paramètre essentiel à contrôler pour garantir un bon rendement du traitement anaérobie. Car, il a été montré dans d'autres études qu'une activité méthanogène supérieure des bactéries anaérobies mésophiles a été mesurée suite à une courte exposition à des conditions thermophiles.

Dans ce contexte, le présent projet de recherche permettra de définir une nouvelle approche pour la modulation de la trajectoire de la température d'un réacteur anaérobie pendant la surcharge d'un réacteur anaérobie. Il est attendu que l'élévation de la température du procédé produira une augmentation des rendements d'épuration et minimisera les déséquilibres normalement observés par la surcharge du réacteur.

Le présent projet de recherche comprend trois objectifs principaux dans le but de réaliser le contrôle en ligne de la trajectoire de la température d'un réacteur anaérobie dans les situations de surcharge organique. Le premier objectif de cette recherche consiste à élaborer un capteur de la spectrométrie pour un réacteur anaérobie afin de permettre la mesure en ligne des principaux paramètres de la digestion anaérobie. Le deuxième objectif consiste à dresser un estimateur multi-modèle approprié pour la modélisation et le diagnostic d'un réacteur anaérobie. Finalement, le troisième objectif de ce projet réside dans l'établissement d'une procédure de contrôle adaptative pour la trajectoire

de la température d'un réacteur anaérobie, basée sur l'ajustement des paramètres de cinétique du multi-modèle de digestion anaérobie.

1.3 Méthodologie

La première partie de la recherche traite du développement d'un système de mesure spectrométrique pour la mesure en ligne de la DCO, des AGV et des matières en suspensions (MES) par fluorescence. Ce système de mesure est capable de mesurer la fluorescence de l'effluent à multiples longueurs d'ondes d'excitations et d'émissions dans le visible et l'ultra-violet directement dans le réacteur. Plusieurs méthodes de traitement statistiques, tels que la régression par PLS, nPCR et SWR ont été analysées. Pendant 30 jours, la fluorescence a été mesurée tous les dix minutes dans un réacteur anaérobie à l'échelle laboratoire alimenté avec une eau usée synthétique. Le capteur est calibré avec les trois méthodes statistiques de régression pour seulement une partie des données de fluorescence alors que la deuxième partie des données a permis la validation des calibrations. Par la suite, la même méthodologie est appliquée pour la mesure d'échantillons d'un réacteur anaérobie et pour le suivi de la biodégradation anaérobie d'une eau usée provenant d'une usine de production de fromages.

Dans la deuxième partie de la recherche, un estimateur défini à partir d'un modèle mathématique de digestion anaérobie est formulé pour la modélisation et le diagnostique en ligne des réacteurs anaérobies. En raison, de la complexité des modèles mathématiques de digestion anaérobie existants, un multi-modèle constitué de plusieurs sous-modèles non linéaires est présenté, où chacun des sous-modèles satisfait à un régime de fonctionnement. Les variables d'états du multi-modèle sont combinées, par pondération des variables d'états des sous-modèles. La pondération est définie à l'aide du diagnostique généré suite à l'analyse des valeurs du pH dans le réacteur et du méthane produit. Les paramètres cinétiques des sous-modèles sont posés non constants, et sont estimés en ligne grâce à des estimateurs-observateurs s'appuyant sur les mesures en ligne. Deux structures de multi-modèle sont envisagées pour l'estimation en ligne des paramètres de cinétiques et la prédiction des variables d'états. L'une des structures est constituée de cinétique d'ordre zéro et de premier ordre alors que la deuxième structure est basée sur une cinétique de Monod et une cinétique de premier ordre. L'impact du pas d'échantillonnage et de celui des paramètres d'ajustement des estimateurs du multi-modèle sur l'estimation globale sont évalués par plusieurs séries de simulations avec un modèle complet de digestion anaérobie déjà existant dans la littérature.

La troisième et dernière partie de la recherche regroupe le développement et la mise en œuvre d'une procédure de contrôle adaptatif de la trajectoire de la température pendant une période de surcharge d'un réacteur anaérobie. Le contrôleur multi-modèle adaptatif pour la trajectoire de la température est obtenu par linéarisation externe du multi-modèle non linéaire dans lequel la température est introduite dans les cinétiques à l'aide de l'équation d'Arrhénius. Tout d'abord, l'effet bénéfique de l'augmentation momentanée de la température sur les rendements de production de méthane pendant une surcharge organique est examiné par une série de tests d'activités réalisés avec des incubations allant de températures mésophiles à thermophiles. Ensuite, un réacteur anaérobie de dix litres est opéré sur une période de deux mois avec des charges organiques ponctuelles, tout en utilisant le capteur de fluorescence pour la mesure en ligne de la DCO et des AGV. Pendant les périodes de surcharge, la trajectoire de la température du réacteur est ajustée par le contrôleur multi-modèle adaptatif. Après ces deux mois d'opération, les tests activités sont reconduits et comparés aux tests initiaux afin d'évaluer l'impact des augmentations de température sur l'activité de la biomasse anaérobie.

CHAPITRE 2 : REVUE DE LITTÉRATURE

2.1 Le traitement des eaux usées

L'épuration des eaux usées est réalisée par l'action d'une chaîne de traitement d'opérations unitaires comprenant les prétraitements physico-chimiques, les traitements aérobies/anaérobies, la clarification, la filtration, et la désinfection, afin de réduire la DCO et les matières en suspension. Le traitement primaire a pour objectif de séparer les particules solides et des graisses par coagulation/floculation, flottation et décantation. Le traitement secondaire est un traitement biologique aérobies/anaérobies pour l'abattement de la demande biologique en oxygène (DBO), la nitrification/dénitrification et l'élimination du phosphore. Finalement le traitement tertiaire comprend les étapes de polissage et de désinfection, si nécessaire, pour un rejet dans le milieu naturel (Metcalf et Eddy Inc., 2003).

Le traitement aérobies des effluents nécessite des bassins activés de faible profondeur pour l'oxygénation des boues. La vigoureuse activité des micro-organismes aérobies produit beaucoup de boues en excès ($0.6-0.8 \text{ kg SS kg DCO}_{\text{deg}}^{-1}$) et beaucoup de nutriments azotés ($50 \text{ g N kg DCO}_{\text{deg}}^{-1}$) et phosphorés ($10 \text{ g P kg DCO}_{\text{deg}}^{-1}$) (Metcalf et Eddy Inc., 2003). En

comparaison, le traitement biologique anaérobie nécessite peu d'énergie pour son fonctionnement puisqu'il ne requière pas d'oxygène. De plus, ce procédé produit du méthane et ces installations sont plus compactes et fonctionnent avec des charges volumiques élevées (1-25 kg DCO/m³.j). Les micro-organismes anaérobies se caractérisent par une faible vitesse de croissance, compensée par l'accumulation des granules de biomasse. Le traitement anaérobie produit peu de boues en excès (0.04-0.1 kg SS kg DCO_{deg}⁻¹) et peu de nutriments azotés (14 g N kg DCO_{deg}⁻¹) et phosphorés (3 g P kg DCO_{deg}⁻¹) (Hobson et Wheatley, 1993; Batstone *et al.*, 2002). Le traitement aérobie est plus efficace en ce qui attrait à la détoxification et au polissage de la dépollution organique, de son côté le traitement anaérobie est lui plus sensible aux variations du pH, à l'ammoniac, aux composés toxiques. En terme de bilan de gaz à effet de serre, le traitement aérobie produit 1.2 tonnes de CO₂ / tonne DCO_{deg}, comparativement à 0.2 pour le traitement anaérobie.

2.2 La digestion anaérobie

La digestion anaérobie, ou la méthanisation, est un procédé naturel de transformation de la matière organique en énergie par l'action des microorganismes en absence d'oxygène. Le processus de digestion anaérobie consiste en une suite de réactions biochimiques complexes organisées autour de plusieurs genres de microorganismes nécessitant très peu ou pas

d'oxygène pour croître. La digestion anaérobie est caractérisée par les quatre étapes suivantes : l'hydrolyse, l'acidogénèse, l'acétogénèse et la méthanogénèse. L'hydrolyse décompose la matière organique (glucides, protéines et gras) en molécules organiques simples et solubles (sucres, acides aminés et acides gras) grâce à des réactions enzymatiques brisant les liaisons chimiques de molécules organiques complexes. L'étape d'acidogénèse est la dégradation des produits de l'hydrolyse par l'action des bactéries acidogènes et fermentatives, et permet de dégrader les glucides en acides organiques et acides gras, dioxyde de carbone et en hydrogène. L'acétogénèse permet la transformation des acides gras en acétate, en dioxyde de carbone et en hydrogène par l'action des bactéries acétogènes et homo-acétogènes. La dernière étape de la digestion anaérobie est la méthanogénèse, laquelle transforme l'acétate, le dioxyde de carbone et l'hydrogène en méthane. La méthanogénèse englobe deux grands genres de micro-organismes : les bactéries méthanogènes acétoclastes, qui utilisent l'acétate et l'hydrogène, et les bactéries méthanogènes hydrogénotrophes, qui utilisent le dioxyde de carbone et l'hydrogène pour produire du méthane (Hobson et Wheatley, 1993; Batstone *et al.*, 2002).

Dans des conditions normales d'opération, 60 à 70 % du méthane provient des bactéries acétoclastes et 30 à 40 % des bactéries hydrogénotrophes.

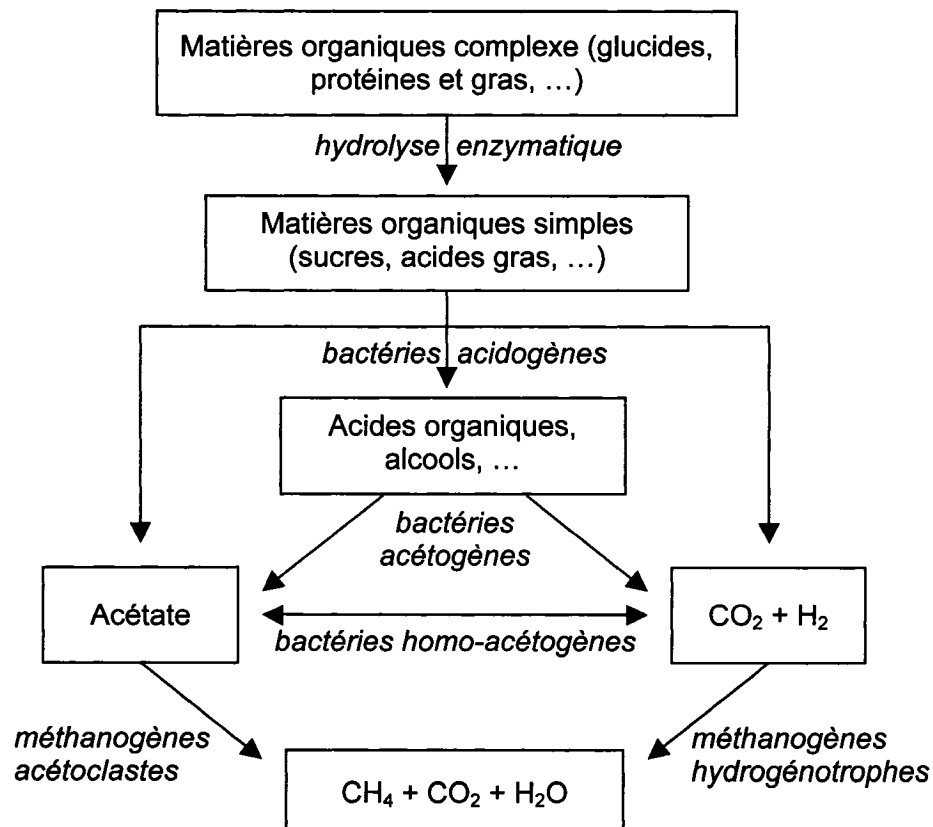


Figure 2.1 : Principe de la digestion anaérobie

La conversion des produits de l'acidogénèse par les bactéries acétogènes est seulement possible lorsque la pression partielle d'hydrogène dans la phase liquide est maintenue suffisamment basse, soit $<10^{-4}$ atm ou 10 Pa (Inanc *et al.*, 1996; Cord-Ruwisch *et al.*, 1997; Voolapalli et Stuckey, 2001). Les réactions biochimiques de la méthanogénèse sont inhibées par les acides gras volatiles devenus toxiques avec un pH acide (Hobson et Wheatley, 1993). De ce fait, la coexistence de ces quatre étapes de la digestion anaérobie nécessite une croissance en symbiose des bactéries acétogènes avec les bactéries

méthanogènes. Donc, la principale limitation de la digestion anaérobie réside dans l'étape de la méthanogénèse.

Les principales applications de la digestion sont la production de méthane, un gaz combustible, à partir de la matière organique. Toutefois, il est possible d'employer la digestion anaérobie pour la production de hydrogène, appelée la production biologique d'hydrogène, pour des conditions d'opération acide (Guwy *et al.*, 1997; Kataoka *et al.*, 1997; Lay *et al.*, 1999; Lin et Chang, 1999; Voolapalli et Stuckey, 2001; Chang *et al.*, 2002; Chang et Lin, 2004). L'hydrogène est un sous-produit de la fermentation de la matière organique, lequel requière un contrôle du processus de la digestion anaérobie. L'hydrogène et le dioxyde de carbone sont habituellement assimilés par les bactéries méthanogènes pour former du méthane (Hobson et Wheatley, 1993).

2.2.1 Biomasse granulaire et digestion anaérobie

Les réacteurs à haut rendement à flux ascendant (UASB) ont la particularité de favoriser la granulation de la biomasse (Tartakovsky et Guiot, 1997; Hulshoff Pol *et al.*, 2004), dû à l'agrégation naturelle des microorganismes (Show *et al.*, 2004). L'accumulation des granules de biomasse dans le réacteur permet donc de réaliser un découplage du temps de séjour hydraulique (TSH) par rapport au temps de rétention des particules solides (van Lier *et al.*, 2001). Par

conséquent, l'allongement du temps de séjour de la biomasse dans le réacteur indique la possibilité de traiter des effluents plus concentrés, tout en tenant compte de la faible vitesse de croissance des microorganismes anaérobies (Akunna et Clark, 2000). Toutefois, la principale limitation de cette configuration est la résistance au transfert de matière dans le réacteur, nécessitant une recirculation de la phase liquide (Arcand *et al.*, 1994). L'agrégation des micro-organismes anaérobies est un arrangement structuré permettant de créer des conditions nutritionnelles optimales (Guiot *et al.*, 1992). La couche externe du granule comprend les bactéries acidogènes, acétogènes et homo-acétogènes, tandis que l'intérieur est constitué des bactéries méthanogènes (Tartakovsky et Guiot, 1997; Lanthier *et al.*, 2002).

2.2.2 Température et digestion anaérobie

La majorité des bactéries fermentatives sont mésophiles et présentent une température optimale de fonctionnement à 35°C. De nouveaux micro-organismes capables de croître dans des conditions de températures extrêmes ont également été découverts. La température influence donc la thermodynamique des réactions biochimiques et des paramètres physico-chimiques, notamment l'activation et la désactivation enzymatique (McMeekin *et al.*, 1993). La dénaturation des protéines et la lyse cellulaire augmentent avec la température, notamment lorsque le substrat est épuisé (Pavlostathis et

Giraldo-Gomez, 1991). La présence de l'activité méthanogène a été confirmée aussi bien dans des conditions de températures psychrophiles ($< 20\text{ }^{\circ}\text{C}$), mésophiles ($25\text{-}45\text{ }^{\circ}\text{C}$) ou thermophiles ($> 55\text{ }^{\circ}\text{C}$) (Batstone *et al.*, 2002). Les températures élevées ont dévoilé des activités méthanogènes supérieures par rapport à des conditions mésophiles ou psychrophiles (voir Figure 2.2). Par le fait même, plusieurs études comparatives entre la digestion mésophile et thermophile ont donné l'avantage au traitement anaérobie thermophile (Ahn et Forster, 2000; Tartakovsky *et al.*, 2003). Toutefois, la digestion thermophile a été définie comme un procédé relativement plus sensible aux discontinuités de l'alimentation et aux surcharges accidentelles (Alatiqi *et al.*, 1994; Paulo *et al.*, 2001). Après une augmentation de la température de $55\text{ à }65\text{ }^{\circ}\text{C}$, un temps équivalent à trois temps de séjour sont nécessaires afin de stabiliser le réacteur et il en résulte une diminution de l'activité méthanogène (Ahring *et al.*, 2001).

La supériorité du traitement anaérobie thermophile a permis de réduire le volume du réacteur et de traiter des effluents plus concentrés (Hobson et Wheatley, 1993; Alatiqi *et al.*, 1998; Perez *et al.*, 1999). Pour certains cas particuliers de la distillation de la vinasse et les usines de production de pâte à papier, les conditions thermophiles sont parfaitement appropriées puisque les eaux usées produites ne nécessitent pas de préchauffage (Perez *et al.*, 1999; Vogelaar *et al.*, 2002).

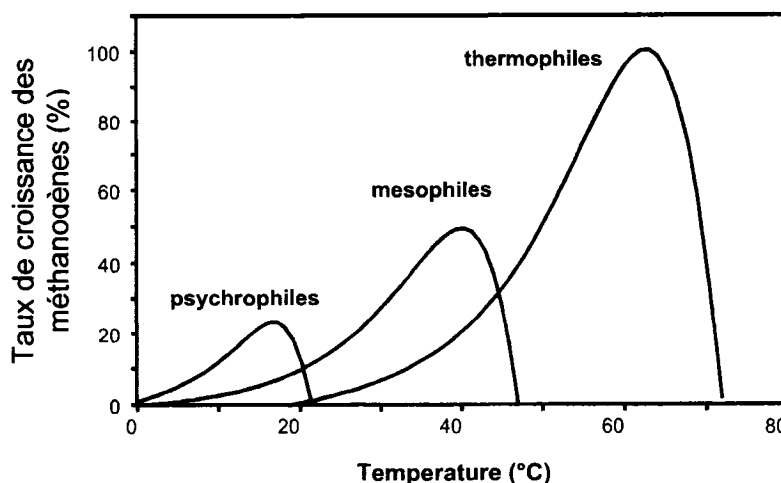


Figure 2.2 : Taux de croissance des bactéries méthanogènes vs température (Batstone *et al.*, 2002)

Speece et Kin (1970) ont observé une amélioration de l'activité méthanogène d'un réacteur mésophile lorsque la température est augmentée brusquement de 35 à 45 °C. D'autres études ont montré que des augmentations de températures de 35 à 45 °C sur une période de 4 à 24 heures ne présentent pas d'effets significatifs, tandis que des augmentations de températures au delà de 45 °C ont entraîné une diminution significative de l'activité microbiologique et augmenté la lyse cellulaire (van Lier *et al.*, 1990). Les bactéries méthanogènes sont donc plus sensibles aux variations de températures que les bactéries acidogènes et acétogènes (Visser et Lettinga, 1993). Cependant, le rétablissement de l'activité méthanogène mésophile a été démontré avec succès après une application à court terme de températures

thermophiles (45-65 °C) (Ahn et Forster, 2002). Toutefois, une exposition prolongée de la biomasse mésophile à des conditions de température thermophile induit des modifications difficilement réversible des voies métaboliques de biodégradation (van Lier *et al.*, 1990; Bouskova *et al.*, 2005).

2.3 Instrumentation de la digestion anaérobie

L'instrumentation des procédés biologiques est primordiale pour comprendre et interagir avec le procédé afin d'orienter son fonctionnement grâce à une commande appropriée. Cependant, l'instrumentation est la principale limitation à l'application des procédures de contrôle pour les procédés biologiques à l'échelle industrielle. La difficulté rencontrée avec les procédés biologiques est de positionner les micro-organismes dans des conditions opératoires de manière à ce qu'ils expriment au mieux leurs prédispositions. Au cours des vingt dernières années, la problématique de l'instrumentation des procédés de dépollution biologique a suscité une large attention (Vanrolleghem et Lee, 2003). Aujourd'hui, encore trop peu de municipalités et d'industries possèdent des installations de traitement des eaux largement instrumentées (Jeppsson *et al.*, 2002). Pourtant il a été démontré que l'instrumentation couplée à un système de contrôle permettait de réaliser de larges bénéfices. La mesure en ligne de l'ammonium combinée avec un système de contrôle de l'oxygène dissous ont permis la réduction des coûts opératoires liés à l'oxygénation des

boues activées (Ingildsen *et al.*, 2002). Dans le cas de la digestion anaérobie, sa fragile stabilité et la connaissance imparfaite de ces réactions biologiques misent en jeu nécessitent invariablement des méthodes mesures extensives pour sa compréhension et son bon fonctionnement.

La mesure du biogaz produit représente une indication indirecte de l'efficacité du traitement anaérobie. Les variations de la composition du biogaz (méthane, dioxyde de carbone) permettent la détection des situations de stress engendré par une surcharge organique ou des composés toxiques provoquant un déséquilibre entre la production et la consommation des AGV (Harper et Pohland, 1986). La teneur en hydrogène du biogaz a été définie comme un paramètre clé pour la surveillance et le contrôle des réacteurs anaérobies méthanogéniques (Pauss et Guiot, 1993; Voolapalli et Stuckey, 2001). Le rendement de méthane est un paramètre représentatif de la l'efficacité des réacteurs anaérobies et permet la détection des surcharges organiques (Michaud *et al.*, 2002). Toutefois, le biogaz produit est le produit final du traitement anaérobie et constitue une représentation des substances présentent dans le réacteur ou à l'entrée. C'est pourquoi, il est plus judicieux de suivre l'activité des réacteurs anaérobies dans la phase liquide.

Dans la phase liquide, les déséquilibres du traitement anaérobie influencent principalement sur les intermédiaires de la digestion anaérobie, en l'occurrence

les acides gras volatiles (Ahring *et al.*, 1995). Le suivi du pH est aussi utilisé pour la surveillance des déséquilibres de la digestion anaérobie, car l'accumulation des acides gras volatiles induit une acidification du réacteur (Anderson et Yang, 1992; Inanc *et al.*, 1996). Le suivi de l'alcalinité et l'hydrogène dissous dans le réacteur permettent aussi la détection des déséquilibres du traitement anaérobie pendant les périodes de surcharge (Hawkes *et al.*, 1993; Cord-Ruwisch *et al.*, 1997). La demande chimique en oxygène (DCO) est une des variables les plus importantes pour le suivi de l'enlèvement du carbone, cependant la mesure en ligne de la DCO est encore très peu utilisée à l'échelle industrielle (Jeppsson *et al.*, 2002).

Au cours des dix dernières années des systèmes de mesures capables de fournir une mesure ligne automatisée des principaux paramètres des procédés de digestion anaérobies ont été développés pour le suivi et le contrôle des procédés de traitement des eaux. Un capteur titrimétrique a été proposé pour la mesure en ligne des AGV et de l'alcalinité dans un réacteur anaérobie (Lahav *et al.*, 2002; von Sachs *et al.*, 2003). Récemment des systèmes de mesures employant la technologie spectrométrique dans le domaine de l'infra rouge et du proche infra rouge ont fait l'objet d'une recherche avancée afin de permettre la mesure en ligne des procédés biologiques (Vaidyanathan *et al.*, 2001; Steyer *et al.*, 2002; Tosi *et al.*, 2003; Harbeck *et al.*, 2004). Ces méthodes de mesure par spectrométrie infra rouge ont la particularité de

fournir une mesure en ligne simultanée des paramètres du procédé tels que la concentration de biomasse, le glucose, l'alcalinité, la DCO et les AGV.

2.3.1 Mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes

La mesure en ligne de la fluorescence dans le domaine de l'ultraviolet et du visible a été appliquée avec succès pour la détection rapide des déséquilibres des bioprocédés (Reynolds et Ahmad, 1997; Reynolds, 2003), mais aussi pour évaluer l'activité métabolique des bioprocédés (Peck et Chynoweth, 1992). La majorité des produits intermédiaires des réactions biologiques (protéines, cofacteurs, vitamines) sont fluorescents à des longueurs d'ondes excitations et d'émissions particulières (voir Figure 2.3) (Lindemann *et al.*, 1998; Marose *et al.*, 1998; Skibsted *et al.*, 2001).

Le signal de fluorescence du cofacteur NAD(P)H a été proposé pour assurer le suivi et le monitoring des procédés de traitement des eaux usées dans des conditions aérobies (Chen *et al.*, 2003; Farabegoli *et al.*, 2003). Dans plusieurs études, il a été établi qu'un bon indicateur de mesure en ligne devrait être corrélé au statut microbiologique du procédé, et fonctionner en temps réel avec une instrumentation fiable et robuste (Nordberg *et al.*, 2000). Toutefois, les eaux usées contiennent une grande quantité de protéines, d'acides aminés et

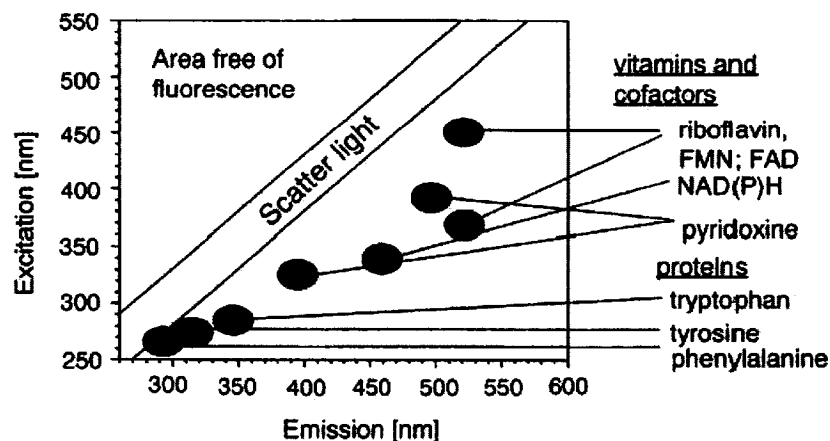


Figure 2.3 : Fluorescence excitation-émission (Skibsted *et al.*, 2001)

d'autres composés fluorescents peuvent interférer avec la fluorescence du composé NAD(P)H (Tartakovsky *et al.*, 1996a). Dans cette optique, la mesure en ligne de la fluorescence a été améliorée grâce à l'utilisation de la mesure de fluorescence à multiples longueurs d'ondes excitations et à multiples longueurs d'ondes émissions (Tartakovsky *et al.*, 1996a; Tartakovsky *et al.*, 1996b; Lindemann *et al.*, 1998; Knüttel *et al.*, 2001; Wolf *et al.*, 2001; Boehl *et al.*, 2003; Hagedorn *et al.*, 2003). Les longueurs d'ondes d'excitation et d'émission sont variées de manière à obtenir des spectres en deux dimensions qui sont par la suite analysés à l'aide de méthodes d'analyses statistiques multivariées (Skibsted *et al.*, 2001).

La mesure spectrométrique de la fluorescence est une méthode de mesure non invasive qui ne requière aucun consommables additionnels (réactifs) pour son fonctionnement (Langergraber *et al.*, 2003). À ce jour, de nombreuses réalisations ont été proposées pour le suivi des procédés de traitement des eaux et bioprocédés. Le suivi des fermenteurs anaérobies et de la dénitrification à l'aide de la fluorescence des composé intermédiaires et des cofacteurs (Peck et Chynoweth, 1992; Tartakovsky *et al.*, 1996b; Ritzka *et al.*, 1997; Chen *et al.*, 2003). Un spectromètre UV/VIS (200-750 nm) a été utilisé pour mesure en ligne de la DCO, des solides et du nitrate d'un réacteur séquentiel à l'échelle pilote et d'une usine de traitement des eaux de pâte à papier (Langergraber *et al.*, 2004a; Langergraber *et al.*, 2004b). La mesure de la fluorescence a été employée pour l'évaluation de la qualité des eaux usées et des eaux souterraines (Thomas *et al.*, 1997; Dahlen *et al.*, 2000). Le suivi de la croissances des procédés semi-continus à cultures bactériennes ou à cultures de levures a également été réalisé à l'aide de la mesure en ligne de la fluorescence UV/VIS des composés fluorescents (Lindemann *et al.*, 1998; Marose *et al.*, 1998; Hagedorn *et al.*, 2004; Hisiger et Jolicoeur, 2005; Hantelmann *et al.*, 2006).

2.3.2 Analyses et régressions multi-variables

Les systèmes de mesures spectrométriques sont de systèmes multiparamétriques qui permettent la mesure simultanée des matières organiques et des solides en suspension moyennant un traitement statistique approprié des spectres de fluorescence. Une relation linéaire entre la concentration d'un seul composé fluorescent et le signal de la fluorescence est donnée par la loi de Lambert-Beer (White et Argauer, 1970). Cependant, les eaux usées sont uniques et constituées d'un grand nombre de substances solubles et solides. La superposition des signaux de fluorescence pour chacune de ces substances nécessite une calibration rigoureuse pour chacune des eaux usées mesurées. Les méthodes d'analyses et de régressions statistiques multi-variables sont employées pour la calibration des systèmes spectrométriques de mesure en ligne des bioprocédés et des procédés de traitement des eaux (Hagedorn *et al.*, 2003; Tosi *et al.*, 2003; Langergraber *et al.*, 2004a; Langergraber *et al.*, 2004b). La forte colinéarité entre la fluorescence et les paramètres mesurés nécessite l'emploi de méthodes de régressions statistiques multi-variables telle que la régression par les moindres carrés partiels ou la régression par composantes principales (PCR) afin d'établir une relation entre la concentration et la fluorescence (Russel, 2000; Kano *et al.*, 2001; Rosen et Lennox, 2001).

La régression par les moindres carrés partiels (PLS) est une méthode de régression linéaire qui permet de réduire la dimension de la matrice des

données (variables indépendantes) en variables latentes en maximisant la corrélation entre les variables indépendantes et dépendantes (Wold *et al.*, 2001). La régression par composantes principales (PCR) consiste en une combinaison de l'analyse par composantes principales (PCA) et une régression multilinéaire (MLR), où l'analyse par composante principale est une méthode linéaire qui permet la réduction de la dimension des données par la décomposition de la variabilité des données (MacGregor *et al.*, 2005). Ces méthodes d'analyses et de régression multi-variables ne sont pas toujours systématiquement appliquées aux procédés donc le comportement est fortement non linéaire (Dong et McAvoy, 1996). Des réseaux neuronaux, des modèles quadratiques et des modèles ARX ont été proposés pour palier à la non linéarité des procédés biologiques (Baffi *et al.*, 2002; Skoglund *et al.*, 2002). Des méthodes d'analyses PCA non linéaires utilisant les réseaux neuronaux associatifs (Kramer, 1991) et l'analyse PCA noyau (Jade *et al.*, 2003; Lee *et al.*, 2004) ont démontré améliorer la capacité prédictive des modèles de régression. L'analyse PCA est principalement appliquée en industrie pour réduction des données, la visualisation, le diagnostique, le contrôle de qualité, la détection et l'isolation des défauts des capteurs (Bakshi, 1998; Brauner et Shacham, 2000; Haiqing *et al.*, 2000; Russel, 2000; Wang *et al.*, 2002; Lee *et al.*, 2005).

2.4 La modélisation de la digestion anaérobie

La modélisation de la digestion anaérobie est organisée autour des quatre principales étapes de ce procédé (l'hydrolyse, l'acidogénèse, l'acétogénèse et la méthanogénèse). Cependant, la conception d'un modèle mathématique dynamique regroupant chacune de ces étapes et interactions se révèle laborieux, notamment à cause de la complexité des réactions biochimiques impliquées. Au cours des trente dernières années, de nombreuses recherches ont été menées afin d'améliorer la compréhension des phénomènes d'inhibition des bactéries anaérobies dans le but d'optimiser l'opération de ce type de réacteurs. Andrews (1968) a introduit un modèle de cinétique dans lequel la croissance des microorganismes est inhibée par le substrat et a proposé par la suite un modèle dynamique à une seule population bactérienne. Mosey (1982) a établi un modèle mathématique pour la biodégradation anaérobie comprenant quatre populations bactériennes, deux acidogènes et deux méthanogènes, et tenant également en compte de la régulation du métabolisme anaérobie par l'hydrogène. Par la suite, de nombreux auteurs ont modifié et amélioré l'approche de modélisation de la digestion anaérobie en y ajoutant des inhibitions additionnelles, tel que le pH, le nitrate, l'ammoniac, les acides gras volatiles et etc. (Moletta *et al.*, 1986; Costello *et al.*, 1991; Angelidaki *et al.*, 1993; Buffiere *et al.*, 1995). Le métabolisme complexe de la digestion anaérobie requiert le développement de modèles mathématiques

considérant un grand nombre de populations bactériennes et plusieurs substrats. Par conséquent ces modèles possèdent un nombre considérable de paramètres à identifier (Angelidaki *et al.*, 1999). Par contre, la faible disponibilité des données sur les digesteurs anaérobies limite fortement l'identification des paramètres à inclure dans les modèles en plus de restreindre la validation dynamique de ceux-ci dans des conditions d'opérations suffisamment variées (charge organiques, temps de retentions, températures) (Simeonov, 1999; Massé et Droste, 2000; Bernard *et al.*, 2001). Le transfert de matière entre les substrats et les microorganismes nécessite une modélisation à l'échelle macroscopique, notamment dans le cas des réacteurs anaérobies granulaires à flux ascendants et à biomasse fixée (Buffiere *et al.*, 1995; Haag *et al.*, 2003). Une autre approche de modélisation consiste à utiliser un modèle dynamique avec des paramètres distribués sur la hauteur du réacteur (Dochain *et al.*, 1997; Singhal *et al.*, 1998; Zeng *et al.*, 2005).

La collaboration d'un grand nombre d'experts du domaine de la digestion anaérobie a permis la création du modèle ADM1, une initiative supportée par l'Association Internationale de l'Eau (IWA) (Batstone *et al.*, 2002). La vocation du modèle ADM1 est de fournir une plateforme commune pour la recherche, le développement, l'opération et l'optimisation des procédés de digestion anaérobie. Le modèle comporte 32 variables d'états dont sept sont des

populations bactériennes différentes. Les étapes de décomposition de la matière organique, d'hydrolyse, d'acidogénèse, d'acétogénèse et de méthanogénèse sont prises en compte dans ce modèle. L'inhibition non-compétitive de l'hydrogène dans l'étape acidogénèse par les acides gras dissociés est également considérée. Plusieurs applications du modèle ADM1 ayant pour but la modélisation de la digestion anaérobie ont été rapportées dans la littérature, autant à l'échelle laboratoire qu'à l'échelle industrielle (Batstone et Keller, 2003; Blumensaat et Keller, 2005; Shang *et al.*, 2005). Toutefois, les modèles intégrant avec de nombreux détails chacune des étapes du processus de digestion anaérobie ne sont pas facilement utilisables pour le contrôle (Bastin et Dochain, 1990; Simeonov, 1999; Bernard *et al.*, 2001). Une approche alternative pour le contrôle de la digestion consiste à définir des modèles non linéaires dynamiques plus facilement identifiables, où les paramètres sont considérés instationnaires et sont estimés à partir des mesures obtenues avec des méthodes d'optimisation (Simeonov *et al.*, 1996; Premier *et al.*, 1997).

Bastin et Dochain (1986) ont proposé un algorithme pour l'estimation en continu des taux de croissance des procédés de fermentation. Aucune mesure analytique des taux de croissances n'est nécessaire, puisque ceux-ci sont estimés en continu (Pomerleau et Perrier, 1990). Le modèle dynamique est reformulé à l'aide d'observateurs asymptotiques, tel que le filtre de Kalman

étendu ou l'observateur de Luenberger, de manière indépendante des taux de croissance ou des paramètres de cinétique (Dochain, 2003). Le filtre de Kalman étendu est un observateur facile à obtenir à partir de la représentation du modèle en espace d'état. L'observateur de Luenberger étendu est obtenu par la linéarisation du modèle, mais les propriétés de la stabilité et de la convergence ne sont que localement garanties autour du point de linéarisation. La principale limitation des observateurs asymptotiques est que leur vitesse de convergence est dépendante des conditions d'opérations. Une autre méthode proposée par Bastin et Dochain (1990), appelée estimateur-observateur (OBE), est très appropriée pour l'estimation en continu des taux de croissance à partir de la mesure des variables d'états (Farza *et al.*, 1999; Smets *et al.*, 2002). Par un découplage du modèle dynamique, les OBE permettent l'estimation simultanée et en continu des variables d'états et des paramètres de cinétiques. L'ajustement des OBE a été largement étudié (Pomerleau et Perrier, 1990; Oliveira *et al.*, 1996). Une procédure systématique a été proposée pour l'ajustement des OBE pour l'estimation en continu des paramètres de cinétique (Perrier *et al.*, 2000). Récemment, la stabilité et la convergence des OBE ont été réexaminées en détails pour l'estimation en continu des paramètres de cinétiques (Oliveira *et al.*, 2002).

2.4.1 La modélisation multi-modèle

L'approche généralement employée pour la modélisation des procédés fortement non linéaires consiste à établir un modèle mathématique couvrant l'ensemble des conditions d'opérations. Le fractionnement de l'espace des variables d'entrées à l'aide de la logique a été proposé, et la modélisation est assurée par l'interpolation de modèles linéaires ou non linéaires (Takagi et Sugeno, 1985). Cependant, cette approche de modélisation ne permet pas l'identification des paramètres en parallèle de l'établissement de la structure du multi-modèle (Boukhris *et al.*, 1999). La ségrégation des régimes de fonctionnement a également été proposée pour la modélisation multi-modèles des procédés non linéaires, où chaque régime de fonctionnement correspond à un modèle local linéaire (Johansen et Foss, 1995; Banerjee *et al.*, 1997). La sélection du ou des modèles locaux les plus appropriés dans la structure du multi-modèle a été longuement discutée (Johansen et Foss, 1995; Banerjee *et al.*, 1997; Murray-Smith et Johansen, 1997; Gugaliya *et al.*, 2005). Dainson *et al.* (1995) ont proposé un multi-modèle permettant la modélisation des réactions biologiques non linéaires où la commutation entre les différents modèles locaux est gouvernée par la justesse de la prédiction. Azimzadeh *et al.* (2001) ont par ailleurs proposé un multi-modèle pour la modélisation et contrôle en continu de la trajectoire d'un procédé de fermentation.

Cette approche de modélisation par ségrégation des régimes de fonctionnement a démontré de nombreux avantages pour les procédés non

linéaires, mais également pour le contrôle en continu (Murray-Smith et Johansen, 1997; Azimzadeh *et al.*, 2001). La modélisation multi-modèle a été appliquée avec succès pour la modélisation, l'observation et le contrôle en continu de la digestion anaérobie (Tartakovsky *et al.*, 2002; Tartakovsky *et al.*, 2005). La structure du multi-modèle a été définie par rapport à la subdivision de l'activité de la digestion anaérobie en phase de fonctionnement. Les phases de méthanogénèse, de surcharge organique, d'acidogénèse et d'inhibition par l'hydrogène ont été retenues pour la ségrégation du processus de digestion anaérobie en fonction de l'activité microbiologique. Chacune des phases de fonctionnement sont représentées par un modèle non linéaire dynamique contenant peu de paramètres, qui sont facilement identifiables. Cependant, ces modèles sont uniquement valides pour le régime de fonctionnement auquel ils ont été identifiés (Azimzadeh *et al.*, 2001). La structure globale du multi-modèle est obtenue par l'interpolation des différents modèles locaux et celui étant le plus représentatif est sélectionné à l'aide d'un système de diagnostique fondé sur la connaissance du procédé et des mesures disponibles (Azimzadeh *et al.*, 2001; Tartakovsky *et al.*, 2002).

2.4.2 Les systèmes experts

Établis à partir de l'analyse des variables mesurables en ligne, les systèmes de diagnostiques permettent l'estimation de l'état de fonctionnement des procédés

biologiques. Les règles de la logique floue intègrent la connaissance et de l'expérience humaine. À partir de la mesure en ligne du méthane et de l'hydrogène, la logique floue est capable de réaliser une ségrégation des procédés de digestion anaérobie par rapport à l'activité microbiologique et de fournir un diagnostique en ligne (Marsili-Libelli et Müller, 1996; Carrasco *et al.*, 2004). Ces systèmes experts permettent également de faire la distinction entre les différentes phases de fonctionnement des réacteurs anaérobies (normal, surcharge, toxicité, inhibition, etc.). La détection des problèmes d'opération des réacteurs anaérobies et des défauts de l'instrumentation est également possible avec la logique floue (Steyer *et al.*, 2001; Lardon *et al.*, 2004).

Il existe des systèmes experts qui utilisent des règles logiques basées sur la connaissance et l'expérience humaine des bioprocédés (Bousson *et al.*, 1998). L'analyse des données mesurables en ligne permet de déterminer l'état du procédé et d'effectuer les recommandations pour l'opération des procédés de traitement anaérobie (Puñal *et al.*, 2002). Une autre application des systèmes de diagnostique a été d'assurer la sélection du modèle local le plus approprié à partir de l'analyse des mesures en ligne, à l'intérieur d'un multi-modèle (Tartakovsky *et al.*, 2002; Tartakovsky *et al.*, 2005). Les systèmes experts ont été également employés pour l'optimisation des digesteurs anaérobie en contrôlant le taux de dilution de l'eau usée par rapport à la mesure en ligne de la production de méthane (Pullammanappallil *et al.*, 1998). Ils sont aussi

utilisés pour la supervision de haut niveau de l'ensemble des opérations des usines de traitement des eaux usées (Paraskevas *et al.*, 1999).

2.5 Contrôle de la digestion anaérobie

Les procédures de contrôle non linéaires sont établies par des manipulations algébriques de modèles non-linéaires. La conception d'une méthode de contrôle non linéaire suppose que la structure du modèle et sa cinétique sont parfaitement connues. En pratique, les paramètres de cinétiques sont généralement peu connus et sont fréquemment remplacés par leurs estimations. Si un contrôleur est pourvu d'une estimation des paramètres de cinétique, il est alors couramment désigné comme un *contrôleur adaptatif*. Un contrôleur adaptatif dispose d'une capacité d'adaptation face aux variations de la dynamique du procédé (Bastin et Dochain, 1990; Soroush, 1998).

Récemment, l'application des méthodes de contrôle pour les systèmes non linéaires a été discutée (Nikolaou et Misra, 2003). Il en ressort que les procédés non linéaires ne nécessitent pas systématiquement une commande non linéaire, puisqu'une loi de commande linéaire peut être suffisante. Dans cette optique, Bastin et Dochain (1990) ont présenté une approche de contrôle pour les bioprocédés non linéaire par linéarisation exacte. Cette approche est

basée sur l'utilisation d'une boucle fermée linéaire, intrinsèquement stable quel que soit le point de fonctionnement du système.

CHAPITRE 3 : MATÉRIELS ET MÉTHODES

Dans ce chapitre, l'ensemble des matériels et méthodes employés sont présentés, tels que le capteur de mesure en ligne de la fluorescence, le réacteur anaérobie, les méthodes analytiques et les procédures expérimentales.

3.1 Capteur de fluorescence à multiple longueurs d'ondes

Le système spectroscopique de mesure en ligne de la fluorescence à multiples longueurs d'ondes est constitué d'une ou plusieurs sources de lumière connectées à une sonde de réflectométrie (R400-7, Ocean Optics Inc., Dunedin, Florida, USA) comprenant six fibres optiques pour l'excitation et une pour l'émission, et d'un spectromètre (USB2000, Ocean Optics Inc., Dunedin, Florida, USA). Le spectromètre (matrice CCD de 2048 éléments) permet la mesure de la fluorescence dans le domaine de l'ultra-violet et du visible pour des longueurs d'ondes allant de 250 à 800 nm avec une précision de 0.9 nm. La sonde de fluorescence est placée perpendiculairement au flux afin de permettre la mesure de la fluorescence en présence de particules dans la phase liquide. L'excitation est constituée de source de lumière au xénon UV/VIS de 220 à 720 nm (PX-2, Ocean Optics Inc., Dunedin, Florida, USA) et

d'une source de lumière UV à 380 nm (LS-450 avec une UV LED, Ocean Optics Inc., Dunedin, Florida, USA). Les spectres de fluorescence sont mesurés à un intervalle régulier de quelques secondes à plusieurs minutes, suivant les durées d'intégrations. Avant chacune des mesures de la fluorescence, le spectre de base (fluorescence naturelle du milieu sans excitation) est soustrait au spectre de fluorescence.

Le système de mesure hors-ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes est constitué d'une source de lumière halogène UV/VIS DT-1000 Deutérium Tungstène (Ocean Optics Inc, Dunedin, Florida, USA) et d'un spectromètre à matrice CCD 2048 éléments (USB2000, Ocean Optics Inc., Dunedin, Florida, USA), connecté à un ordinateur. La fluorescence est mesurée dans une cuvette avec un angle de 90° entre le faisceau d'excitation et le faisceau d'émission. La fluorescence des échantillons est mesurée avec une durée d'intégration de 1000 ms.

3.2 Réacteurs anaérobies

Les expériences de digestion anaérobie sont réalisées avec des réacteurs anaérobies continus à hauts rendement à flux ascendant (UASB) et la fluidisation de la biomasse est assurée par une boucle de recirculation de la l'effluent dans le réacteur (voir Figure 3.1). Un réacteur d'une capacité de 3.5

litres avec 7 cm de diamètre interne et 90 cm de hauteur est employé pour le développement de la mesure en ligne de la fluorescence. Puis, un réacteur d'une capacité de 10.4 litres avec 14.3 cm de diamètre et 90 cm de hauteur est utilisé pour le contrôle de la trajectoire de la température. Les réacteurs sont inoculés avec de la biomasse anaérobie granulaire composée 50 g L⁻¹ de matière en suspension. La biomasse anaérobie utilisée provient d'un digesteur UASB (2x400 m³) d'une industrie de production de jus de fruits (A. Lassonde Inc., Rougemont, Québec, Canada).

Un tampon bicarbonate composé de NaHCO₃ 1.36 g L⁻¹ et KHCO₃ 1.74 g L⁻¹ est alimenté en continu dans le réacteur avec l'eau usée synthétique et les suppléments de minéraux. L'eau usée synthétique (315 g DCO L⁻¹) est constituée de sucrose 99 g L⁻¹, d'acide butyrique 48 g L⁻¹, d'extrait de levure 60 g L⁻¹, d'éthanol (95%) 35 g L⁻¹, de KH₂PO₄ 3 g L⁻¹, de K₂HPO₄ 3.5 g L⁻¹ et de NH₄HCO₃ 34 g L⁻¹. Le supplément de minéraux est constitué de AlK(SO₄)·12H₂O 0.0006 g L⁻¹, de H₃BO₃ 0.001 g L⁻¹, de Ca(NO₃)₂·4H₂O 0.5351 g L⁻¹, de Co(NO₃)₂·6H₂O 0.0075 g L⁻¹, de Cu(SO₄) 0.0003 g L⁻¹, Fe(SO₄)·7H₂O 0.0546 g L⁻¹, de MgSO₄ 0.1973 g L⁻¹, de Mn(SO₄)·H₂O 0.0151 g L⁻¹, de Na₂(MoO₄)·2H₂O 0.0023 g L⁻¹, de NiSO₄·6H₂O 0.0007 g L⁻¹, de Na₂SeO₄ 0.0013 g L⁻¹ et de ZnSO₄·7H₂O 0.0035 g L⁻¹. L'eau usée synthétique et la

solution de minéraux sont toujours introduites dans le réacteur avec le même débit.

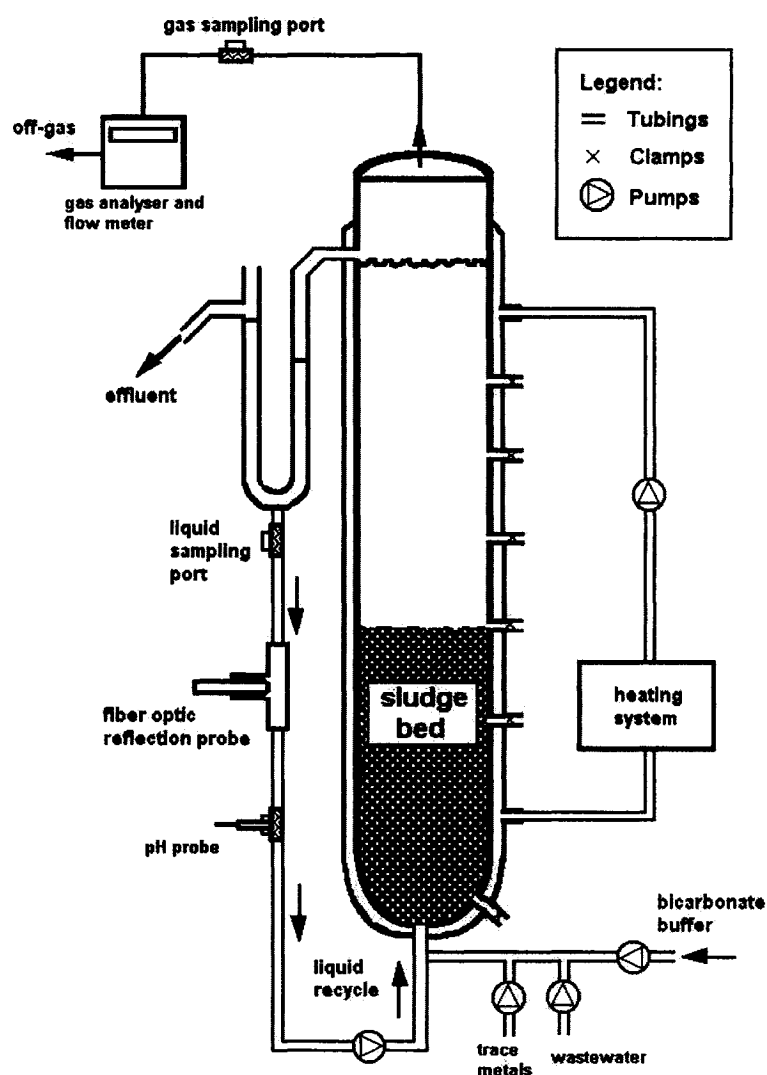


Figure 3.1 : Représentation schématique des réacteurs anaérobies expérimentaux

Un utilitaire a spécifiquement été programmé pour ce projet en Visual Basic (Microsoft Corporation, Redmond, WA) afin de gérer l'acquisition en temps réel (National Instruments, Austin, TX) et l'archivage du pH, de la température du réacteur, de la température de la double enveloppe, de la production de biogaz, de la teneur en méthane et en dioxyde de carbone du biogaz, de la DCO et des AGV. Le pH du réacteur est mesuré avec un pH-mètre (Cole-Parmer, USA) en continu dans la ligne de recirculation. La température du réacteur et celle de la double enveloppe sont mesurées avec des capteurs de type TH (Roctest, Québec, Canada). La production de biogaz est mesurée à l'aide d'un compteur électronique de bulles. La composition du biogaz (méthane et dioxyde de carbone) est mesurée à l'aide d'un analyseur de gaz (Ultramat 22P, Siemens, Germany). La DCO et les AGV sont eux mesurés en ligne dans la recirculation du réacteur par spectrofluorométrie à multiple longueurs d'ondes.

3.3 Méthodes analytiques

Approximativement 40 mL de l'effluent a été prélevé dans la ligne de recirculation du réacteur pour l'analyse des composés de la phase liquide. La moitié du prélèvement est centrifugé à 10,000 rpm pendant 10 minutes à 4 °C pour la séparation des particules solubles des particules solides. Le surnageant est utilisé pour réaliser la mesure de la DCO soluble et des AGV

(acétate, propionate et butyrate), tandis que la deuxième moitié de l'échantillon est utilisée pour la mesure de la DCO totale, des matières solides (MS) et des matières volatiles en suspension (MVS). Les analyses ont été réalisées en triplicate.

Le dosage de la demande chimique en oxygène (DCO) et des matières volatiles en suspension (MVS) est réalisé conformément aux méthodes standards internationales (APHA *et al.*, 1995). La DCO est dosée par l'oxydation de la matière organique en milieu acide (H_2SO_4) en présence de catalyseurs (Ag_2SO_4 et HgSO_4) et de bichromate de potassium ($\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$) en excès. Après deux heures d'incubation à 150 °C, la DCO est déterminée par la lecture de l'absorbance à 620 nm. Les matières solides (MS) sont mesurées après l'évaporation de l'échantillon liquide à 105 °C pendant 24 heures. Les matières volatiles en suspension (MVS) sont déterminées après la minéralisation des MS à 600 °C pendant 2 heures. Les acides gras volatiles (AGV) dans l'effluent sont déterminés par analyse chromatographique en phase gazeuse, (Sigma 2000, Perkin-Elmer, Norwalk, Connecticut, USA) muni d'une colonne en verre recouverte de 60/80 Carbopack C/0.3% Carbopack 20 NH_3PO_4 (Supelco, Mississauga, Ontario, Canada). La température de colonne est maintenue à 120 °C, l'injecteur et le détecteur sont eux maintenus à 200 °C précisément. L'azote est utilisé comme gaz porteur. L'erreur de mesure attribuée aux méthodes de dosage de la DCO et des AGV n'excède jamais 5

%, cependant l'échantillonnage induit une déviation standard 15 à 20 % tout particulièrement pour les faibles niveaux de DCO et d'AGV. La déviation standard de la mesure des MVS est de 15 à 20 % à cause de l'hétérogénéité des échantillons.

La composition du biogaz est déterminée à l'aide d'un chromatographe en phase gazeuse (Sigma 2000, Perkin-Elmer, Norwalk, Connecticut, USA), équipé d'un détecteur à conductivité thermique et de deux colonnes en tandem, mesurant chacune 61 cm par 3.2 mm et 1.83 m par 3.2 mm,. Elles sont recouvertes de 60/80 Chromosorb 102 et de 60/80 avec un tamis moléculaire 5A (Supelco, Mississauga, Ontario, Canada). L'argon est utilisé comme gaz porteur.

3.4 Tests d'activités de potentiel de production de méthane

Les tests d'activités sont réalisés en bouteilles sérologiques de 60 mL en condition anaérobie pour évaluer le potentiel de production de méthane de la biomasse granulaire. Au départ des tests activité, les bouteilles sont inoculées avec la biomasse et un tampon phosphate 0.05 M pour obtenir une concentration de 5 g MVS L⁻¹ et l'eau usée y est ajoutée pour obtenir une concentration initiale de 4 g DCO L⁻¹. De plus, le ciel gazeux des bouteilles est initialement constitué d'un mélange N₂/CO₂ (80%/20%). Pendant toute la durée

des tests d'activités, les bouteilles sérologiques sont incubées sur des agitateurs (100 rpm) à température contrôlée. Périodiquement, production de biogaz, la teneur en méthane et en hydrogène est mesurée. Le tampon phosphate de 0.05 M et pH 7.5 utilisé pour les activités de potentiel méthane est composé de (K_2HPO_4 2000 mg L^{-1}), ($\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 2550 mg L^{-1}), ($\text{NaH}_2\text{PO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 550 mg L^{-1}), 1 mL L^{-1} 0.1 % (w/v) resazurin, 10 mL L^{-1} 1.25 % (poids/volume) d'une solution de cystéine sulfide.

CHAPITRE 4 : RÉSULTATS ET DISCUSSION

Ce chapitre comprend l'ensemble des résultats expérimentaux et des simulations obtenus au cours de cette étude. La première partie de ce chapitre a été consacrée au développement d'un capteur de la DCO, des AGV et des MVS par la mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes. Dans la deuxième partie, la modélisation de la digestion à l'aide d'un multi-modèle a été examinée. Puis, une méthode pour l'estimation a été adjointe au multi-modèle pour l'estimation en continu des paramètres de cinétiques. Dans la troisième et dernière partie, une expérimentation a été menée avec un réacteur anaérobie de laboratoire, dans lequel la trajectoire de la température a été modulée par un contrôleur adaptatif au cours des périodes de surcharge organique.

4.1 Mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes

Les avantages du traitement anaérobie des eaux usées ont été clairement établis au cours des vingt dernières années, comparé au coût d'opération du traitement aérobie (oxygénation des bassins, traitement et disposition des boues biologiques produites) (Foresti, 2001; van Lier *et al.*, 2001). Pourtant, les implantations de digesteur anaérobie pour le traitement des eaux usées sont

toujours peu nombreuses, notamment à cause de la sensibilité de la digestion anaérobie aux variations de charge, menant à une détérioration de l'efficacité du traitement et à un entraînement de la biomasse (Pullammanappallil *et al.*, 1998; Dupla *et al.*, 2004). Cependant, l'adoption d'une stratégie de contrôle avec une boucle de commande rétroactive permettrait de compenser l'instabilité du processus de digestion anaérobie engendrée par les surcharges organiques et par la toxicité des effluents. Toutefois, cette approche de contrôle nécessite évidemment la mesure en continu d'un ou des différents paramètres pour la stabilisation de l'opération des réacteurs anaérobies. Tandis que le suivi de la production de biogaz fournit des informations importantes pour le diagnostique et la dynamique des réacteurs anaérobies (Pullammanappallil *et al.*, 1998; Steyer *et al.*, 2001; Puñal *et al.*, 2002), celui-ci représente toujours une indication indirecte de la composition de l'effluent. La mesure en continu de la DCO, des AGV et des MVS permettrait un meilleur suivi de la qualité de l'effluent, ainsi que le diagnostique et le contrôle en temps réel des réacteurs anaérobies. Récemment, la mesure en continu par spectrométrie infrarouges et proche infrarouges de la compositions des effluents a été démontrée avec succès (Tosi *et al.*, 2003; Dupla *et al.*, 2004; Spanjers *et al.*, 2006; Steyer *et al.*, 2006). Cette méthode permet la distinction les principaux paramètres de la digestion anaérobie (Spanjers *et al.*, 2006; Steyer *et al.*, 2006), mais il existe toujours un besoin pour le développement de nouveaux systèmes de la mesure en continu à moindre coût.

La mesure en continu de la fluorescence a été employée pour la mesure des différents métabolites et pour la détection rapide de la déstabilisation des procédés de fermentation (Peck et Chynoweth, 1992). La fluorescence du cofacteur NAD(P)H a été utilisée pour le suivi des procédés aérobies d'épuration des eaux usées (Farabegoli *et al.*, 2003). Cependant, les eaux usées contiennent en grande quantité de protéines, d'acides aminés et autres composés fluorescents qui interfèrent avec la fluorescence du cofacteur NAD(P)H (Tartakovsky *et al.*, 1996a). Plusieurs études ont montré que les performances de la mesure de la fluorescence ont largement été améliorées grâce à l'excitation et à l'émission à multiples longueurs d'ondes (Tartakovsky *et al.*, 1996a; Lindemann *et al.*, 1998; Marose *et al.*, 1998). Avec cette technique, les longueurs d'ondes d'excitations et d'émissions sont variées de manière à obtenir des spectres en deux dimensions, lesquels nécessitent l'utilisation de méthodes de traitement statistique multivariable. La méthode régression PLS permet d'établir une relation linéaire entre les paramètres mesurés et la fluorescence (Skibsted *et al.*, 2001). Afin d'améliorer le traitement statistique des spectres de fluorescence, des méthodes de régression non linéaires ont déjà été présentées pour tenir compte des non linéarités des procédés biologiques (Holcomb et Morari, 1992; Baffi *et al.*, 1999a; Baffi *et al.*, 1999b; Wolf *et al.*, 2001; Baffi *et al.*, 2002; Hagedorn *et al.*, 2003).

L'objectif de cette première partie a été de développer un système pour la mesure en ligne de la fluorescence, constitué de plusieurs sources de lumières (UV/VIS et UV) couplées avec un spectromètre à matrice CCD. Avec ce système, le balayage des longueurs d'ondes a seulement été réalisé pour les spectres d'émissions et la prédiction des principaux paramètres de la digestion anaérobie a été obtenue à l'aide d'un traitement statistique multivariable des spectres d'émissions. Dans cette étude, la calibration multiparamétrique de la mesure de la fluorescence a été évaluée selon trois méthodes statistiques de régressions : PLS, nPCR (Lee *et al.*, 2004) et SWR (Montgomery et Peck, 1992). Une comparaison entre ces trois méthodes de calibration a été réalisée avec un réacteur à l'échelle laboratoire de 3.5 litres qui était alimenté avec une eau usée synthétique, pour l'approximation et la prédiction des principaux paramètres de la digestion anaérobie. La mesure de la fluorescence a été appliquée pour la caractérisation d'échantillons de réacteur anaérobie. La mesure en ligne des principaux paramètres pour le suivi de la biodégradation anaérobie d'une eau usée d'une usine de fromages avec un réacteur de 3.5 litres a été conduite à l'aide la mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes.

4.1.1 Calibration de la mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes

Au cours de l'expérimentation menée avec le réacteur anaérobie, la charge organique appliquée a été variée afin de produire une large gamme de concentrations de DCO et d'AGV pour la calibration des modèles statistiques de régression. Les tests préliminaires ont démontrés que la source de lumière UV LED 380 nm fournit un plus au niveau de fluorescence pour l'eau usée synthétique.

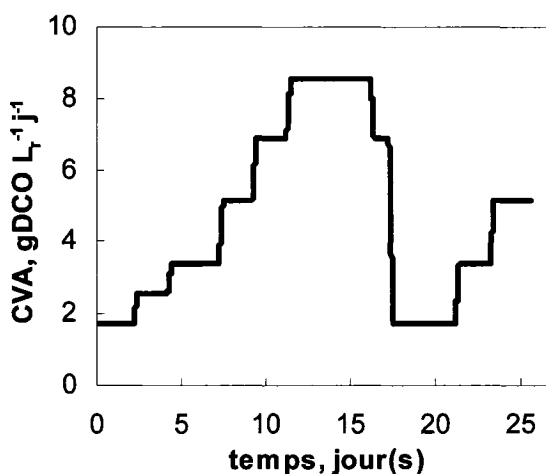


Figure 4.1 : Profil de la CVA (g DCO L_r⁻¹ j⁻¹) pour le réacteur anaérobie de 3.5 litres alimenté avec une eau usée synthétique.

Le profil de la charge organique appliquée au réacteur anaérobie est présenté dans la Figure 4.1. Au démarrage du réacteur, une charge organique de 1.7 g DCO L_r⁻¹ j⁻¹ a été imposée. Pour cette charge organique, la quasi-totalité de la matière organique a été transformée en méthane et la concentration de la DCO et des AGV après le traitement n'excédaient pas 100 et 10 mg DCO L⁻¹,

respectivement (voir Figure 4.2). Au cours des 12 premiers jours, la charge organique a été augmentée par paliers de 1.7 jusqu'à 8.6 g DCO L⁻¹ j⁻¹, puis diminuée à 1.7 g DCO L⁻¹ j⁻¹ au jour 17. La charge organique a ensuite été augmentée une deuxième fois de 1.7 à 5.1 g DCO L⁻¹ j⁻¹ entre les jours 20 et 25.

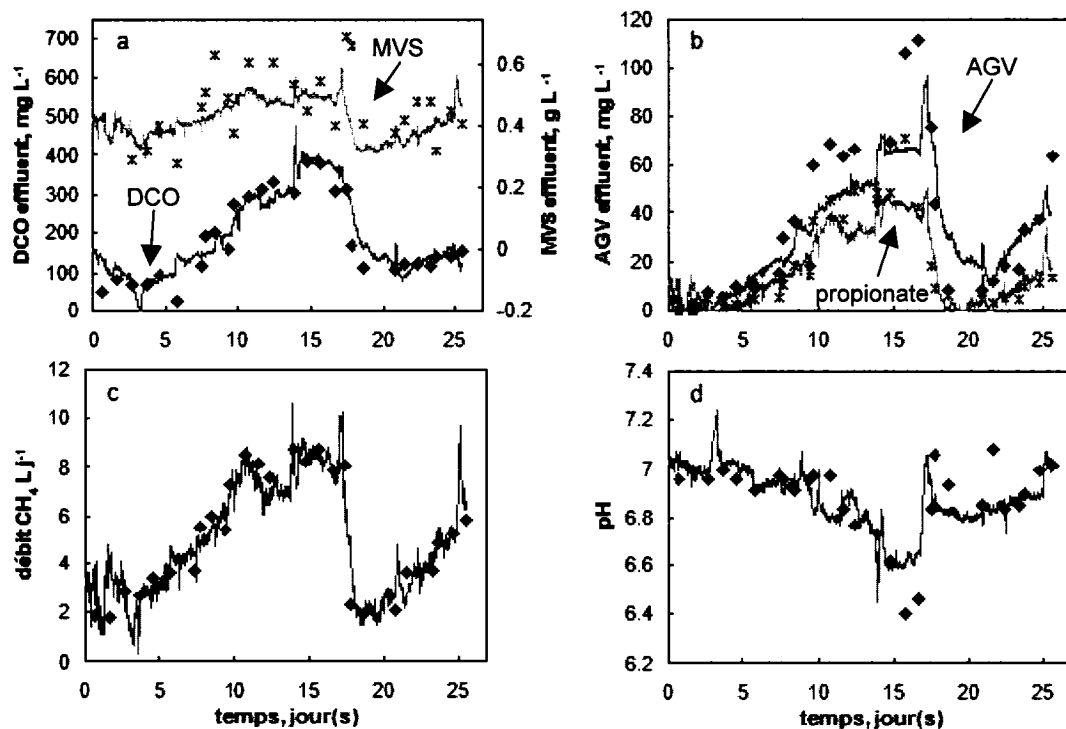


Figure 4.2 : Calibration et validation interne de la mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes avec la méthode de régression statistique PLS. (a) DCO et les MVS, (b) propionate et les AGV, (c) production de méthane et (d) pH dans le réacteur. (♦) représentent les mesures analytiques de COD, des AGV et du méthane alors que (x) représentent les MVS et le propionate. Les lignes pleines sont les prédictions obtenues avec la méthode PLS.

En plus des variations de charge, la boucle de contrôle du pH a été désactivée au jour 12 de l'expérimentation et la concentration du tampon bicarbonate a été diminuée de moitié. Par conséquent, la valeur du pH a progressivement diminuée de 7 à 6.4, tandis que les concentrations en DCO et en AGV ont été augmentées. La production de méthane a aussi été affectée par la faible valeur du pH. Au jour 17, la boucle de contrôle du pH a été réactivée et la composition du tampon bicarbonate a été fixée à sa valeur initiale.

Le réacteur a été échantillonné deux à trois fois par jour pour les mesures analytiques de la DCO, des AGV et des MVS. Le biogaz et le pH ont été mesurés toutes les 10 minutes à l'aide du système d'acquisition. La fluorescence a été mesurée directement dans la ligne de recirculation avec un intervalle de 10 minutes. Bien que la fluorescence ait été mesurée de 380 à 800 nm, les essais préliminaires avaient montrés que la précision de la calibration était améliorée en utilisant une gamme de longueurs d'ondes plus restreintes. Cette observation confirme les résultats qui ont été présentés par Vaidyanathan *et al.* (2001), par lesquels la troncature des spectres de fluorescence améliore les performances des traitements statistiques. Par conséquent, uniquement les longueurs d'ondes des spectres de fluorescence allant de 400 à 600 nm tout les 0.9 nm. Le domaine des spectres d'émission ont été diminués pour la calibration car les longueurs d'ondes inférieures à 400

nm et supérieures à 600 nm contiennent principalement des bruits de mesure aléatoire.

L'examen de la corrélation entre le niveau de la fluorescence et les mesures analytiques a été réalisé à l'aide de plusieurs méthodes de régression statistique multi-variables. Seulement la moitié des mesures analytiques ont été employées pour la calibration tandis que l'autre partie a été utilisée pour la validation de la prédiction des modèles statistiques. La régression PLS, nPCR et SWR ont été analysées pour chacune des mesures analytiques. La méthode de régression PLS consiste à établir une relation linéaire entre les variables latentes (LV) et les mesures. La régression nPCR utilise les composantes principales (PC), obtenues par l'analyse PCA, afin d'établir une relation non linéaire entre les mesures et les PC à l'aide de modèles quadratiques complets. La régression SWR est une méthode statistique qui permet la sélection des longueurs d'ondes les plus significatives pour ensuite établir une relation linéaire avec les mesures.

Afin de permettre une comparaison, le même nombre de paramètres pour chacun des modèles de régression ont été identiques pour l'ensemble des méthodes. Le nombre de LV pour le modèle PLS et le nombre de PC pour le modèle nPCR ont été déterminés par rapport à l'analyse de la variance (voir Tableau 4.1). La méthode de régression PLS a permis de capturer 73 à 81 %

de la variance avec trois LV pour la DCO et les AGV. Quatre LV ont été nécessaires afin d'obtenir des résultats similaires pour le méthane, le pH et les MVS. Par conséquent, trois LV composent les modèles de régression statistique pour la DCO et les AGV, et quatre LV pour le méthane, le pH et les MVS. Par contre, seulement 40 % de la variance a été capturée pour les MVS avec quatre LV, à cause de la forte dispersion des mesures analytiques de ceux-ci.

Tableau 4.1 : Pourcentage de la variance capturée avec les méthodes de régression PLS et nPCR

Modèle	PLS				nPCR	
	1 LV	2 LV	3 LV	4 LV	1 PC	2 PC
<i>tDCO</i>	17.3	73.9	<u>80.6</u>	85.5	95.3	99.8
<i>DCO</i>	10.9	61.9	<u>79.5</u>	82.6		
<i>AGV</i>	19.8	68.8	<u>73.4</u>	77.6		
<i>acétate</i>	19.6	66.1	<u>75.8</u>	79.4		
<i>propionate</i>	11.2	62.2	<u>75.2</u>	82.0		
<i>MVS</i>	8.12	25.4	31.1	<u>39.9</u>		
<i>méthane</i>	10.9	61.6	72.3	<u>88.5</u>		
<i>pH</i>	7.90	37.2	59.3	<u>66.8</u>		

L'analyse PCA a montrée que deux PC représentaient 99.8 % de la variance totale. Donc, les modèles de régression statistique PCR ont été constitués de deux PC et d'un modèle quadratique limité à un maximum de quatre termes statistiquement significatifs du modèle quadratique complet. Les modèles de régression SWR ont été définis à partir des quatre longueurs d'ondes les plus

significatives afin d'établir une relation linéaire avec les mesures analytiques. Deux procédures ont été envisagées pour la calibration des modèles de régression. Dans première procédure de la validation, appelée validation interne, les mesures analytiques impaires sont employées pour la calibration et les données paires sont utilisées pour la validation des modèles de régression. Cette technique de validation a permis d'évaluer la capacité de la prédiction des modèles de régression pour un court horizon de temps, soit de 8 à 15 heures. La deuxième procédure de validation (voir Figure 4.3), celle-ci appelée validation par intervalle, les mesures analytiques pour les périodes de 0 et 250 heures et 450 à 610 heures ont été utilisées pour la calibration des modèles de régression tandis que l'intervalle de 250 à 450 heures est employé pour la validation.

Un résumé de la calibration et de la validation interne de la mesure en ligne de la fluorescence est présenté (voir Tableau 4.2) pour les méthodes de régression statistique PLS, nPCR et SWR. Les trois méthodes de régression statistiques ont montré des coefficients d'ajustement R^2 de 0.72 et même supérieurs pour la calibration. Seul le coefficient d'ajustement R^2 pour les MVS était plus faible, à cause de la forte variabilité de la mesure analytique des MVS. La validation interne des différents modèles de régression a montré que les prédictions étaient acceptables avec les méthodes de régression PLS et SWR, avec des valeurs de R^2 supérieures à 0.70 et 0.54 pour la prédiction des

MVS. Par contre, les prédictions obtenues avec la méthode de régression nPCR ont montré un profond désaccord avec les mesures analytiques. Donc, la méthode de régression nPCR est appropriée seulement pour l'approximation des paramètres du réacteur.

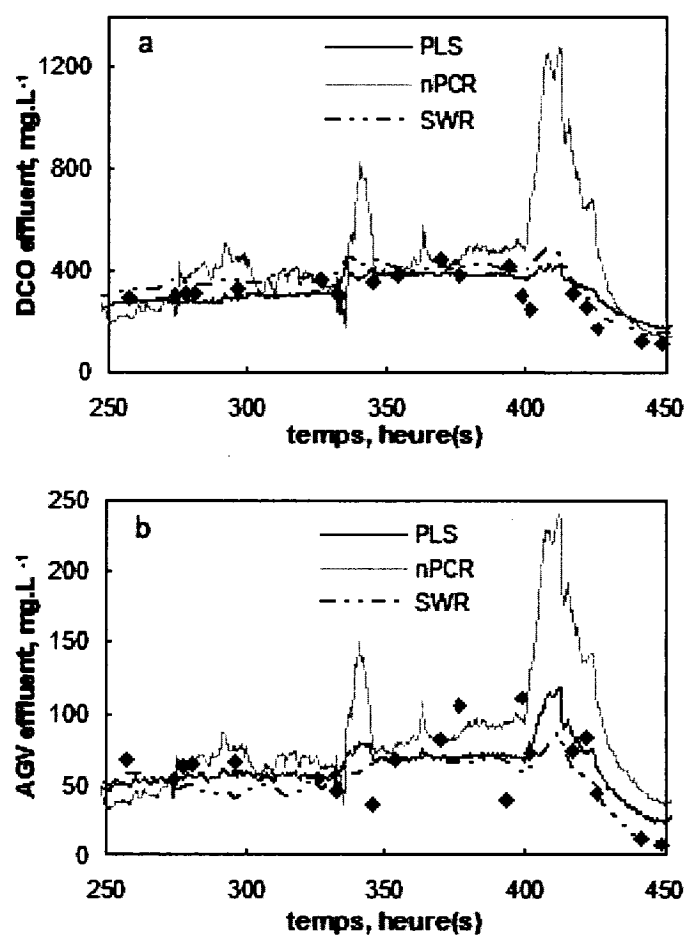


Figure 4.3 : Validation par intervalle de la DCO soluble (a) et des AGV (b) pour les modèles de régression PLS, nPCR et SWR sur 200 heures d'opération du réacteur de 3.5 litres. (♦) représentent les données analytiques.

Tableau 4.2 : Résultats de la validation interne des modèles de régression PLS, nPCR et SWR

modèle	PLS			
	Calibration		validation	
	R ²	RMSE	R ²	RMSE
<i>tDCO</i>	0.84	60.2	0.74	106
<i>DCO</i>	0.83	52.5	0.84	45.9
<i>AGV</i>	0.79	13.2	0.78	16.5
<i>acétate</i>	0.83	6.73	0.74	9.20
<i>propionate</i>	0.85	6.95	0.83	8.64
<i>MVS</i>	0.62	0.07	0.54	0.12
<i>méthane</i>	0.90	0.79	0.87	0.92
<i>pH</i>	0.75	0.08	0.69	0.11

modèle	nPCR			
	calibration		validation	
	R ²	RMSE	R ²	RMSE
<i>tDCO</i>	0.83	61.4	0.48	117
<i>DCO</i>	0.80	58.8	0.77	55.7
<i>AGV</i>	0.79	13.2	0.57	20.0
<i>acétate</i>	0.86	5.95	0.72	10.2
<i>propionate</i>	0.78	8.92	0.52	12.6
<i>MVS</i>	0.58	0.08	0.13	0.12
<i>méthane</i>	0.78	1.24	0.65	1.36
<i>pH</i>	0.72	0.09	0.49	0.11

modèle	SWR			
	calibration		validation	
	R ²	RMSE	R ²	RMSE
<i>tDCO</i>	0.86	55.7	0.74	107
<i>DCO</i>	0.86	47.2	0.75	61.3
<i>AGV</i>	0.82	12.6	0.69	20.5
<i>acétate</i>	0.84	6.34	0.62	11.9
<i>propionate</i>	0.84	7.50	0.73	11.6
<i>MVS</i>	0.62	0.07	0.55	0.11
<i>méthane</i>	0.91	0.71	0.89	0.84
<i>pH</i>	0.83	0.06	0.69	0.10

Tableau 4.3 : Résultats de la validation par intervalle sur 200h des modèles de régression PLS, nPCR et SWR

modèle	PLS			
	calibration		validation	
	R ²	RMSE	R ²	RMSE
<i>tDCO</i>	0.76	59.3	0.49	129
<i>DCO</i>	0.69	45.0	0.68	59.9
<i>AGV</i>	0.82	8.6	0.63	19.9
<i>acétate</i>	0.82	5.21	0.53	14.9
<i>propionate</i>	0.82	4.59	0.56	15.9
<i>MVS</i>	0.60	0.07	0.44	0.13
<i>méthane</i>	0.86	0.66	0.56	2.12
<i>pH</i>	0.58	0.05	0.42	0.24

modèle	nPCR			
	calibration		validation	
	R ²	RMSE	R ²	RMSE
<i>tDCO</i>	0.78	57.1	0.39	258
<i>DCO</i>	0.74	39.3	0.41	205
<i>AGV</i>	0.78	9.58	0.44	39.1
<i>acétate</i>	0.82	5.27	0.57	13.7
<i>propionate</i>	0.73	5.93	0.33	28.1
<i>MVS</i>	0.58	0.08	0.28	0.13
<i>méthane</i>	0.81	0.78	0.29	3.97
<i>pH</i>	0.57	0.05	0.01	0.29

modèle	SWR			
	calibration		validation	
	R ²	RMSE	R ²	RMSE
<i>tDCO</i>	0.78	56.6	0.18	264
<i>DCO</i>	0.71	43.0	0.23	158
<i>AGV</i>	0.82	8.36	0.20	52.0
<i>acétate</i>	0.84	4.93	0.27	25.6
<i>propionate</i>	0.84	4.23	0.32	26.0
<i>MVS</i>	0.60	0.07	0.27	0.19
<i>méthane</i>	0.89	0.57	0.28	3.77
<i>pH</i>	0.67	0.04	0.36	0.27

La calibration et la validation par intervalle de la mesure en ligne de la fluorescence a dévoilé que la méthode de régression PLS est beaucoup plus précise que les méthodes de régression nPCR et SWR pour la prédiction des paramètres du réacteur anaérobie (voir Figure 4.3). Des coefficients d'ajustement de R^2 de 0.6 à 0.9 ont été obtenus pour la calibration par intervalle avec les trois méthodes de régression. La validation par intervalle a exhibée des coefficients d'ajustement de 0.45 à 0.70 avec la méthode de régression PLS, tandis que les méthodes de régression nPCR et SWR ont présenté chacune des valeurs de R^2 inférieures à 0.4 (voir Tableau 4.3).

Les principaux paramètres de la digestion anaérobie ont été approximés grâce à la mesure en ligne de la fluorescence avec beaucoup de précision compte tenu de la variation de la charge organique appliquée au réacteur anaérobie. Chaque modification des conditions de fonctionnement a eu les répercussions attendues au niveau de la mesure de la fluorescence. Les approximations obtenues par traitement statistique de la fluorescence ont démontré contenir relativement moins de bruits de mesure que les données analytiques elles-mêmes, notamment pour l'approximation des AGV et des MVS. L'investigation menée pour la calibration de la mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes a montrée que la méthode de régression statistique PLS est la plus robuste autant à court terme qu'à long terme.

4.1.2 Application de la mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes pour la mesure hors-ligne de la DCO, des AGV et des MVS

Le système de mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes a également été appliqué pour la mesure d'échantillons d'un réacteur anaérobie. Pour ce faire, la fluorescence à multiple longueurs d'ondes des échantillons a été mesurée avec un angle de 90° entre l'excitation (source de lumière UV/VIS) et l'émission. Les spectres de fluorescences ont été tronqués de 400 à 600 nm, puis corrélés aux mesures analytiques à l'aide de méthode de régression PLS.

Le réacteur anaérobie de 3.5 litres a été alimenté avec une eau usée synthétique pour l'évaluation du potentiel de la mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes. La calibration et la validation de la mesure de la fluorescence ont été effectuées à l'aide de deux expérimentations totalisant 600 heures. La première expérimentation comptant 400 premières heures et 27 prélèvements, a été utilisée pour la calibration des modèles de régression statistique. La charge organique a graduellement été augmentée de 3.7 jusqu'à 22.3 g DCO Lr⁻¹ j⁻¹. La validation des modèles de régression a été conduite avec 24 échantillons prélevés sur le réacteur, au cours d'une seconde expérimentation d'une durée de 200 heures. Pour cette partie, la charge

organique a été initialement fixée à $1.9 \text{ g DCO L}^{-1} \text{ j}^{-1}$, puis augmentée à $16.3 \text{ g DCO L}^{-1} \text{ j}^{-1}$.

Tel que mentionné précédemment, la méthode de régression statistique PLS est utilisée pour l'approximation et la prédiction de la concentration de la DCO, des AGV et des MVS. De plus, le nombre de LV est fixé à cinq pour l'ensemble des modèles de régression. Le tableau 4.4 présente un résumé des résultats statistiques d'ajustement pour la calibration et la validation des modèles de régression. L'ensemble des modèles de régression ont montré des coefficients d'ajustement R^2 égal à 0.9 ou supérieurs pour la calibration des modèles de régression (voir Figure 4.4). La calibration a été appliquée à la fluorescence mesurée pour les 24 échantillons de la deuxième expérimentation et les modèles de régression ont permis d'approximer adéquatement les mesures analytiques de la DCO, des AGV, et des MVS (voir Figure 4.4). Des coefficients d'ajustement R^2 entre 0.6 et 0.7 ont été obtenus (Tableau 4.4). Pendant, la période de surcharge (150 à 200 heures), la mesure de la fluorescence a permis d'estimer convenablement les niveaux de la DCO (R^2 0.74) et des AGV (R^2 0.75). Le coefficient d'ajustement des MVS (R^2 0.6) a été sensiblement inférieur aux deux autres, mais la déviation standard des mesures analytiques des MVS est beaucoup plus élevée que celle de la DCO et des AGV.

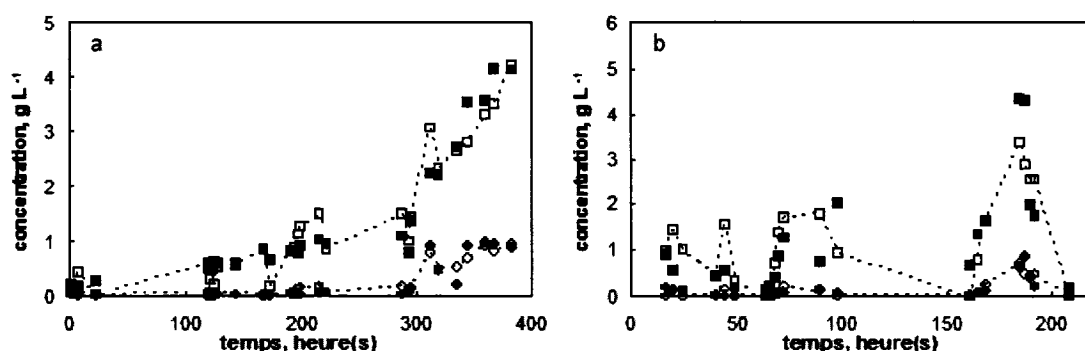


Figure 4.4 : Calibration (a) et validation (b) de la mesure hors-ligne de la DCO et des AGV par la mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes. (■) représentent les mesures analytiques de la DCO totale (g DCO L^{-1}) et (□) représentent les mesures de la DCO prédites avec la méthode PLS (g DCO L^{-1}). (◆) représentent les mesures analytiques des AGV (g DCO L^{-1}) et (◇) représentent les mesures des AGV prédites avec la méthode PLS (g DCO L^{-1}).

Tableau 4.4 : Résultats statistiques (R^2 et RMSE) de la calibration et de la validation pour les mesures hors-ligne DCO totale, AGV et MVS estimés par fluorescence.

modèle	gamme	calibration		validation	
		R^2	RMSE	R^2	RMSE
tDCO (g DCO L^{-1})	0.15 – 0.42	0.92	0.34	0.74	0.69
AGV (g DCO L^{-1})	0.01 – 0.9	0.89	0.09	0.75	0.13
MVS (g L^{-1})	0.7 – 3.1	0.97	0.22	0.63	0.61

Les niveaux de la DCO, des AGV et des MVS dans l'effluent des réacteurs anaérobie sont les paramètres les plus importants pour l'évaluation de l'efficacité et le diagnostic des procédés de digestion anaérobie. Les

méthodes analytiques pour la détermination de ces paramètres ne sont pas instantanées et induisent un délai non négligeable pour le diagnostique. L'adoption d'une procédure rapide pour l'évaluation de la qualité des effluents permettrait de fournir un diagnostique beaucoup plus rapide pour l'opération des bioprocédés (Tartakovsky *et al.*, 1996a; Hagedorn *et al.*, 2004). Dans cette optique, la fluorescence à multiple longueurs d'ondes est une méthode de mesure rapide qui ne nécessite aucun réactif additionnel pour son fonctionnement (Langergraber *et al.*, 2003).

Dans la présente étude, une eau usée synthétique a été utilisée pour analyser la calibration de la mesure de la fluorescence pour la prédiction des principaux paramètres de la digestion anaérobie. Cependant l'eau usée synthétique contient un faible quantité de molécules fluorescentes et par conséquent, la prédiction de la DCO est principalement corrélée à la fluorescence des protéines de l'effluent. Cette corrélation indirecte explique les faibles valeurs des coefficients d'ajustement R^2 obtenus. Néanmoins, l'application de cette méthode de mesure avec une eau usée industrielle devrait permettre d'obtenir des coefficients d'ajustement R^2 beaucoup plus élevés, car les eaux usées industrielles contiennent beaucoup plus de composés fluorescents d'origine organique.

4.1.3 Application de la mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes pour le suivi du traitement d'une eau usée agroalimentaire

Une démonstration de l'application de la méthode de mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes a été conduite avec un réacteur de 3.5 litres pour la biodégradation anaérobie d'une eau usée agroalimentaire provenant d'une usine de production de fromages. L'eau usée est composée principalement de DCO 1800-2200 mg L⁻¹, de protéines 30-120 mg L⁻¹, de gras 85-130 mg L⁻¹ et de phosphate 35-40 mg L⁻¹. Dans cette expérimentation, l'eau usée est diluée à l'entrée du réacteur (voir Figure 4.5). Le pH élevé de l'eau usée, supérieur à 10, n'a pas nécessité l'utilisation d'un tampon bicarbonate pour le fonctionnement du réacteur dans des conditions de neutralité. La fluorescence est mesurée directement dans la ligne de recirculation du réacteur toutes les 5 minutes. Les tests préliminaires ont montré que la source de lumière à large bande (Xénon, UV/VIS) procure un meilleur niveau de fluorescence. Donc, cette source de lumière a été employée pour l'expérimentation avec une eau usée industrielle. L'effluent du réacteur était visiblement opaque comparé aux expérimentations réalisées avec l'eau usée synthétique.

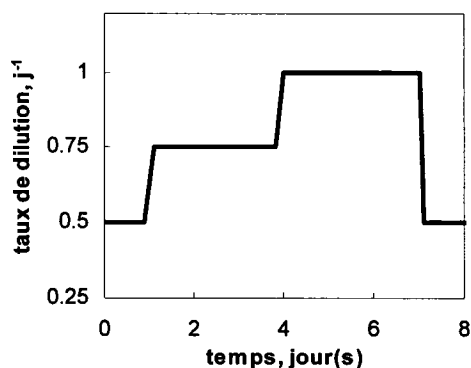


Figure 4.5 : Profil du taux de dilution de l'eau usée industrielle introduite dans le réacteur anaérobie de 3.5 litres.

La méthode de régression statistique PLS a été appliquée pour établir la calibration. Les modèles de régression ont été obtenus avec trois LV et quatre pour les MVS (voir Figure 4.6). Les spectres de fluorescence ont été analysés avec des longueurs d'ondes allant de 350 et 600 nm. Les modèles de régression ont été calibrés par rapport aux 22 échantillons prélevés pour la mesure de la DCO et les AGV. En ce qui concerne et les modèles de régression pour la production de méthane et le pH, ils ont été calibrés avec une série 115 mesures. Ceux-ci ont été appliqués à l'ensemble des spectres de fluorescence afin réaliser la prédiction de chacun des paramètres avec un intervalle de 5 minutes. Cependant, le manque de mesures analytiques de la DCO, des AGV et des MVS n'a pas permis de réaliser une validation par intervalle ou interne des modèles de régression.

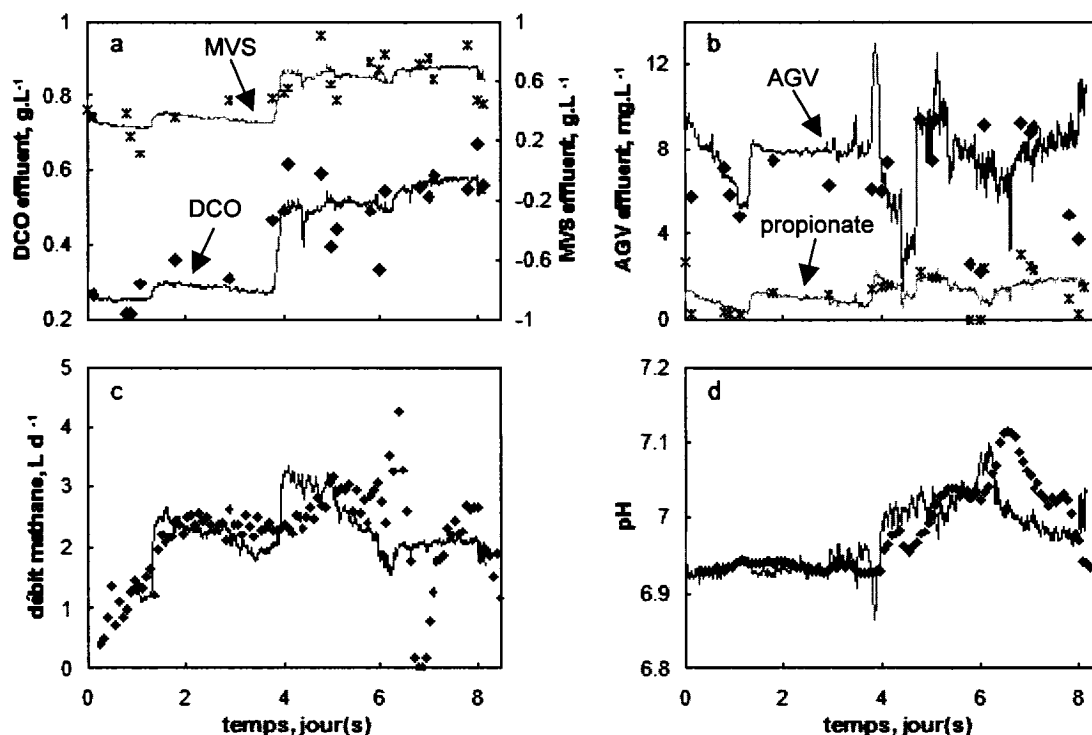


Figure 4.6 : Application de la mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes pour le suivi de la biodégradation anaérobie d'une eau usée industrielle. (x) et (♦) représentent les mesures analytiques. (♦) représentent les mesures analytiques de COD, des AGV et du méthane alors que (x) représentent les MVS et le propionate. Les lignes pleines sont les prédictions obtenues avec la méthode PLS.

Au cours de cette expérimentation, la dynamique des paramètres du réacteur a été modulée par les modifications de la composition de l'eau usée. Toutefois, une faible concentration des AGV a été mesurée lorsque la concentration de l'eau usée était élevée à l'entrée, ce qui indique que l'étape d'hydrolyse est l'étape de limitation de la biodégradation. De plus, les faibles niveaux des AGV

mesurés correspondent à la limite de détection de la méthode analytique ce qui explique le coefficient d'ajustement R^2 de 0.51 obtenu pour la prédiction des AGV (voir Tableau 4.5). Néanmoins, les modèles de régression DCO totale, de la DCO soluble et des MVS ont démontré de bonnes capacités d'approximation des données analytiques, avec des coefficients d'ajustement R^2 de 0.6, 0.75 et 0.72, respectivement.

Tableau 4.5 : Analyse statistique (R^2 et RMSE) avec la régression PLS pour la biodégradation anaérobie d'une eau usée d'une usine de production de fromages

Modèle	eau usée industrielle		modèle	eau usée industrielle	
	R^2	RMSE		R^2	RMSE
tDCO	0.60	0.12	propionate	0.55	0.86
DCO	0.75	0.82	MVS	0.72	0.12
AGV	0.51	5.57	méthane	0.59	0.71
acétate	0.52	5.17	pH	0.71	0.04

La prédiction des paramètres par la mesure de la fluorescence a montré contenir relativement moins de variabilité en comparaison aux données analytiques elles-mêmes. Malgré un bri mécanique du capteur de méthane au jour 6.25, ce qui a diminué considérablement le coefficient d'ajustement (R^2 0.59). Cependant, l'approximation durant cette période n'a pas été affectée (voir Figure 4.6).

4.1.4 Conclusions – Mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes

Cette étude a permis de montrer que la mesure de la fluorescence en une seule dimension était suffisante pour obtenir des prédictions raisonnables, autant pour les paramètres fluorescents et que les non-fluorescents. Par conséquent, les composés non-fluorescents sont mesurés indirectement et sont corrélés aux composés fluorescents. Les coenzymes et les vitamines sont fluorescents pour des longueurs d'ondes d'excitations de 340 à 380 nm et des longueurs d'ondes émissions de 450 à 460 nm. Bien que dans autres études la fluorescence à une dimension a démontrée être suffisante pour la prédiction des paramètres du procédé, l'utilisation de plusieurs longueurs d'ondes d'excitations est certainement nécessaire pour le suivi des effluents complexes de manière à contrecarrer l'effet de la superposition des spectres de fluorescence. Également, l'utilisation d'une source de lumière à large bande assemblée avec des filtres optiques mobiles permettrait d'obtenir une source de lumière à plusieurs longueurs d'ondes d'excitation (Boehl *et al.*, 2003). Cependant, les variations fréquentes de la composition des eaux usées peuvent affecter la qualité des prédictions et la fluorescence de la plupart molécules possédant des fluorophores est affectée par le niveau du pH.

Dans cette étude, le choix entre les sources de lumière a été réalisé par rapport à la nature de l'eau usée à traiter. Le niveau de la fluorescence de l'eau usée synthétique est relativement bas, car l'eau usée contient peu de protéines et de vitamines. Par conséquent, la réflexion de la lumière affecte beaucoup la mesure de la fluorescence, ce qui a nécessité l'utilisation d'une source de lumière ultraviolet. L'utilisation d'une source de lumière plus simple à large bande a été possible avec l'eau usée de la production de fromages car elle contient beaucoup plus de protéines.

Des trois méthodes d'analyses multi-variables analysées pour la calibration de la mesure de la fluorescence, la méthode régression PLS est celle qui offre les prédictions les plus fiables pour l'approximation et la prédiction des principaux paramètres de la digestion anaérobie. Par contre, la méthode de régression SWR est aussi appropriée pour l'approximation seulement. Quant à la méthode de régression nPCR, elle n'a montré aucun avantage par rapport aux deux autres méthodes de régression. Les médiocres performances de la régression nPCR peuvent être expliquées par la forte corrélation des spectres de fluorescence, alors que 99.8% de la variance a été capturée avec une seule PC (voir Tableau 4.1). L'utilisation de plusieurs sources de lumière et d'un plus grand nombre de mesures analytiques permettraient d'améliorer les performances de la méthode régression nPCR.

La méthode de mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes a donc été appliquée avec succès pour l'estimation des principaux paramètres (DCO, AGV et MVS) des échantillons d'un réacteur anaérobie. De plus, ce type de mesure a aisément et efficacement été employée pour le monitoring et le suivi de la biodégradation anaérobie d'une eau usée d'une usine de production de fromages.

4.2 Estimateur multi-modèle

Les premières tentatives de l'estimation et de contrôle des procédés de digestion anaérobie ont été réalisées par rapport à la mesure en ligne de la production de méthane (Pullammanappallil *et al.*, 1998; Steyer *et al.*, 1999; Vanrolleghem et Lee, 2003). Cette approche a permis d'améliorer l'opération des réacteurs anaérobies et l'estimation des paramètres de cinétique, malgré le fait que la mesure du biogaz représente invariablement une indication détournée de la composition de l'effluent. Les récents développements des méthodes de spectrométrie infrarouge et proche infrarouge ont permis d'obtenir une mesure en continu des principaux paramètres des procédés biologiques (Vaidyanathan *et al.*, 2001; Steyer *et al.*, 2002; Tosi *et al.*, 2003; Harbeck *et al.*, 2004), lesquels sont plus appropriés pour l'estimation et le contrôle en continu. La fluorescence à multiple longueurs d'ondes constitue une autre alternative peu coûteuse pour la mesure en ligne de la concentration

de la DCO, des AGV et des MVS pour le traitement anaérobie des eaux usées industrielles (Morel *et al.*, 2004a).

L'approche de modélisation à structure variable des procédés de digestion anaérobie a démontré de nombreux avantages par rapport à la modélisation avec un modèle non linéaire unique (Dainson *et al.*, 1995). Tartakovsky *et al.* (2002) ont présenté un multi-modèle non linéaire pour la modélisation, l'observation et le diagnostic des réacteurs anaérobies. Cette modélisation est assurée grâce à un arrangement de plusieurs modèles locaux constitués de cinétiques élémentaires, lesquelles facilitent l'identification des paramètres. De plus, l'observation des variables d'états et l'élaboration de procédure de contrôle en ligne sont facilitées par la simple formulation initiale du multi-modèle (Tartakovsky *et al.*, 2002; Tartakovsky *et al.*, 2005).

Dans cette deuxième partie, un multi-modèle estimateur-observateur a été défini pour le suivi en ligne et l'estimation des paramètres de cinétique d'un réacteur anaérobie. Un système de diagnostic basé sur l'analyse de la production de biogaz et du pH a également été défini pour assurer l'arrangement des modèles locaux du multi-modèle. Deux structures de cinétique différentes ont été analysées pour l'estimation en ligne des variables d'états et des paramètres de cinétique du multi-modèle. L'impact des paramètres d'ajustement des estimateurs-observateurs ainsi que la fréquence

du pas d'échantillonnage ont été examinés à l'aide de plusieurs séries de simulations avec le modèle de digestion anaérobie ADM1.

4.2.1 Multi-modèle de digestion anaérobie

La modélisation à structure variable des procédés de digestion anaérobie consiste à définir un modèle local pour chacun des régimes de fonctionnement. Initialement, il a été proposé qu'un modèle local seulement, désigné pour un système de diagnostique, soit utilisé pour la modélisation (Tartakovsky et al., 2002). Le multi-modèle employé dans cette étude regroupe trois modèles locaux pour les phases de fonctionnement méthanogène, de surcharge organique et acidogène. Dans ce cas, l'arrangement des modèles locaux est assuré par un système de diagnostique, et ce dernier utilise le principe de la classification par rapport à l'activité méthanogène du procédé (Marsili-Libelli et Müller, 1996; Pullammanappallil *et al.*, 1998; Steyer *et al.*, 2002). La phase méthanogène est définie pour une charge organique modérée et un pH neutre. Dans ces conditions de fonctionnement, la quasi totalité de la matière organique est transformée en méthane et par conséquent, la concentration des AGV dans l'effluent est très faible. Une augmentation de la charge organique ou un temps de séjour hydraulique insuffisant, est susceptible d'entraîner une surcharge du réacteur. La phase de surcharge organique, typiquement instable, est caractérisée par une concentration significative des AGV dans

l'effluent. Une déficience de la capacité tampon du réacteur entraîne rapidement une acidification du milieu. La phase acidogène est caractérisée par une biodégradation partielle de la matière organique, une faible production de biogaz et un niveau élevé des AGV dans l'effluent. De plus amples informations sont disponibles pour l'élaboration des multi-modèles de digestion anaérobie (Tartakovsky *et al.*, 2002; Tartakovsky *et al.*, 2005).

Pour un réacteur parfaitement mélangé, les bilans de matière pour la DCO, les AGV et la production de méthane sont représentés par les équations différentielles suivantes :

$$\frac{d\zeta_{i,j}}{dt} = r(\zeta_{i,j}, t) + \frac{F}{V}(\zeta_{i,j}^{in} - \zeta_{i,j}) - \frac{Q}{V}; i = 1, \dots, n \quad j = 1, \dots, m \quad (1)$$

Où, ζ est le vecteur des variables d'états (g L^{-1}), ζ^{in} est le vecteur des variables à l'entrée (g L^{-1}), r est le vecteur de cinétique de biodégradation ($\text{g L}^{-1} \text{ j}^{-1}$), F est le débit volumétrique d'eau usée (L j^{-1}), Q est le débit volumétrique de biogaz produit (L j^{-1} , $Q = 0$ pour la DCO et les AGV), n est le nombre de modèles locaux et m est le nombre de variables d'états.

Lorsqu'un transfert immédiat du méthane de la phase liquide vers la phase gazeuse est considéré, le débit de méthane (Q_m) est exprimé par la relation suivante :

$$Q_{m,i} = r(\zeta_{i,j}, t)V ; i = 1, \dots, n \quad j = 1, \dots, m \quad (2)$$

Le vecteur des pondérations (β), représentant le diagnostique du procédé, est employé pour déterminer le vecteur (y) des variables d'états du multi-modèle (DCO, AGV et méthane).

$$y_j(t) = \sum_{i=1}^n \beta_i \zeta_{i,j} ; \quad \sum_{i=1}^n \beta_i = 1 \quad \beta_i \in [0,1] \quad i = 1, \dots, n \quad j = 1, \dots, m \quad (3)$$

4.2.2 Système de diagnostique

Le système de diagnostique permet l'évaluation de l'état du procédé de digestion anaérobie en fonction de son activité méthanogénique. Cependant, le système de diagnostique permet également de combiner le vecteur des variables d'états (y) du multi-modèle avec celui des pondérations (β). Le système de diagnostique utilisé dans cette étude a été défini manuellement par rapport aux connaissances de l'opération acquise des procédés de digestion anaérobie. Il a été proposé que l'activité méthanogénique soit évaluée à l'aide de la production de biogaz ($L \text{ Lr}^{-1} \text{ j}^{-1}$), de la teneur en méthane du biogaz (%) et du pH dans le réacteur. Les états possibles du procédé (méthanogène, surcharge organique et acidogène) sont spécifiés par des sphères avec des centres donnés $\Phi_{i,0} = \{x_{i,0}, y_{i,0}, z_{i,0}\}$ et des rayons donnés $\Phi_{i,r} = \{r_{i,x}, r_{i,y}, r_{i,z}\}$

dans les coordonnées suivantes : $\Phi = \{x, y, z\}$. La mise au point de ce système de diagnostic consiste à définir les coordonnées Φ pour chacune des phases de fonctionnement. Aucune superposition des espaces définis par les sphères n'est envisagée dans cette étude. Pour chacun des points expérimentaux $\{x, y, z\}$, l'algorithme suivant a été employé pour réaliser le diagnostic (vecteur β).

$$\Delta_i \leq \left[\frac{(x - x_{i,0})}{r_{i,x}} \right]^2 + \left[\frac{(y - y_{i,0})}{r_{i,y}} \right]^2 + \left[\frac{(z - z_{i,0})}{r_{i,z}} \right]^2; \quad \Delta = [\Delta_1, \dots, \Delta_n] \quad (4)$$

Où, Δ_i représente la distance Euclidienne entre le point expérimental et le centre de la sphère.

Si $\Delta_i \leq 1$, alors le procédé est classifié comme appartenant à l'état i (les mesures sont à l'intérieur de la sphère i).

Sinon les distances entre le point expérimental $\{x, y, z\}$ et la surface de chacune des sphères sont évaluées pour définir les composantes du vecteur des pondérations (β) à l'aide de la relation suivante :

$$\beta_i = \frac{l_i}{\sum_{k=1}^n l_k}; \quad \beta = [\beta_1, \dots, \beta_n] \quad \sum_{i=1}^n \beta_i = 1 \quad (5)$$

Où l_i représente la distance euclidienne entre le point expérimental de coordonnées $\{x, y, z\}$ et la projection de ce dernier sur la sphère i par rapport à son centre. Des distances normalisées ont été employées pour l'ensemble des calculs (Anderberg, 1973). Cette approche de classification est similaire à plusieurs autres méthodes présentes dans la littérature, comme la méthode de logique floue C-means (Marsili-Libelli et Müller, 1996) et les algorithmes génétiques (Garai et Chaudhuri, 2004).

Une représentation graphique du système de diagnostique est présentée pour le réacteur anaérobie de 3.5 litres (voir Figure 4.7). Les trois sphères représentent les phases de fonctionnement méthanogène, de surcharge organique et acidogène en fonction du pH, de la production de biogaz et de la proportion du méthane dans le biogaz. Au cours de cette expérimentation, les plus faibles valeurs de pH enregistrées étaient seulement de 6.5. Par conséquent, la sphère correspondant à l'état acidogène a été déterminée de manière à couvrir une large gamme de valeur de pH. Un signal de défaut pour le diagnostique du réacteur est également émis lorsque les mesures du pH, du biogaz et du méthane ne sont pas comprises dans les domaines d'observation.

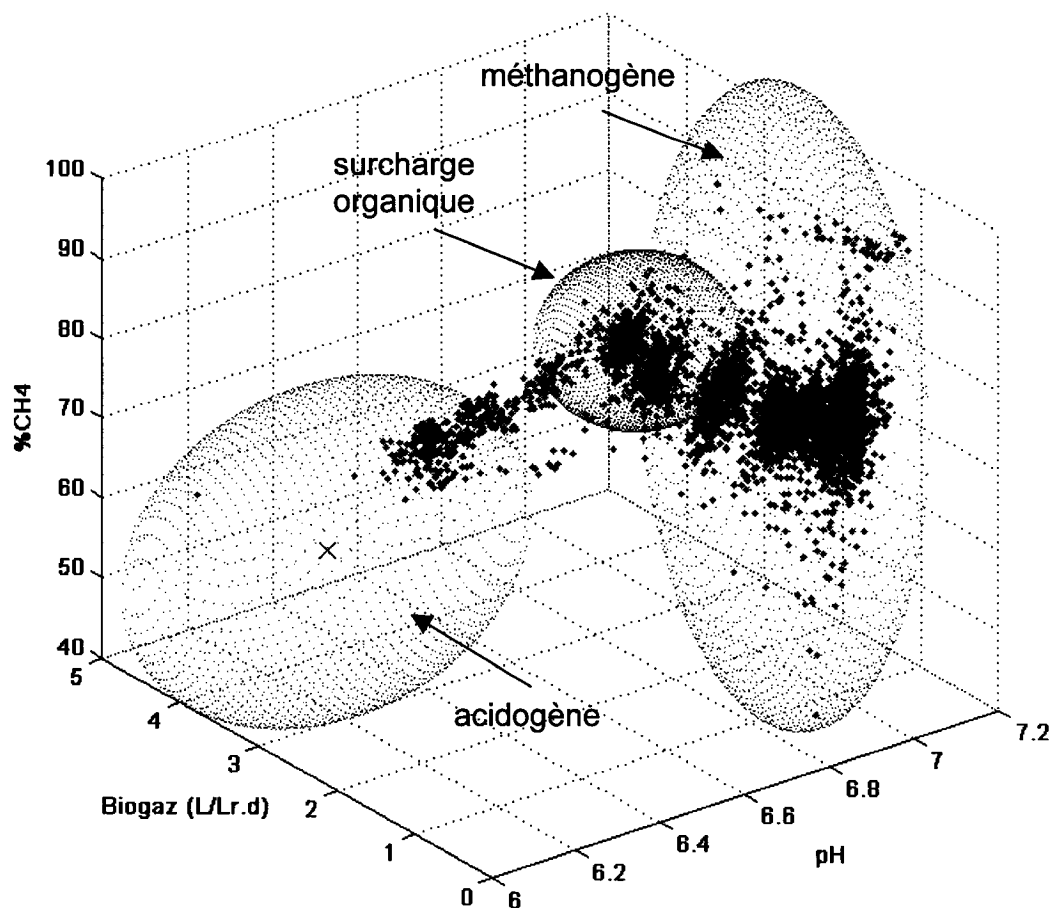


Figure 4.7 : Représentation graphique du système de diagnostique des phases méthanogène, de surcharge organique et acidogène pour un réacteur anaérobie en fonction de la mesure du pH, de la production de biogaz ($\text{L CH}_4 \text{ L}_r^{-1} \text{ d}^{-1}$) et du pourcentage de méthane dans le biogaz.

4.2.3 Multi-modèle estimateur-observateur (OBE)

L'estimation en ligne des paramètres de cinétique nécessite une transformation du multi-modèle de digestion anaérobie en un multi-modèle estimateur-

observateur. La méthodologie OBE proposée par Bastin et Dochain (1990) a été employée pour permettre l'estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique à partir de la mesure en ligne de la DCO, des AGV et de la production de méthane.

Une décomposition du vecteur de cinétique de biodégradation $r(\zeta_{i,j}, t)$ a été réalisée afin de dissocier les variables d'états des paramètres de cinétique, comme suit :

$$r(\zeta_{i,j}, t) = H(\zeta_{i,j})\alpha(\zeta_{i,j}, t); \quad i = 1, \dots, n \quad j = 1, \dots, m \quad (6)$$

Où, $H(\zeta_{i,j}, t)$ est la matrice diagonale des variables d'états et $\alpha(\zeta_{i,j}, t)$ est le vecteur des paramètres de cinétique.

Comme les variables d'états (ζ) et les paramètres de cinétiques (α) sont linéairement interdépendants, le multi-modèle OBE est énoncé ci-dessous de la manière suivante :

$$\frac{d\hat{\zeta}_{i,j}}{dt} = H(\zeta_{i,j}, t)\hat{\alpha}(\zeta_{i,j}, t) - D\zeta_{i,j} + F - \frac{Q}{V} - \Omega(\zeta_{i,j} - \hat{\zeta}_{i,j}); \quad (7)$$

$$\frac{d\hat{\alpha}_{i,j}}{dt} = [H(\zeta_{i,j})]^T \Gamma(\zeta_{i,j} - \hat{\zeta}_{i,j}). \quad (8)$$

Où, $\hat{\zeta}$ sont les variables d'états estimées et $\hat{\alpha}$ sont les paramètres de cinétique estimés en ligne.

Les matrices d'ajustement Ω et Γ du multi-modèle OBE sont définies comme suit :

$$\Omega = \text{diag}\{-w_i\}, \quad \Gamma = \text{diag}\{\gamma_i\}, \quad w_i > 0, \quad \gamma_i > 0, \quad i = 1, \dots, n \quad (9)$$

L'ajustement des estimateurs OBE a été réalisé par rapport à la méthode de généralisation proposée par Perrier *et al.* (2000). Cette méthode permet de réduire l'ajustement à un seul paramètre (w_i) par variable d'état.

L'impact des paramètres d'ajustement sur la vitesse de convergence des OBE et sur les estimations a été évalué (Morel *et al.*, 2006b). Les résultats obtenus ont démontré que la sélection des paramètres d'ajustement (w_i) doit être réalisée avec beaucoup de soins afin de minimiser la contribution du bruit de mesure dans les estimations (Perrier *et al.*, 2000). L'hydrodynamique du système doit également être prise en considération pour définir les valeurs des paramètres d'ajustement des OBE.

4.2.4 Simulations ADM1 et estimations des paramètres de cinétiques

Le modèle de digestion anaérobie ADM1 (Batstone *et al.*, 2002), permet une modélisation complète de la digestion anaérobie. Le modèle ADM1 prend en compte dans sa formulation les étapes d'hydrolyse, acidogénèse, acétogénèse et méthanogénèse. La transformation de la matière organique en méthane nécessite la considération de nombreux groupes de microorganismes et

d'intermédiaires de la biodégradation anaérobie. La rigueur de la conception du modèle ADM1 en fait un modèle innovant pour la modélisation du traitement anaérobie des eaux usées complexes. Cependant, son grand nombre de variables d'états et ses paramètres difficilement identifiables limitent grandement l'application du modèle ADM1 pour le contrôle en continu des procédés de digestion anaérobie.

Une approche alternative à la modélisation complète de la digestion anaérobie consiste à définir des modèles simplifiés, généralement discrétisés autour d'un point de fonctionnement. Cependant, ces modèles discrétisés ne permettent pas la modélisation et le contrôle de la dynamique fortement non linéaire des procédés de digestion anaérobie. Dans ce contexte, l'approche de modélisation multi-modèle représente un compromis entre la complexité du modèle et la simplicité de l'estimation des paramètres.

L'impact des paramètres d'ajustement et l'effet du pas d'échantillonnage des estimateurs-observateurs du multi-modèle (mmOBE) ont été examinés à l'aide de plusieurs séries de simulation avec le modèle ADM1. Les simulations avec le modèle ADM1 ont été appliquées au multi-modèle OBE pour l'estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique avec la structure d'ordre zéro et premier ordre (structure OBE#1). La concentration de la DCO du multi-modèle regroupe les matières composites, les monosaccharides, les acides

aminés, les acides gras à longues chaînes, et les acides gras Les AGV regroupent l'acide acétate, l'acide propionique, l'acide butyrique et l'acide valérique du modèle ADM1. Un réacteur anaérobie d'un volume de 1500 m^3 , opéré à 27°C et alimenté avec une eau usée de 60 g DCO L^{-1} , comprenant 7% de solides a été considéré pour la simulation avec le modèle ADM1.

Dans la Figure 4.8 sont présentées les variations appliquées au débit de l'affluent pour la simulation avec le modèle ADM1 et le diagnostique du réacteur anaérobie de 1500 m^3 correspondant. Au démarrage, le débit a été fixé à $70 \text{ m}^3 \text{ j}^{-1}$, ce qui correspond à un TSH de 20 jours. À partir du jour 20, le débit a été augmenté de $70 \text{ m}^3 \text{ j}^{-1}$ tout les 20 jours jusqu'à $210 \text{ m}^3 \text{ j}^{-1}$ au jour 60. Ensuite, le débit a été augmenté graduellement de 210 à $280 \text{ m}^3 \text{ j}^{-1}$ entre les jours 60 et 90. Et au jour 90, le débit de l'eau usée entrant dans le réacteur a été retourné à sa valeur initiale ($70 \text{ m}^3 \text{ j}^{-1}$).

Les simulations obtenues avec le modèle ADM1 ont été utilisées pour définir l'état de fonctionnement du procédé avec le système de diagnostique. Les centres et les rayons des sphères du système de diagnostique ont été préalablement définis pour les phases de fonctionnement méthanogène, de surcharge et acidogène. Le diagnostique présenté dans la Figure 4.8, a montré que l'état de fonctionnement du réacteur était essentiellement méthanogène pour les 40 premiers jours. Lorsque le débit à l'entrée du réacteur a été augmenté de 140 à

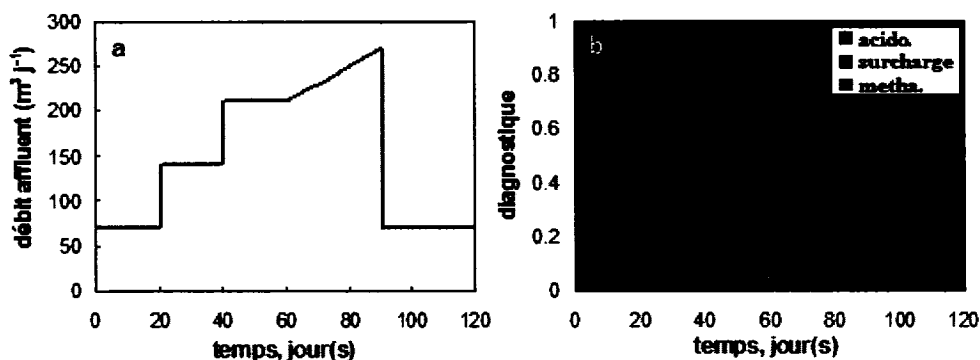


Figure 4.8 : Profil du débit d'alimentation appliqué pour la simulation avec le modèle ADM1 (a) et diagnostique du réacteur anaérobie de 1500m³ montrant les trois phases de fonctionnement (b).

210 m³ j⁻¹, l'état méthanogène a également été diagnostiqué pour les deux premiers jours. Ensuite, le réacteur est diagnostiqué à 70% surcharge et 30% acidogène. Ce diagnostique indique que la biodégradation est incomplète et que le pH est proche de la neutralité. Malgré l'augmentation graduelle de la charge, le diagnostique de surcharge et acidogène a été maintenu jusqu'au jour 78. Par contre, lorsque le pH a brutalement chuté de 6.8 à 5, l'état acidogène a rapidement été diagnostiqué. De plus, l'acidification et un court TSH a causé un entraînement de la biomasse du réacteur et une diminution significative des taux de biodégradation. Bien qu'au jour 90, le débit d'alimentation ait été retourné à son niveau initial (70 m³ j⁻¹), l'activité biologique du réacteur n'a jamais été retrouvée. Donc, la phase de

fonctionnement acidogène a toujours été diagnostiquée et ce, jusqu'à la fin de la simulation.

La première série de simulations avec le modèle ADM1 a été conduite afin d'évaluer l'effet des paramètres d'ajustement sur l'estimation des variables d'états. Pour ce faire, les paramètres d'ajustement de la DCO, des AGV et de la production de méthane ont été variés de 0.1 à 5 j^{-1} . Les simulations, d'une durée de trois mois chacune, ont été conduites avec le profil de la charge organique et le diagnostic du réacteur, présentés ci-dessus (voir Figure 4.8). Afin d'évaluer l'influence des mesures sur l'estimation des variables d'états du multi-modèle, un bruit de mesure uniformément réparti a été ajouté aux simulations du modèle ADM1. L'amplitude du bruit de mesure était de $\pm 2.5 \text{ g DCO L}^{-1}$ pour la DCO et les AGV et de $300 \text{ m}^3 \text{ j}^{-1}$ pour la production de méthane.

Cette première série de simulation a permis de définir des valeurs optimales pour les paramètres d'ajustement du multi-modèle OBE. La Figure 4.9 présente les erreurs absolues entre les estimations du multi-modèle OBE et les prédictions du modèle ADM1. Les faibles paramètres d'ajustement obtenus, inférieurs à 1 j^{-1} , n'ont pas permis au multi-modèle OBE de suivre la dynamique du procédé. Par contre, des paramètres d'ajustement trop grands ont démontré suivre la dynamique du bruit de mesure au lieu de la dynamique du procédé.

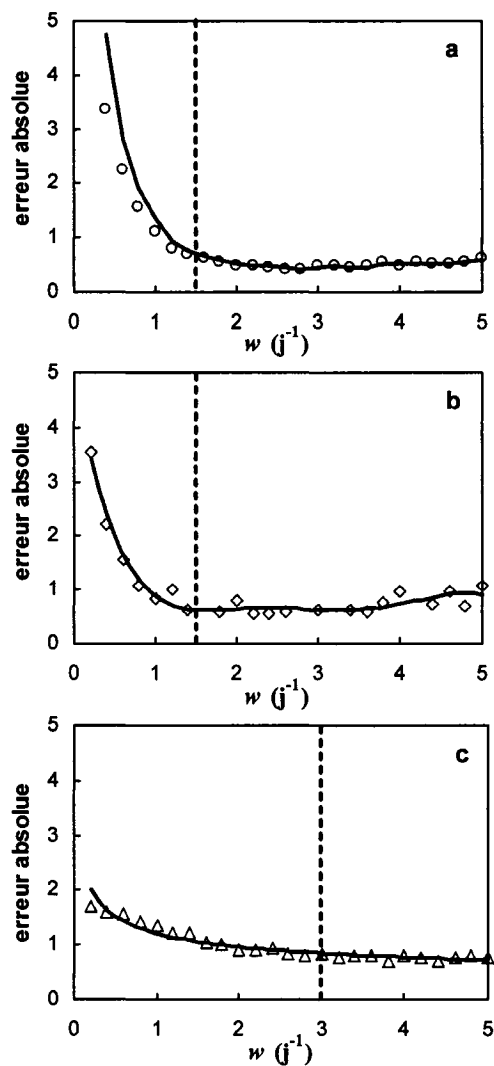


Figure 4.9 : Effet des paramètres d'ajustement (w) du multi-modèle OBE sur l'estimation de la DCO (a), des AGV (b), et de la production de méthane (c). Les lignes pointillées représentent les paramètres d'ajustement optimaux.

Cet effet a été beaucoup plus prononcé pour l'estimation de la DCO et des AGV, avec des paramètres d'ajustement supérieurs à 3 j^{-1} . Cette observation n'a pu être faite pour l'estimation de la production de méthane, à cause du pas

d'échantillonnage relativement long (2.4 h), par rapport à la dynamique de la production de méthane. Ces résultats ont permis de sélectionner des paramètres d'ajustement de 1.5 j^{-1} pour la DCO et les AGV et 3 j^{-1} pour la production de méthane.

Dans la deuxième série de simulations, la capacité du multi-modèle OBE pour la prédiction a été examinée en faisant varier le pas d'échantillonnage de 30 minutes jusqu'à 3 jours. Les paramètres d'ajustement sélectionnés précédemment ont été appliqués pour cette série de simulations, de même que le profil de la charge organique présenté dans la Figure 4.8. Pour chaque intégration du multi-modèle, les estimations ont été comparées aux simulations du modèle ADM1. La Figure 4.10 représente l'erreur absolue de l'estimation de la DCO, des AGV et de la production de méthane en fonction du pas d'échantillonnage. Les résultats ont démontrés la stabilité du multi-modèle OBE et la dépendance presque linéaire de l'erreur absolue par rapport au pas d'échantillonnage. Le niveau de l'erreur absolue pour l'estimation de la production de méthane est la plus grande que l'erreur absolue de la DCO et des AGV. L'ensemble des simulations ont permis de confirmer que la dynamique des procédés de digestion est relativement lente et qu'un pas d'échantillonnage de 24 heures (12 heures pour le méthane) est satisfaisant pour garantir la convergence des estimateurs du multi-modèle proposé.

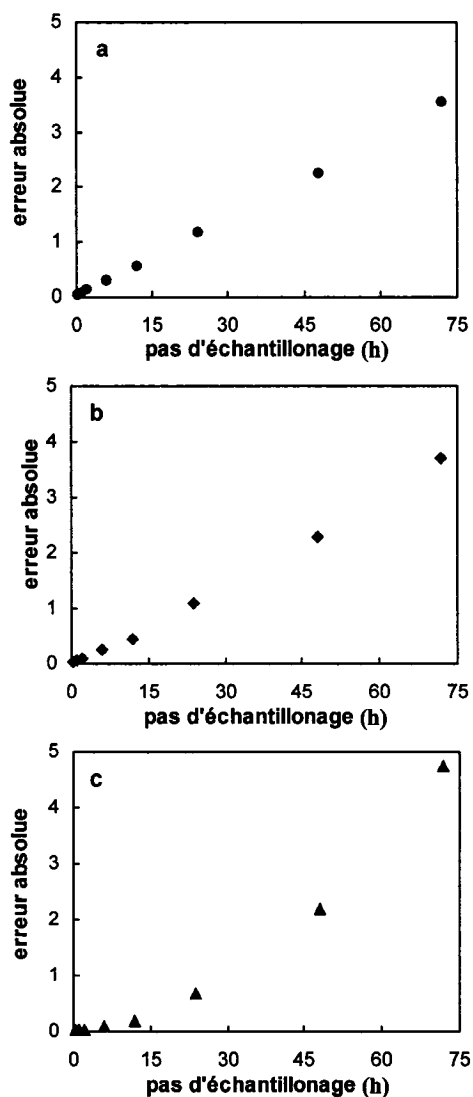


Figure 4.10 : Effet du pas d'échantillonnage du multi-modèle OBE sur l'estimation de la DCO (a), des AGV (b) et de la production de méthane (c). Les paramètres d'ajustement employés sont $w=1.5j^{-1}$ pour la DCO, $1.5j^{-1}$ pour les AGV et $3j^{-1}$ pour la production de méthane, respectivement.

Les valeurs optimales des paramètres d'ajustement obtenu auparavant ont été appliquées pour l'estimation des paramètres de cinétiques (taux maximum de

croissance). La figure 4.11 présente l'estimation de la DCO, des AGV et de la production méthane ainsi que l'estimation des paramètres de cinétique respectifs. Les estimations des variables d'états du multi-modèle ($\hat{s}$, $\hat{a}$, $\hat{m}$) ont démontré converger très rapidement vers les données (modèle ADM1). Les conditions initiales des estimateurs ont été initialisées par les prédictions du modèle ADM1. Les estimateurs ont également convergé rapidement même avec des conditions initiales différentes (résultats non présentés). Pour représenter l'estimation des paramètres de cinétique (voir Figure 4.11), les cinétiques de premier ordre pour la DCO et de méthane ont été divisées par la prédiction de la DCO du modèle ADM1.

Après le 40^{ème} jour, le signe de la cinétique des AGV ($\hat{r}_{\max,a}$) a changé de négatif à positif, indiquant une accumulation notable des AGV pendant la surcharge du réacteur. Au 82^{ème} jour, lorsque l'activité microbologique diminuée brusquement à cause de l'acidification du réacteur, les estimations de la cinétique pour la DCO ($\hat{r}_{\max,s}$) et les AGV ont montré fortement chuter jusqu'à des valeurs proche de zéro. L'inhibition de la production de méthane à partir du 82^{ème} jour, a également été répercutée dans l'estimation de la cinétique ($\hat{r}_{\max,m}$).

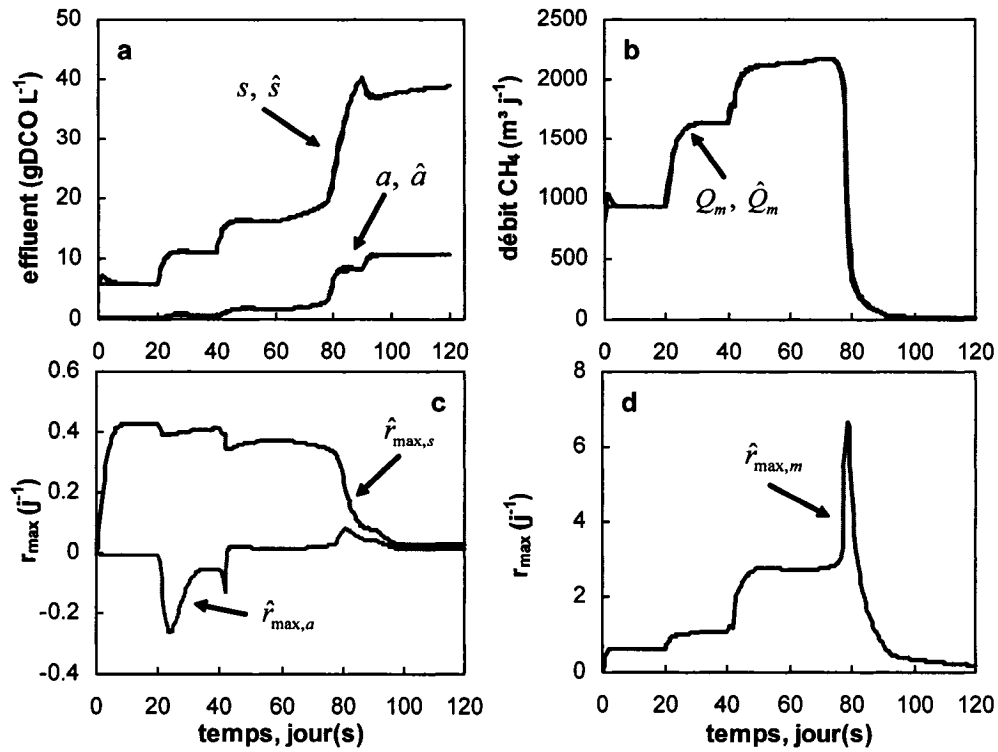


Figure 4.11 : Estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique du multi-modèle de digestion anaérobie à partir de la simulation du modèle ADM1. Les estimations et les prédictions ADM1 sont présentées en (a) DCO totale ($\hat{s}$ et s , respectivement) et les AGV ($\hat{a}$ et a , respectivement), (b) méthane ($\hat{Q}_m$ et Q_m , respectivement), (c) paramètres de cinétique estimés pour la DCO ($\hat{r}_{max,s}$) et les AGV ($\hat{r}_{max,a}$) et (d) paramètre de cinétique estimé pour le méthane ($\hat{r}_{max,m}$). Les estimations de la DCO, des AGV et de la production de méthane sont superposées aux variables d'état du modèle ADM1

4.2.5 Estimation et prédiction des paramètres de cinétique

Une expérimentation avec un réacteur anaérobie à flux ascendant d'une capacité de 3.5 litres a été utilisée pour l'estimation en ligne et la prédiction des paramètres de cinétique avec le multi-modèle OBE, défini précédemment. Le réacteur a été inoculé avec 1 litre de biomasse granulaire anaérobie (A. Lassonde Inc., Rougemont, Qc, Canada) contenant en moyenne 50 g L^{-1} de MVS. La température du réacteur a été maintenue à $26 \text{ }^{\circ}\text{C}$ à l'aide d'un système de chauffage et d'une double enveloppe. Le réacteur a été alimenté en continu avec une eau usée synthétique avec un débit de 4.8 L j^{-1} . Le débit, la composition du biogaz et le pH dans le réacteur ont été mesurés en ligne. L'estimation des concentrations de la DCO et des AGV a été réalisée avec le système de mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes.

L'expérimentation d'une durée de 20 jours a été conduite afin d'observer les phases méthanogènes, de surcharge organique et acidogène de fonctionnement du réacteur anaérobie. Au cours des huit premiers jours de l'expérimentation, la CVA a été augmentée en plusieurs étapes de 1.7 à $8.6 \text{ g DCO L}^{-1} \text{ j}^{-1}$, pour induire une surcharge organique du réacteur. Entre les jours 8.5 et 11.5, la composition du tampon bicarbonate a été diminuée par deux fois afin de produire une acidification du réacteur (voir Figure 4.12).

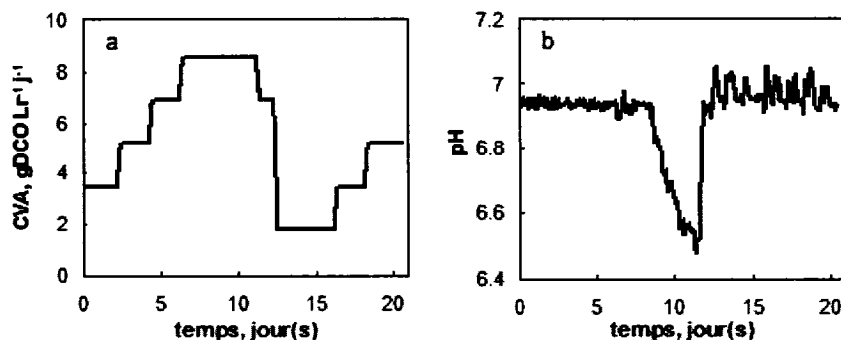


Figure 4.12 : profils de la CVA (a) et du pH dans le réacteur (b).

La Figure 4.13 présente le diagnostique du réacteur anaérobie établi par rapport à l'analyse de la mesure en ligne du biogaz et du pH. Avec une charge organique modérée, inférieure à $5.1 \text{ g DCO L}_r^{-1} \text{ j}^{-1}$, l'état méthanogène est diagnostiqué à part entière. Par contre, dès que la charge a été augmentée de 5.1 à $6.8 \text{ g DCO L}_r^{-1} \text{ j}^{-1}$, la surcharge du réacteur a rapidement été diagnostiquée. À partir du jour 8.5, la phase acidogène a été graduellement détectée par le système de diagnostique, à cause de l'acidification du réacteur. La réactivation de la boucle de contrôle du pH et la diminution de la charge organique ont permis de diagnostiquer à nouveau la phase de surcharge. La phase méthanogène a été diagnostiquée au jour 12, après la seconde diminution de la charge organique et ce, jusqu'à la fin de l'expérimentation.

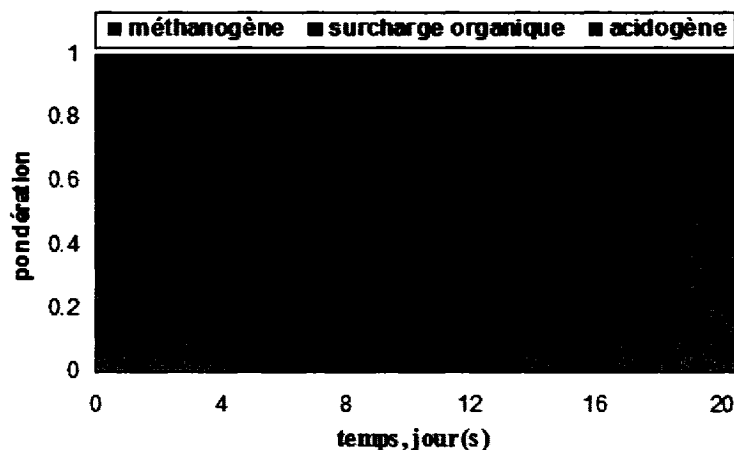


Figure 4.13 : diagnostic en ligne du réacteur anaérobie (3.5 litres) montrant les phases de fonctionnement méthanogène, de surcharge organique et acidogène.

Dans cette étude, deux structures de cinétique pour le multi-modèle de digestion anaérobie, OBE#1 (Tableau 4.6) et OBE#2 (Tableau 4.7), sont comparées pour l'estimation des paramètres de cinétique et la prédiction des variables d'états. Avec la structure OBE#1, une cinétique de premier ordre a été employée pour la modélisation de la DCO et des AGV dans le cas des modèles locaux méthanogènes et acidogènes, tandis qu'une cinétique d'ordre zéro a été utilisée pour le modèle local de surcharge organique. La cinétique de la DCO pour la structure OBE#2 est réalisée à l'aide d'une cinétique de Monod et les AGV sont modélisés par une cinétique de premier ordre pour l'ensemble des modèles locaux. La diminution de la production de méthane

causée par l'acidification du réacteur a été modélisée par une inhibition non linéaire dans les deux structures proposées.

Tableau 4.6 : Structure OBE#1 r_{ij} (g DCO L⁻¹ d⁻¹) composée de cinétique de premier ordre et d'ordre zéro.

variable d'état	phase de fonctionnement		
	Méthanogène	surcharge organique	Acidogène
DCO	$-r_{\max,s}S$	$-r_{\max,s}$	$-r_{\max,s}S$
AGV	$-r_{\max,a}a$	$r_{\max,a}S$	$r_{\max,a}S$
Débit CH ₄	$r_{\max,m}S$	$r_{\max,m}$	$r_{\max,m} \frac{K_I}{K_I + a}$

Tableau 4.7 : Structure OBE#2 r_{ij} (g DCO L⁻¹ d⁻¹) composée de cinétique de Monod et de premier ordre.

variable d'état	phase de fonctionnement		
	méthanogène	surcharge organique	Acidogène
DCO	$-r_{\max,s} \frac{S}{K_s + S}$	$-r_{\max,s} \frac{S}{K_s + S}$	$-r_{\max,s} \frac{S}{K_s + S}$
AGV	$-r_{\max,a}a$	$r_{\max,a}S$	$r_{\max,a}S$
Débit CH ₄	$r_{\max,m} \frac{S}{K_s + S}$	$r_{\max,m} \frac{S}{K_s + S}$	$r_{\max,m} \frac{S}{K_s + S} \frac{K_I}{K_I + a}$

Le diagnostic du réacteur anaérobie de 3.5 litres, présenté dans la Figure 4.13, a été utilisé pour définir les variables d'états (y) du multi-modèle. Des paramètres d'ajustement de 3 j⁻¹ ont été fixés pour la DCO et les AGV et 10 j⁻¹ pour la production de méthane (Morel *et al.*, 2006b) et ce, pour les deux

structures de cinétique. Les mesures des variables d'états ont été utilisées pour les conditions initiales des deux multi-modèles. Auparavant, la constante d'inhibition (K_I) et la constante de demi saturation (K_s) ont été fixées à 0.5 g L^{-1} et 0.05 g L^{-1} .

La Figure 4.14 présente une comparaison des structures de cinétique OBE#1 et OBE#2 pour l'estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique. La précision des estimations a été comparable pour les deux structures de cinétique. L'estimation de la DCO avec la structure OBE#1 est représentée par une ligne courbe noire et l'estimation de la DCO avec la cinétique OBE#2 est représentée par une ligne courbe en noir pointillée. La cinétique des AGV est représentée par une ligne courbe grise continu. Les paramètres de cinétique présentés dans la figure ci-dessous, ont été obtenus par rapport au diagnostique du réacteur (vecteur β). La dynamique des paramètres de cinétique est généralement attribuée aux variations de la densité de la biomasse et aux microorganismes présents dans le réacteur. À la suite d'une surcharge organique, la cinétique estimée a différé de celle estimée avant la surcharge du réacteur pour des conditions de fonctionnement identiques. L'estimation en continu des paramètres de cinétique fournit des informations importantes pour l'opération des procédés de digestion anaérobie. La dégradation de la matière organique dans des conditions anaérobie est accomplie par un consortium complexe de microorganismes.

Les deux structures de cinétiques, premier ordre – ordre zéro et premier ordre – cinétique de Monod, ont été également examinées pour leurs habilités à prédire les variables d'états en absence de mesure en ligne. Les données de l'expérimentation avec le digesteur anaérobie de 3.5 litres ont été reprises et segmentée en deux parties égales. Pendant les dix premiers jours, les deux structures de cinétique ont été appliquées pour l'estimation des paramètres de cinétique à partir des mesures en ligne. Au cours des dix derniers jours, les deux structures de cinétiques ont été évaluées pour la prédiction.

Les paramètres de cinétique peuvent être également incorporés dans les systèmes de diagnostique en y intégrant les caractéristiques de la biomasse. De plus, la simplicité de la formulation du multi-modèle permet d'envisager aisément des applications de contrôle en boucle fermée (Tartakovsky *et al.*, 2005), où les valeurs négatives des paramètres de cinétique des AGV permettrait l'établissement de stratégies de contrôle.

Au cours des dix premiers jours illustrés dans la Figure 4.14, les estimations de la concentration de la DCO, des AGV et de la production de méthane avec les structures de cinétique OBE#1 et OBE#2 ont été présentées. Après deux jours, l'ensemble des estimations ont démontré converger vers la mesure en ligne des variables d'états. Au jour 10, les paramètres de cinétiques estimés (voir

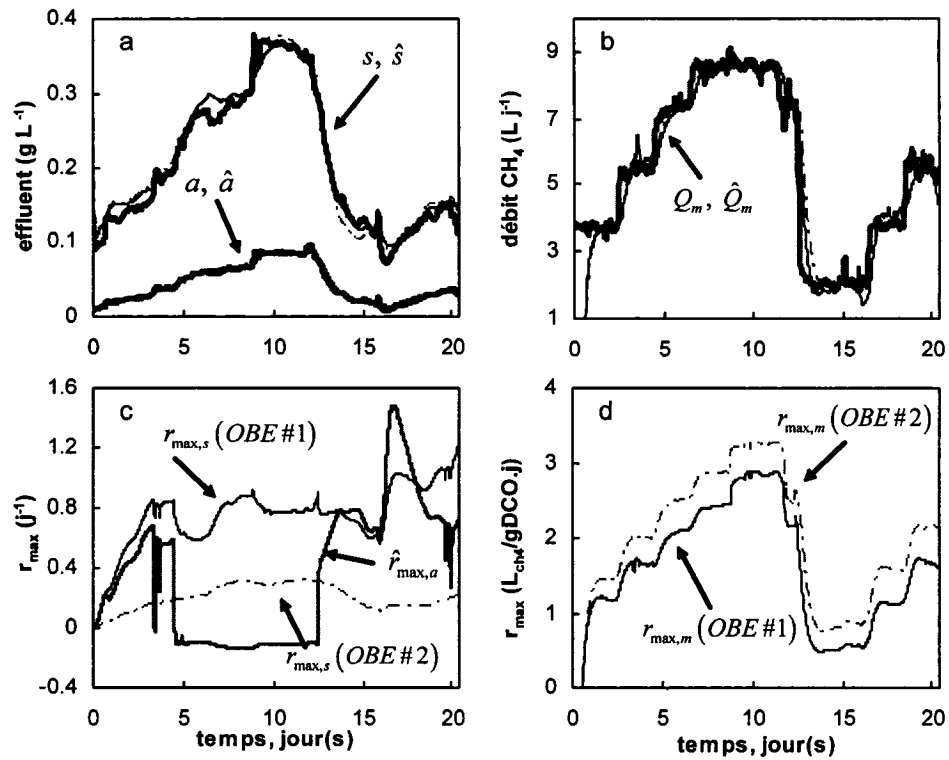


Figure 4.14 : Estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique du réacteur de 3.5 litres avec les structures OBE#1 (premier ordre et ordre zéro) et OBE#2 (premier ordre et cinétique de Monod). Les estimations et les prédictions sont présentées en (a) DCO ($\hat{s}$ et s , respectivement) et les AGV ($\hat{a}$ et a , respectivement), (b) la production de méthane ($\hat{Q}_m$ et Q_m , respectivement), (c) paramètres de cinétique estimés pour la DCO ($\hat{r}_{\max,s}$) et les AGV ($\hat{r}_{\max,a}$) et (d) paramètres de cinétique estimés pour la production de méthane ($\hat{r}_{\max,m}$). Notations : les lignes pleines sont l'OBE#1, l'OBE#2 est représentée en lignes discontinues et les mesures par fluorescence sont en lignes grises continues. Les estimations des paramètres de cinétique pour les AGV pour les structures OBE#1 et OBE#2 sont superposées.

Tableau 4.8) ont été appliqués pour la prédiction de la DCO, des AGV et la production de méthane.

Tableau 4.8 : Taux de biotransformation maximaux estimés au jour 10 pour les structures OBE#1 (premier ordre – ordre zéro) et OBE#2 (cinétique de Monod – premier ordre) employés pour la prédiction des variables d'état du jour 10 au jour 20.

multi-modèles	paramètres de cinétique		
	DCO ($r_{\max,s}$)	AGV ($r_{\max,a}$)	méthane ($r_{\max,m}$)
OBE#1	0.777	-0.102	2.881
OBE#2	0.287	-0.102	3.276

Entre les jours 10 et 13 de l'expérimentation, les prédictions ont été comparables pour les deux multi-modèles. Au jour 13, les prédictions de la DCO et de la production de méthane ont commencé à diverger des mesures davantage pour la structure OBE#2 (premier ordre – cinétique de Monod). De meilleurs résultats ont été observés avec la structure de cinétique OBE#1 (premier ordre – ordre zéro) pour la même période (voir Figure 4.14, ligne noire pleine). Les prédictions de la concentration des AGV sont identiques, car la même cinétique des AGV est employée pour les deux structures. Les prédictions à long terme obtenus pour la DCO avec une combinaison de

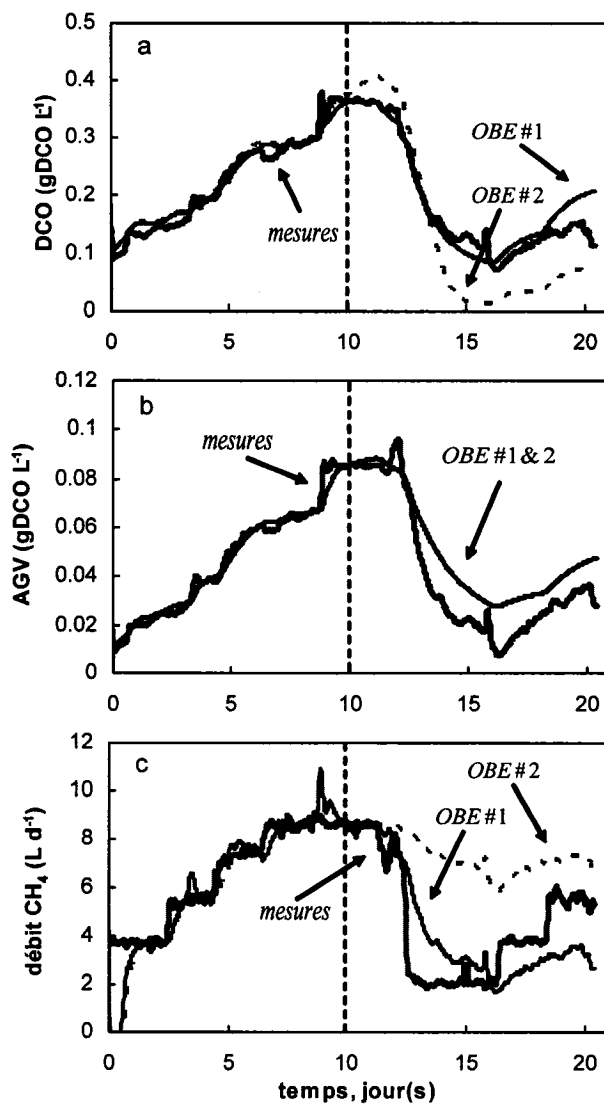


Figure 4.15 : Estimation (10 premiers jours) et prédiction (du jour 10 au jour 20) de la DCO (a), des AGV (b) et de la production de méthane (c) pour les structures OBE#1 et OBE#2 du multi-modèle. Notations : les lignes noires pleines représentent les OBE#1, les lignes discontinues sont les OBE#2 et les lignes grises continues sont les mesures par fluorescence. L'estimation et la prédiction des AGV sont superposées pour les structures OBE#1 et OBE#2.

cinétique de premier ordre et d'ordre zéro ont démontré de meilleurs résultats que les prédictions obtenues avec la cinétique de Monod (voir Figure 4.15).

Les mêmes observations ont été faites pour la prédiction de la production de méthane. De manière générale, la cinétique de Monod est couramment employée pour la modélisation des réactions biologiques. Toutefois, des déviations de la cinétique de Monod sont possibles car le processus de biodégradation anaérobie est contrôlé par beaucoup plus qu'un seul facteur limitant. Par conséquent, la combinaison de la cinétique de premier ordre et d'ordre zéro est plus appropriée pour la modélisation des procédés de digestion anaérobie. De ce fait, le multi-modèle avec la cinétique OBE#1 est potentiellement applicable pour la prédiction des variables d'états, par exemple durant une défaillance de l'instrumentation. De plus, le multi-modèle peut être utilisé pour l'approximation des variables d'états entre les mesures.

4.2.6 Conclusions – Estimateur multi-modèle

Dans cette partie un multi-modèle a été présenté pour le diagnostic, l'estimation et la prédiction en continu des paramètres des réacteurs anaérobies. Deux structures de cinétiques (premier ordre et ordre zéro, premier ordre et cinétique de Monod) ont été transformées en multi-modèles estimateurs à l'aide de la méthode des estimateurs observateurs (Bastin et

Dochain, 1990). Cette approche d'estimation a été testée avec les résultats expérimentaux mesurés en ligne (pH, DCO, AGV et production méthane) avec un réacteur anaérobie à l'échelle laboratoire (3.5 litres). La fluorescence à multiple longueurs d'ondes a été utilisée pour la mesure en ligne de la concentration de la DCO et des AGV dans l'effluent du réacteur. À l'aide de plusieurs séries de simulation avec le modèle ADM1, l'impact des paramètres d'ajustement des estimateurs et le pas d'échantillonnage des données mesurées a été évalué pour l'estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique.

Les deux structures de cinétique ont démontré converger rapidement sur les mesures des variables d'états avec beaucoup de précision. Cependant, les deux structures ont démontré un comportement significativement différent pour la prédiction à long terme des variables d'états. La structure avec la cinétique de premier de cinétique et la cinétique de Monod n'a pas permis de prédire convenablement les variables d'états. Par conséquent, la combinaison de la cinétique de premier ordre et d'ordre zéro est plus appropriée pour décrire la cinétique de la digestion anaérobie qu'une cinétique de Monod. La définition du système de diagnostique et le choix des paramètres (centres et rayons des sphères) du système de diagnostique peuvent avoir une incidence sur les estimations des variables d'états et des paramètres de cinétique. La qualité des estimations est également tributaire des paramètres d'ajustement des

estimateurs et du pas d'échantillonnage des données de manière à réaliser un suivi convenable de la dynamique du procédé.

La modélisation multi-modèle des procédés de digestion anaérobie a démontré plusieurs avantages, par rapport à la modélisation avec des modèles complets. Défini à partir d'équations de cinétique relativement simple, peu de paramètres à identifier, les multi-modèles sont capables de modéliser des procédés à comportement fortement non linéaire. De plus, la simplicité des multi-modèles facilite grandement l'estimation des variables d'états et des paramètres de cinétique. L'estimation en continu des paramètres de cinétique pourrait être intégrée dans un système de contrôle adaptatif, avec lequel le multi-modèle définit une boucle de contrôle fermée. L'estimation en continu des paramètres de cinétiques pourrait être adjointe aux mesures en ligne afin d'établir un diagnostic et d'informer les opérateurs de l'état de fonctionnement du procédé.

4.3 Contrôle adaptatif de la trajectoire de la température

Les réacteurs à flux ascendants permettent un traitement biologique encore plus efficace des effluents concentrés grâce au phénomène de granulation naturelle de la biomasse anaérobie. Toutefois, les réacteurs anaérobies à flux ascendants sont très sensibles aux changements des conditions d'opération.

Des variations brutales de la charge organique, du pH, de l'alcalinité de l'affluent, ainsi que des variations de température sont souvent lourdement dommageables pour les réacteurs anaérobies (Visser et Lettinga, 1993).

La biodégradation anaérobie de la matière organique peut-être réalisée aussi bien dans des conditions de température psychrophile (au-dessous de 20°C), mésophile (au-dessus de 20°C), que thermophile (au-dessus de 55°C) (Pavlostathis et Giraldo-Gomez, 1991). Cependant, les vitesses de biodégradation varient en fonction de la température (Ward *et al.*, 2005). L'équation d'Arrhénius a souvent été employée pour décrire l'influence de la température sur la croissance microbienne anaérobie (Batstone *et al.*, 2002; Hao *et al.*, 2002; Siegrist *et al.*, 2002). La transition entre des conditions de température mésophile et thermophile nécessite un temps d'adaptation non négligeable des bactéries anaérobies. De plus, cette transition engendre dans certains cas une défaillance du réacteur parfois irréversible (van Lier *et al.*, 1990; Visser et Lettinga, 1993). Néanmoins, une amélioration de la production de méthane a été mesurée après une courte période d'exposition à des températures de 35 à 45°C par rapport à une température de 25°C (Speece et Kem, 1970). Un rétablissement sans délai de l'activité méthanogène mésophile a également été observé après une courte exposition à des températures au-dessus de 45°C (Ahn et Forster, 2002).

Dans cette troisième partie, une démonstration expérimentale de la stabilisation de l'opération d'un réacteur anaérobie est présentée, là où la température est augmentée afin de contrôler la surcharge du réacteur. Des variations de la température brutales et prolongées ont normalement des conséquences néfastes sur l'activité microbiologique des microorganismes mésophiles, dans cette situation les augmentations de température de courte durée sont conduites à l'aide d'un contrôleur adaptatif défini à partir d'un multi-modèle de digestion anaérobie (Tartakovsky *et al.*, 2002; Morel *et al.*, 2006a). La mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes a également été employée pour former une boucle de contrôle adaptative (Morel *et al.*, 2004b).

Le contrôleur adaptatif multi-modèle est présenté en premier. Ensuite, l'effet de la température sur la production de méthane est analysée à l'aide d'un réacteur anaérobie continu à l'échelle laboratoire et de plusieurs séries de tests d'activités. Finalement, une expérimentation de contrôle en continu de la surcharge d'un réacteur anaérobie par modulation de la température d'un réacteur anaérobie est présentée.

4.3.1 Définition du contrôleur adaptatif multi-modèle

Le contrôleur adaptatif implanté dans cette étude, a été établi à partir du multi-modèle de digestion anaérobie, présenté dans la section précédente. Ce

dernier a été modifié afin d'intégrer l'effet de la température sur les taux de biotransformation (r). La méthode de linéarisation d'entrée-sortie présentée par (Bastin et Dochain, 1990), a été employée pour établir le contrôleur adaptatif multi-modèle, lequel est défini à partir d'une cinétique de d'ordre zéro et de premier ordre (voir Tableau 4.6). La biodégradation de la DCO est représentée par des cinétiques de premier ordre et d'ordre zéro. Une dépendance non linéaire des AGV sur la production de méthane a également été considérée. Le multi-modèle regroupe les trois modèles locaux suivants, désignant chacun les phases de fonctionnement méthanogène, de surcharge et acidogène. Le vecteur des variables d'états du multi-modèle est déterminé à partir des modèles locaux et du diagnostique, lequel utilise la mesure en ligne de la production de méthane et le pH. Les espaces (sphères) du système de diagnostique pour chacune des phases de fonctionnement (méthanogène, surcharge, acidogène) ont été déterminés au préalable à partir de la connaissance de l'opération des procédés de digestion anaérobie.

L'influence de la température sur l'activité microbologique est modélisée à l'aide de l'équation d'Arrhénius, décrite par la fonction suivante :

$$f(T) = e^{\theta(T-T_0)} \quad (10)$$

où, θ est le coefficient de température et T_0 est la température de référence (Hao *et al.*, 2002; Siegrist *et al.*, 2002).

Pour un réacteur anaérobie continu et infiniment mélangé, les bilans de matière de la DCO ($j=1$) et les AGV ($j=2$) pour chacun des modèles locaux (méthanogène $i=1$, surcharge $i=2$, acidogène $i=3$), ont été établis de la manière suivante :

$$\frac{d\zeta_{i,j}}{dt} = r_{i,j}(\zeta_{i,j}, t)f(T) + \frac{F}{V}(\zeta_{i,j}^m - \zeta_{i,j}) - \frac{Q_i}{V}; i = 1, \dots, n \quad j = 1, \dots, 2 \quad (11)$$

où, $f(T)$ est la fonction de d'Arrhénius et n est le nombre total de modèles locaux.

Lorsqu'un transfert immédiat du méthane de la phase liquide à la phase gazeuse est considéré, le débit de méthane (Q_m) est exprimé par la relation suivante :

$$Q_{m,i} = r(\zeta_{i,j}, t)f(T)V; i = 1, \dots, n \quad j = 3 \quad (12)$$

Le vecteur des variables d'états (y) en fonction de la température du réacteur (T) est défini de la manière suivante :

$$y_j(t, T) = \sum_{i=1}^n \beta_i \zeta_{i,j}; \sum_{i=1}^n \beta_i = 1 \quad \beta_i \in [0, 1] \quad j = 1, \dots, m \quad (13)$$

Où, m est le nombre de variable d'états et β_i est la pondération associée au i -ième modèle local.

Un bilan thermique du réacteur a également été réalisé pour établir le contrôleur adaptatif multi-modèle. Un réacteur infiniment mélangé et des réactions biochimiques isothermes sont considérés. L'impact du débit d'eau entrant sur la température du réacteur a été négligé dans le modèle suivant :

$$\frac{dT}{dt} = K_1(T_h - T) + K_2(T - T_{air}); K_1 = U_1 A_1 \quad K_2 = -U_2 A_2 \quad (14)$$

Où, T , T_{air} , T_h sont les températures du réacteur, de l'air ambiant et la température de la double enveloppe ($^{\circ}\text{C}$), K_1 et K_2 sont les coefficients de transfert global ($\text{W } ^{\circ}\text{C}^{-1}$), U_1 et U_2 sont les coefficients de transfert thermique ($\text{W m}^{-2} ^{\circ}\text{C}^{-1}$), A_1 et A_2 sont les surfaces d'échange thermique (m^2).

Afin d'obtenir l'estimation en ligne des paramètres de cinétique du multi-modèle, les modèles locaux ont été convertis en estimateurs locaux grâce à la méthode des estimateurs-observateurs (Bastin et Dochain, 1990).

$$\frac{d\hat{\zeta}}{dt} = KG(\zeta)\hat{\theta} - D\zeta + F - \frac{Q}{V} - \Omega(\zeta - \hat{\zeta}); \quad (15)$$

$$\frac{d\hat{\theta}}{dt} = [KG(\zeta)]^T \Gamma(\zeta - \hat{\zeta}) \quad (16)$$

où, Ω et Γ sont les paramètres d'ajustement des estimateurs-observateurs. Telle que déjà présentée, la méthode de systématisation (Perrier *et al.*, 2000), permet de réduire la sélection à un seul paramètre d'ajustement (w_i) par

variable d'état et permet également d'ajuster la vitesse de convergence des estimateurs.

Le contrôleur adaptatif multi-modèle a été obtenu par linéarisation du multi-modèle OBE. La méthode de linéarisation d'entrée-sortie (Bastin et Dochain, 1990) a été appliquée avec l'erreur $(\zeta^* - \zeta)$ et le modèle de référence de premier ordre suivant :

$$\frac{d}{dt}(\zeta^* - \zeta) + \lambda(\zeta^* - \zeta) = 0; \lambda > 0 \quad (17)$$

La consigne constante ζ^* a été définie ($\frac{d\zeta^*}{dt} = 0$) et le modèle a été pu être simplifié, comme suit :

$$\frac{d\zeta}{dt} = \lambda(\zeta^* - \zeta) \quad (18)$$

Pour chacun des contrôleurs locaux (méthanogène, surcharge, acidogène), la concentration de la DCO ($\zeta_{i,1}$) et la température locale (T_i) constituent la consigne du contrôleur local et la variable manipulée du système, respectivement. Les contrôleurs locaux ont été obtenus par l'égalisation des équations (11) et (17) :

$$T_i = T_0 + \frac{1}{\theta} \ln \left[\frac{\lambda_i(\zeta_{i,j}^* - \zeta_{i,j})}{r_{i,j}(\zeta_{i,j}, t)} + \frac{F(\zeta_{i,j} - \zeta_{i,j}^*)}{V r_{i,j}(\zeta_{i,j}, t)} - \frac{Q_i}{V} \right]; i = 1, \dots, n \quad j = 1, \dots, m \quad (19)$$

où, $r_{i,j}$ sont les taux de biotransformation estimés et λ_i est le paramètre d'ajustement du i -ième contrôleur du j -ième modèle local.

La température dans le réacteur (T^*) a été obtenue par sommation des températures locales (T_i) du vecteur des pondérations (β), lequel provient du système de diagnostique.

$$T^* = \sum_{i=1}^n \beta_i T_i \quad (20)$$

Le contrôleur adaptatif de la température a été obtenu à l'aide de la méthode de linéarisation d'entrée-sortie (Bastin et Dochain, 1990) du bilan thermique du réacteur. La température du réacteur (T^*) représente la consigne de la température et la température de la double enveloppe (T_h) représente la variable manipulée du contrôleur adaptatif.

$$T_h = T + \frac{1}{K_1} \left[\lambda_T (T^* - T) + K_2 (T_{air} - T) \right] \quad (21)$$

où, λ_T est le paramètre d'ajustement du contrôleur.

4.3.2 Effet de la température sur la production de méthane

L'effet de la température sur la production de méthane a été mis en évidence grâce à plusieurs séries de test d'activité et avec un réacteur anaérobie de la laboratoire. Les tests activités préliminaires ont été réalisés avec la biomasse anaérobie d'une industrie de production de jus de fruits (A. Lassonde Inc., Rougemont, Québec, Canada) qui a été stockée à 4°C pendant plusieurs mois. Après l'inoculation, les tests d'activités en bouteille ont été placés dans des incubateurs à 25°C, 35°C, 45°C et 55°C. Les résultats de la production nette de biogaz a été exprimée en équivalent DCO, de manière à tenir compte du méthane et de l'hydrogène produits car une faible quantité d'hydrogène a été mesurée dans les bouteilles thermophiles. Dans la Figure 4.16 sont résumées

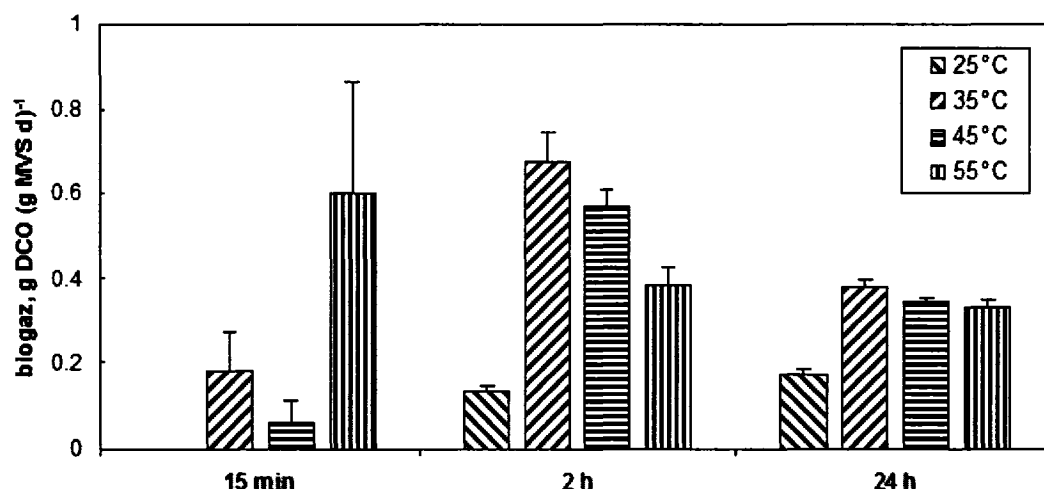


Figure 4.16 : Production de biogaz observée pour les tests activités (en bouteilles) préliminaires pour 15 minutes, 2 heures et 24 heures après l'inoculation pour les températures de 25°C, 35°C, 45°C et 55°C.

les productions de biogaz, pour 15 minutes, 2 heures et 24 heures d'incubation à 25°C, 35°C, 45°C et 55°C pour les tests préliminaires.

Après 15 minutes d'incubation à 25°C, aucune production de biogaz n'a été mesurée, tandis qu'une faible production a été observée pour 35°C et 45°C. Au même moment, une production de biogaz de 0.6 g DCO (g MVS d)⁻¹ a été relevée pour une température de 55°C après 15 minutes d'incubation. La production de biogaz la plus élevée a été observée après 2 heures d'incubation à 35°C. Par contre, toutes les bouteilles ont démontré une production de biogaz équivalente après 24 heures d'incubation, seulement l'incubation à 35°C a été légèrement supérieure.

Des effets similaires ont été observés pour des augmentations de températures avec un réacteur anaérobie à flux ascendant de 10 litres. Le réacteur a été opéré normalement à 25°C et la température du réacteur a été variée par intermittences. Entre les augmentations de température, le réacteur a été maintenue à 25°C afin d'éviter l'acclimatation de la biomasse aux conditions thermophiles. Les tests ont été réalisés pour une charge organique modérée de 6 g DCO L_R⁻¹ j⁻¹ et il a été surchargé ponctuellement à 12 g DCO L_R⁻¹ j⁻¹. Chacune des augmentations de température a entraîné une augmentation immédiate de la production de méthane. La production de

méthane a atteint sa valeur maximale pour la surcharge, puis a diminué légèrement après 6 heures de chauffage (voir Figure 4.17). Une faible quantité d'hydrogène dans le biogaz a été mesurée (moins de 1%) pour des températures au dessus de 40°C. La production de méthane observée a été directement proportionnelle à l'augmentation de température, à 48°C la plus forte augmentation a été observée. Les augmentations de méthane avec une charge organique de $12 \text{ g DCO L}_R^{-1} \text{ j}^{-1}$ ont atteint une production maximale de $54 \text{ L CH}_4 \text{ j}^{-1}$.

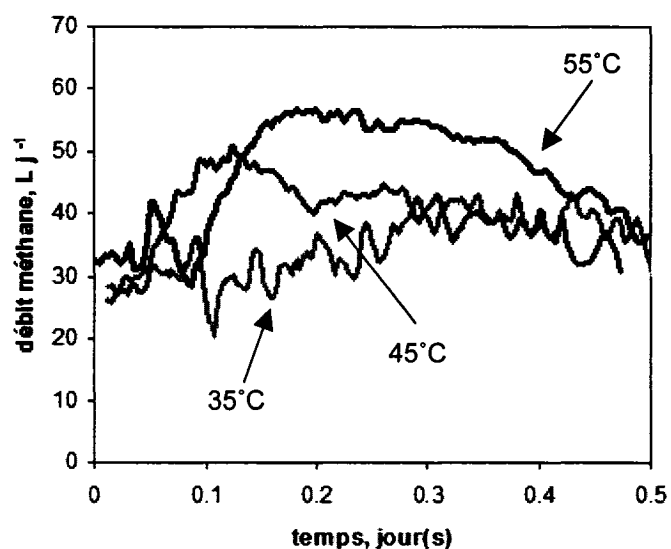


Figure 4.17 : Effet de l'augmentation de la température sur la production de méthane pour une CVA de $12 \text{ g DCO L}_R^{-1} \text{ j}^{-1}$ avec le réacteur de 10 litres, la température a été augmentée de 25°C à 35°C (gris clair), à 45°C (gris foncé) et à 55°C (noir), indépendamment.

L'amélioration de l'abattement de la DCO a été confirmée par des données analytiques. La concentration de la DCO était de 1.2-1.5 g DCO L⁻¹ avec une charge organique de 12 g DCO L_R⁻¹ j⁻¹ à 25°C. Tandis qu'avec une température de 50°C, la concentration de la DCO était en-dessous de 0.6 g DCO L⁻¹. La température de 50°C a permis de maintenir un pH de 6.8 dans le réacteur pendant toute la période de surcharge. Par contre, la surcharge du réacteur avec une température de 25°C a causé l'acidification du réacteur (pH 6.5).

La comparaison des rendements de méthane à différentes températures a montré qu'ils étaient supérieurs au rendement théorique du méthane (0.35 L CH₄ g DCO⁻¹), calculés pour la production maximale. Des rendements de méthane en-dessous de 0.35 L CH₄ g DCO⁻¹ ont été observés après la production maximum de méthane. Au cours de la surcharge du réacteur, un rendement de méthane de 0.31 L CH₄ g DCO⁻¹ a été obtenu juste avant le chauffage du réacteur. L'élévation de la température de 25°C à 48°C a permis d'accroître le rendement de méthane jusqu'à 0.47 L CH₄ g DCO⁻¹, ensuite le rendement de méthane s'est stabilisée autour de 0.33 L CH₄ g DCO⁻¹. Cette augmentation momentanée du rendement du méthane est principalement due à l'hydrolyse et de la biodégradation de la matière organique accumulée dans le réacteur. L'augmentation de la vitesse d'hydrolyse combinée à l'augmentation de l'activité enzymatique des bactéries méthanogènes dans des conditions thermophiles, résultent de l'élévation des rendements de méthane.

Par conséquent, la diminution suivant l'augmentation de la production de méthane indique que les vitesses de croissance des méthanogènes mésophiles sont affectées par des conditions d'opération thermophile.

Une inspection visuelle de la biomasse granulaire n'a montrée aucun signe de désintégration de la biomasse après 2 mois d'opération avec des augmentations intermittentes de la température. Au cours de cette même période, le volume de la biomasse dans le réacteur a également augmenté de 5 litres à 8 litres. Ces observations confirment l'utilisation de conditions d'opération favorables. Cependant, l'exposition thermophile du réacteur pour plus de 24 heures a produit une augmentation notable des MVS dans l'effluent ainsi que de l'hydrogène dans le biogaz (résultats non présentés). Par conséquent, les bactéries fermentatives sont beaucoup plus tolérantes aux variations de température que les bactéries méthanogènes. Par contre, les bactéries méthanogènes mésophiles tolèrent des conditions d'opération thermophiles seulement pour une courte durée de temps. L'application des conditions thermophiles à un consortium mésophiles pour une période de temps suffisamment longue nécessite une acclimatation des microorganismes aux conditions thermophiles (Bouskova *et al.*, 2005).

En plus des tests d'activités décrits ci-dessus, un échantillon de la biomasse a été prélevé dans le réacteur après 24 heures d'opération à 50°C. Ces

échantillons de biomasse ont été utilisés pour réaliser des tests d'activité de potentiel méthane à 25°C et 55°C. Ces tests ont permis d'évaluer la capacité de récupération de la biomasse mésophile après une exposition thermophile par intermittence. Les valeurs de production de méthane obtenues ont été sensiblement similaires à celles obtenues avec l'inoculum (voir Figure 4.18). Après 15 minutes, la production de méthane avec la biomasse du réacteur a été également supérieure pour des conditions thermophiles, et après 2 heures d'incubation la production de méthane à 55°C a diminuée significativement. Toutefois, la production de biogaz mesurée a été plus élevée comparativement

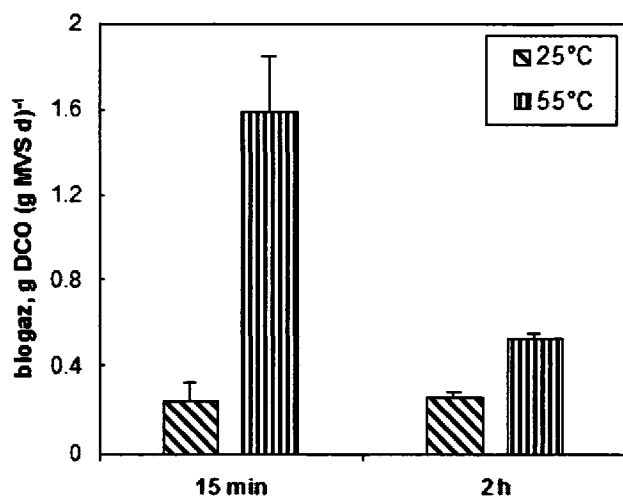


Figure 4.18 : Production de méthane observée avec la biomasse du réacteur de 10 litres prélevés après 24h d'opération à 50°C et par la suite incubés en bouteille pendant pour 15 minutes et 2 heures à 25°C et 55°C.

aux tests préliminaires, notamment à cause de l'acclimatation de la biomasse anaérobie à l'eau usée synthétique.

Par conséquent, les tests d'activités ont permis d'affirmer que la température peut être utilisée pour augmenter momentanément les vitesses de production de méthane. Les essais d'augmentation de la température du réacteur ont confirmé que les microorganismes mésophiles peuvent être exposés pour une courte durée à des conditions thermophiles sans dommage irréversible sur le consortium microbien mésophile. À partir de ces observations, une stratégie de contrôle du réacteur utilisant la température a été proposée afin d'augmenter temporairement les taux d'enlèvements de la DCO. Néanmoins, la durée des augmentations de température doit être limitée de manière à prévenir tout phénomène d'acclimatation de la biomasse anaérobie.

4.3.3 Contrôle de la température d'un réacteur anaérobie

La stratégie de contrôle proposée précédemment a été testée avec un réacteur anaérobie d'une capacité de 10 litres opéré dans des conditions normales à 25°C et une charge organique de 6 g DCO $L_R^{-1} j^{-1}$. Périodiquement, le réacteur a été surchargé (12 g DCO $L_R^{-1} j^{-1}$) et la température dans le réacteur a été augmentée. Le contrôleur adaptatif de la température, décrit ci-dessus a été

employé. Plusieurs expérimentations ont été menées avec différentes valeurs de consigne de la DCO, allant de 0.4 g L^{-1} à 1.0 g L^{-1} . Durant ces expérimentations le pH dans le réacteur a été maintenu uniquement grâce à l'équilibre du bicarbonate présent dans l'affluent. La Figure 4.19 présente les résultats d'une expérience de contrôle du réacteur avec une valeur de consigne de 0.6 g DCO L^{-1} . Juste avant cette expérimentation, le réacteur produisait $1.7 \pm 0.1 \text{ L CH}_4 \text{ L}_R^{-1} \text{ j}^{-1}$ et la DCO était de $0.34 \pm 0.04 \text{ g DCO L}^{-1}$ dans l'effluent. La DCO mesurée était composée principalement composée de 87% d'AGV. La charge organique a été augmentée de 6 à $12 \text{ g DCO L}_R^{-1} \text{ j}^{-1}$ à $t = 0.1$ jour. En réponse, la production de méthane a augmenté jusqu'à $3.4 \pm 0.2 \text{ L CH}_4 \text{ L}_R^{-1} \text{ j}^{-1}$ et le pH dans réacteur a diminué. Par conséquent, la phase de surcharge a été détectée par le système de diagnostique du multi-modèle (voir Figure 4.19.f).

Après une courte période de transition, le contrôleur adaptatif multi-modèle a stabilisé l'effluent à une concentration de la DCO de 0.6 g DCO L^{-1} et la température dans le réacteur s'est stabilisée autour de 38°C . Le pH dans le réacteur a augmenté de 6.6 à 6.7. Comme avec les tests activités (voir Figure 4.17), le chauffage du réacteur a provoqué une augmentation de la production de méthane jusqu'à $5.2 \text{ L CH}_4 \text{ L}_R^{-1} \text{ j}^{-1}$ (voir Figure 4.19.c). Au jour $t = 0.85 \text{ j}$, la charge organique a été retournée à des conditions normales d'opération.

Ensuite, le contrôleur adaptatif multi-modèle a fait décroître rapidement la température dans le réacteur jusqu'à 25°C, juste après la diminution de la charge organique à 6 g DCO L_R⁻¹ j⁻¹.

Afin de comparer les performances du réacteur avec et sans le contrôleur adaptatif multi-modèle, la surcharge du réacteur a été répétée sans contrôle de la température. Le réacteur a été opéré avec une température fixe de fonctionnement (25°C). Au jour $t = 1.1$ j, la charge organique a été augmentée de 6 g DCO L_R⁻¹ j⁻¹ à 12 g DCO L_R⁻¹ j⁻¹ (voir Figure 4.19.a). L'augmentation de la charge organique a provoqué une augmentation de la DCO dans l'effluent jusqu'à 1 g DCO L⁻¹ et une diminution du pH dans le réacteur jusqu'à 6.5. La phase de surcharge du réacteur a été diagnostiquée, ainsi que la phase acidogène à cause de l'acidification marquée du réacteur (voir Figure 4.19.f). Au jour $t = 1.8$ j, la charge organique du réacteur a été diminuée à 6 g DCO L_R⁻¹ j⁻¹ et la concentration de la DCO a diminué jusqu'à 0.3 g DCO L⁻¹.

L'amélioration de la stabilité d'opération du réacteur anaérobie par la modulation de la température s'est directement répercutée sur son diagnostique. La surcharge du réacteur a été rapidement détectée par le système de diagnostique dès la première surcharge (voir Figure 4.19.f).

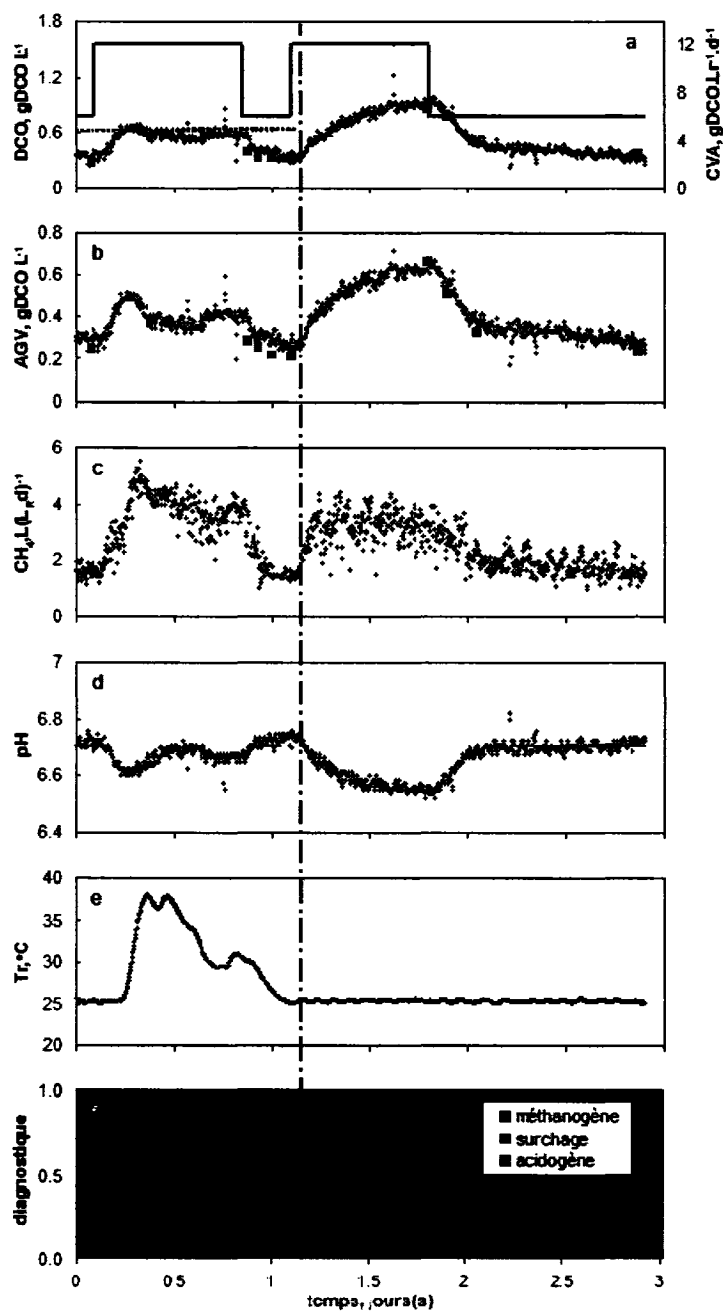


Figure 4.19 : Dynamique des principaux paramètres (a-d), de la température (e) et du diagnostique du procédé (f) pour le réacteur de 10 litres contrôlé en boucle fermée (0-1.1 j) et en boucle ouverte (1.1-3 j). Les mesures analytiques de la DCO et des AGV sont représentées par des carrés.

L'acidification du réacteur a été évitée par l'augmentation de la température du réacteur, ce qui a permis d'augmenter les taux de conversion de la DCO en méthane. Par contre, l'absence de la boucle de contrôle pendant la deuxième surcharge a entraîné une acidification du réacteur et la phase de

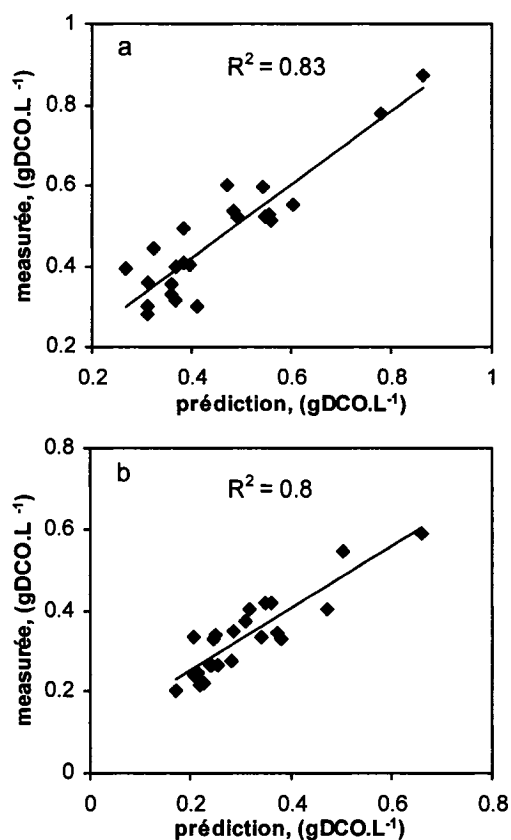


Figure 4.20 : Calibration de la mesure de la DCO (a) et des AGV (b) par fluorescence à multiple longueurs d'ondes avec les mesures analytiques correspondantes.

fonctionnement acidogène a été détectée. L'activité méthanogène n'a pas été affectée par la charge organique, car elle ne fût que de courte durée. Toutefois, une surcharge organique prolongée peut entraîner des modifications irréversibles du consortium bactérien anaérobie.

Au cours de l'expérimentation, la mesure en ligne de la DCO et des AGV a été obtenue l'aide de la méthode de mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes. Les modèles de régression pour l'estimation de la DCO et des AGV ont été préalablement calibrés à partir des données analytiques obtenues pour des conditions d'opération similaires. La calibration de la DCO et des AGV a été réalisée à l'aide d'une régression linéaire utilisant l'aire de deux régions significativement sensibles des spectres de fluorescence pour les deux sources de lumière (PX-2 UV/VIS et UV-380nm). Les investigations menées pour la calibration des modèles de régression ont démontré que le niveau de la fluorescence est également dépendant du pH dans le réacteur, en plus des composés fluorescents présents dans l'effluent. Par conséquent, la mesure du pH a été ajoutée aux modèles de régression. Les prédictions et les données analytiques ont été comparées, de bons coefficients d'ajustement (R^2) ont été obtenus pour la DCO et les AGV (voir Figure 4.20). Néanmoins, la fluorescence mesurée est principalement attribuée aux extraits de levures contenus dans l'alimentation, seulement une très faible proportion du signal de fluorescence provient de la fluorescence des AGV eux-mêmes (résultats non

présentés). Une étude plus approfondie serait nécessaire afin de démontrer la faisabilité de la mesure en ligne des AGV à l'aide de la méthode de fluorescence à multiple longueurs d'ondes.

4.3.4 Conclusions – Contrôle adaptatif de la température

Dans cette partie, l'influence d'une courte exposition de la biomasse granulaire anaérobie mésophile à des conditions thermophiles a été examinée. Les tests activités ainsi que les expérimentations avec le réacteur anaérobie ont montré, qu'une courte exposition thermophile (45-55°C) des microorganismes mésophiles n'altérerait pas la vitesse de biodégradation anaérobie mésophile à long terme. Une augmentation significative de la production de méthane a été notée lors des périodes de transition (chauffage). Cette augmentation est attribuée à accroissement de l'activité enzymatique les bactéries méthanogènes mésophiles et à l'accroissement de la biodisponibilité des substrats (augmentation de l'hydrolyse sous l'effet de l'augmentation de la température). Toutefois, l'exposition à des conditions thermophiles de la biomasse anaérobie mésophiles ne doit pas être prolongée afin de prévenir toutes modifications du consortium bactérien mésophile.

Ces propriétés d'adaptation aux changements de température ont été employées pour développer une stratégie de contrôle de la surcharge d'un

réacteur anaérobie. La température du réacteur est augmentée pendant une courte période de temps de manière à accroître l'efficacité de la biodégradation de la DCO. Cette stratégie de contrôle a été testée avec un réacteur anaérobie d'une capacité de 10 litres, avec lequel l'action de contrôle (la température du réacteur) a été périodiquement réajustée par le contrôleur adaptatif multi-modèle. Également, la combinaison de la méthode de mesure en ligne de la fluorescence avec la nouvelle stratégie de contrôle adaptative a démontré stabiliser le processus de digestion anaérobie pendant la surcharge du réacteur.

CHAPITRE 5 : CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

5.1 Conclusions

L'objectif principal de ce travail était le développement et la validation de la mesure en ligne de la fluorescence multiple longueurs d'ondes pour le contrôle en continu de la surcharge d'un réacteur anaérobie. Dans la première partie de l'étude, une méthode de mesure utilisant la fluorescence à multiple longueurs d'ondes a été développée pour réaliser le suivi en continu de la DCO, des AGV et des MVS dans l'effluent d'un réacteur anaérobie. Dans la deuxième partie, un multi-modèle de digestion anaérobie et un système de diagnostique ont été établis et testés pour l'estimation en continu des variables d'états (DCO, AGV et la production de méthane) et l'estimation en continu des paramètres de cinétique. La capacité de prédiction des variables d'états à long terme du multi-modèle a également été démontrée. Dans la troisième et dernière partie de l'étude, l'effet de la température sur l'activité microbologique de la digestion anaérobie a été évalué, dans le but de contrôler la surcharge d'un réacteur anaérobie. Le contrôle de la trajectoire de la température d'un réacteur anaérobie a été réalisé à l'aide d'un contrôleur adaptatif multi-modèle.

Le système de mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes développé dans le cadre de cette étude est constitué d'un spectromètre muni d'une matrice CCD pour l'émission et de deux sources de lumière (large bande UV/VIS et UV-LED 380 nm) pour l'excitation. La fluorescence des procédés biologiques est principalement attribuée aux protéines, aux acides aminés et aux cofacteurs. Les AGV, intermédiaires de la biodégradation anaérobie, sont également fluorescents dans le domaine de l'ultraviolet. Expérimentalement, la fluorescence d'un réacteur anaérobie de laboratoire a été mesurée en continu dans la ligne de recirculation. L'effluent est irradié par une source de lumière UV/VIS ou UV-LED 380 nm et l'émission (la fluorescence) a été mesurée pour des longueurs allant de 200 à 800 nm à intervalle régulier.

Le traitement statistique de la fluorescence est un élément essentiel pour établir une corrélation entre les données analytiques et la fluorescence. Plusieurs méthodes de régressions statistiques (PLS, nPCR et SWR) ont été envisagées pour la prédiction de la DCO, des AGV et des MVS pour un réacteur de laboratoire alimenté avec une eau usée synthétique. L'ensemble des méthodes statistiques proposées ont été capables de prédire les données analytiques avec beaucoup de précision. Toutefois, uniquement avec la méthode de régression statistique PLS est capable de prédire les différents paramètres du réacteur à long terme. Le signal de la fluorescence observé provient essentiellement des cofacteurs et des intermédiaires de la

biodégradation anaérobie, car l'eau usée synthétique contient très peu de composés fluorescents comparés à une eau usée industrielle.

Le suivi par fluorescence à multiple longueurs d'ondes du traitement anaérobie d'une eau usée industrielle provenant d'une usine de production de fromage a été réalisé dans un réacteur de laboratoire. La méthode de régression statistique PLS a été utilisée pour le traitement statistique des spectres de fluorescence. Les très faibles niveaux de la concentration des AGV dans l'effluent ont limitées fortement la mesure des AGV par fluorescence. Par contre, de très bons ajustements ont été observés pour l'estimation de la concentration de la DCO et des MVS dans l'effluent. La mesure de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes a également été testée pour la détermination de la concentration de la DCO, des AGV et des MVS dans des échantillons d'effluent de réacteur anaérobie.

Dans cette étude une nouvelle approche de modélisation utilisant le principe de ségrégation des phases de fonctionnement des réacteurs anaérobies a été développée. Le multi-modèle de digestion anaérobie est constitué de trois modèles locaux, lesquels correspondent aux phases de fonctionnement méthanogène, de surcharge organique et acidogène. L'arrangement entre les modèles locaux est assuré par un système de diagnostique, lequel utilise la mesure en ligne du pH et de la production de biogaz et intègre dans sa

structure l'expérience de l'opération du procédé. La mesure en ligne de la DCO et des AGV par fluorescence et la transformation du multi-modèle en multi-modèle OBE ont permis de réaliser une estimation dynamique des variables d'états et des paramètres de cinétique du modèle. De plus, la prédiction à long terme de la DCO, des AGV et de production de méthane a été testée, une fois les paramètres du modèle identifiés. Une attention particulière a également été portée aux choix des paramètres d'ajustement des OBE. Il a été démontré que ces paramètres influencent largement l'estimation des paramètres de cinétique. Les paramètres d'ajustement agissent directement sur la vitesse de convergence et stabilité des estimateurs. La sélection des paramètres d'ajustement doit être réalisée de manière à ne pas introduire de bruits de mesure dans les estimations, mais doivent permettre aux estimateurs de capturer convenablement la dynamique du procédé.

L'activité des bactéries méthanogènes est très sensible aux variations de la charge organique et aux variations de la température. Depuis longtemps, il a été admis que l'activité méthanogène thermophile est plus élevée que l'activité méthanogène mésophile. Les bactéries mésophiles sont capables de s'adapter à des conditions d'opération thermophile après une période d'acclimatation. Cette acclimatation entraîne une modification des populations bactériennes mésophiles, difficilement réversibles. Néanmoins, il a été démontré qu'une courte exposition des bactéries mésophiles à des conditions thermophiles

n'altère pas l'activité mésophile et permettait d'augmenter momentanément les rendements de production de méthane. Dans cette étude, des tests d'activités et les expérimentations avec le réacteur ont été réalisés afin de démontrer la faisabilité de l'utilisation de la température pour augmenter les rendements de production de méthane sur une courte période de temps. Les résultats de l'exposition thermophile prolongée ont démontrés que l'activité méthanogène mésophile n'a pas été altérée par les augmentations de température.

Une nouvelle stratégie de contrôle des réacteurs anaérobie a été présentée dans cette étude. Il a été proposé de contrôler la surcharge organique par une augmentation ponctuelle de la température d'opération. Pour ce faire, un contrôleur adaptatif de la température a été défini à partir du multi-modèle de digestion anaérobie. Les paramètres de cinétiques sont estimés en ligne à l'aide de la mesure en ligne de la DCO, des AGV et de la production de méthane par fluorescence à multiple longueurs d'ondes. Expérimentalement, cette nouvelle approche a été appliquée pour le contrôle de la DCO dans l'effluent d'un réacteur anaérobie. L'augmentation à court terme de la température a permis de stabiliser l'opération du réacteur anaérobie pendant une période de surcharge organique et a permis de maintenir la DCO constante au court de cette même période.

5.2 Recommandations

La mesure en ligne de la fluorescence à multiple longueurs d'ondes a permis d'assurer une mesure en continu de la DCO, des AGV et des MVS. Toutefois, cette méthode de mesure est très sensible à la diffraction de la lumière créée par les bulles de gaz et à la réflexion de la lumière par les matières en suspension présentes dans le milieu. La mesure de la fluorescence en continu nécessite la mise en œuvre de techniques innovatrices au cas par cas afin de palier aux phénomènes de diffraction et de réflexion de la lumière. La mesure des AGV par fluorescence requière encore des investigations additionnelles afin d'examiner l'effet du pH sur le niveau de la fluorescence. Et l'intégration de la mesure du pH conjointement avec celle de la fluorescence pour la prédiction des AGV nécessiterait une étude plus approfondie. Cette méthode de la mesure en continu nécessitera également de plus amples validations à l'échelle pilote et à l'échelle de industrielle de manière à éprouver les procédures de calibration.

La modélisation multi-modèle de digestion anaérobie a démontrée de nombreux avantages, notamment pour estimation des paramètres de cinétique, le diagnostique et le contrôle. L'extension de la modélisation multi-modèle de la digestion anaérobie avec des modèles à paramètres distribués avec le profil la fluorescence sur la hauteur du réacteur permettrait d'améliorer

la compréhension des phénomènes biochimiques mis en jeu par les procédés de digestion anaérobie. De plus, l'utilisation d'un multi-modèle pour le contrôle des réacteurs anaérobie permettrait de poser des actions de contrôle plus rapidement, car la distribution des paramètres du modèle permet de tenir compte de la dispersion de la matière organique sur la hauteur du réacteur pour le contrôle.

La tolérance des microorganismes mésophiles à une exposition thermophile pendant une courte durée a démontré ses avantages. Les augmentations de la température améliorent considérablement les rendements de production du méthane. Ces résultats ont été confirmés à l'aide de tests d'activités et avec un réacteur anaérobie de laboratoire. Cette propriété biochimique des microorganismes a été exploitée pour réaliser le contrôle du niveau de la DCO dans l'effluent d'un réacteur anaérobie pendant une surcharge organique. L'augmentation de température est une stratégie de contrôle facilement applicable au milieu industriel pour le traitement des eaux durant des périodes de surcharge définies, car elle ne requiert aucune modification particulière des installations. L'augmentation de température permet d'accroître temporairement la capacité de traitement. Toutefois, il est recommandé de limiter dans le temps les périodes d'augmentation de température. En effet, l'exposition prolongée à des conditions de température élevée peut entraîner

une diminution de l'efficacité du traitement anaérobie, à cause des phénomènes d'acclimations des microorganismes.

RÉFÉRENCES

Ahn J.-H. et Forster C.F. (2000) A comparison of mesophilic and thermophilic anaerobic upflow filter. *Bioresource Technology*, **73**(3), 201-205.

Ahn J.-H. et Forster C.F. (2002) The effect of temperature variations on the performance of mesophilic and thermophilic anaerobic filters treating a simulated papermill wastewater. *Process Biochemistry*, **37**(6), 589-594.

Ahring B.K., Ibrahim A.A. et Mladenvska Z. (2001) Effect of temperature increase from 55 to 65°C on performance and microbial population dynamics of an anaerobic reactor treating cattle manure. *Water Research*, **35**(10), 2446-2452.

Ahring B.K., Sandberg M. et Angelidaki I. (1995) Volatile fatty acids as indicators of process imbalance in anaerobic digestors. *Applied Microbiology and Biotechnology*, **43**(3), 559-565.

Akunna J.C. et Clark M. (2000) Performance of a granular-bed anaerobic baffled reactor (GRABBR) treating whisky distillery wastewater. *Bioresource Technology*, **74**, 257-261.

Alatiqi I.M., Dadkhah A.A., Akbar A.M. et Hamouda M.F. (1994) Comparison between dynamics and control performance of mesophilic and thermophilic anaerobic sludge digesters. *Chemical Engineering Journal and Biochemical Engineering Journal*, **55**(3), 55-66.

Alatiqi I.M., Hamoda M.F. et Dadkhah A.A. (1998) Kinetic analysis of thermophilic anaerobic digestion of wastewater sludge. *Water, Air and Soil Pollution*, **107**(1-4), 393-407.

Anderberg M.R. (1973) *Cluster analysis for applications*, Ed. Academic Press, New York.

Anderson G.K. et Yang G. (1992) pH control in anaerobic treatment of industrial wastewater. *Journal of Environmental Engineering*, **118**, 551-567.

Andrews J.F. (1968) A mathematical model for the continuous culture of microorganisms utilizing inhibitory substrates. *Biotechnology and Bioengineering*, **10**(6), 707-723.

Angelidaki I., Ellegaard L. et Ahring B.K. (1993) A mathematical model for dynamic simulation of anaerobic digestion of complex substrates: focusing on ammonia inhibition. *Biotechnology and Bioengineering*, **42**(1), 159-166.

Angelidaki I., Ellegaard L. et Ahring B.K. (1999) Comprehensive model of anaerobic bioconversion of complex substrates to biogas. *Biotechnology and Bioengineering*, **63**(3), 363-372.

APHA, AWWA et WEF. (1995) *Standard Methods for Examination of Water and Wastewater* 19th edn, American Public Health Association/American Water Works Association/Water Environment Federation, Washington. DC, USA

Arcand Y., Guiot S.R., Desrochers M. et Chavarie C. (1994) Impact of the reactor hydrodynamics and organic loading on the size and activity of the anarobic granules. *The Chemical Engeneering Journal*, **56**, B23-B35.

Azimzadeh F., Galan O. et Romagnoli J.A. (2001) On-line optimal trajectory control for a fermentation process using multi-linear models. *Computers & Chemical Engineering*, **25**(1), 15-26.

Baffi G., Martin E.B. et Morris A.J. (1999a) Non-linear projection to latent structures revisited (the neural network PLS algorithm). *Computers and Chemical Engineering*, **23**(9), 1293-1307.

Baffi G., Martin E.B. et Morris A.J. (1999b) Non-linear projection to latent structures revisited: the quadratic PLS algorithm. *Computers and Chemical Engineering*, **23**(3), 395-411.

Baffi G., Morris J. et Martin E. (2002) Non-linear model based predictive control through dynamic non-linear Partial Least Squares. *Chemical Engineering Research and Design*, **80**(1), 75-86.

Bakshi B.R. (1998) Multiscale PCA with application to multivariate statistical process monitoring. *AIChE Journal*, **44**(7), 1596-1610.

Banerjee A., Arkun Y., Ogunnaike B.A. et Pearson R. (1997) Estimation of nonlinear systems using linear multiple models. *AIChE Journal*, **43**(5), 1204-1226.

Bastin G. et Dochain D. (1986) On-line estimation of microbial growth rates. *Automatica*, **22**(6), 705-711.

Bastin G. et Dochain D. (1990) *On-line estimation and adaptive control of bioreactor*, Ed. Elsevier, Amsterdam.

Batstone D.J. et Keller J. (2003) Industrial applications of the IWA anaerobic digestion model No.1 (ADM1). *Water Science and Technology*, **47**(12), 199-206.

Batstone D.J., Keller J., Angelidaki R.I., Kalyuzhnyi S.V., Pavlostathis S.G., Rozzi A.G., Sanders W.T.M., Siegrist H. et Vavilin V.A. (2002) *Anaerobic Digestion Model No.1 Technical and Scientific Report No.13*, Ed. IWA Publishing, London, UK.

Bernard O., Hadj-Sadok Z., Dochain D., Genovesi A. et Steyer J.P. (2001) Dynamic model development and parameter identification for an anaerobic wastewater treatment process. *Biotechnology and Bioengineering*, **75**(4), 424-438.

Blumensaat F. et Keller J. (2005) Modelling of two-stage anaerobic digestion using the IWA Anaerobic Digestion Model No. 1 (ADM1). *Water Research*, **39**(1), 171-183.

Boehl D., Solle D., Hitzmann B. et Scheper T. (2003) Chemometric modelling with two-dimensional fluorescence data for *Claviceps purpurea* bioprocess characterization. *Journal of Biotechnology*, **105**(1-2), 179-188.

Boukhris A., Mourot G. et Ragot J. (1999) Non-linear dynamic system identification: a multi-model approach. *International Journal of Control*, **72**(7-8), 591-604.

Bouskova A., Dohanyos M., Schmidt J.E. et Angelidaki I. (2005) Strategies for changing temperature from mesophilic to thermophilic conditions in anaerobic CSTR reactors treating sewage sludge. *Water Research*, **39**(8), 1481-1488.

Bousson K., Steyer J.P., Trave-Massuyes L. et Dahhou B. (1998) From a rule-based to a predictive qualitative model-based approach using automated model generation. Application to the monitoring and diagnosis of biological processes. *Engineering Applications of Artificial Intelligence*, **11**(4), 477-493.

Brauner N. et Shacham M. (2000) Considering precision of data in reduction of dimensionality and PCA. *Computers and Chemical Engineering*, **24**(12), 2603-2611.

Buffiere P., Steyer J.-P., Fonade C. et Moletta R. (1995) Comprehensive modeling of methanogenic biofilms in fluidized bed systems: Mass transfer limitations and multisubstrate aspects. *Biotechnology and Bioengineering*, **48**(6Dec 20), 725-736.

Carrasco E.F., Rodriguez J., Pual A., Roca E. et Lema J.M. (2004) Diagnosis of acidification states in an anaerobic wastewater treatment plant using a fuzzy-based expert system. *Control Engineering Practice*, **12**, 59-64.

Chang F.-Y. et Lin C.-Y. (2004) Biohydrogen production using an up-flow anaerobic sludge blanket reactor. *Hydrogen Energy*, **29**, 33-39.

Chang J.-S., Lee K.-S. et Lin P.-J. Biohydrogen production with fixed-bed bioreactors. *Biohydrogen 2002 (BIO-H2)*, Apr 21 2002. Elsevier Science Ltd: Ede, Netherlands, 2002, pp. 1167-1174.

Chen F., Xia Q. et Ju L.-K. (2003) Aerobic denitrification of pseudomonas aeruginosa monitored by online NAD(P)H fluorescence. *Applied Environmental Microbiology*, **69**(11), 6715-6722.

Cord-Ruwisch R., Mercz T.I., Hoh C.-Y. et Strong G.E. (1997) Dissolved hydrogen concentration as an on-line control parameter for the automated operation and optimization of anaerobic digesters. *Biotechnology and Bioengineering*, **56**(6), 626-634.

Costello D.J., Greenfield P.F. et Lee P.L. (1991) Dynamic modelling of a single-stage high-rate anaerobic reactor-I. Model derivation. *Water Research*, **25**(7), 847-858.

Dahlen J., Karlsson S., Backstrom M., Hagberg J. et Pettersson H. (2000) Determination of nitrate and other water quality parameters in groundwater from UV/Vis spectra employing partial least squares regression. *Chemosphere*, **40**(1), 71-77.

Dainson B.E., Tartakovsky B., Scheintuch M. et Lewin D.R. (1995) Variable structure models in process observation and control. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, **34**(9), 3008-3013.

Dochain D. (2003) State and parameter estimation in chemical and biochemical processes: A tutorial. *Journal of Process Control*, **13**(8), 801-818.

Dochain D., Tali-Maamar N. et Babary J.P. (1997) On modelling, monitoring and control of fixed bed bioreactors. *Computers & Chemical Engineering*, **21**(11), 1255-1266.

Dong D. et McAvoy T.J. (1996) Nonlinear principal component analysis-Based on principal curves and neural networks. *Computers & Chemical Engineering*, **20**(1), 65-78.

Dupla M., Conte T., Bouvier J.C., Bernet N. et Steyer J.P. (2004) Dynamic evaluation of a fixed bed anaerobic digestion process in response to organic overloads and toxicant shock loads. *Water Science and Technology*, **49**(1), 61-68.

Farabegoli G., Hellinga C., Heijnen J.J. et Van Loosdrecht M.C.M. (2003) Study on the use of NADH fluorescence measurements for monitoring wastewater treatment systems. *Water Research*, **37**(11), 2732-2738.

Farza M., Hammouri H., Jallut C. et Lieto J. (1999) State observation of a nonlinear system: Application to (bio)chemical processes. *AIChE Journal*, **45**(1), 93-106.

Foresti E. (2001) Perspectives on anaerobic treatment in developing countries. *Water Science and Technology*, **44**(8), 141-148.

Garai G. et Chaudhuri B.B. (2004) A novel genetic algorithm for automatic clustering. *Pattern Recognition Letters*, **25**(2), 173-187.

Gugaliya J.K., Gudi R.D. et Lakshminarayanan S. (2005) Multi-model decomposition of nonlinear dynamics using a fuzzy-CART approach. *Journal of Process Control*, **15**(4), 417-434.

Guiot S.R., Pauss A. et Costerton J.W. (1992) A structured model of the anaerobic granule consortium. *Water Science and Technology*, **25**(7), 1-10.

Guwy A.J., Hawkes F.R., Hawkes D.L. et Rozzi A.G. (1997) Hydrogen production in a high rate fluidised bed anaerobic digester. *Water Research*, **31**(6), 1291-1298.

Haag J.E., Vande Wouwer A. et Queinnec I. (2003) Macroscopic modelling and identification of an anaerobic waste treatment process. *Chemical Engineering Science*, **58**(19), 4307-4316.

Hagedorn A., Legge R.L. et Budman H. (2003) Evaluation of spectrofluorometry as a tool for estimation in fed-batch fermentations. *Biotechnology and Bioengineering*, **83**(1), 104-111.

Hagedorn A., Levadoux W., Groleau D. et Tartakovsky B. (2004) Evaluation of multiwavelength culture fluorescence for monitoring the aroma compound 4-hydroxy-2(or 5)-ethyl-5(or 2)-methyl-3(2H)-furanone (HEMF) production. *Biotechnology Progress*, **20**(1), 361-367.

Haiqing W., Zhihuan S. et Ping L. Improved PCA with optimized sensor locations for process monitoring and fault diagnosis. *39th IEEE Conference on Decision and Control, Dec 12-15 2000*. Institute of Electrical and Electronics Engineers Inc.: Sydney, NSW, 2000, pp. 4353-4358.

Hantelmann K., Kollecker M., Hull D., Hitzmann B. et Scheper T. (2006) Two-dimensional fluorescence spectroscopy: A novel approach for controlling fed-batch cultivations. *Journal of Biotechnology*, **121**(3), 410-417.

Hao X., Heijnen J.J. et Van Loosdrecht M.C.M. (2002) Model-based evaluation of temperature and inflow variations on a partial nitrification-ANAMMOX biofilm process. *Water Research*, **36**(18), 4839-4849.

Harbeck C., Faurie R. et Scheper T. (2004) Application of near-infrared spectroscopy in the sugar industry for the detection of betaine. *Analytica Chimica Acta*, **501**(2), 249-253.

Harper S.R. et Pohland F.G. (1986) Recent developments in hydrogen mangement during anaerobic biological wastewater treatment. *Biotechnology and Bioengineering*, **28**, 585-602.

Hawkes F.R., Guwy A.J., Rozzi A.G. et Hawkes D.L. (1993) A new instrument for on-line measurement of bicarbonate alkalinity. *Water Research*, **27**(1), 167-170.

Henze H., Grady C.P.L.J., Gujer W., Marais G.v.R. et Matsuo T. (1987) *Activated Sludge Model No.1 IAWQ Scientific and Technical Report No.1*, Ed. IAWQ Publishing, London, UK.

Hisiger S. et Jolicoeur M. (2005) A multiwavelength fluorescence probe: Is one probe capable for on-line monitoring of recombinant protein production and biomass activity? *Journal of Biotechnology*, **117**(4), 325-336.

Hobson P.N. et Wheatley A.D. (1993) *Anaerobic Digestion: Modern Theory and Practice*, Ed. Elsevier Applied Science, New York.

Holcomb T.R. et Morari M. (1992) PLS/neural networks. *Computers & Chemical Engineering*, **16**(4), 393-411.

Hulshoff Pol L.W., de Castro Lopes S.I., Lettinga G. et Lens P.N.L. (2004) Anaerobic sludge granulation. *Water Research*, **38**(6), 1376-1389.

Inanc B., Matsui S. et Ide S. (1996) Propionic acid accumulation and controlling factors in anaerobic treatment of carbohydrate: Effects of hydrogen and pH. *Water Science and Technology*, **34**(5-6), 317-325.

Ingildsen P., Jeppsson U. et Olsson G. (2002) Dissolved oxygen controller based on on-line measurements of ammonium combining feed-forward and feedback. *Water Science and Technology*, **45**(4-5).

Iranpour R., Cox H.H.J., Fan S., Abkian V., Kearney R.J. et Haug R.T. (2005) Short-term and long-term effects of increasing temperatures on the stability compounds in full-scale thermophilic anaerobic digesters. *Biotechnology and Bioengineering*, **91**(2), 199-212.

Jade A.M., Srikanth B., Jayaraman V.K., Kulkarni B.D., Jog J.P. et Priya L. (2003) Feature extraction and denoising using kernel PCA. *Chemical Engineering Science*, **58**(19), 4441-4448.

Jeppsson U., Pons M.N., Spanjers H. et Vanrolleghem P.A. (2002) Status and future trends in ICA in wastewater treatment - a European perspective. *Water Science and Technology*, **45**(4-5), 485-494.

Johansen T.A. et Foss B.A. (1995) Identification of non-linear system structure and parameters using regime decomposition. *Automatica*, **31**(2), 321-326.

Kano M., Hasebe S., Hashimoto I. et Ohno H. (2001) A new multivariate statistical process monitoring method using principal component analysis. *Computers and Chemical Engineering*, **25**(7-8), 1103-1113.

Kataoka N., Miya A. et Kiriya K. (1997) Studies on hydrogen production by continuous culture system of hydrogen-producing anaerobic bacteria. *Water Science and Technology*, **36**(6-7), 41-47.

Knüttel T., Hartmann T., Meyer H. et Scheper T. (2001) On-line monitoring of a quasi-enantiomeric reaction with two coumarin substrates via 2D-fluorescence spectroscopy. *Enzyme and Microbial Technology*, **29**(2-3), 150-159.

Kramer M.A. (1991) Nonlinear principal component analysis using autoassociative neural networks. *AIChE Journal*, **37**(2), 233-243.

Lahav O., Morgan B.E. et Loewenthal R.E. (2002) Rapid, simple, and accurate method for measurement of VFA and carbonate alkalinity in anaerobic reactors. *Environmental Science and Technology*, **36**(12), 2736-2741.

Langergraber G., Fleischmann N. et Hofstadter F. (2003) A multivariate calibration procedure for UV/VIS spectrometric quantification of organic matter and nitrate in wastewater. *Water Science and Technology*, **47**(2), 63-71.

Langergraber G., Fleischmann N., Hofstadter F. et Weingartner A. (2004a) Monitoring of a paper mill wastewater treatment plant using UV/VIS spectroscopy. *Water Science and Technology*, **49**(1), 9-14.

Langergraber G., Gupta J.K., Pressl A., Hofstadter F., Lettl W., Weingartner A. et Fleischmann N. (2004b) On-line monitoring for control of a pilot-scale sequencing batch reactor using submersible UV/VIS spectrometer. *Water Science and Technology*, **50**(10), 73-80.

Lanthier M., Tartakovsky B., Villemur R., Deluca G. et Guiot S.R. (2002) Microstructure of anaerobic granules bioaugmented with *Desulfatobacterium frappieri* PCP-1. *Applied Environmental Microbiology*, **68**(8), 4035-4043.

Lardon L., Puñal A. et Steyer J.P. (2004) On-line diagnosis and uncertainty management using evidence theory - experimental illustration to anaerobic digestion processes. *Journal of Process Control*, **14**(7), 747-463.

Lay J.J., Lee Y.J. et Noike T. (1999) Feasibility of biological hydrogen production from organic fraction of municipal solid waste. *Water Research*, **33**(11), 2579-2586.

Lee D.S., Park J.M. et Vanrolleghem P.A. (2005) Adaptive multiscale principal component analysis for on-line monitoring of a sequencing batch reactor. *Journal of Biotechnology*, **116**(2), 195-210.

Lee J.M., Yoo C., Choi S.W., Vanrolleghem P.A. et Lee I.B. (2004) Nonlinear process monitoring using kernel principal component analysis. *Chemical Engineering Science*, **59**(1), 223-234.

Lettinga G., Field J., van Lier J.B., Zeeman G. et Hulshoff Pol L.W. (1997) Advanced anaerobic wastewater treatment in the near future. *Water Science and Technology*, **35**(10), 5-12.

Lin C.Y. et Chang R.C. (1999) Hydrogen production during the anaerobic acidogenic conversion of glucose. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, **74**(6), 498-500.

Lindemann C., Marose S., Nielsen H.O. et Scheper T. (1998) 2-dimensional fluorescence spectroscopy for on-line bioprocess monitoring. *Sensors and Actuators, B: Chemical*, **B51**(1-3), 273-277.

MacGregor J.F., Yu H., Garcia Munoz S. et Flores-Cerrillo J. (2005) Data-based latent variable methods for process analysis, monitoring and control. *Computers & Chemical Engineering*, **29**(6), 1217-1223.

Marose S., Lindemann C. et Scheper T. (1998) Two-dimensional fluorescence spectroscopy: A new tool for on-line bioprocess monitoring. *Biotechnology Progress*, **14**(1), 63-74.

Marsili-Libelli S. et Müller A. (1996) Adaptive fuzzy pattern recognition in the anaerobic digestion process. *Pattern Recognition Letters*, **17**(6), 651-659.

Massé D.I. et Droste R.L. (2000) Comprehensive model of anaerobic digestion of swine manure slurry in a sequencing batch reactor. *Water Research*, **34**(12), 3087-3106.

McMeekin T.A., Olley J.N., Ross T. et Ratkowsky D.A. (1993) *Predictive microbiology: theory and application*, Ed. John Wiley & Sons Inc., New York.

Metcalf et Eddy Inc. (2003) *Wastewater Engineering, Fourth Edition*, Ed. McGraw-Hill

Michaud S., Bernet N., Buffiere P., Roustan M. et Moletta R. (2002) Methane yield as a monitoring parameter for the start-up of anaerobic fixed film reactors. *Water Research*, **36**(5), 1385-1391.

Moletta R., Verrier D. et Albagnac G. (1986) Dynamic modelling of the anaerobic digestion. *Water Research*, **20**(4), 427-434.

Montgomery D.C. et Peck E.A. (1992) *Introduction to linear regression analysis*, Ed. John Wiley & Sons Inc., New York.

Morel E., Santamaria K., Perrier M., Guiot S.R. et Tartakovsky B. (2004a) Application of multi-wavelength fluorometry for on-line monitoring of an anaerobic digestion process. *Water Research*, **38**(14-15), 3287-3296.

Morel E., Santamaria K., Perrier M., Guiot S.R. et Tartakovsky B. (2004b) Multi-wavelength fluorometry for anaerobic digestion process monitoring. *Water Science and Technology*, **52**(1-2), 465-471.

Morel E., Tartakovsky B., Guiot S.R. et Perrier M. (2006a) Design of a multi-model observer-based estimator for anaerobic reactor monitoring. *Computers and Chemical Engineering*, in Press.

Morel E., Tartakovsky B., Guiot S.R. et Perrier M. (2006b) On-line estimation of kinetic parameters in anaerobic digestion using observer-based estimators and multiwavelength fluorometry. *Water Science and Technology*, **53**(4-5), 77-83.

Mosey F.E. (1982) Mathematical modelling of the anaerobic digestion process: regulatory mechanisms for the formulation of short-chain volatile acids from glucose. *Water Science and Technology*, **15**(5-6), 209-232.

Murhammer E., Becker T.M. et Delgado A. (2002) State detection and control of overload in the anaerobic reactor wastewater treatment using fuzzy logic. *Water Research*, **36**(1), 201-211.

Murray-Smith R. et Johansen T.A. (1997) *Multiple model approaches to modelling and control*, Ed. Taylor&Francis, London. p269-291.

Nikolaou M. et Misra P. (2003) Linear control of nonlinear processes: Recent developments and future directions. *Computers and Chemical Engineering*, **27**(8-9), 1043-1059.

Nordberg Å., Hansson M., Sundh I., Nordkvist E., Carlsson H. et Mathisen B. (2000) Monitoring of a biogas process using electronic gas sensors and near-infrared spectroscopy (NIR). *Water Science and Technology*, **41**(3), 1-8.

Oliveira R., Ferreira E.C. et Feyo de Azevedo S. (2002) Stability, dynamics of convergence and tuning of observer-based kinetics estimators. *Journal of Process Control*, **12**(2), 311-323.

Oliveira R., Ferreira E.C., Oliveira F. et de Azevedo S.F. (1996) A study on the convergence of observer-based kinetics estimators in stirred tank bioreactors. *Journal of Process Control*, **6**(6), 367-371.

Paraskevas P.A., Pantelakis I.S. et Lekkas T.D. (1999) Advanced integrated expert system for wastewater treatment plants control. *Knowledge-Based Systems*, **12**(7), 355-361.

Paulo P.L., Jiang B., Rebac S., Hulshoff Pol L.W. et Lettinga G. (2001) Thermophilic anaerobic digestion of methanol in USAB reactor. *Water Science and Technology*, **44**(4), 129-136.

Pauss A. et Guiot S.R. (1993) Hydrogen monitoring in anaerobic sludge bed reactors at various hydraulic regimes and loading rates. *Water Environment Research*, **65**, 276-280.

Pavlostathis S.G. et Giraldo-Gomez E. (1991) Kinetics of anaerobic treatment: a critical review. *Critical Review in Environmental Control*, **21**(5-6), 411-490.

Peck M.W. et Chynoweth D.P. (1992) On-line fluorescence-monitoring of the methanogenic fermentation. *Biotechnology and Bioengineering*, **39**(11), 1151-1160.

Perez M., Romero L.I. et Sales D. (1999) Anaerobic thermophilic fluidized bed treatment of industrial wastewater: Effect of F:M relationship. *Chemosphere*, **38**(14), 3443-3461.

Perrier M., de Azevedo S.F., Ferreira E.C. et Dochain D. (2000) Tuning of observer-based estimators: Theory and application to the on-line estimation of kinetic parameters. *Control Engineering Practice*, **8**(4), 377-388.

Pomerleau Y. et Perrier M. (1990) Estimation of multiple specific growth rates in bioprocesses. *AIChE Journal*, **36**(2), 207-215.

Premier G.C., Dinsdale R., Guwy A.J., Hawkes F.R., Hawkes D.L. et Wilcox S.J. (1997) Simple black box models predicting potential control parameters during disturbances to a fluidized bed anaerobic reactor. *Water Science and Technology*
Proceedings of the 1997 8th IAWQ International Conference on Anaerobic Digestion, May 25-29 1997, **36**(6-7), 229-237.

Pullammanappallil P.C., Svoronos S.A., Chynoweth D.P. et Lyberatos G. (1998) Expert system for control of anaerobic digesters. *Biotechnology and Bioengineering*, **58**(1), 13-22.

Puñal A., Roca E. et Lema J.M. (2002) An expert system for monitoring and diagnosis of anaerobic wastewater treatment plants. *Water Research*, **36**(10), 2656-2666.

Reynolds D.M. (2003) Rapid and direct determination of tryptophan in water using synchronous fluorescence spectroscopy. *Water Research*, **37**(13), 3055-3060.

Reynolds D.M. et Ahmad S.R. (1997) Rapid and direct determination of wastewater BOD values using a fluorescence technique. *Water Research*, **31**(8), 2012-2018.

Rintala J. (1991) High-rate anaerobic treatment of industrial wastewaters. *Water Science and Technology*, **24**(1), 69-74.

Ritzka A., Sosnitzer P., Ulber R. et Scheper T. (1997) Fermentation monitoring and process control. *Current Opinion in Biotechnology*, **8**(2), 160-164.

Rosen C. et Lennox J.A. (2001) Multivariate and multiscale monitoring of wastewater treatment operation. *Water Research*, **35**(14), 3402-3410.

Russel E. (2000) *Data-Driven Techniques for Fault Detection and Diagnosis in Chemical Processes*, Ed. Springer, New York.

Shang Y., Johnson B.R. et Sieger R. (2005) Application of the IWA Anaerobic Digestion Model (ADM1) for simulation full-scale anaerobic sewage sludge digestion. *Water Science and Technology*, **52**(1-2), 487-492.

Show K.-Y., Wang Y., Foong S.-F. et Tay J.-H. (2004) Accelerated start-up enhanced granulation in upflow anaerobic sludge blanket reactors. *Water Research*, **38**(9), 2292-2303.

Siegrist H., Vogt D., Garcia-Heras J. et Gujer W. (2002) Mathematical model for meso- and thermophilic anaerobic sewage sludge digestion. *Environmental Science and Technology*, **36**(5), 1113-1123.

Simeonov I., Momchev V. et Grancharov D. (1996) Dynamic modeling of mesophilic anaerobic digestion of animal waste. *Water Research*, **30**(5), 1087-1094.

Simeonov I.S. (1999) Mathematical modeling and parameters estimation of anaerobic fermentation processes. *Bioprocess and Biosystems Engineering*, **21**(4), 377-381.

Singhal A., Gomes J., Praveen V.V. et Ramachandran K.B. (1998) Axial Dispersion Model for Upflow Anaerobic Sludge Blanket Reactors. *Biotechnol. Prog.*, **14**(4), 645-648.

Skibsted E., Lindemann C., Roca C. et Olsson L. (2001) On-line bioprocess monitoring with a multi-wavelength fluorescence sensor using multivariate calibration. *Journal of Biotechnology*, **88**(1), 47-57.

Skoglund A., Brundin A. et Mandenius C.-F. (2002) Comparison between linear and nonlinear prediction models for monitoring of a paperboard machine. *Chemical Engineering and Technology*, **25**(2), 197-202.

Smets I.Y., Bastin G.P. et Van Impe J.F. (2002) Feedback stabilization of fed-batch bioreactors: Non-monotonic growth kinetics. *Biotechnology Progress*, **18**(5), 1116-1125.

Soroush M. (1998) State and parameter estimations and their applications in process control. *Computers & Chemical Engineering*, **23**(2), 229-245.

Spanjers H., Bouvier J.C., Steenweg P., Bisschops I., van Gils W. et Versprille B. (2006) Implementation of in-line infrared monitor in full-scale anaerobic digestion process. *Water Science and Technology*, **53**(4-5), 55-61.

Speece R.E. et Kem J.A. (1970) The effect of short-term temperature variations on methane production. *Journal / Water Pollution Control Federation*, **42**, 1990-1997.

Steyer J.P., Bernard O., Batstone D.J. et Angelidaki I. (2006) Lessons learnt from 15 years of ICA in anaerobic digesters. *Water Science and Technology*, **53**(4-5), 25-33.

Steyer J.P., Bouvier J.C., Conte T., Gras P., Harmand J. et Delgenes J.P. (2002) On-line measurements of COD, TOC, VFA, total and partial alkalinity in anaerobic digestion processes using infra-red spectrometry. *Water Science and Technology*, **45**(10), 133-138.

Steyer J.P., Buffiere P., Rolland D. et Moletta R. (1999) Advances control of anaerobic digestion process through disturbances monitoring. *Water Research*, **33**(9), 2059-2068.

Steyer J.-P., Genovesi A. et Harmand J. (2001) Advanced monitoring and control of anaerobic wastewater treatment plants: Fault detection and isolation. *Water Science and Technology*, **43**(7), 183-190.

Takagi T. et Sugeno M. (1985) Fuzzy identification of systems and its application to modeling and control. *IEEE transactions on systems, man, and cybernetics*, **15**, 116-132.

Tartakovsky B., Cimpola R., Petti L., Lo A., Liard A. et Guiot S.R. (2003) Biodegradation of spent pulping liquor lignins under mesophilic and thermophilic anaerobic conditions. *Tappi Journal*, **2**(4), 26-32.

Tartakovsky B. et Guiot S.R. (1997) Modeling and analysis of layered stationary anaerobic granular biofilms. *Biotechnology and Bioengineering*, **54**(2), 122-130.

Tartakovsky B., Lishman L.A. et Legge R.L. (1996a) Application of multi-wavelength fluorometry for monitoring wastewater treatment process dynamics. *Water Research*, **30**(12), 2941-2948.

Tartakovsky B., Morel E. et Guiot S.R. (2005) Application of VSM-based process control to a bench-scale anaerobic digester. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, **44**(1), 106-113.

Tartakovsky B., Morel E., Steyer J.P. et Guiot S.R. (2002) Application of a variable structure model in observation and control of an anaerobic digester. *Biotechnology Progress*, **18**(4), 898-903.

Tartakovsky B., Sheintuch M., Hilmer J.-M. et Scheper T. (1996b) Application of scanning fluorometry for monitoring of a fermentation process. *Biotechnology Progress*, **12**(1), 126-131.

Thomas O., Théraulaz F., Cerdà V., Constant D. et Quevauvillier P. (1997) Wastewater quality monitoring. *Trends in Analytical Chemistry*, **16**(7), 419-424.

Tosi S., Rossi M., Tamburini E., Vaccari G., Amaretti A. et Matteuzzi D. (2003) Assessment of in-line near-infrared spectroscopy for continuous monitoring of fermentation processes. *Biotechnology Progress*, **19**(6), 1816-1821.

Vaidyanathan S., Arnold S.A., Matheson L., Mohan P., McNeil B. et Harvey L.M. (2001) Assessment of near-infrared spectral information for rapid monitoring of bioprocess quality. *Biotechnology and Bioengineering*, **74**(5), 376-388.

van Lier J.B., Rintala J., Sanz Martin J.L. et Lettinga G. (1990) Effect of short-term temperature increase on the performance of a mesophilic UASB reactor. *Water Science and Technology*, **22**(9), 183-190.

van Lier J.B., Tilche A., Ahring B.K., Macarie H., Moletta R., Dohanyos M., Hulshoff Pol L.W., Lens P. et Verstraete W. (2001) New perspectives in anaerobic digestion. *Water Science and Technology*, **43**(1), 1-18.

Vanrolleghem P.A. et Lee D.S. (2003) On-line monitoring equipment for wastewater treatment processes: State of the art. *Water Science and Technology*, **47**(2), 1-34.

Visser A. et Lettinga G. (1993) Effects of short-term temperature increases on the mesophilic anaerobic breakdown of sulphate containing synthetic wastewater. *Water Research*, **27**(4), 541-550.

Vogelaar J.C.T., Bouwhuis E., Klapwijk A., Spanjers H. et van Lier J.B. (2002) Mesophilic and thermophilic activated sludge post-treatment of paper mill process water. *Water Research*, **36**(7), 1869-1879.

von Sachs J., Meyer U., Rys P. et Feitkenhauer H. (2003) New approach to control the methanogenic reactor of a two-phase anaerobic digestion system. *Water Research*, **37**(5), 973-982.

Voolapalli R.K. et Stuckey D.C. (2001) Hydrogen production in anaerobic reactors during shock loads: Influence of formate production and H^2 kinetics. *Water Research*, **35**(7), 1831-1841.

Wang H., Song Z. et Wang H. (2002) Statistical process monitoring using improved PCA with optimized sensor locations. *Journal of Process Control*, **12**(6), 735-744.

Ward J.D., Mellichamp D.A. et Doherty M.F. (2005) Novel reactor temperature and recycle flow rate policies for optimal process operation in the plantwide context. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, **44**(17), 6729-6740.

White C.E. et Argauer R.J. (1970) *Fluorescence Analysis: a Pratical Approach*, Ed. Marcel Dekker Inc., New York.

Wold S., Sjostrom M. et Eriksson L. (2001) PLS-regression: a basic tool of chemometrics. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, **58**(2), 109-130.

Wolf G., Almeida J.S., Pinheiro C., Correia V., Rodrigues C., Reis M.A.M. et Crespo J.G. (2001) Two-dimensional fluorometry coupled with artificial neural networks: A novel method for on-line monitoring of complex biological processes. *Biotechnology and Bioengineering*, **72**(3), 297-306.

Zeng Y., Mu S.J., Lou S.J., Tartakovsky B., Guiot S.R. et Wu P. (2005) Hydraulic modeling and axial dispersion analysis of UASB reactor. *Biochemical Engineering Journal*, **25**(2), 113-123.