

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

**CARACTÉRISATION DES FLOCS POUR OPTIMISER LA FLOCCULATION EN
AMONT DE LA FILTRATION DIRECTE**

TYLER BALL

**DÉPARTEMENT DES GÉNIES CIVIL, GÉOLOGIQUES ET DES MINES
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL**

**MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE CIVIL)
AOÛT 2008**



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: 978-0-494-46031-3

Our file Notre référence

ISBN: 978-0-494-46031-3

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.

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

CARACTÉRISATION DES FLOCS POUR OPTIMISER LA FLOCCULATION EN
AMONT DE LA FILTRATION DIRECTE

présenté par : BALL Tyler

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

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

Mme PRÉVOST Michèle, Ph.D., présidente

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

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

à mon amour

REMERCIEMENTS

Premièrement, ce mémoire n'aurait été ni compréhensible ni lisible sans l'aide de M Benoit Barbeau, mon directeur de recherche et professeur en plusieurs matières depuis septembre 2006. Évidemment, la plupart des idées de base dans cet étude sont les siennes, et si vous y trouvez des erreurs, la faute en est la mienne. Merci mille fois, Benoit, surtout de m'avoir permis de le rédiger en français.

Yves Fontaine et Mireille Blais m'ont donné le support technique nécessaire pour faire les essais décrits dans ce document. Sans ces deux personnes généreuses il n'y aurait tout simplement pas eu d'essais. En plus, ils l'ont fait avec le sourire. Merci beaucoup.

Merci à Jacinthe Mailly qui m'a dépannée plusieurs fois quand le « Brightwell » (Dynamic Particle Analyzer, cher instrument) ne voulait pas coopérer. Merci à Annie Carrière de m'avoir fait des commentaires fort judicieux sur mon article.

Aux très chers étudiants et très chères étudiantes de la Chaire (Amine, Ana, Anne-Sophie, Annie B., Ara, Arash, Cindy, Clément, Daniel, Élise, Éric, Françoise, Gabrielle, Gabriel, Guillaume, Isabelle, Kenza, Murielle, Natasha, Normand, Pierre, Romain, Simon) et nos collègues en eaux usées (Bertrand, Carlos, Juan, Majdala, Marie-Laure), merci de m'avoir donné tant d'écoute et d'être de si bonnes personnes. J'ai eu énormément de plaisir avec vous, et j'ai beaucoup appris; j'en suis très reconnaissante. Mon seul regret c'est que je n'ai pas pu passer plus de temps avec vous. J'ai hâte de vous retrouver quand cet été (saison? année? 2 ans?) de fou sera terminé.

Michèle, ton énergie, enthousiasme et connaissances sont sans pareil (but I'm catching up...watch out!). Je t'admire beaucoup. La Chaire ne serait pas ce qu'elle est devenue sans toi, et je n'y aurais pas retiré autant de connaissances et expériences enrichissantes sans ta présence. Merci à toi et au M. Jean-François Beaudet d'accepter (ou dans ton cas, Michèle, d'insister !) de faire partie de mon jury. Je suis consciente du fardeau de travail supplémentaire que ça représente.

Christian, je n'aurais jamais pu arriver à ce point sans ton aide et support qui n'ont jamais diminué d'une seconde depuis que je te connais. J'ai trouvé un partenaire pour la vie dans toi, qui m'inspire et m'encourage à chaque pas; je n'oserais pas imaginer la vie sans toi. Je souhaite que tout le monde trouve un jour leur Christian. Merci pour tout.

RÉSUMÉ

L'enlèvement de la matière particulaire lors du traitement de l'eau potable via la filtration granulaire directe requiert des conditions précises de floculation. Prédire la turbidité à l'eau filtrée à partir des caractéristiques de l'eau floculée demeure toutefois difficile. Le présent mémoire vise à étudier la caractérisation en continue de la floculation appliquée pour le traitement par filtration directe dans le but d'établir la relation entre les caractéristiques de floes mesurés et la turbidité à l'eau filtrée.

La floculation d'une eau à turbidité basse, l'eau brute de l'usine de filtration Atwater de la Ville de Montréal pour être précis, fut évaluée en ligne avec le « Photometric Dispersion Analyzer » (PDA) et le Dynamic Particle AnalyzerTM dans un jar test modifié suivi d'une filtration en colonne à l'échelle du laboratoire. Les coagulants utilisés étaient l'alun, le PASS100TM, et la sulfate ferrique ainsi qu'un polymère cationique polyDADMAC; ils furent dosés en eau tiède et froide, avec énergies de mélange de 0 et 100 s⁻¹. En comparaison à l'index de floculation fournit par le PDA, le diamètre volumétrique moyen des floes (d_v), calculé à partir de la distribution tailles de particules fournit par le Dynamic Particle Analyzer, a permis d'obtenir une information plus complète par rapport à la floculation de petites particules. L'addition d'un polymère s'est avérée plus efficace dans la réduction de la turbidité à l'eau filtrée que dans l'augmentation de la taille des floes. Il fut démontré que la taille des floes n'est pas une information suffisante pour prédire l'enlèvement de la matière particulaire par filtration granulaire directe tel qu'indiqué par la turbidité.

Une série d'essais représentatifs entrepris en laboratoire a été reproduite à plus grande échelle en eau froide dans une unité mobile de type pilote semi-industriel pour évaluer l'effet des conditions hydrodynamiques. La quantification des conditions hydrodynamiques différentes dans un jar test (un réacteur en cuvette) et dans un floculateur à débit continu permet d'établir une relation entre les résultats des essais aux deux échelles. En modélisant un floculateur en continu comme une série de réacteurs

parfaitement mélangés, il devient possible de comparer les résultats obtenus avec ceux mesurés dans un jar test. Un nouveau modèle empirique de floculation basé sur l'équation logistique fut proposé pour prendre en compte les particularités d'un système de filtration directe. Les floes formés en pilote avaient un d_v légèrement plus important (50 %) pour le PASS100 que pour ceux formés par l'alun, mais la turbidité à l'eau filtrée pour l'eau floculée avec de l'alun est 250 % plus importante que celle floculée avec du PASS100. La turbidité de l'eau brute est significative dans l'explication statistique de la turbidité à l'eau filtrée après coagulation avec alun, ce qui semble indiquer qu'une coagulation suboptimale régnait pendant les essais avec alun au pilote.

La comparaison de la taille des floes et de la turbidité à l'eau filtrée mesurés au laboratoire et au pilote a indiqué que les données recueillies au laboratoire peuvent être utilisées pour prédire les tendances observées à une échelle pilote. Il est cependant important de bien prendre en compte l'hydraulique lors de cette comparaison. Bien que le modèle conçu dans le cadre de cette étude ne puisse pas directement prédire la turbidité, il pourrait être utilisé pour approximer des valeurs de d_v pour différentes conditions de floculation, ce qui permettrait ensuite de donner une idée générale des tendances dans la turbidité à l'eau filtrée après floculation sous de telles conditions. Une meilleure compréhension du rôle des particules de taille inférieure à 1 μm dans la floculation et dans la résistance des floes aux forces de cisaillement aiderait à compléter la description de la relation entre les caractéristiques des floes et leur enlèvement par filtration granulaire directe.

ABSTRACT

Particulate matter removal in drinking water treatment via direct granular filtration requires specific flocculation conditions. Predicting filtered water turbidity based on flocculated water characteristics remains difficult, however. The study described in this document aims to use online floc characterization in the context of a direct filtration process to establish the relationship between measured floc characteristics and filtrate turbidity.

Flocculation of a low-turbidity water (the raw water used at the City of Montreal Atwater drinking water filtration plant) was evaluated online using a Photometric Dispersion Analyzer (PDA) and a Dynamic Particle AnalyzerTM in a modified jar test followed by a bench-scale column filtration. Coagulants used were alum, PASS100TM, and ferric sulfate in addition to a polyDADMAC cationic polymer; they were dosed in warm and cold water, with flocculation mixing energies of 0 and 100 s⁻¹. Compared to the flocculation index provided by the PDA, the volume-averaged floc diameter d_v , calculated using the particle size distribution of the Dynamic Particle Analyzer, provided more complete information regarding the flocculation of small particles. Polymer addition was shown to be more effective in reducing filtrate turbidity than in increasing floc size. Floc size was shown to be insufficient in predicting particulate matter removal by direct granular filtration as measured by turbidity.

A series of assays representative of those performed on a bench scale was repeated at large scale in cold water in a mobile semi-industrial pilot plant unit in order to evaluate its hydraulic conditions. The hydraulic conditions in a continuous-flow flocculator are different from those in a jar test (batch); that difference must be quantified in order to establish a clear relationship between the results of the assays performed at both scales. Modelling a continuous flocculator with a series of perfectly stirred reactors allows a comparison to be made between the results obtained at that scale and those from the jar tests. A new empirical flocculation model based on the logistic equation was proposed

in order to take into account the features of a direct filtration system. Flocs formed in the pilot plant under equivalent conditions using PASS100 and alum were slightly larger for PASS100 (50%), but the turbidity of filtered water flocculated with alum was 250 % that of filtered water flocculated using PASS100. Raw water turbidity was significant in the statistical explanation of filtrate turbidity when flocculated with alum; this was probably indicative of suboptimal coagulation.

A comparison between flocs formed and filtrate turbidity in the pilot plant with that in the jar tests reveals the same trends in both: trends in such data collected on a bench scale can be used to predict trends on a pilot scale. It is important that hydraulic conditions be considered when making such comparisons. Although the model created for this study does not allow the prediction of filtrate turbidity, it does approximate the values of d_v for different flocculation conditions, which can in turn be used to give a general idea of trends in filtrate turbidity after flocculation under comparable conditions. A better understanding of the role played by particles with diameter below 1 μm and that played by floc strength would allow a more complete picture to emerge of the relationship between floc characteristics and their removal using direct granular filtration.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....	iv
REMERCIEMENTS.....	v
RÉSUMÉ.....	vii
ABSTRACT	ix
TABLE DES MATIÈRES	xi
LISTE DES TABLEAUX.....	xiv
LISTE DES FIGURES	xv
LISTE DES ANNEXES	xvii
CHAPITRE 1 : INTRODUCTION	1
1.1. Contexte de la recherche	1
1.2. Description et objectifs du projet	2
1.3. Structure du rapport.....	2
CHAPITRE 2 : REVUE DE LITTÉRATURE.....	3
2.1. Coagulation	3
2.2. Cinétique de la floculation	5
2.2.1. Modélisation de la cinétique de floculation	5
2.2.2. Impact des conditions de floculation sur sa cinétique.....	9
2.3. Caractérisation des floccs.....	12
2.3.1. Géométrie fractale	12
2.3.2. Analyse microscopique de la taille des floccs	13
2.3.3. Photometric Dispersion Analyzer : Théorie et usage.....	15
2.3.4. Turbidité.....	18
2.3.5. Impact des caractéristiques des floccs sur les procédés de traitement.....	18
2.4. Conclusion.....	22
CHAPITRE 3 : OBJECTIFS ET HYPOTHÈSES.....	23
3.1. Objectifs	23
3.2. Hypothèses	24

CHAPITRE 4 : COMPARISON OF TWO ONLINE FLOCCULATION MONITORING TECHNIQUES IN PREDICTING TURBIDITY REMOVAL 26

4.a.	Abstract	27
4.1.	Introduction	29
4.2.	Materials and methods	32
4.2.1.	Experimental design overview	32
4.2.2.	Characterization and filtration of flocculated waters	33
4.2.3.	Analytical apparatus	35
4.3.	Results and Discussion	37
4.3.1.	Determination of the best floc characteristics indicator	37
4.3.2.	Comparison of the flocculation index (FI) with the volume-averaged diameter (d_v)	39
4.3.3.	Comparison of Coagulants	44
4.3.4.	Usefulness of the Camp Number	47
4.3.5.	Influence of flocculation conditions on turbidity removal and dv	50
4.4.	Conclusions	58
4.5.	Acknowledgments	59
4.6.	References	59

CHAPITRE 5 : MISE À L'ÉCHELLE DES ESSAIS DE FILTRATION

	DIRECTE DANS UN PILOTE SEMI-INDUSTRIEL	62
5.1.	Introduction	62
5.2.	Matériel et méthodes	63
5.2.1.	Essai de traçage	63
5.2.2.	Essais de floculation et de filtration	64
5.2.3.	Modélisation du diamètre volumétrique moyen (d_v)	68
5.2.4.	Effets de pompage sur les flocs	69
5.3.	Résultats	70
5.3.1.	Essai de traçage et modélisation des flocculateurs	70

5.3.2.	Comparaison des résultats du laboratoire et du pilote industriel	72
5.3.3.	Modélisation du diamètre des floes.....	85
5.3.4.	Impact du pompage sur les floes	91
5.4.	Discussion	92
5.4.1.	Performance de floculation et filtration en pilote et en laboratoire, pour alun et PASS100	92
5.4.2.	Modélisation de d_v	97
5.4.3.	Effets de pompage sur les floes.....	99
5.5.	Conclusions	99
CHAPITRE 6 : DISCUSSION ET CONCLUSION GÉNÉRALE		101
6.1.	Discussion générale.....	101
6.2.	Conclusion générale	104
BIBLIOGRAPHIE		107
ANNEXE		112

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2-1.	Quelques coagulants communs	3
Tableau 2-2.	Synthèse des études réalisées avec le PDA.....	16
Table 4-1.	Characteristics of raw water used in assays	32
Table 4-2.	Indicators of flocculation performance calculated using particle size distribution provided by the Dynamic Particle Analyzer.....	38
Table 4-3.	Sensitivity analysis: Percentages of explanation of the selected control variables on the output variables (turbidity of filtered water and volume-averaged floc diameter d_v).....	52
Tableau 5-1.	Configuration des essais au pilote.....	64
Tableau 5-2.	Configuration des filtres utilisés lors des essais.....	66
Tableau 5-3.	Tableau synthèse des tests de traçage	72
Tableau 5-4.	Analyse de sensibilité Alun : Pourcentages d'explication des variables de contrôle sur les variables prédites (turbidité à l'eau filtrée et diamètre pondéré de floc d_v)	73
Tableau 5-5.	Analyse de sensibilité PASS100 : Pourcentages d'explication des variables de contrôle sur les variables prédites (turbidité à l'eau filtrée et diamètre pondéré de floc d_v)	77
Tableau 5-6.	Importance des variables de contrôle de la floculation pour expliquer les valeurs de K et r	88
Tableau 5-7.	Valeurs proposées pour les constantes pour la modélisation de d_v avec l'équation 5-7	90
Tableau 5-8.	Effet de pompage sur les flocs : Compte de particules avant et après (pour 0,05 mM/L de PASS100 + 0,25 mg/L polymère à 2°C et 10 minutes de floculation)	91

LISTE DES FIGURES

Figure 2-1. Exemple d'une courbe de mesure d'indice de floculation tel que mesuré pas le PDA	16
Figure 4-1. Experimental Setup	34
Figure 4-2. Effect of ferric sulfate concentration (mM Fe/L) and mixing energy (G in s^{-1}) at 21°C on the FI and the volume-averaged diameter (d_v).....	41
Figure 4-3. Effect of coagulant type and G at 4°C and 5 mM/L (Al or Fe) on the flocculation index and the volume-averaged diameter (d_v)	46
Figure 4-4. Effect of 5 mM/L alum (as Al) and Gt at 4°C on the flocculation index and the volume-averaged diameter (d_v)	48
Figure 4-5. Diameter of flocs and resulting turbidity after granular media filtration.....	51
Figure 4-6. Effect of coagulant and temperature on the d_v (a+b) and filtered water turbidity without polymer (c+d) and with polymer added (e+f) (all conditions combined).....	55
Figure 4-7. Effect of polymer on the filtered water turbidity and volume-averaged diameter (d_v) (all assay conditions combined)	56
Figure 5-1. Flocculateurs du laboratoire pilote.....	65
Figure 5-2. Colonnes de filtration du laboratoire pilote (monocouche à gauche et bicouche à droite).....	67
Figure 5-3. Photo de floc prise avec le Dynamic Particle Analyzer TM . Gauche : Photo, droite : aire de floc détectée par l'instrument.....	68
Figure 5-4. Essais de traçage des flocculateurs pour 10 minutes et 15 minutes de temps de floculation.....	71
Figure 5-5. Effet du Gt sur d_v (a) et la turbidité à l'eau filtrée (b). Coagulant : alun, résultats des deux filtres combinés.....	74
Figure 5-6. Alun: Effet de G sur d_v (gauche) et turbidité à l'eau filtrée (droite)	75
Figure 5-7. Alun: Effet du temps de filtration sur d_v (gauche) et turbidité à l'eau filtrée (droite).....	75

Figure 5-8. PASS100 : Effet de Gt sur d_v (a) et turbidité à l'eau filtrée (b) (toutes conditions confondues)	78
Figure 5-9. Effet de Gt sur d_v (a) et turbidité à l'eau filtrée (b) pour 0.05 mM Al/L et 0 mg/L polymère	79
Figure 5-10. Alun : Effet de Gt sur d_v (a+b) et turbidité à l'eau filtrée (c+d), au laboratoire (a+c) et au pilote (b+d)	80
Figure 5-11. PASS100 : Effet de Gt sur d_v (a+b) et turbidité à l'eau filtrée (c+d), au laboratoire (a+c) et au pilote (b+d) à 0,05 mM Al/L	82
Figure 5-12. Diagrammes de Pareto : Effets des paramètres sur la prédiction de la turbidité à l'eau filtrée	84
Figure 5-13. Six exemples de modélisation des résultats de floculation au laboratoire	86
Figure 5-14. Quatre exemples de modélisation des résultats de floculation au laboratoire pilote avec les valeurs de k proposées au tableau 5-7	90
Figure 5-15. Effet de pompage sur les floes d'alun : turbidité (a) et perte de charge (b) avec une turbidité à l'eau brute de 1,5 – 1,75 UTN	92
Figure 5-16. Effet de la concentration d'alun sur la croissance des floes en fonction du Gt appliqué	94

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE Les concentrations de F^- pendant l'essai de traçage des flocculateurs en pilote :	
Montée et descente.....	112

CHAPITRE 1 : INTRODUCTION

1.1. Contexte de la recherche

L'importance de traiter l'eau potable est reconnue depuis des milliers d'années, certains agents pathogènes d'origine hydrique ayant la capacité d'entraîner la maladie et parfois la mortalité. Au Québec, le suivi de la qualité de l'eau traitée produite à partir d'eaux de surface est réalisé en partie en contrôlant la turbidité des eaux filtrées. Pour enlever la turbidité, le traitement de l'eau potable implique normalement un dosage de coagulant suivi par une filtration. Ce mélange d'eau brute et de coagulant doit cependant être floculé afin de maximiser le rendement des filtres.

Bien que l'étude de la floculation soit complexe en raison de la fragilité des floes, de multiples projets de recherche ont porté sur les mécanismes de floculation au cours des 100 dernières années. Le fait que la floculation demeure encore mal comprise témoigne de sa complexité. Les recherches se poursuivent cependant en raison de l'importance de la floculation dans la potabilisation de l'eau. À cette fin, plusieurs instruments ont été développés pour étudier les caractéristiques des floes (taille, masse, porosité et résistance aux forces de cisaillement). Cependant, aucun de ces instruments ne réussit toutefois à caractériser complètement les floes.

La filtration directe est un procédé de traitement utilisé lorsque la qualité de la ressource est de bonne qualité, c'est-à-dire avec une faible charge de particules et une faible concentration en matière organique naturelle. Elle vise à former des petits floes qui seront tous retenus dans un filtre granulaire. La question essentielle demeure alors la suivante : quelles caractéristiques mesurables des floes garantissent un bon enlèvement de turbidité dans un filtre granulaire ? Cette étude vise à aider à trouver la réponse à cette question.

1.2. Description et objectifs du projet

L'étude décrite dans ce document vise à utiliser la caractérisation en continu de la floculation appliquée dans le cadre d'un traitement de filtration directe pour établir la relation entre les caractéristiques de floes mesurés et la turbidité à l'eau filtrée. L'étude est divisée en deux parties : 1. un plan expérimental a d'abord été réalisé en laboratoire pour évaluer l'impact de plusieurs variables. Ensuite, 2. une portion de ce plan expérimental a été reproduite sur un pilote industriel pour comparer les tendances des résultats avec celles obtenues en laboratoire.

1.3. Structure du rapport

Ce mémoire de maîtrise comprend six chapitres. Le chapitre 2 présente une revue de littérature décrivant l'état des connaissances sur l'impact des caractéristiques des floes sur la performance des procédés. Le chapitre 3 présente les objectifs et hypothèses reliés à ce projet de recherche. Le chapitre 4 présente et discute des résultats des essais de suivi de floculation et filtration faits en laboratoire, sous la forme d'un article soumis au journal *Water Research*. Le chapitre 5 présente et discute des résultats d'essais menés en pilote. Le chapitre 6 résume, sous la forme d'une discussion générale, les principales conclusions de ce travail.

2 CHAPITRE 2 : REVUE DE LITTÉRATURE

Cette revue de littérature visera à faire un survol de la théorie de la coagulation et des mécanismes de floculation, et d'évaluer les connaissances en termes de l'impact des caractéristiques des floes sur la performance de la filtration directe.

2.1. Coagulation

La *coagulation*, processus déjà utilisé par les anciens Égyptiens pour le traitement de l'eau, implique l'addition d'un coagulant (typiquement chargé positivement) à une eau dans le but de déstabiliser les particules colloïdales et en suspension en neutralisant leurs charges (souvent négatives). Ce procédé permettra ainsi aux particules de croître par attachement lors de la période subséquente de floculation (Hahn et Stumm 1968a). Plusieurs types de coagulants sont utilisés en traitement des eaux (voir tableau 2-1); la sulfate d'aluminium (aussi appelé « alun ») est le plus souvent utilisé à cause de son rapport coût/efficacité compétitif.

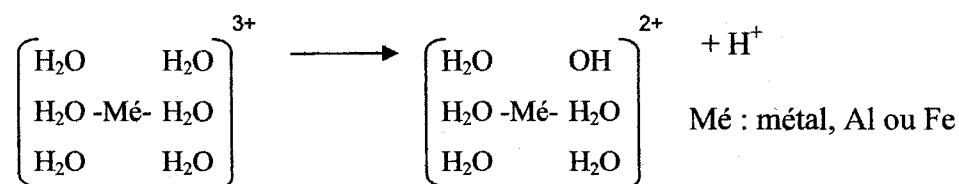
Tableau 2-1. Quelques coagulants communs

Coagulants inorganiques	Formule chimique	% Al ou Fe
Alun (sulfate d'aluminium)	$\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 14\text{H}_2\text{O}$	3,0-4,5
Poly-Aluminium-Silicate-Sulfate	$[\text{Al}(\text{OH})_{0,75-2}(\text{Si})_{0,30-1,12}(\text{SO}_4)_{0,005-0,1}]_{2-4}^{1-}$: solide ou >4 : liquide	5,2
Poly-Chlorure d'aluminium	$\text{Al}_a(\text{OH})_b(\text{Cl})_c(\text{SO}_4)_d$	5,3-5,6
Chlorure ferrique	FeCl_3	11,0
Sulfate ferrique	$\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$	9,0-12,0
Coagulants organiques	Formule chimique	Charge
Polyamine	$[(\text{CH}_2)_2\text{CHOHN}(\text{CH}_3)_2]_n$	cationique
PolyDADMAC	$[(\text{CH}_2)_6(\text{CH})_2\text{N}^+\text{Cl}^-]_n$	cationique

¹D. Hase, N. Spiratos, C. Jolicoeur, U.S.P. 4,981,675 (1991)

Chimie des coagulants

Quand un sel de Al(III) ou Fe(III) est ajouté à l'eau, il y a plusieurs réactions quasi-instantanées qui se produisent. Dès l'ajout du coagulant à l'eau à traiter, les ions de métaux du sel s'hydratent très rapidement en complexes hydro-métalliques avec six molécules d'eau orientées autour d'eux (MWH 2005) :



Ces complexes hydro-métalliques sont transformés ensuite par une série de réactions hydrolytiques vers $\text{Mé}(\text{OH})_4^-$, réactions qui libèrent toutes un proton à l'eau (i.e. l'acidifient). Pour éviter cet effet qui requiert qu'une étape de rehaussement du pH soit ajoutée avant la distribution de l'eau traitée, il est possible d'utiliser des coagulants pré-hydrolysés qui réduisent l'acidification de l'eau. Ces coagulants, tels le PASS ou le PACl, sont formés en dosant de l'hydroxyde de sodium à des sels tels que des chlorures ou sulfates à base d'Al(III) ou de Fe(III). Selon MWH (2005), ces coagulants ont typiquement d'autres bénéfices : ils requièrent un dosage plus bas (en équivalent Mé^{3+}) pour un effet coagulant équivalent, les floccs formés sont plus denses et plus résistants aux forces de cisaillement, et leur capacité de neutralisation est moins affectée par la température (l'efficacité des coagulants traditionnels est grandement réduite en eau froide). De plus, le fait d'éviter l'étape d'hydrolyse, laquelle contrôle la cinétique globale du processus, améliore la cinétique de floculation.

Une façon de vérifier si les particules ont atteint une charge neutre consiste à mesurer leur potentiel zêta (ζ), qui aura une valeur d'environ zéro pour la dose optimale de coagulant (Xu et Fitzpatrick 2006).

Au moment de l'ajout du coagulant, une turbulence élevée (« flash-mix », ou mélange rapide) est induite dans l'eau à traiter pour assurer une bonne dispersion du coagulant

dans l'eau. C'est une étape très importante pour réduire la turbidité à l'eau filtrée, car un mélange sub-optimal ne permettra pas la réaction de toutes les molécules du coagulant avec les particules en suspension. Ebie et al. (2006) ont démontré que des valeurs très élevées de l'énergie (G) du mélangeur rapide (entre 600 s^{-1} à 1500 s^{-1}) favorisaient les comptes de particules (dans la gamme $1\text{-}3 \mu\text{m}$) les moins élevés à la fin de la période de coagulation pour les coagulants pré-hydrolysés. Cette condition aidait à réduire la turbidité à l'eau filtrée (sans décantation), et l'optimisation de la valeur du G était même plus importante que l'effet d'augmenter la concentration de coagulant. Le niveau maximum d'énergie de mélange atteignable dans le banc de floculation Phipps & BirdTM utilisé dans le cadre de ce mémoire est cependant plus faible, soit 250 s^{-1} à 22°C et 300 s^{-1} à 4°C (pour 300 rpm de vitesse d'agitation). La durée du mélange rapide est aussi importante: sa valeur optimale est inversement reliée à la concentration de coagulant à ajouter et à la turbidité à l'eau brute (Kan et al. 2002). Une durée de mélange rapide trop longue peut en effet éroder le floc, ce qui nuit à la floculation subséquente, en particulier en l'absence d'aide-floculant (polymère).

2.2. Cinétique de la floculation

L'étape de coagulation est suivie par celle de la floculation, i.e. d'agglomération des particules pour former des *flocs*. Quand l'énergie mécanique ou hydraulique est impartie à l'eau, les particules déstabilisées entrent en contact et se coalescent progressivement pour former des flocs. La cinétique de cette réaction a été le sujet d'une panoplie de projets de recherche qui seront résumés dans les prochains paragraphes.

2.2.1. Modélisation de la cinétique de floculation

Les modèles existants pour décrire la cinétique de la floculation sont presque tous basés sur celui conçu par Smoluchowski en 1917, avec l'expression suivante qui décrit le taux de floculation lors de la formation de particules avec un diamètre k :

$$\text{Équation 2-1} \quad r_k = \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} \alpha \beta(i, j) n_i n_j - n_k \sum_{\text{all } i} \alpha \beta(i, k) n_i$$

Les indices i , j et k font référence à des classes de particules divisées selon leurs tailles. Le paramètre n_i représente la concentration de particules de taille i et le paramètre $\beta(i, j)$, la fonction de fréquence de collisions entre les particules de tailles i et j (qui est la somme des collisions résultant des 3 mécanismes responsables pour les collisions décrites ci-bas). Le paramètre α représente l'indice d'efficacité de collision (égal à 1 s'il y a toujours coalescence après une collision, 0 si jamais). Le premier terme de l'équation $(\frac{1}{2} \sum_{i+j=k} \alpha \beta(i, j) n_i n_j)$ représente donc le gain de particules de taille k causé par la floculation de deux particules (i, j) qui ensemble auront la taille (volume) k . Le deuxième terme de l'équation $(n_k \sum_{\text{all } i} \alpha \beta(i, k) n_i)$ représente la formation de particules de taille $k+i$, et donc une perte de particules de taille k . La sommation de cette expression pour chaque taille de particule décrit ainsi la cinétique de floculation.

Les trois fonctions de fréquence de collisions sont dérivées pour (i) le mouvement brownien (Br, résultat du mouvement thermique moléculaire dans le liquide), responsable de la floculation péricinétique, (ii) les forces de cisaillement (Ci, causés par l'énergie introduite par le mélangeur), responsable de la floculation orthocinétique, et (iii) la sédimentation différentielle (SD, décrite plus tard par Camp et Stein 1943). Remarquez que bien que la filtration directe ne comprenne pas une étape de sédimentation *per se*, l'eau floculée passe par une colonne d'eau au-dessus du filtre avant d'être filtrée. L'eau floculée subit donc l'effet de la sédimentation différentielle, quand des particules plus denses sédimentent plus rapidement que les autres et s'attachent après elles en les dépassant. Ces trois effets sont décrits par les équations 2-2 à 2-5.

$$\text{Équation 2-2} \quad \beta(i, j) = \beta_{\text{Br}}(i, j) + \beta_{\text{Ci}}(i, j) + \beta_{\text{SD}}(i, j), \text{ avec :}$$

$$\text{Équation 2-3} \quad \beta_{Br}(i, j) = \frac{2kT}{3\mu} \left\{ \frac{1}{d_i} + \frac{1}{d_j} \right\} \{d_i + d_j\}$$

$$\text{Équation 2-4} \quad \beta_{Ci}(i, j) = \frac{1}{6} (d_i + d_j)^3 G$$

$$\text{Équation 2-5} \quad \beta_{SD}(i, j) = \frac{\pi g}{72\mu} (\rho_p - \rho_l) (d_i + d_j)^3 |d_i - d_j|$$

Ici, d est le diamètre de la particule en μm , k la constante Boltzmann ($1,38 \times 10^{-16}$ g.cm²/s², T la température en K, μ la viscosité dynamique absolue en g/cm.s, G le gradient de vitesse moyen en s⁻¹ (voir ci-bas), g la constante de gravitation en m/s², et ρ_p et ρ_l la densité de la particule et du liquide en kg/m³, respectivement. Ces trois fonctions nous indiquent que le mouvement brownien affecte peu l'efficacité des collisions, sauf dans le cas de très petites particules, et que les forces de cisaillement et de sédimentation différentielle sont fortement fonction de la taille des particules.

Smoluchowski (1917) a fait six simplifications lors de ses études portant sur la cinétique de la floculation de suspensions colloïdales :

1. α , l'indice d'efficacité de collision, est toujours égal à 1;
2. Les forces de cisaillement dans le fluide sont laminaires;
3. La suspension est monodispersée (les particules ont au départ toutes la même taille);
4. Les floes ne se cassent pas (absence d'érosion des floes formés);
5. Toute particule a une forme sphérique, même après cohésion de plusieurs particules;
6. Les collisions ne se passent qu'entre deux particules.

Premièrement, l'indice d'efficacité de collision α n'est jamais égal à 1, mais peut être approximé avec une équation empirique (Fuchs 1934 cité par Thomas et al. 1999, et Averill et al. 1991). Elle semblerait par contre être fonction du système.

Ensuite, la majorité des flocculateurs ne fonctionne pas sous des conditions d'écoulement laminaire. Le concept du gradient de vitesse « G » a donc été introduit par Camp et Stein (1943) pour prendre en compte l'effet de la turbulence. Ils ont défini la valeur efficace de G comme étant :

$$\text{Équation 2-6} \quad G_m = \sqrt{\frac{\Phi_m}{\mu}}$$

où Φ est le travail causé par les forces de cisaillement par unité de volume par unité de temps. Dans le cas de la floculation pour le traitement de l'eau, ces forces de cisaillement sont causées par l'énergie fournie par un mélangeur, et sont ainsi responsables pour la floculation orthocinétique, définie comme étant le résultat de collisions de particules assujettis à une force laminaire de cisaillement (Hahn et Stumm 1968). Dans le cadre de ce mémoire, le paramètre « G » sera appelé « énergie de mélange », avec unités de s^{-1} . Selon Adler (1981), la variable G est inversement reliée à l'efficacité des collisions α , c'est-à-dire que pour un G plus élevé, les collisions entre particules résultent moins souvent en adhésion des deux particules (α moins élevé). Il existe donc un G optimal pour chaque système qui permet une interaction des particules menant à un floc suffisamment gros sans pour autant qu'il ne subisse d'érosion.

La quatrième limitation à l'équation de Smoluchowski est qu'elle ne considère pas une limite maximale à la croissance des flocs (causée par rupture ou érosion). Plusieurs auteurs ont depuis ajouté ces effets au modèle (Argaman et Kaufman 1970, Tambo et al 1979); en combinant les expressions pour la floculation orthocinétique d'Argaman et Kaufman (1970) et d'autres dans une série de i réacteurs parfaitement mélangés, nous obtenons l'expression suivant : (Janssens et Buekens 1987)

$$\text{Équation 2-7} \quad \frac{N_{i-1}}{N_i} = \frac{1 + K_A G \frac{T}{n}}{1 + K_B \frac{N_0}{N_{i-1}} G^p \frac{T}{n}}$$

pour calculer le nombre de floes formés dans le temps T avec une concentration numérique initiale de particules primaires arrivant au flocculateur N_0 mélangée avec une énergie de mélange G . Les termes K_A et K_B sont des constantes d'agrégation et de rupture de floes, respectivement, avec p comme exposant qui prend en considération le taux de rupture des floes. Par contre, Haarhoff et Joubert (1997) ont démontré que K_A et K_B sont fortement reliés à la concentration de coagulant ajoutée et à la turbidité de la suspension à flocculer. Ces constantes diffèrent donc selon le système, ce qui rend le modèle difficilement généralisable.

L'effet des interactions hydrodynamiques entre particules a été considéré par la suite dans la littérature (Adler 1981, Han et Lawler 1992). Ces études considèrent par contre seulement des systèmes à peu près monodispersés. Le fait que les interactions changent complètement après les premiers moments de flocculation, une fois que des plus gros floes sont formés (Thomas et al. 1999) effet qui rend ces ajustements peu utiles. De la même façon, les autres limitations (toute particule a une forme sphérique et les collisions ne se produisent qu'entre deux particules) ne s'appliquent ni en laboratoire, ni en usine. Plusieurs corrections ont été apportées au modèle de Smoluchowski, mais les modèles qui réussissent le mieux à coller à la réalité demeurent à ce jour empiriques (Thomas et al. 1999). De plus, une des faiblesses des multiples études qui ont tenté de modéliser la cinétique de flocculation (Spicer et Pratsinis 1996, Kusters et al. 1997, Ducoste et Clark 1998b, Zhang et Li 2003, Wang et Tang 2006) est qu'elles sont élaborées à partir de résultats avec de l'eau synthétique. Cette approche, selon Thomas et al. (1999), a peu de chances d'être représentative d'un vrai système.

2.2.2. Impact des conditions de flocculation sur sa cinétique

2.2.2.1 Importance relative des différents mécanismes de flocculation

Ayant déterminé que : 1. le mouvement brownien cause la flocculation péricinétique, 2. la flocculation orthocinétique est le résultat de collisions entre particules assujetties aux

forces de cisaillement, et 3. la sédimentation différentielle est simplement l'effet mitigé de la gravité sur les floes, comment déterminer lequel de ces trois mécanismes va primer? Et à quel taux de floculation?

Krone (1978, cité par Ernest et al. 1995) précise que la floculation péricinétique a plus d'importance pour des concentrations élevées de particules et pour un G très bas. Lawler (1993) démontre que pour les particules $< 0,5 \mu\text{m}$, c'est le mouvement brownien qui détermine l'indice d'efficacité des collisions, tandis que pour les particules entre $0,5$ et $6,5 \mu\text{m}$ ce sont les forces de cisaillement, et au-delà de $7 \mu\text{m}$, c'est la sédimentation différentielle. En plus de l'effet du diamètre des particules, les équations 2-3 à 2-5 nous rappellent que (i) la température et son effet sur la viscosité de l'eau déterminent le taux de floculation péricinétique, (ii) la floculation orthocinétique est fonction directe du G qui dépend de la température, et (iii) la sédimentation différentielle dépendra également de la température et de la densité des floes formés. D'un point de vue opérationnel, il y a donc seulement la floculation orthocinétique qui est contrôlable directement, et ce, principalement pour les particules entre $0,5$ et $6,5 \mu\text{m}$, selon Lawler (1993).

La floculation orthocinétique est typiquement contrôlée par l'énergie de mélange. Or, il a été démontré (Janssens et Buekens 1987) que le paramètre $\bar{G}$ ne donne pas d'informations sur la distribution des forces de cisaillement, et qu'il ne s'applique qu'à la floculation de particules plus petites que la dimension de Kolmogorov $\eta = (\nu^3/\epsilon)^{1/4}$, où ν = viscosité cinématique en m^2/s et ϵ = taux de dissipation d'énergie moyenne en W/kg , donc environ $\leq 100 \mu\text{m}$ pour des taux typiques selon Kusters et al. 1997. Ce terme réussi toutefois à décrire à un degré acceptable les données cinétiques de floculation pour les besoins opérationnels (Janssens et Buekens 1987). Han et Lawler (1992) ont postulé qu'une floculation basée sur une valeur de G juste assez élevée pour garder les particules en suspension serait suffisant pour permettre le mouvement brownien d'opérer, qui est un facteur plus important que les forces de cisaillement causé par un G élevé. Une concentration trop basse, résultat d'un intrant d'énergie trop bas (les

particules ne sont pas maintenues en suspension), ne permet pas un taux suffisant de collisions entre particules.

2.2.2.2 Température

Il est reconnu depuis longtemps que la température affecte grandement la floculation. Par exemple, la dépendance de l'énergie de mélange sur la viscosité de l'eau (équation 2-6) fait que pour la même application d'énergie, les forces de cisaillement dans l'eau plus froide sont plus faibles à cause de la plus grande viscosité de l'eau froide. Des tests prenant en compte cet effet (Hanson et Cleasby 1990) ont démontré qu'une basse température produit également d'autres effets qui réduisent le degré de floculation, notamment : une diminution de la résistance aux forces de cisaillement et donc un diamètre réduit des flocs (moins prononcé chez les flocs ferriques que chez les flocs d'aluminium); un effet sur la chimie de l'eau (un pOH stable aide d'une façon limitée à améliorer la cinétique de floculation); et la réduction du taux d'hydrolyse des coagulants et donc de la cinétique de floculation.

2.2.2.3 Rôle des polymères organiques

Plusieurs polymères organiques cationiques sont utilisés pour leurs propriétés de coagulant. Ils sont la plupart du temps utilisés en combinaison avec des coagulants inorganiques pour améliorer leur performance. Leur coût plus élevé que les coagulants inorganiques limite aussi leur usage à titre de coagulant unique. Par ailleurs, il a été démontré que l'ajout d'un polymère cationique comme aide-coagulant (souvent dénommé aide-filtrant) réduit la turbidité à l'eau filtrée de plusieurs façons, notamment en augmentant l'efficacité des collisions dans le filtre (Graham 1986) et en améliorant la résistance des flocs aux forces de cisaillement (Young et al. 2000). Ammary et Cleasby (2004) précisent que la séquence d'addition du polymère est importante, et qu'une addition simultanée du coagulant et du polymère serait la meilleure approche, mais

plusieurs auteurs (Sakohara et al. 1981, Hogg 1999) indiquent qu'un ajout en étapes offre plus de succès à réduire la turbidité. La séquence optimale semble donc être fonction du système.

2.3. Caractérisation des floes

2.3.1. Géométrie fractale

Quintern et al. (1987) et Li et Ganczarczyk (1989) ont introduit le concept des fractales au monde du traitement des eaux pour décrire la géométrie des floes. Selon cette théorie, le nombre de particules, N , dans un floc serait fonction de son diamètre élevé à la puissance D , la dimension fractale : N est fonction de d_f^D . La valeur de $(1-e)$ où e = porosité du floc (valeur qui s'appelle fraction solide volumétrique) est fonction de son diamètre élevé à la puissance $D-3$. Les floes, étant des structures lâches, instables et irrégulières, se prêtent bien à une caractérisation fractale, où la borne supérieure est de 3, la dimension euclidienne pour un objet à trois dimensions et correspondant à une structure poreuse où la porosité n'est *pas* fonction de la taille. C'est-à-dire que pour un floc à dimension fractale inférieure à 3 (la valeur de D pour les floes en eau potable est typiquement entre 1,4 et 2,8 selon Li et Ganczarczyk 1989 et Huang 1994), sa porosité dépend de sa taille. Le modèle « agrégat-agrégat » (qui propose que des agrégats composés de particules primaires s'ajoutent progressivement l'un à l'autre pendant l'étape de floculation) explique pourquoi les gros floes sont plus poreux que les plus petits : quand un agrégat irrégulier s'ajoute à un autre, la porosité du floc résultant est encore plus élevée que celle de ses composants (Huang 1994). Huang (1994) propose aussi que des floes plus denses sont formés pour des forces de cisaillement plus élevées dans le flocculateur (et ainsi pour des G plus élevés). Ces forces seraient les seules parmi les trois mécanismes de floculation (mouvement Brownien, forces de cisaillement, sédimentation différentielle) qui produisent des floes fractaux : la cinétique du mouvement brownien s'applique à des particules trop petites ($< 1 \mu\text{m}$), et la

sédimentation différentielle suivrait plutôt le modèle « particule-agrégat », où les particules s'ajoutent une à une aux agrégats pour former des floccs plus denses. Les floccs avec la dimension fractale $D < 3$ se flocculent plus rapidement que les floccs à densité uniforme, car leur diamètre est plus large et ils sont plus poreux, permettant ainsi une pénétration par la fluide et donc des collisions plus nombreuses entre particules (Kusters et al. 1997). Le modèle fractal donne une meilleure appréciation de la cinétique de flocculation que les modèles qui ne prennent pas la porosité accrue en compte (MWH 2005).

2.3.2. Analyse microscopique de la taille des floccs

Le compte de particules en suspension est fait depuis 1947 avec un compteur Coulter, qui enregistre un signal proportionnel au volume des particules, indépendamment de leur forme. Le signal est provoqué par une modification du champ électrique établi dans un orifice dans lequel est aspiré le fluide contenant les particules (Lemelson-MIT 2000).

Le compteur Coulter se prête moins bien à l'analyse des floccs car il ne détecte pas leur forme ni leur densité. Tambo et Watanabe (1979) étaient parmi les premiers chercheurs à analyser les caractéristiques optiques des floccs. Ils ont accompli cette tâche en les photographiant dans une colonne d'eau pendant qu'ils sédimentaient dans une solution, qui fut très diluée pour empêcher que les floccs ne se flocculent entre eux. Quínternet et al. (1987) a optimisé cette méthode pour mesurer la dimension fractale des floccs, et depuis ce temps, toute une série d'auteurs ont utilisé un microscope pour caractériser et compter les floccs dans une suspension flocculée (Huang 1994, Kang et Cleasby 1995, Cheng et al. 2008).

Drewes et al. (2007) ont récemment complété un projet pour l'American Water Works Association Research Foundation (AWWARF) visant à prédire l'enlèvement de particules dans des filtres granulaires selon les caractéristiques des floccs à l'affluent du filtre. Avec trois instruments d'analyse de particules différents (HachTM 2200PDX

Particle Counter $>2\text{ }\mu\text{m}$, Dynamic Particle AnalyserTM $>1\text{ }\mu\text{m}$, RoboJarTM / FlocMonitor $>100\text{ }\mu\text{m}$), des essais en pilote (avec sulfate ferrique et polyDADMAC) et à l'échelle réelle (avec alun et « PEC », un polyDADMAC), à trois usines différentes : une de filtration directe, une utilisant un flottateur à air dissous (FAD), et une dernière avec un traitement conventionnel. Pour la filtration directe et la FAD, les tendances en diamètre et comptes de particules prédisaient convenablement la performance des unités en aval du flocculateur ou flottateur. Cependant, le Dynamic Particle AnalyserTM a seulement été utilisé pour faire des comptes de particules à l'eau filtrée. En essais pilotes, la concentration de sulfate ferrique a été maintenue constante (à 3 mg Fe/L et $6,75\text{ mg Fe/L}$) alors que la concentration de l'aide-filtrant (polyDADMAC) a été variée (de $0,85$ à $2,5\text{ mg/L}$). À l'usine de filtration directe, la concentration de l'alun a été maintenue constante à 7 mg/L et celle du polyDADMAC a été variée entre 0 et 7 mg/L . La relation entre le diamètre moyen de floccs (vraisemblablement sur une base numérique et non volumétrique) et la turbidité à l'effluent n'a pas été établie, mis à part qu'une décroissance du diamètre des floccs prédit une hausse de la turbidité à l'installation réelle de filtration directe. Après une analyse plus attentive de leurs données, nous avons observé que les conditions d'eau brute (i.e. la journée d'essai) ont un impact important sur les conclusions qui sont tirées de ce type de relation, autant pour le FAD que pour la filtration directe. Une observation intéressante concerne l'impact de la limite de détection des compteurs de particules utilisés. Au fur et à mesure que les floccs grossissent, ils entrent dans la plage de détection de l'instrument donnant ainsi l'impression que le compte total de particules s'accroît. En réalité, les nombreuses petites particules coalescent pour réduire le nombre total de floccs mais ceci fait augmenter le nombre de floccs détectés (à diamètre plus élevé).

Les résultats de ce projet forment une bonne base de départ pour de futures études : l'analyse d'une eau de basse turbidité avec le Dynamic Particle AnalyserTM donnerait plus d'informations sur les plus petits floccs qui n'ont pas été détectés par le RoboJarTM /

FlocMonitor. De plus, une étude la relation entre le diamètre moyen de floes et la turbidité à l'effluent fournirait des informations utiles sur la floculation.

2.3.3. Photometric Dispersion Analyzer : Théorie et usage

Le Photometric Dispersion Analyzer, ou PDA, est un instrument appliquant une méthode simple et en ligne mais indirecte du degré de floculation d'un échantillon liquide. Le fonctionnement du PDA est basé sur une technique optique développée par Gregory et Nelson (1984), laquelle mesure les fluctuations d'intensité de la lumière transmise à travers une suspension; ces changements en intensité donnent une indication du degré de floculation de la suspension.

La suspension est envoyée au PDA via un tube transparent, à un débit qui dépend de la turbidité. Le tube passe par une cellule où un faisceau de lumière l'irradie. La lumière réfractée est détectée de l'autre côté. Ce signal, le signal de sortie du PDA (appelé l'indice de floculation, ou IF, voir exemple à la figure 2-1), est envoyé à un PC après sa conversion d'un signal analogue en signal numérique. Gregory (1985) a démontré que IF est une fonction de la racine carrée de la concentration des particules et varie de façon linéaire avec la taille des particules en suspension.

Le PDA a déjà été identifié comme étant un outil sensible pour la détection de la floculation en ligne (Matsui 1991, Rawlings et al. 2006), pour des eaux synthétiques et naturelles à des turbidités entre 2 et 300 UTN; aux particules mono- et hétérodispersées, et floculées avec des coagulants inorganiques et/ou des coagulants organiques (voir tableau 2-2). Matsui (1991) a par ailleurs développé une formule pour calculer le diamètre moyen des floes dans une suspension hétérodispersée de kaolin à partir du signal de sortie, mais cette formule nécessite la connaissance de plusieurs caractéristiques difficilement mesurables de la solution et des floes.

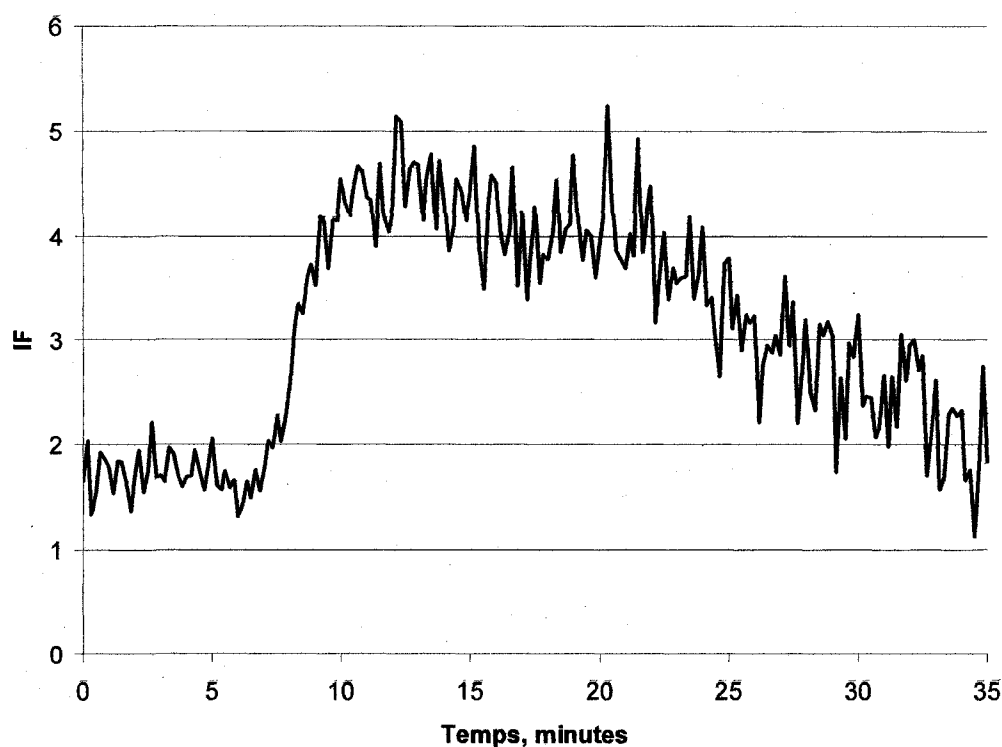


Figure 2-1. Exemple d'une courbe de mesure d'indice de floculation tel que mesuré pas le PDA

Tableau 2-2. Synthèse des études réalisées avec le PDA

Références	Suspension	Turbidité (NTU)	Coagulant	FI (échelle 1-1000)
Gregory et Nelson 1986	kaolin		$\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	N.D.
Matsui 1991	kaolin		alun, PACl	N.D.
Kang et Cleasby 1995	kaolin	24, 53	$\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$	2, 4 (50)
Huang et Liu 1996	bentonite	20-2000	alun	N.D.

Références	Suspension	Turbidité (NTU)	Coagulant	FI (échelle 1-1000)
Matsui et al. 1998	kaolin		alun, PACl	N.D.
Kan et al. 2002	kaolin	180, 38, 8	alun, PACl	N.D.
Hopkins et Ducoste 2003	kaolin	75+	alun	3 (30)
Ammary et Cleasby 2004	kaolin	4,8 - 88	polymère cationique, $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$	3.8,3.3,4.8,3.2 (500,50,50,20)
Fitzpatrick et al. 2004	kaolin	75	alun, sulfate ferrique, PACl	N.D.
Yükselen et Gregory 2004	kaolin, acide humique	100	alun, PACl, polyDADMAC	N.D.
Wang et al. 2005	kaolin	50	FeCl_3 , polyferric chloride	0,7 (20)
Liu et al. 2006	kaolin, acide humique; eau brute (réservoir)	8-9	pré- O_3 , AlCl_3 , PACl	N.D.
Rawlings et al. 2006	décharge d'un DAF (NOM élevé)	2,6 - 3,8	Ferrisol XL, acrylamides non-ionique et anioniques	N.D.

N.D. : Non disponible

La majorité des études qui ont utilisé le PDA ont eu recours à de l'eau synthétique. À notre connaissance, il n'y a pas eu d'études de réalisées avec le PDA avec des eaux naturelles et une faible turbidité, teneur en matière organique naturelle, et concentration de coagulant ajoutée que celle de l'eau brute à l'usine Atwater.

2.3.4. Turbidité

La turbidité dans l'eau est causée par la présence de particules en suspension qui réduit la transparence de l'eau. Plus précisément, la turbidité est « une expression de la propriété optique qui entraîne la lumière à se disperser et s'absorber au lieu d'être transmis sans changer de direction ou de niveau de flux à travers l'échantillon » (Standard Methods, 1998). Elle est à son maximum lorsque les particules en suspension atteignent un diamètre d'environ $0,2 \mu\text{m}$ (Gregory 1989). Elle est couramment utilisée pour évaluer l'efficacité d'une chaîne de traitement : plus la turbidité est diminuée, plus sera réduit le risque de contamination.

Le suivi de la turbidité d'une eau flocculée pour la caractériser n'est pas souvent fait en pratique. En effet, la sensibilité maximale des mesures de turbidité est observée pour des particules à diamètres de très petites tailles qui ne sont pas typiquement celles qui donnent de l'information utile sur l'état de la floculation. Cependant, Cheng et al. (2008) ont utilisé un turbidimètre néphélométrique pour suivre la floculation d'une eau synthétique composée d'algues cultivées. L'utilité de cette technique n'a pas encore été démontrée pour une eau naturelle.

2.3.5. Impact des caractéristiques des floes sur les procédés de traitement

Pour que le traitement conventionnel réduise efficacement la turbidité, les floes formés doivent être suffisamment grands et denses pour décanter rapidement avant que l'eau soit envoyée aux filtres (MWH 2005). Par contre, le procédé de filtration directe implique que toute la matière particulaire dans l'eau brute ainsi que celle originant du coagulant doit être retenue dans le filtre. Ceci requiert que de petits floes soient formés pendant la coagulation et la floculation, et que leurs charges superficielles soient neutralisées pour pouvoir bien adhérer aux grains du filtre, du moins au début du cycle de filtration. Après la maturation du filtre, les floes adhèrent entre eux à l'intérieur des pores du filtre

(MWH 2005). Il est à noter qu'un bon enlèvement initial ne prédit pas toujours un bon enlèvement durant tout le cycle (Kim et Lawler 2006).

2.3.5.1 Filtration directe

Pour les applications de filtration directe, la coagulation-floculation doit donc viser à former des « pin flocs », c'est-à-dire des petits flocs « épingle ». Il a en effet été démontré que les plus gros flocs favorisent une percée de turbidité hâtive, tandis que la filtration de *pin flocs* est caractérisée par une période de maturation suivie d'une amélioration temporelle de l'efficacité d'enlèvement de la turbidité (Kau et Lawler 1995). D'autre part, Shin et O'Melia (2006) ont démontré que l'efficacité de la filtration directe est plus sensible au dosage de coagulant que la filtration conventionnelle, et la performance du filtre est plus sensible à un mauvais dosage de coagulant qu'à un débit élevé de filtration.

Les forces de cisaillement induites dans les pores du filtre permettent à la floculation de s'y poursuivre, ce qui facilite l'adhésion des particules en suspension à la surface des grains (Chuang et Li 1997). La taille des pores diminue avec le temps de filtration, augmentant ainsi les forces de cisaillement jusqu'à ce qu'elles soient plus élevées que celles qui attachent les particules aux grains, causant une rupture de flocs menant à une percée de turbidité à moins que ces particules ne soient captés plus loin dans le filtre. Ce point dépend de la granulométrie du filtre, donc de l'hydraulique de l'écoulement dans les pores, et des coagulants utilisés. À cet égard, la filtration bicouche, caractérisée par un milieu filtrant à plus faible densité mais à diamètre plus élevée en couche supérieure, a été développée pour assurer le captage des particules dans la couche inférieure pendant la période de maturation de la couche supérieure (O'Melia et Shin 2001), permettant ainsi au système d'enlever la turbidité sur toutes les phases de filtration et de mieux répartir la perte de charges sur l'ensemble de la profondeur du filtre. En choisissant le diamètre des grains, il est important qu'il soit au moins 10 fois supérieur à celui des

particules. Dans le cas contraire, le phénomène de tamisage primera au lieu de l'attachement, ce qui limite alors la durée du cycle de filtration (Herzig et al., 1970 et Sakthivadivel 1966, 1969 tel que cité par Tufenkji 2006).

Treweek (1979, cité par Vigneswaran et al. 1984), a indiqué qu'une valeur de Gt de 42 000 (à un G de 100 s^{-1}) produisait des floccs appropriés pour un enlèvement par filtration directe. Vigneswaran et al. (1984) a précisé qu'un diamètre de floc de 48 à 58 μm semblait optimal pour enlèvement par colonne filtrante bicouche composée d'anthracite (30 cm de diamètre de 2,2 mm) et de sable (15 cm de 1,1 mm). Ils ont mesuré le diamètre d'un nombre « représentatif » de floccs (au moins 100 à chaque fois) directement avec un microscope. Leurs résultats ont confirmé qu'un G croissant donne des floccs plus petits. Cependant, la turbidité visée à l'eau filtrée était de 1,0 UTN et les caractéristiques du filtre bicouche utilisé sont atypiques par rapport aux filtres bicouches conventionnels. Les tailles de floccs mesurés donnent possiblement une indication d'une taille à visée pendant la floculation pour filtration directe, mais des tests de confirmation seraient importants à faire en eaux naturelles et avec un instrument en-ligne.

2.3.5.2 Mise à l'échelle des essais de floculation

Les conditions hydrodynamiques durant un essai en bécher sont différentes de celles dans un réacteur opéré en continu à plus grande échelle. Cette section présente les travaux de recherche ayant visé à mettre à l'échelle industrielle les résultats d'essais en laboratoire.

Mélange à petite et grande échelle

Han et Lawler (1992) ont relevé plusieurs faiblesses reliés à l'utilisation du paramètre G pour décrire la cinétique de floculation dans les flocculateurs à pleine échelle. Tout d'abord, ce paramètre présume un écoulement laminaire, une suspension monodispersée et un comportement indépendant des forces inter-particules à courte distance. Ils

démontrent que le concept de G ne fonctionne pas aussi bien sous les conditions réelles observées en usine (écoulement turbulent, suspension hétérodispersée, influence des forces inter-particules à courte distance) que sous des conditions idéalisées. Ils conclurent que l'importance du G se limite à garder les particules en suspension pour que le mouvement Brownien entre particules puisse agir efficacement.

Quant au mélange sur une installation pilote par rapport à un essai en laboratoire, plusieurs études (Hanson et Cleasby 1990, Ducoste et Clarke 1998a et b) mentionnent l'importance de la géométrie de l'impulseur pour calculer l'énergie de mélange et ainsi assurer un bon mélange. Ducoste et Clark (1998a) ont d'ailleurs démontré que c'est l'intensité de la turbulence dans la zone de refoulement de l'impulseur qui gère la taille moyenne et la taille maximum stable des floes et non l'énergie de mélange G . Ceci pose un problème pour la conception de flocculateurs basés sur des petits flocculateurs avec installation conçue selon le paramètre G et le temps de rétention. Un meilleur paramètre à contrôler lors de la mise à l'échelle serait donc $ND \cdot N_p^{0.5}$, où N = rpm de l'impulseur, D = diamètre de l'impulseur, N_p = nombre de puissance (*power number*) de l'impulseur (adimensionnel et dépendant du type d'impulseur).

Bernhardt et Schell (1993) ont développé un test pour faire le suivi des conditions de floculation pour application à la filtration directe avec une mini-colonne dont la turbidité à l'eau filtrée était analysée. Les conditions de traitement incluaient un coagulant ($\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$), un pH et une température constants (6,0 et 20, respectivement). L'effet de la floculation sur l'enlèvement de la turbidité a été étudié en variant les valeurs de G entre 16 et 150 s^{-1} et de t entre 0 et 60 minutes. Selon ces travaux, une valeur de Gt entre 30 000 – 60 000 est optimale, et de 60-120 pour le GCt (ou C est la concentration volumétrique adimensionnelle de floes (V/V), Ives 1968). Cette étude fait aussi une comparaison des résultats de jar tests avec des tests équivalents réalisés en pilote. Ils conclurent qu'il y a une concordance acceptable entre les résultats des deux niveaux d'expérimentation mais qu'il demeure tout de même important d'effectuer des tests

pilotes avant de dimensionner de grandes usines. Leurs travaux n'ont cependant pas intégré de caractérisation des floccs à l'aide de compteur de particules ou du PDA.

2.4. Conclusion

Beaucoup de progrès ont été faits dans le domaine de la caractérisation des floccs depuis que Smoluchowski a tenté de décrire la mécanique de leur formation. Il reste cependant plusieurs lacunes à combler dans la littérature par rapport à la filtration directe, notamment le suivi en-ligne de la taille et la forme des floccs, et surtout des essais utilisant des eaux naturelles.

3. CHAPITRE 3 : OBJECTIFS ET HYPOTHÈSES

3.1. Objectifs

L'objectif principal de ce projet est de vérifier la relation entre les caractéristiques générales des floccs et l'enlèvement de la matière particulaire par filtration granulaire directe. L'enlèvement de la matière particulaire est évalué par la turbidité à l'eau filtrée.

Les objectifs spécifiques de ce projet sont les suivants:

1. Comparer deux appareils permettant la caractérisation de l'eau flocculée, soit un Photometric Dispersion Analyser (PDA) et un compteur de particules photométriques de Brightwell Technologies.
2. Développer et comparer différents paramètres indicateurs du degré de floculation. Dans le cas du compteur de particules, ces indicateurs seront développés à l'aide de la distribution de taille de particules fournies par l'appareil alors que le PDA fournit directement un indice de floculation.
3. Évaluer le meilleur coagulant parmi trois coagulants inorganiques (alun, PASS100 et sulfate ferrique).
4. Évaluer l'impact de la température sur la cinétique de floculation et la turbidité à l'eau filtrée.
5. Évaluer l'impact du dosage d'un polymère organique de type polyDADMAC.
6. Évaluer l'impact de l'énergie de mélange (G), du temps de floculation (t) et du paramètre Gt sur les caractéristiques générales des floccs formés.
7. Étudier la mise à l'échelle du procédé de floculation en comparant des essais identiques faits en laboratoire (*jar tests*) et sur un pilote industriel ($65 \text{ m}^3/\text{d}$).

3.2. Hypothèses

L'hypothèse principale à démontrer est la suivante : les caractéristiques des floccs produits avec des coagulants inorganiques et un coagulant organique permettent de prédire l'enlèvement de la matière particulaire par filtration granulaire directe, tel qu'indiqué par la turbidité à l'eau filtrée.

Les hypothèses spécifiques pour répondre aux objectifs indiqués ci-haut sont :

1. Le compteur de particules est un meilleur outil que le PDA pour mener une étude qualitative de meilleures conditions de floculation.
2. Le diamètre volumétrique moyen (d_v) des floccs est le meilleur paramètre pour prédire l'enlèvement de la matière particulaire par filtration granulaire.
3. Parmi les trois coagulants nommés, le PASS100 performe le mieux en eaux froides. En eaux tièdes, peu de différence est observée entre les coagulants.
4. La taille et la résistance des floccs sont des fonctions croissantes de la température, ce qui explique que la matière particulaire soit mieux enlevée par filtration granulaire directe en eaux tièdes.
5. L'ajout d'un polymère organique améliore l'enlèvement de la matière particulaire par filtration granulaire directe, car il augmente la résistance des floccs.
6. La taille des floccs augmente avec un Gt croissant jusqu'à atteindre une valeur plateau.
7. Les résultats des mêmes configurations d'essais en pilote et en laboratoire démontrent les mêmes tendances quant à la relation entre les caractéristiques générales des floccs vérifiés pendant la floculation et la turbidité produite à

l'eau filtrée. Une meilleure floculation en laboratoire (mesurée par la taille des floes) est toutefois anticipée en raison des conditions hydrodynamiques plus favorables dans les essais en béchers.

4. CHAPITRE 4 : COMPARISON OF TWO ONLINE FLOCCULATION MONITORING TECHNIQUES IN PREDICTING TURBIDITY REMOVAL

Tyler BALL and Benoit BARBEAU*

École Polytechnique de Montréal, NSERC Industrial Chair on Drinking Water, Civil
Geological and Mining Engineering, CP 6079, Succ. centre-ville, Montréal (Québec),
Canada, H3C 3A7

* Corresponding author: tel: 1 (514) 340 4711 (x2988), fax: 1 (514) 340 5918, e-
mail: benoit.barbeau@polymtl.ca

4.a. Abstract

Particulate matter removal in drinking water treatment via direct granular filtration requires specific flocculation conditions (a process typically termed “high energy flocculation”). Predicting filtered water turbidity based on flocculated water characteristics remains difficult. This study has sought to establish a relationship between the two. Flocculation of a low-turbidity raw water was evaluated online using a Photometric Dispersion Analyzer (PDA) and a Dynamic Particle Analyzer in a modified jar test followed by a bench-scale column filter. Coagulants used were alum, PASS100, and ferric sulfate in addition to a polyDADMAC cationic polymer; they were dosed in warm and cold water, with flocculation mixing energies of 0 and 100 s⁻¹. Compared to the flocculation index provided by the PDA, the volume-averaged floc diameter d_v , calculated using the particle size distribution of the Dynamic Particle Analyzer, provided more complete information regarding the flocculation of small particles. Polymer addition was shown to be more effective in reducing filtrate turbidity than in increasing floc size. Floc size was shown to be insufficient in predicting particulate matter removal by direct granular filtration as measured by turbidity.

Keywords: Drinking water, floc, turbidity, direct filtration, on-line monitoring, polymer

List of abbreviations used in the text

DPA4100: Dynamic Particle Analyzer

d_n : number average floc diameter

d_s : surface average floc diameter

d_v : volume average floc diameter

FI: flocculation index

G: mixing energy, s^{-1}

Gt: mixing energy*time

mM/L: millimoles (Al or Fe) per litre

NTU: nephelometric turbidity units

PASS100TM: a proprietary pre-hydrolysed poly-aluminum silicate sulfate coagulant

PDA: Photometric Dispersion Analyzer

polyDADMAC: polydiallyldimethylammonium chloride

V_{RMS} : root mean square voltage

4.1. Introduction

Drinking water treatment typically involves coagulant dosing and subsequent filtration, due to the affordability and effectiveness of such processes. Conventional treatment of drinking water, which implies coagulation, flocculation, sedimentation, and filtration, requires that large, dense flocs be formed. Because a sedimentation step is not used in direct filtration, the flocculation step is aimed at forming so-called “pin flocs”, which have been shown to allow longer filtration cycles and better turbidity removal as compared to larger flocs, which break off during filtration and cause turbidity breakthrough (Kau and Lawler 1995).

Turbidity is the indicator most frequently used to monitor the effectiveness of physico-chemical treatment processes. In designing and operating a direct filtration treatment plant, it is particularly important that an optimum coagulant dose be selected, because granular filters are very sensitive to an inaccurate chemical pretreatment (Shin and O’Melia 2006). However, predicting turbidity removal based on flocculated water characteristics is not possible at this time, as the relationship between physical floc characteristics and turbidity removal using direct granular filtration remains unclear. Many research teams have studied the effect of treatment variables on turbidity removal and physical floc characteristics, but few have simultaneously explored the relationship between the two, in part due to the difficulties inherent in studying flocs, which are very fragile structures. Of those research teams having studied this relationship, the majority focused on conventional treatment flocculation needs, which as mentioned previously, differ significantly from those of direct filtration. Nevertheless, in all cases, developing appropriate methods for directly characterizing flocs and, in turn, identifying optimal floc characteristics, are common goals.

In their landmark study of the physical characteristics of flocs, Tambo and Watanabe (1979) introduced the concept of photographing them, and developed a function demonstrating that floc density decreases as floc size increases. Han et al. (2002) found

that particle counts (classified into two bins: small - 2-5 μm and large - 50-75 μm) measured at different points in a conventional water treatment plant are useful in making operational decisions to improve turbidity after filtration. Han et al. (2006) studied flocculation in real time in synthetic water at different mixing energies and times by using a 3 mm-diameter needle to transfer samples to a viewing cell where the flocs were digitally counted and evaluated for diameter and shape factor. The flocculated water was not subsequently filtered in their study.

Alternatives to directly counting flocs have also been investigated. For example, Rawlings et al. (2006) used a Photometric Dispersion Analyzer (PDA) to show that polymeric flocculants (polyacrylamides) improved colloidal matter removal and direct filtration performance due to the formation of strong flocs. The PDA has been used in over 25 published studies to indirectly study floc characteristics and their effect on removal by filtration, but the vast majority used synthetic waters with elevated turbidity, a condition that does not apply to direct filtration. None has compared the PDA output with particle analyzer results measured during the flocculation process and the resulting direct filtration turbidity, although Jin (2007) calculated floc strength using a combined system consisting of the PDA and image analysis. Gregory (1999) claims that the PDA can be used to detect particles larger than 1 μm , making it a simple alternative to a particle counter.

The Camp number, Gt , is the product of the velocity gradient (or mixing energy, G in s^{-1}) and mixing time (in s). It is a concept widely used in flocculator design, despite its potential scale-up issues (Ducoste and Clark 1998) and its oversimplification of particle motion (Han and Lawler 1992). In addition to providing a thorough overview of the floc filterability literature up to that point, Bernhardt and Schell (1993) determined optimum Gt values (30,000-60,000) for turbidity removal in direct filtration by testing an iron-based coagulant on synthetic water. They studied the effects on filtered water turbidity of different values of coagulant concentration, mixing energy, flocculation time, and temperature, but the physical characteristics of the flocs thus formed were not the focus

of their research. Their optimal Gt values are, however, in line with the recommendations of AWWA/ASCE (2005), which recommends Gt values of 40,000 to 75,000 with high G values (up to 75 s^{-1}).

The impact of flocculation on direct filtration has also been the subject of several studies by Cleasby (Cleasby et al. 1984; Cleasby et al. 1989; Cleasby et al. 1992). These studies have shown that the flocculation step generally improves filtrate turbidity before breakthrough and reduces headloss accumulation. However, breakthrough was observed at an earlier stage in the filtration cycle than for inline filtration, in which the flocculation step is omitted altogether.

Finally, a recent AWWARF study (Drewes et al. 2007) monitored the mean floc diameter (d_n) during bench- and pilot-scale flocculation assays using several instruments, including a Floc MonitorTM and a RoboJarTM for direct filtration assays. Filtered water turbidity was measured in parallel. The report concludes that d_n was a useful variable in optimizing filtrate turbidity when charge neutralization coagulation prevailed, a typical condition in direct filtration applications.

The primary objective of this study was to evaluate the relationship between general floc characteristics and the removal of particulate matter using direct filtration on granular media. In order to evaluate this relationship, two instruments were selected: the Photometric Dispersion Analyzer (PDA, manufactured by Rank Brothers Ltd.), which indirectly measures the degree of flocculation, and a second, the Dynamic Particle Analyzer, manufactured by Brightwell Technologies Inc. Before the relationship could be established, however, it was necessary to identify an indicator of flocculated water characteristics using the particle size distribution provided by the particle counter.

In addition, the experimental assays were designed to address the following questions:

- How does the PDA compare to the particle analyzer in analyzing flocculation?

- Is the traditional Gt concept useful in predicting filter performance, or does it only provide information on the degree of flocculation? More specifically, are the Gt trends and optimum range similar for floc size and filter performance?
- What are the impacts of different coagulants in terms of flocculation kinetics and floc characteristics?

In this study, a link is established between floc diameter and filtered water turbidity, but more work is required to determine the ideal floc size for particulate matter removal by direct granular filtration and its relationship to filter media configuration.

4.2. Materials and methods

4.2.1. Experimental design overview

The water selected for use in the experiments was drawn from the raw water intake of the Montreal Atwater treatment plant (Canada), the source for which is the St. Lawrence River. This source water has very low year-round turbidity (< 1 NTU), except for seasonal peaks (not exceeding 10 NTU). Raw water samples were collected from February to September 2007, and characterized for turbidity, particle counts and pH (see Table 4-1).

Table 4-1. Characteristics of raw water used in assays

Parameter	Maximum Value	Minimum Value	Average Value	Median Value
Turbidity, NTU	8.80	0.67	2.90	1.80
Particle count, $>2.25 \mu\text{m}$	60,779	5,435	24,013	20,584
pH	8.66	8.01	8.30	8.29

An assay consisted of performing a modified jar test procedure using a set of five independent variables:

- (i) Temperature (4 or 22°C)
- (ii) Mixing intensity ($G = 0$ or 100 s^{-1})
- (iii) Coagulant type (alum, ferric sulfate or PASS100)
- (iv) Coagulant dose (0.02, 0.05, or 0.08 mM/L Al or Fe)
- (v) Absence or presence of a cationic polymer (0 or 0.25 mg/L polyDADMAC)

This design yielded a total of 72 permutations tested in duplicate, for a combined total of 144 assays. Each assay began with 5 minutes of mixing at 100 s^{-1} (81 rpm at 22°C and 100 rpm at 4°C), and then, upon injection of the coagulant/flocculant, the suspension was rapid-mixed for 30 seconds at 300 rpm. This step was followed by 15 minutes of flocculation (in the case of $G = 100 \text{ s}^{-1}$), which was in turn followed by 15 minutes of settling in order to mimic the impact of the additional residence time above filters. In the case of $G = 0 \text{ s}^{-1}$, the rapid mixing was followed by 15 minutes of settling.

PASS100TM is a proprietary pre-hydrolyzed poly-aluminum silicate sulfate coagulant used to increase coagulation/flocculation kinetics in cold and/or low alkalinity conditions.

4.2.2. Characterization and filtration of flocculated waters

Fig. 4-1 summarizes the experimental setup. Flocculated waters were continuously pumped directly from the jar tester (a 2-L square beaker from Phipps & BirdTM, VI, USA) to the PDA and the Dynamic Particle Analyzer. For cold water assays, the beaker was submerged in a temperature-controlled water bath; this guaranteed a cold water temperature of $4^\circ\text{C} \pm 1^\circ\text{C}$. The warm water temperature was that of the laboratory, which is maintained at approximately $22^\circ\text{C} \pm 1^\circ\text{C}$. The water was transferred: (i) to the PDA using a 30-cm length of 3.0 mm-diameter transparent laboratory tubing at a rate of

21 mL/min (residence time in the tube was 6 s, adding 7 s^{-1} of mixing energy) fed from an entry port located on the front of the beaker; and (ii) to the particle counter using a 70-cm length of 0.8 mm-diameter tubing at a rate of 0.35 mL/min (residence time in the tube was 60 s, adding 1.3 s^{-1} of mixing energy) fed from a 1.0-mm diameter, 12.7 cm-long sampling needle positioned in the centre of the suspension (this needle added 75 seconds to the time required to reach the detection cell). In both cases, the peristaltic pumps used were located after the instrument to avoid potential floc disruption. The issue of floc breakage was assumed to be negligible, considering that the anticipated floc sizes (under $100 \mu\text{m}$) were much smaller than the tubing diameters (0.8-3.0 mm).

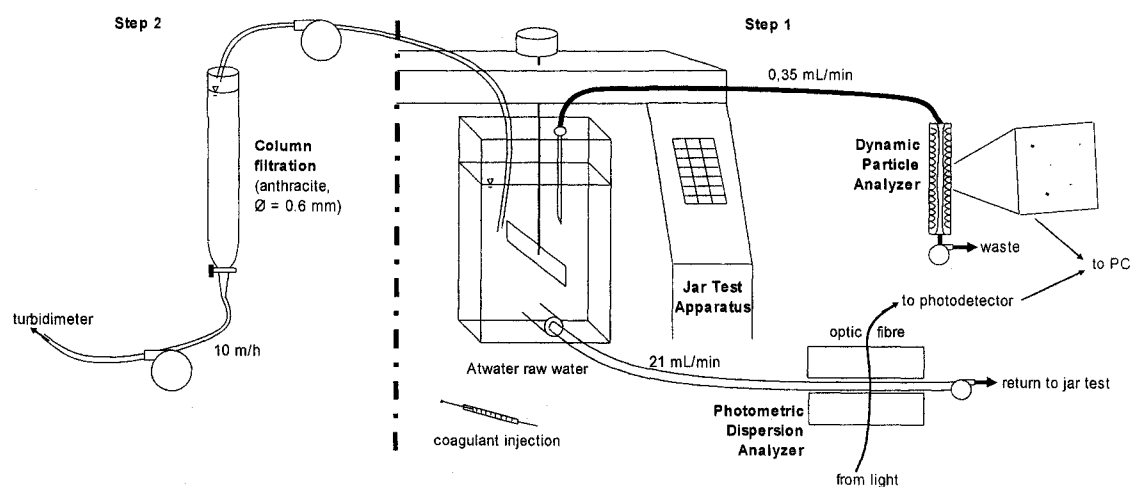


Figure 4-1. Experimental Setup

At the end of the settling period, the flocculated water was pumped to a 30 mm-diameter column filter filled with 300 mm of anthracite with an effective size (D_{10}) of 0.6 mm. The entire flocculated suspension (2 L) was pumped through the filter at a superficial velocity of 10 m/h. The turbidity of the filtered water was recorded using a turbidimeter (Hach 2100AN).

velocity of 10 m/h. The turbidity of the filtered water was recorded using a turbidimeter (Hach 2100AN).

Although the largest flocs were likely disrupted while being pumped to the filter, several initial verification tests proved that this did not affect the filtrate turbidity (results not shown), likely because they were broken into pieces which were relatively large.

The same anthracite was used for each filtration run. Between uses, it was transferred from the column into a beaker, where it was rinsed three times with ultra-pure water. Once clean, the anthracite was returned to the column by pouring it using a stream of ultra-pure water.

4.2.3. Analytical apparatus

4.2.3.1 Photometric Dispersion Analyser (PDA)

The operating concept of the PDA is based on a technique developed by Gregory and Nelson (1984). Fluctuations in the intensity of light transmitted through a suspension in a transparent tube are measured; small variations in intensity provide an indirect measurement of the degree of flocculation. Gregory (1985) demonstrated that the ratio of the root mean square voltage (V_{RMS}) to the mean transmitted light intensity of the fluctuating signal is a function of the square root of the particle concentration, and varies directly with the size of the particles in suspension. This ratio value is termed the FI, or Flocculation Index, and can be amplified for better detection by adjusting the “RMS gain” of the instrument; the maximum value (1000) was used for all tests. Additional information can be found in Gregory (1985) and Gregory (2004).

Because the initial FI of raw water was slightly different for each assay (Gregory and Carlson 2003 noted that it is system-specific), the FI graph was shifted to align all raw water FIs at zero in order to better compare flocculation periods. This was achieved by

subtracting the average FI value of raw water from every FI value measured for that water.

4.2.3.2 Micro-Flow Imaging™

The Dynamic Particle Analyzer (DPA4100 by Brightwell Technologies Inc.), the second instrument used in the assays, employs the Micro-Flow Imaging™ technique to count and characterize particles in a suspension. Three photos are taken per second of the suspension as it flows through a 1760 x 1400 x 400 μm detection cell. At a magnification of 5X, the lower and upper detection limits are 2.25 μm and 300 μm respectively. The images are analyzed by proprietary software, which provides the suspension's particle count per mL as a function of equivalent diameter: the surface area detected is reported as the diameter of a circle with an identical surface area. Note that colloidal particles (ranging in size from 1 nm to 1 μm according to Gregory 1989) are not detected by this instrument.

The particle size distribution provided by this equipment was used to calculate several indicators of floc size. For the purposes of this study, the number-averaged particle diameter d_n , the volume-averaged particle diameter d_v , and the surface-averaged particle diameter d_s were calculated. The d_n parameter is calculated by summing the product of each particle detected and its diameter, then dividing by the total number of particles (Eq. 1). The parameters d_v and d_s were calculated by (i) summing the total volume or surface of particles detected and normalizing them by the total number (n) of particles counted (Eqs. 2 and 3); and (ii) calculating the equivalent diameter of a sphere with such a volume (d_v) or surface area (d_s) (Eqs. 4 and 5).

$$\text{Equation 4-1} \quad d_n = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n d_i n_i$$

$$\text{Equation 4-2} \quad V_{ave} = \frac{1}{n} \cdot V_{tot} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{4}{3} \pi \left(\frac{d_i}{2} \right)^3$$

$$\text{Equation 4-3} \quad S_{ave} = \frac{1}{n} \cdot S_{tot} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n 4\pi \left(\frac{d_i}{2} \right)^2$$

$$\text{Equation 4-4} \quad d_v = \sqrt[3]{\frac{6V_{ave}}{\pi}}$$

$$\text{Equation 4-5} \quad d_s = \sqrt{\frac{S_{ave}}{\pi}}$$

where V_{ave} = averaged volume of flocs in suspension in $\mu\text{m}^3/\text{mL}$ of suspension; S_{ave} = averaged surface of flocs in suspension in $\mu\text{m}^2/\text{mL}$ of suspension; V_{tot} = total volume of flocs in $\mu\text{m}^3/\text{mL}$ of suspension; S_{tot} = total surface of flocs in $\mu\text{m}^2/\text{mL}$ of suspension; n = total number of particles per mL of suspension; d_i = diameter of the i^{th} particle in μm ; d_v = volume-averaged diameter of flocs in μm ; d_s = surface-averaged diameter of flocs in μm . The volume-averaged diameter d_v was chosen because of its proven usefulness in flocculated water characterization (Matsui and Tambo 1991), and because it gives more weight to large flocs. In addition, the critical coagulant concentration has been shown to be surface area-dependent (as quoted in Dentel and Gossett 1988).

The Dynamic Particle Analyzer requires approximately 5 minutes to analyze one mL of suspension; it was adjusted to provide an averaged particle analysis of one mL at a time, so that for each assay, one mL of raw water was analyzed, and then 1 mL of the suspension every 5 minutes over the 15 minute flocculation period. This approach allows a dynamic analysis of floc formation, while remaining sufficiently representative of the suspension.

4.3. Results and Discussion

4.3.1. Determination of the best floc characteristics indicator

The particle size distribution provided by the Dynamic Particle Analyzer was used to calculate many different indicators that could potentially reflect flocculation performance (rate of floc formation, floc size, etc.; see Table 4-2).

Table 4-2. Indicators of flocculation performance calculated using particle size distribution provided by the Dynamic Particle Analyzer

Indicator (Y)	Mathematical Expression	Adjusted R ² for model ¹
Surface-averaged particle diameter in flocculated water in μm (d_s)	$d_s = \sqrt{\frac{S_{ave}}{\pi}}$	0.84
Volume-averaged particle diameter in flocculated water in μm (d_v)	$d_v = \sqrt[3]{\frac{6V_{ave}}{\pi}}$	0.81
Log(total volume of particles in flocculated water, mL/mL)	$\log \left(V_{tot} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left[\frac{4}{3} \pi \left(\frac{d_i}{2} \right)^3 \right] \right)$	0.67
Log(relative increase of particle volume in flocculated water w/r to raw water)	$\log \left(\frac{V_{totfloc'd} - V_{totraw}}{V_{totraw}} \right)$	0.66
Number-averaged particle diameter in flocculated water in μm (d_n)	$d_n = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n d_i n_i$	0.55
Number of particles 2,25 μm < diameter < 5 μm in flocculated water	-	0.46
Maximum particle volume accumulation rate, (mL/mL)	Maximum of: $(V_{tot5min} - V_{totraw\ water})$ $(V_{tot10min} - V_{tot5min})$ $(V_{tot15min} - V_{tot10min})$	0.35

Indicator (Y)	Mathematical Expression	Adjusted R ² for model ¹
Total particle volume in flocculated water, mL/mL (V_{tot})	$V_{tot} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left[\frac{4}{3} \pi \left(\frac{d_i}{2} \right)^3 \right]$	0.33
Number of particles with diameter >10 μm in flocculated water, mL^{-1}	-	0.19
Turbidity of filtered water, NTU	-	0.66
Number of particles in filtered water, mL^{-1}	-	0.49
Turbidity removed, NTU	Turbidity of raw water – Turbidity of filtered water	0.00

¹: Each indicator was regressed against the following independent variables: Gt, temperature, coagulant dose, coagulant type, and polymer dose using Equation 4-6.

The relationship between these indicators and the five independent variables studied (coagulant, coagulant concentration, polymer concentration, mixing energy, temperature) was the subject of a statistical analysis (Statistica, StatSoft, 2006). The indicators are listed in decreasing order of adjusted R² value in Table 4-2 (see section 3.5 for a description of the statistical model used to predict them). From that preliminary analysis, it was concluded that the volume- and surface-averaged particle diameters had the highest adjusted R² values at 0.81 and 0.84 respectively, and are therefore the best indicators of flocculation based on the five variables and their first-order interactions. Because the volume-averaged diameter is the indicators most often used in the flocculation literature (Matsui and Tambo 1991, Wiesner et al. 1987), it will be used for the purposes of this study in spite of the fact that its R² value is slightly lower than that of the surface-averaged particle diameter.

4.3.2. Comparison of the flocculation index (FI) with the volume-averaged diameter (d_v)

Although Matsui and Tambo (1991) developed a formula to calculate average floc diameter in a flocculated monodisperse suspension using the RMS signal of the PDA, natural, low-turbidity waters require a more complex model. Fig. 4-2 presents the dynamic monitoring of the FI and d_v for assays at 21°C using ferric sulfate (0.02, 0.05, or 0.08 mM/L) for mixing conditions of $G = 100 \text{ s}^{-1}$ (Figs. 4-2a and 4-2b) and $G = 0 \text{ s}^{-1}$ (Figs. 4-2c and 4-2d).

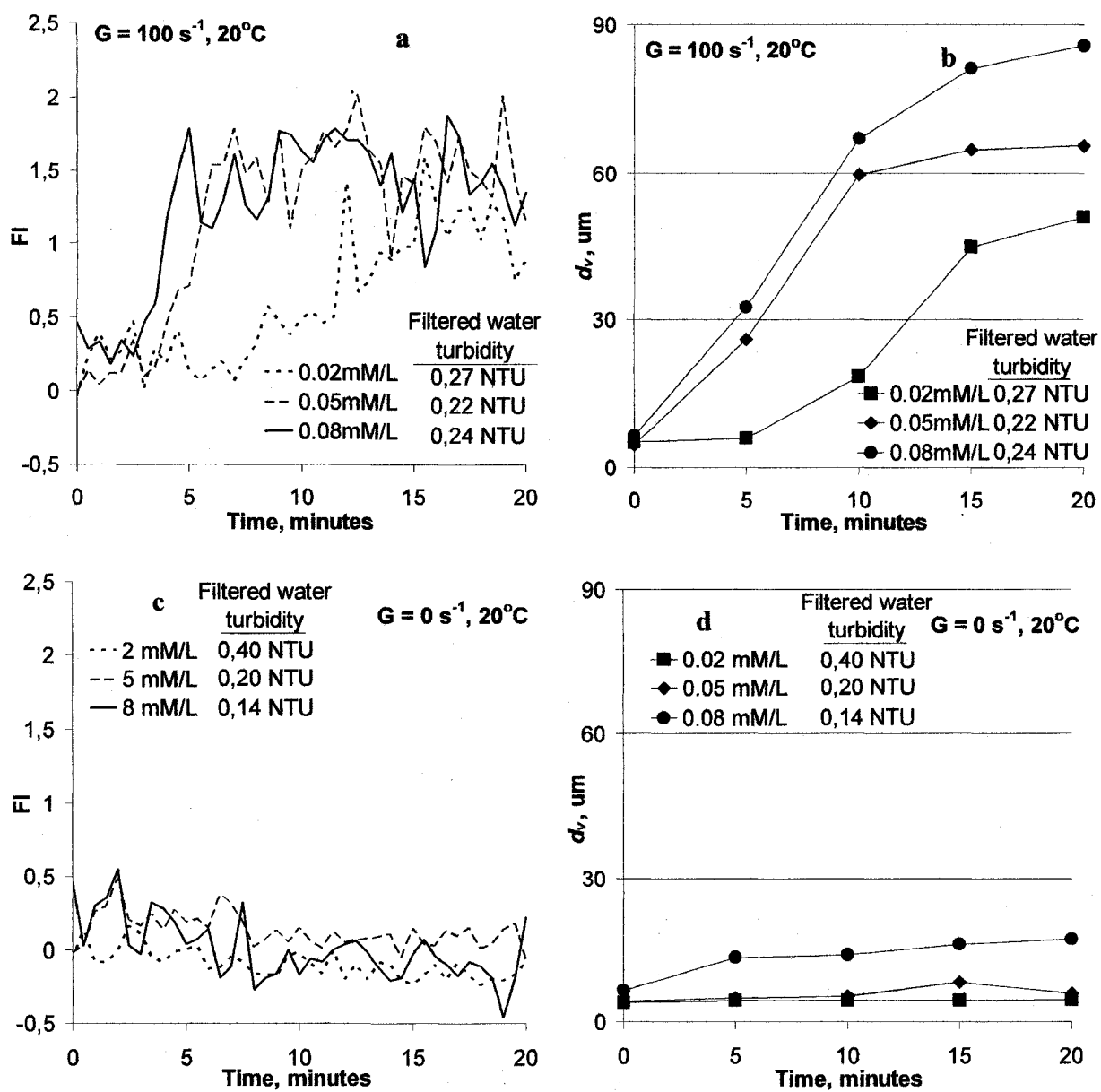


Figure 4-2. Effect of ferric sulfate concentration (mM Fe/L) and mixing energy (G in s^{-1}) at 21°C on the FI and the volume-averaged diameter (d_v)

For most assays, the value of d_v in raw water was between 3 and 7 μm . In warm water mixing conditions (Fig. 4-2a), this value increased to 40 – 90 μm , with the highest values observed for the highest coagulant dose. Increasing coagulant dose also had an impact on the floc formation rate, which was accelerated at higher coagulant doses. The FI demonstrates this same trend, but because of its online nature, one would expect it to more precisely identify the moment at which the flocculation rate is highest as opposed to the value of d_v derived from 5-minute time-averaged particle counts. However, qualitative online monitoring of flocs using the particle counter software output (real-time photos of the suspension in the cell) indicated floc growth before the FI did, taking into account the delay caused by the sampling needle and tube.

In contrast to the d_v values measured, the noise in the FI measurements makes it difficult to identify a clearly-delineated growth phase, or of a maximum value reached. There is a great amount of noise in the FI in this study because the gain was kept at a maximum in order to detect the different regions of the FI graph. This was necessary because of the low solids content of the flocculated water. For example, Fig. 4-2a indicates no floc growth beyond 5 minutes for the coagulant doses of 0.05 and 0.08 mM Fe/L, and a possible decrease beyond 12 minutes, while the d_v continued to increase even after the 15-minute flocculation period had ended.

In the absence of mixing (Figs. 4-2c and 4-2d), d_v remained below 5 μm for the lowest coagulant dose, grew slowly to 8 μm for the medium dose, and increased steadily up to 17 μm after 15 minutes of settling for the highest dosage. Under these conditions, the FI slowly decreased from its “zero” (raw water) level during the 15 minutes of settling. No differences could be distinguished among the three coagulant dosages.

In summary, the use of d_v allows a clear distinction to be made between flocculation conditions, allowing easy identification of the conditions that bring about the best floc growth. This parameter was even capable of monitoring floc growth under minimal flocculation conditions (Figs. 4-2c and 4-2d).

Some important limitations associated with the Dynamic Particle Analyzer may influence the value of d_v , however, and should be considered when using these data. First, flocs larger than the sampling needle (1000 μm) and tube (800 μm) were not counted, or may have been broken as they passed through the apparatus. However, this is not expected to have occurred under the conditions tested, although it would be significant under sweep coagulation conditions. Second, actual floc diameter was overestimated because floc porosity increases with diameter (and the Dynamic Particle Analyzer usually interprets the spaces within flocs as solid); this causes an overestimation of total floc volume. The cluster-cluster model discussed in Huang (1994), which proposes that microflocs formed in the first moments of flocculation form the building units of flocs, explains why big flocs are more porous than small ones: when irregular aggregates become attached to one another, the resulting aggregate will be more porous than its components. A sphere is also a poor approximation for irregular shapes. Next, the Dynamic Particle Analyzer “counted” some flocs with diameters between 1 and 2.25 μm , even though its nominal detection limit is 2.25 μm ; this means that not all particles in that range are counted (ie. it only succeeds in detecting some particles in the 1-2.25 μm range, but not all, because it was not adjusted to do so). Those detected were nevertheless used in calculating d_v because they have a high surface-to-volume ratio and are pivotal in flocculation mechanisms. These limitations mean that the study provides comparative results for d_v , and not absolute values. This method remains useful, as explained by Han et al. (2002), because the comparison of relative particle counts provides sufficient information to determine optimum flocculation conditions.

Regarding the PDA, Gregory and Hiller (1995, as quoted in Gregory 1999) found that the initial FI value, the steady-state value and the inflection point in the FI vs. time curve (slope and time) that occurs at the maximum rate of floc size growth were characteristic parameters of FI curves. This information has proved useful for many high-turbidity synthetic waters (Matsui and Tambo 1991, Hopkins and Ducoste 2003, Gregory 2004,

Rawlings et al. 2006), but the results of the present study indicate that for the low-turbidity waters used, the FI curves were nearly impossible to interpret in the useful way described in the studies cited above. The FIs in different studies are not comparable because they are system- and gain-specific.

In addition, flocculation with polyDADMAC only at a concentration of 2 mg/L was not detected by the PDA at all (data not shown). Parallel testing with the Dynamic Particle Analyzer was not attempted at such a high polymer dose because the nature of polymer flocs causes them to irreversibly clog the detection cell, yet the turbidity after filtration was low enough to prove that some flocculation had occurred. It is hypothesized that the flocs formed by the polymer in the low-turbidity water used exhibit optical characteristics unfavorable to their detection by the PDA. As is the case for a turbidimeter, the PDA relies on scattering to monitor the FI. As Huber and Frost (1998) point out, if the refractive index of the particles in suspension is identical or similar to that of the liquid, then there is little light scattering and the turbidity may be low in spite of a possibly high particle concentration. Bacteria, for example, with their high water content, are poorly detected by turbidimeter, and it is assumed that such a phenomenon occurred with the polyDADMAC polymer flocs.

4.3.3. Comparison of Coagulants

Fig. 4-3 presents the results of FI and d_v dynamic monitoring for the three coagulants tested at: (i) 4°C; (ii) a concentration of 0.05 mM/L (Fe or Al); (iii) with and without polymer added; and (iv) for mixing conditions of $G = 100 \text{ s}^{-1}$ (Figs. 4-3a and 4-3b) or $G = 0 \text{ s}^{-1}$ (Figs. 4-3c and 4-3d). In the presence of mixing, the alum FI is the same with or without polymer, with maximum floc growth rate observed between 10 and 15 minutes and a maximum FI value of around 1.1. Adding polymer had a slight effect on flocculation with ferric sulfate (without which no flocculation was detected at all). The most marked difference in flocculation detected by the FI was for PASS100 flocs: with

no polymer, the FI seemed to start increasing near 13 minutes, and remained very low at approximately 0.1. With polymer added, the PASS100 flocs reached their highest growth rate at between 7 and 8 minutes, and reached a steady state at around 1.4. For all three coagulants, the FI during the floc growth phase followed the same trends as the d_v for the same period. However, the d_v values once again show a clearer distinction between flocculated waters; for example, the d_v values at 15 minutes of flocculation were 18 and 20 μm for alum and alum plus polymer respectively, but 38 μm for PASS100 plus polymer, which is a very significant difference as compared to the FI values (1.2, 1.1 and 1.3 respectively). The final d_v value was also indicative of kinetics, with larger values associated with a faster flocculation rate. For zero mixing energy conditions (Figs. 4-3c and 4-3d), both indicators remained at very low values.

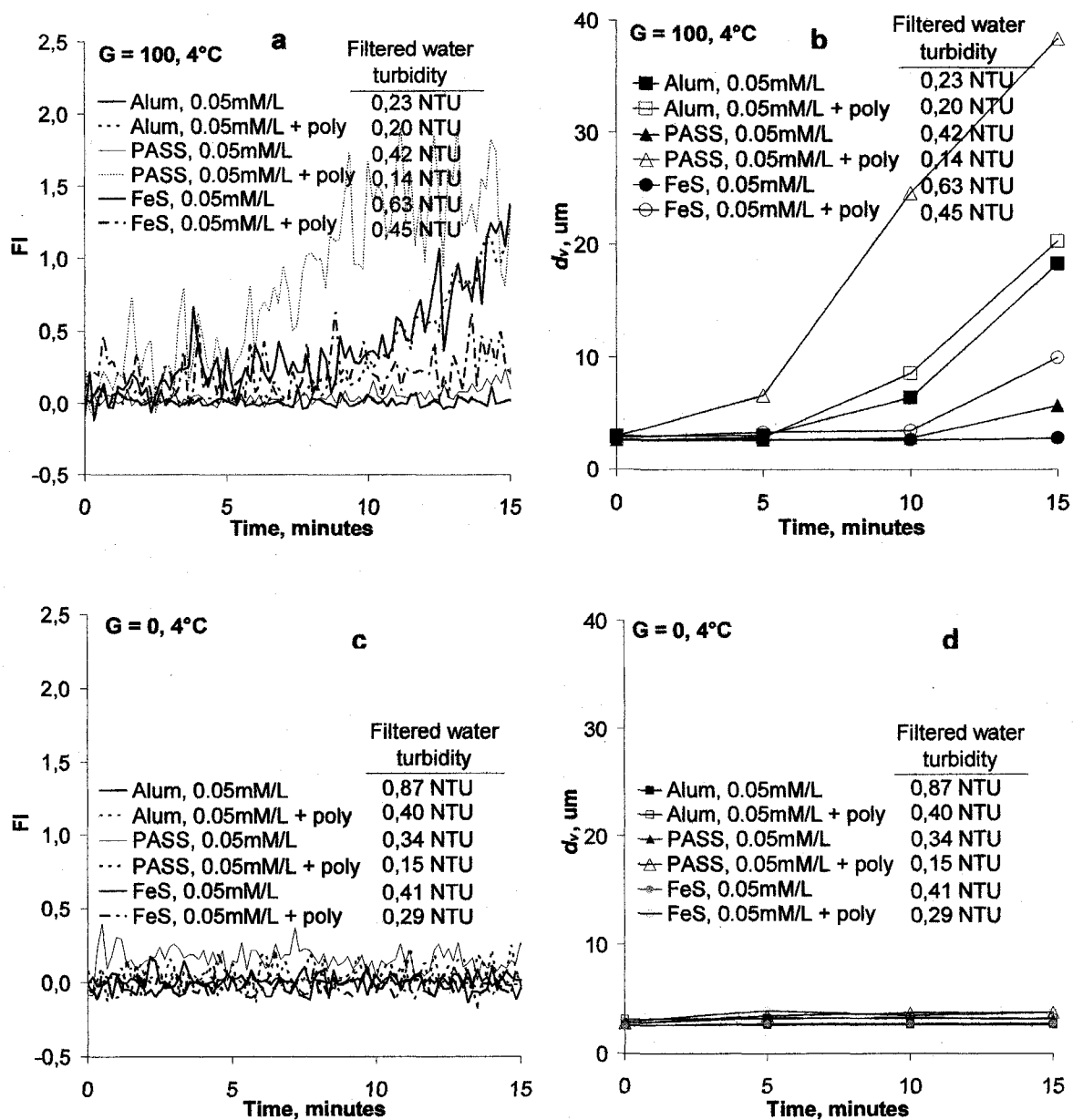


Figure 4-3. Effect of coagulant type and G at 4°C and 5 mM/L (Al or Fe) on the flocculation index and the volume-averaged diameter (d_v)

Fig. 4-3 also indicates the filtered water turbidity obtained. Trends in the turbidity of the filtered water closely match those followed by the FI and d_v . For example, for tests at $G = 100 \text{ s}^{-1}$, PASS100 plus polymer had the highest FI and d_v and the lowest filtered turbidity, followed, in order, by alum plus polymer, alum, ferric sulfate plus polymer, PASS100, and ferric sulfate, which had the lowest FI and d_v and the highest filtered turbidity. The ability of d_v to predict filtered water turbidity will be further discussed and analyzed in section 3.5.

4.3.4. Usefulness of the Camp Number

The Camp number (or Gt) was developed based on Camp and Stein's (1943) work on velocity gradients, and is still used extensively to design flocculators in water treatment applications. A separate series of assays was conducted to verify whether or not the FI and d_v track Gt in similar ways. G values from 0 to 150 s^{-1} were selected, in increments of 25 s^{-1} . Raw water from the annual spring runoff turbidity peak (10 NTU) was used for these assays to improve PDA performance: a higher turbidity indicates an increased particle concentration, encouraging the formation of larger flocs during flocculation. These assays were conducted at low temperature (4°C) in order to test adverse flocculation conditions. The effect of flocculation on the FI and d_v is presented in Fig 4-4 as a function of Gt rather than flocculation time. Both flocculation indicators provided similar information, although the FI appeared to plateau more rapidly than d_v . Fig. 4-4 also demonstrates that a minimum G value of about 50 s^{-1} was required to detect flocculation under these conditions (5 mM/L of alum at 4°C); the minimum G value for ferric sulfate was 25 s^{-1} , and for PASS100, 0 s^{-1} (data not shown). Results obtained at low G values confirm that a minimum amount of energy is necessary for the Gt concept to apply. This echoes the findings of Han and Lawler (1992), who postulated that flocculation units based on a G value just high enough to keep the particles in suspension would be sufficient to allow the more significant Brownian motion to

operate; a too-low particle concentration caused by low energy input (particles are not kept in suspension) does not allow sufficient particle collisions.

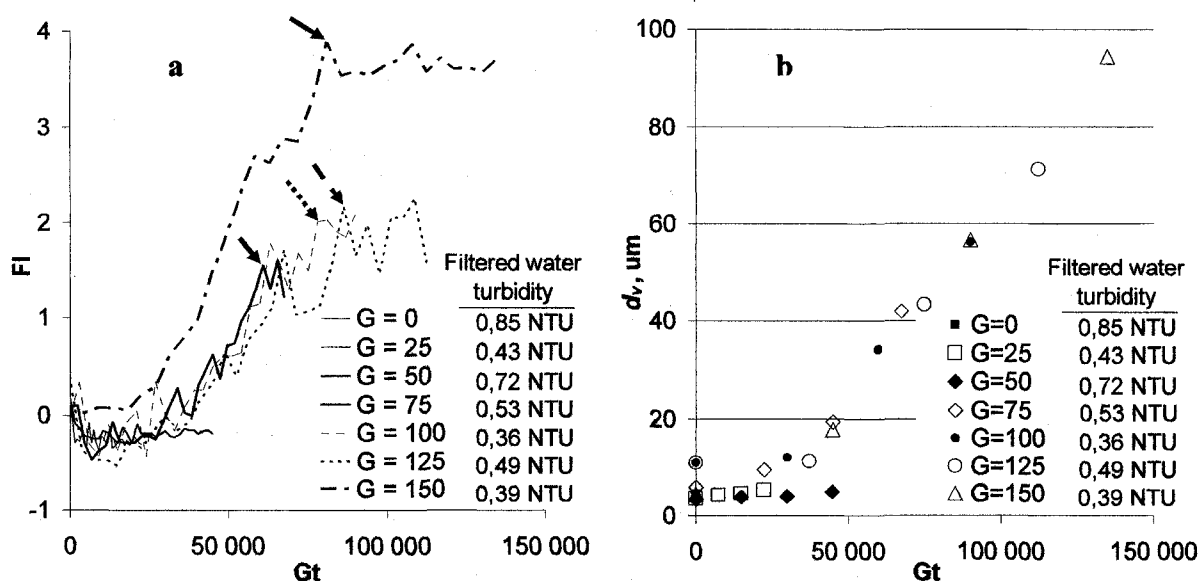


Figure 4-4. Effect of 5 mM/L alum (as Al) and Gt at 4°C on the flocculation index and the volume-averaged diameter (d_v)

It is of note that for increasing G levels past a certain threshold value, d_v and the steady-state value reached by the FI increase proportionally (as do d_s and d_n). This is surprising, since increased shear is expected to erode flocs into smaller, denser structures, even as floc growth increases; Hopkins and Ducoste (2003) showed that the FI decreases for increasing G (from 40 to 90 s^{-1}). The phenomenon can be explained in this case by the low turbidity of the raw water and the resulting smaller flocs. These flocs are more resistant to increased shear at higher G 's than larger flocs formed in turbid water with higher coagulant concentrations (1 mM/L), since as stated previously, larger flocs are less compact and therefore less resistant to shearing forces.

For both flocculation indicators, the Camp number was generally a good predictor of the flocculation process, as long as the G value was above a certain threshold (as discussed above). For G values above the thresholds mentioned above, only the result at $G = 150 \text{ s}^{-1}$ was not coherent with the other FI values. It is suggested that this result might be an indication of different behavior beyond a certain G level, since all three coagulants showed this effect at $G = 150 \text{ s}^{-1}$ (data not shown).

Interestingly, for elevated G values, a “breakoff point”, or reduction in the steady-state value reached in the FI curves occurred before mixing was stopped (see arrows on $G=75$ to 150 s^{-1} curves in Fig. 4-4a). The same phenomenon was also detected for ferric sulfate and PASS100 (data not shown). As mentioned previously, this was likely caused by erosion of primary particles from the floc structure due to prolonged shearing as noted by Hopkins and Ducoste (2003). They also proposed that the resulting floc structure would be more homogeneous and dense at higher G values.

Conversely, d_v continued to increase past this point because it is calculated using an equation (Eq. 3), which is more sensitive to floc diameter than to the number of flocs. This is in contrast to the floc behavior detected by the PDA, the FI of which increases with floc size and volume fraction (Gregory and Chung 1995). The FI is not affected appreciably by the coalescence of small particles into existing aggregates, since although the minimum detectable particle size is about $0.5 \text{ }\mu\text{m}$, larger particles are responsible for the dominant contribution to the RMS and ratio values (Rank Brothers 2000).

In summary, as discussed in section 3.1, the Dynamic Particle Analyzer provided, for the test conditions studied, more complete information regarding the flocculation of small particles, an important aspect of turbidity removal in granular filtration. A corollary of this is that the steady-state behavior of the FI as observed in the PDA studies cited above only provides information regarding the largest flocs, which, as will be demonstrated in the following section, is not the most important factor in turbidity removal using direct filtration.

4.3.5. Influence of flocculation conditions on turbidity removal and d_v

The turbidity of a suspension is not well predicted by particle counts or particle characterization (Gregory 1998) and vice-versa, likely because particle counters do not detect the smaller particles that are largely responsible for turbidity (maximum specific turbidity is found for a particle diameter of approximately $0.2\ \mu\text{m}$ according to Gregory 1998).

A plot of filtered water turbidity as a function of floc d_v in a suspension (see Fig. 4-5) demonstrates the lack of clear relationship between the two. Additional variables must therefore be introduced in order to use floc characteristics to predict filtered water turbidity. Accordingly, a general linear model was developed to discern the relative impact of several flocculation conditions (Gt, coagulant type and dosage, use of polymer) and water characteristics (water temperature, raw water turbidity) on the performance of a lab-scale granular filter, as measured by the filtered water turbidity.

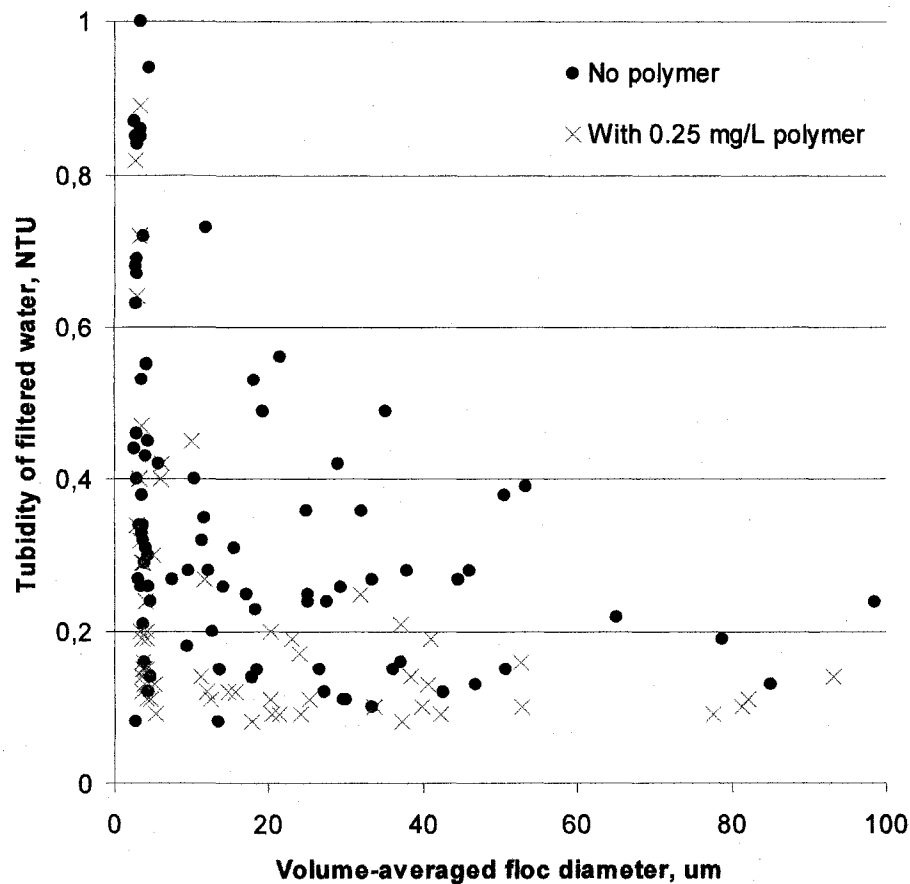


Figure 4-5. Diameter of flocs and resulting turbidity after granular media filtration

In parallel, an identical model was developed for d_v in order to assess whether or not the most influential independent variables were identical for both d_v and turbidity (d_v was not found to be significant when it was included in the turbidity model described above). The general model equation is indicated in Equation 6.

$$\text{Equation 4-6} \quad Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^6 \beta_i X_i + \sum_{j=1}^{21} \alpha_j X_i X_j + \text{error}$$

where Y = variable modeled (turbidity or d_v); β, α = system-dependent standardized coefficients calculated by Statistica based on experimental results; and $X_{i,j}$ = the five control variables (temperature, Gt, coagulant type, coagulant dose, polymer dose) and

raw water turbidity. The expression X_iX_j represents the first-order interactions between the control variables.

As not every first-order interaction was significant, only the significant ones (at $p > 0.05$) are presented in Table 4-3.

Table 4-3. Sensitivity analysis: Percentages of explanation of the selected control variables on the output variables (turbidity of filtered water and volume-averaged floc diameter d_v)

Control Variables	Turbidity, NTU		d_v , μm
	with polymer	without polymer	
Coagulant concentration	18%	20%	11%
Gt	0% ¹	14%	28%
Temperature	12%	8%	20%
Coagulant	0% ¹	8%	1.3%
Temperature*Gt	0% ¹	0% ¹	11%
Coagulant concentration*Temperature	12%	0% ¹	0.8%
Coagulant concentration*Gt	0% ¹	0% ¹	6%
Coagulant*Temperature	16%	5%	1.4%
Turbidity of raw water	12%	0% ¹	0.4%
Other interactions	0% ¹	0% ¹	1.1%
Experimental error	30%	45%	19%
Total	100%	100%	100%

¹ Contribution not significant ($p < 0.05$)

For each variable (and associated interaction(s)), the percentage of the variability it explained was calculated using the appropriate standardized β and α coefficients, as shown in Equation 7.

Equation 4-7

$$X_a (\%) = 100 \times \frac{\beta_j^2 \text{ or } \alpha_j^2}{\sum_{i=1}^6 \beta_i^2 + \sum_{j=1}^{21} \alpha_j^2}$$

A preliminary sensitivity analysis of the variables used in the statistical models indicated that Gt had the most significant effect on d_v (accounting for 31% of variance), while polymer concentration had the most significant effect on turbidity (accounting for 14% of its variance), but only a negligible effect (0.3% of variance) on d_v . Based on these results, three distinct statistical models were developed (Table 4-3): (i) d_v (all results); (ii) filtered water turbidity (results for polymer = 0 mg/L); and (iii) filtered water turbidity (results for polymer = 0.25 mg/L). Breaking down the sensitivity analysis into these three blocks shows that the turbidity of filtered water flocculated without the aid of polymer is also very sensitive to Gt, with 14% of its variance explained by Gt. However, turbidity of filtered water for assays flocculated using coagulant plus polymer was not at all affected by Gt, though it was affected by raw water turbidity, which was not the case for the other two models. Finally, the combined value of the effect of the two next most important variables, coagulant concentration and water temperature, is nearly identical in all three models (approximately 30%).

Interestingly, adding polymer seems to cancel out the effect on filtered water turbidity of increasing Gt from 0 to 90,000 s^{-1} . Although polyDADMAC will act as a coagulant by itself and participate in charge neutralization, this difference in the effect of polymer addition is, in our view, most likely attributable to the ability of the polymer to affect floc characteristics other than size. Floc strength is important in direct filtration, where all flocs formed must be retained in the filter and are submitted to increasing shear throughout the filtration cycle.

In the absence of polymer, the importance of Gt in predicting floc size is probably explained by the increased particle-particle interactions caused by the increased energy input. It is also important to point out that the small floc size observed in flocculated

waters during the assays probably limited the impact of increased G values on floc erosion. As discussed earlier, Hopkins and Ducoste (2003) showed that higher G values reduced the value of FI for water with a kaolin clay concentration of 50-100 mg/L (turbidity over 75 NTU) and alum doses of 1.03-1.09 mM/L. More variability in filtered water turbidity was also observed at higher G values (see section 3.4), a situation probably reflecting the breakup of larger flocs which can cause turbidity breakthrough (Rawlings et al. 2006).

Fig. 4-6 presents the effect of increasing Gt on d_v and turbidity removal (with and without polymer addition) for each coagulant. It should be noted that because the flocculated water was filtered only at the end of each jar test, turbidity values are available only for $Gt = 0$ and 90,000 (15 minutes multiplied by 100 s^{-1}). The d_v results (Figs. 4-6a and 4-6b) form an S-shaped curve, with data for alum and ferric sulfate in cold water indicating that either more mixing energy or time would allow their maximum floc diameter to be reached. In the case of turbidity, without the use of polymer (Figs. 4-6c and 4-6d), increased Gt reduced it for alum and ferric sulfate, but PASS100 was not affected. With polymer added (Figs. 4-6e and 4-6f), no significant impact of increasing Gt was noted, except for ferric sulfate in cold water, which produced slightly lower turbidity at $Gt = 90,000$. Therefore, increasing d_v leads to lower filtered water turbidity, but only if polymer is not used.

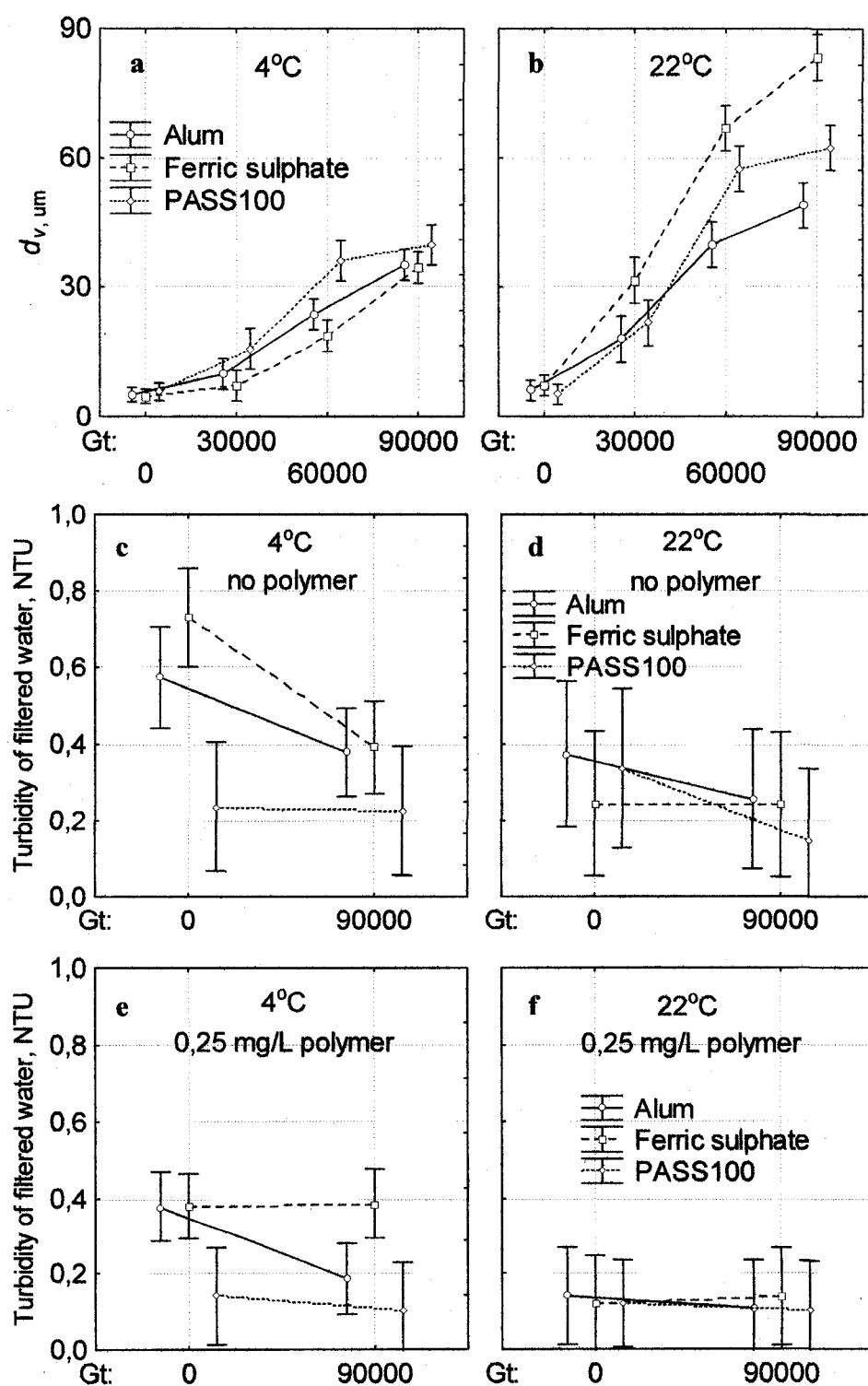


Figure 4-6. Effect of coagulant and temperature on the d_v (a+b) and filtered water turbidity without polymer (c+d) and with polymer added (e+f) (all conditions combined)

Fig. 4-7 confirms that the addition of 0.25 mg/L polymer improves filtration performance, especially at low coagulant concentrations (45% improvement in turbidity removal over no polymer for 0.02 mM/L vs. a 20% improvement at 0.08 mM/L). Increasing coagulant concentration from 0.02 to 0.08 mM/L also improved filtration performance. Although it did increase floc size (d_v), the effect was more pronounced for filtered water turbidity.

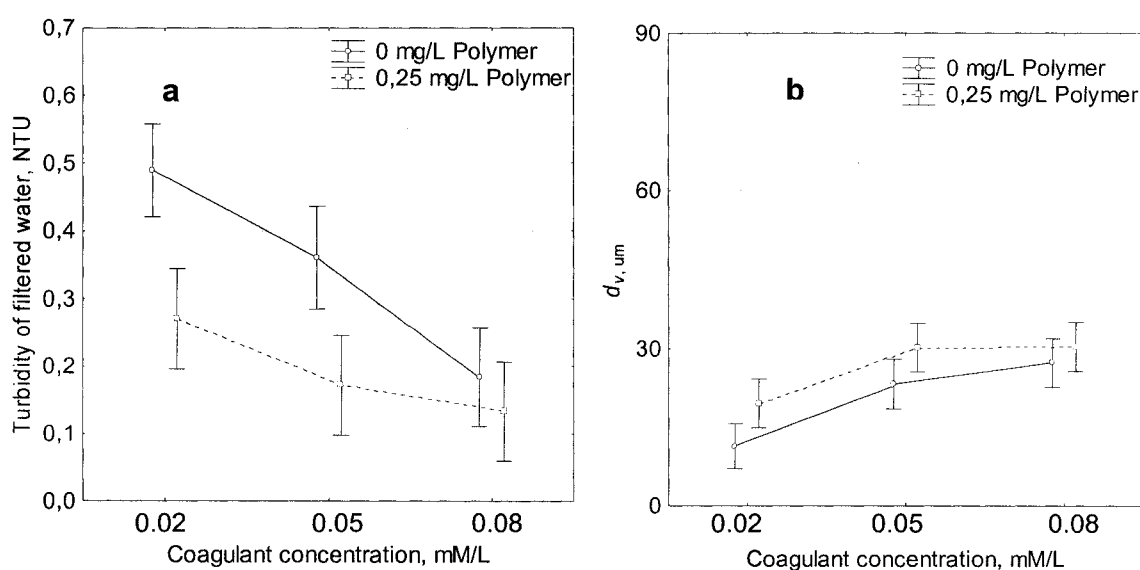


Figure 4-7. Effect of polymer on the filtered water turbidity and volume-averaged diameter (d_v) (all assay conditions combined)

As expected, PASS100 performs the best of any of the three coagulants in cold water (Figs. 4-6a, 4-6c and 4-6e), both in terms of floc diameter and filtered water turbidity. In warm water, results are similar for all three, except for the larger average floc diameter for ferric sulfate, which did not improve its ability to produce water with low turbidity. PASS100 produces water with low turbidity in spite of the smaller flocs it produces in warm water. These phenomena indicate that no factor responsible for

turbidity removal was detected during the assays. It would be useful to measure the evolution of colloidal particle concentration in the suspensions to determine how their evolution relates to the low turbidity in the filtered water, as it is clearly not the largest flocs that provide the lowest filtered water turbidity.

Flocculation occurs largely via two mechanisms: particle transport and particle attachment. Of the parameters controllable in treatment and evaluated here, the mixing energy G and its duration t affect particle transport, leaving attachment to coagulant choice, coagulant concentration, and polymer concentration. Water temperature, via its effect on viscosity, affects both (Gregory 1989), but is not controllable in practice. PolyDADMAC is known to act as a primary coagulant (Yeh and Ghosh 1981), but its impact on filtration is probably not just the result of an improved particle destabilization, but also improved particle bridging. Further, Graham (1986) showed that filter pore collision efficiency factors are high in direct filtration when a cationic polymer is used (i.e. the same conditions as used in this study), indicating continued flocculation within the filter. The key to turbidity removal via direct granular filtration lies more in bringing all particulate matter into a floc with a diameter just above a certain threshold diameter ("pin floc") than in growing the existing flocs to large sizes. This threshold diameter is necessarily a function of the configuration of the granular media (Tchio et al. 2003), which will determine by what mechanism flocs are removed. For ratios of particle diameter to median grain diameter over approximately 0.1, "straining" will likely occur (this increases filter head loss rate, which reduces filter cycle duration), but otherwise, particle attachment is a more important factor than straining (Herzig et al., 1970 and Sakthivadivel 1966 and 1969 as quoted in Tufenkji 2006). Further testing is required to identify the range of such an optimum particle diameter and its relationship to filter media configuration. The fact that the value of Gt (and therefore d_v) is only a significant predictor of filtered water turbidity in the absence of polyDADMAC suggests that additional floc characteristics should be sought in order to adequately predict turbidity removal under these treatment conditions. It would also be useful to test G 's between 0

and 100 s^{-1} in order to gain a better understanding of the relationship between Gt, floc diameter, and the resulting turbidity for different filter grain diameters. Finally, the validity of the results of these tests was tested at pilot scale to verify their usefulness for application in treatment plants; the results of this study will be the subject of a future publication.

4.4. Conclusions

The objective of this study was to evaluate the relationship between floc characteristics (diameter, volume, formation rate) and the removal of turbidity using direct filtration. Of the two instruments selected to analyze flocculation, the Dynamic Particle Analyzer was shown to be the more sensitive, detecting small changes in floc growth kinetics and even floc growth under low flocculation conditions that remained undetected or underdetected by the Photometric Dispersion Analyzer.

The particle size distribution provided by the Dynamic Particle Analyzer was used to calculate the volume-averaged floc diameter d_v in the raw and flocculated water for each assay. The value of d_v was predicted well ($R^2 = 0.81$) by a general linear regression model with first-order interactions based on flocculation conditions (Gt, T, coagulant dose and type).

Floc diameter as a function of Gt values behaved according to an S-shaped curve; filtered-water turbidity was reduced with increasing Gt, but only when polymer was not used. Ferric sulfate produced the largest flocs in warm water, and PASS100 the largest in cold water. Although the largest floc d_v was generally associated with the lowest turbidity, this was not always the case. The addition of polymer probably increased floc strength (but not size) and therefore reduced turbidity in filtered water, and did so independently of the G value applied.

Further investigation is required to identify the value of the optimum diameter and its relationship to filter media configuration.

4.5. Acknowledgments

All chemicals were kindly provided by Kemira. Many thanks to the wonderful people at the NSERC Industrial Chair in Drinking Water of the École Polytechnique de Montréal, who funded this study. The Chair is funded jointly by the City of Montreal, John-Meunier Inc., the City of Laval, and the Natural Science and Engineering Research Council of Canada.

4.6. References

Ammary, B. Y. and J. L. Cleasby (2004). "Effect of addition sequence on dual-coagulant performance." Journal / American Water Works Association **96**(2): 90-101.

AWWA/ASCE (2005). Water Treatment Plant Design, McGraw-Hill Professional.

Bernhardt, H. and H. Schell (1993). "Effects of energy input during orthokinetic aggregation on the filterability of generated flocs." Water Science and Technology **27**(10): 35-65.

Camp, T. R. and P. C. Stein (1943). "Velocity gradients and internal work in fluid motion." Boston Society of Civil Engineers -- Journal **30**(4): 219-237.

Cleasby, J. L., D. J. Hilmoe, et al. (1984). "Slow sand and direct in-line filtration of a surface water." Journal of the American Water Works Association **76**(12): 44-55.

Cleasby, J. L., A. H. Dharmarajah, et al. (1989). Design and Operation Guidelines for Optimization of the High-rate Filtration Process: Plant Survey Results. AWWARF.

Cleasby, J. L., G. L. Sindt, et al. (1992). Design and Operation Guidelines for Optimization of the High-rate Filtration Process: Plant Demonstration Studies. AWWARF.

Dentel, S. K. and J. M. Gossett (1988). "Mechanisms of Coagulation with Aluminum Salts." Journal of the American Water Works Association **80**(4): 187-198.

Drewes, J. E., T. Ingels, et al. (2007). Optimizing Filtration Processes through Online Floc Particle Characterization. AWWARF.

- Ducoste, J. J. and M. M. Clark (1998). "Influence of tank size and impeller geometry on turbulent flocculation: I. Experimental." Environmental Engineering Science **15**(3): 215-224.
- Graham, N. J. D. (1986). "Orthokinetic Flocculation in Rapid Filtration." Water Research **20**(6): 715-724.
- Gregory, J. and D. W. Nelson (1984). A new optical method for flocculation monitoring. Solid-Liquid Separation. J. Gregory. Chichester, UK, Ellis Horwood: 172-182.
- Gregory, J. (1985). "Turbidity Fluctuations in Flowing Suspensions." Journal of Colloid and Interface Science **105**(2): 357-371.
- Gregory, J. (1989). "Fundamentals of Flocculation." CRC Critical Reviews in Environmental Control CCECAU **19**(3): 185-230.
- Gregory, J. and H. Chung (1995). "Continuous monitoring of floc properties in stirred suspensions " Aqua - Journal of Water Supply: Research and Technology **44**(3): 125-131.
- Gregory, J. (1998). "Turbidity and beyond." Filtration and Separation **35**(1): 63-67.
- Gregory, J. (1999). "Particle monitoring techniques for water treatment applications." Journal of Environmental Sciences (China) English Ed **11**(3): 328-333.
- Gregory, D. and K. Carlson (2003). "Relationship of pH and floc formation kinetics to granular media filtration performance." Environmental Science and Technology **37**(7): 1398-1403.
- Gregory, J. (2004). "Monitoring floc formation and breakage." Water Science and Technology **50**(12): 163-170.
- Han, M. and D. F. Lawler (1992). "(Relative) insignificance of G in flocculation." Journal of the American Water Works Association **84**(10): 79-91.
- Han, M. Y., J. S. Shim, et al. (2002). "Diagnosing and optimizing water treatment processes by using particle counter: A case study in Korea." Water Science and Technology **45**(4-5): 511-518.
- Han, M., T.-I. Kim, et al. (2006). "Application of image analysis to evaluate the flocculation process." Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA **55**(7-8): 453-459.

Hopkins, D. C. and J. J. Ducoste (2003). "Characterizing flocculation under heterogeneous turbulence." Journal of Colloid and Interface Science **264**(1): 184-194.

Huang, H. (1994). "Fractal properties of flocs formed by fluid shear and differential settling." Physics of Fluids **6**(10): 3229.

Huber, E. and M. Frost (1998). "Light scattering by small particles." Aqua (Oxford) **47**(2): 87-94.

Jin, P. K., X. C. Wang, et al. (2007). "Evaluation of floc strength by morphological analysis and PDA online monitoring." Water Science and Technology **56**(10): 117-124.

Kau, S. M. and D. F. Lawler (1995). "Dynamics of deep-bed filtration: Velocity, depth, and media." Journal of Environmental Engineering **121**(12): 850-859.

Matsui, Y. and N. Tambo (1991). "Online floc size evaluation by photometric dispersion analyzer." Water Supply **9**(1): 71-78.

Photometric Dispersion Analyser PDA2000 Operating Manual, Rank Brothers Ltd. (2002).

Rawlings, M. M., C. S. B. Fitzpatrick, et al. (2006). "The effect of polymeric flocculants on floc strength and filter performance." Water Science and Technology **53**(7): 77-85.

Shin, J. Y. and C. R. O'Mella (2006). "Pretreatment chemistry for dual media filtration: Model simulations and experimental studies." Water Science and Technology **53**(7): 167-175.

Tambo, N. and Y. Watanabe (1979). "Physical Characteristics of Flocs - 1. The Floc Density Function and Aluminium Floc." Water Research **13**(5): 409-419.

Tchio, M., B. Koudjonou, et al. (2003). "A practical guide for determining appropriate chemical dosages for direct filtration." Canadian Journal of Civil Engineering **30**(4): 754-757.

Tufenkji, N., D. R. Dixon, et al. (2006). "Multi-scale Cryptosporidium/sand interactions in water treatment." Water Research **40**(18): 3315-3331.

Wiesner, M. R., C. R. O'Melia, et al. (1987). "Optimal Water Treatment Plant Design." Journal of Environmental Engineering **113**(3): 567-584.

Yeh, H.-H. and M. M. Ghosh (1981). "Selecting Polymers for Direct Filtration." Journal of the American Water Works Association **73**(4): 211-218.

5. CHAPITRE 5 : MISE À L'ÉCHELLE DES ESSAIS DE FILTRATION DIRECTE DANS UN PILOTE SEMI-INDUSTRIEL

5.1. Introduction

Les essais entrepris dans le cadre de l'étude en laboratoire présentée au Chapitre 4 ont démontré que le concept G_t prédit bien la croissance des floccs, mais qu'il n'est pas fiable pour prédire l'enlèvement de la turbidité lorsqu'un polymère de type polyDADMAC est utilisé en combinaison avec un coagulant inorganique. De plus, bien qu'un diamètre de floccs élevé prédise généralement une plus basse turbidité à l'eau filtrée, il semble y avoir une taille optimale à viser pour minimiser cette turbidité. L'hypothèse est avancée que cette taille soit une fonction de la granulométrie du filtre avec les milieux grossiers nécessitant des plus gros floccs. Comme les essais antérieurs ont tous été faits à petite échelle (jar test), il s'avère nécessaire de vérifier si les tendances observées en laboratoire se reproduisent quand les essais sont répétés sous les mêmes conditions dans un pilote semi-industriel.

Les conditions hydrodynamiques dans un jar test (un réacteur en cuvette) sont différentes de celles d'un flocculateur à débit continu. En modélisant un flocculateur en continu comme une série de réacteurs parfaitement mélangés, il est cependant possible de comparer les résultats à celui dans un jar test. Une étude de traçage est cependant nécessaire afin de fournir les informations hydrodynamiques requises pour déduire ce modèle.

Tel que décrit au chapitre 2 (Revue de littérature), la grande majorité des modèles de floculation originent des travaux de Smoluchowski (1917). Ces modèles demeurent par contre difficiles à utiliser en pratique, compte tenu qu'ils nécessitent des paramètres difficilement mesurables. Pour cette raison, les modèles empiriques sont les plus couramment utilisés. Dans le cadre de cette étude, un nouveau modèle empirique de floculation sera proposé pour prendre en compte les particularités d'un système de filtration directe.

5.2. Matériel et méthodes

Une unité mobile de type pilote semi-industriel (65 m³/d) a été utilisée en janvier et février 2008 pour reproduire les mêmes conditions de traitement utilisées à l'échelle laboratoire (voir chapitre 4). L'unité est alimentée par l'eau brute de l'usine de filtration Atwater de la Ville de Montréal.

5.2.1. Essai de traçage

Pour déterminer le temps de rétention hydraulique dans les flocculateurs de l'unité, un essai de traçage fut effectué dans les bassins de floculation du pilote aux deux débits étudiés (1550 L/h et 520 L/h). Ces débits produisent des temps de séjour théoriques de 5 et 15 minutes, respectivement.

Les ions de fluorure ont été choisis car ils se prêtent bien à une étude de traçage. Ils ont été dosés sous la forme d'une solution de NaF à une concentration théorique de 1,00 mg/L F⁻. Durant les essais, aucun coagulant n'était dosé à l'eau brute afin de prévenir l'interférence avec les fluorures. Une méthode colorimétrique (4500-F⁻ D dans APHA et al. 1998) a été utilisée pour détecter les fluorures dans l'eau échantillonnée. Un volume de 5 mL d'échantillon a été mélangé à 1 mL de réactif SPADNS (HACH), et après un délai d'une minute, le tout a été analysé au spectrophotomètre (Cary 100 Scan UV-Visible Spectrophotometer par Varian) à 580 nm. L'absorbance ainsi détectée a permis de calculer la concentration d'ions de fluorure ajoutés à partir d'une courbe de calibration :

$$\text{Équation 5-1} \quad [F^-] \text{ (mg/L)} = \frac{(Abs_0 - Abs_E) - 0,0122}{0,1711}$$

où Abs_0 correspond à l'absorbance de l'échantillon pris au temps initial. Cette eau contient le fluor naturellement présent dans l'eau, donc en lui soustrayant l'absorbance de chaque échantillon (Abs_E), la concentration de F⁻ ajoutée peut être calculée.

5.2.2. Essais de floculation et de filtration

L'unité mobile, qui regroupe les principaux procédés conventionnels de traitement de l'eau potable et l'ozonation, a été utilisée dans le cadre de cette étude pour effectuer une filtration directe et en ligne (i.e. sans floculation) avec prétraitement chimique, tel que décrit au tableau 5-1.

Lors des essais, la température de l'eau brute a varié de 1,6 à 1,8°C, et la turbidité de l'eau brute de 0,65 à 1,4 UTN. Le débit d'eau brute était d'environ 1550 L/h pour les essais de temps de floculation de 10 minutes, et d'environ 520 L/h pour ceux de 15 minutes. Les flocculateurs du laboratoire pilote sont présentés à la figure 5-1.

Tableau 5-1. Configuration des essais au pilote

Variable	Valeur	
Énergie de mélange (G), s ⁻¹	0; 50; 100	
Temps de floculation, minutes	0; 10; 15	
Filtration	Bicouche à 10 m/h; Monocouche à 5 m/h	
	Alun	PASS100
Concentration de coagulant, mM/L	0,02; 0,05; 0,08 (dilué 4-10x)	0,05 (non dilué)
Concentration de polymère, mg/L	0	0; 0,25 (dilué 70x)

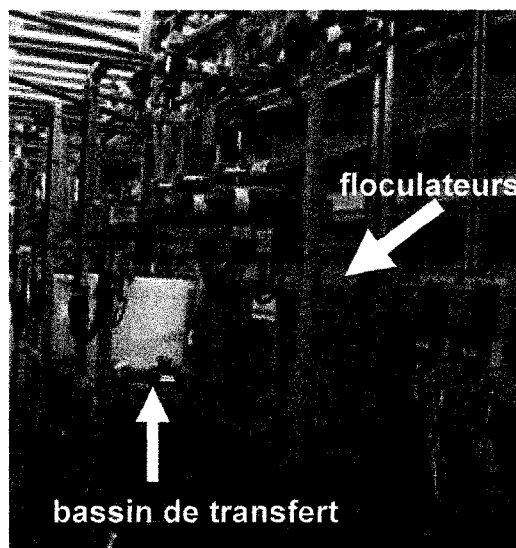


Figure 5-1. Floculateurs du laboratoire pilote

Le mélange rapide a été effectué dans la conduite ($\varnothing = 1''$) menant de l'entrée d'eau brute aux floculateurs au moyen d'un mélangeur statique KofloTM de 28 cm de long. Aux débits étudiés, le G produit dans ce mélangeur était d'environ 240 s^{-1} . Les produits chimiques ont été injectés 2,6 m avant le mélangeur statique. Un temps de résidence dans la conduite menant aux floculateurs de 10 et 30 secondes a été calculé pour des débits respectifs de 1550 L/h et 520 L/h. La floculation a été effectuée dans une série de trois bassins, mélangés par des hélices axiales (composés de 4 pales axiales de 2,5 po de long par 1,5 po de haut) et ayant les dimensions de 102 cm de large par 43 cm de hauteur par 31,5 cm de profondeur pour une capacité totale de 138 L. L'eau floculée était ensuite circulée dans un bassin de transfert de 20 L avant d'être pompée vers le haut des colonnes de filtration à l'aide d'une pompe à cavité progressive. La configuration des filtres est détaillée au tableau 5-2. Une photographie des colonnes de filtration est présentée à la figure 5-2. Avant de débiter le suivi des paramètres, les filtres ont été opérés pendant au moins une heure après la stabilisation du nombre de particules à l'eau filtrée suite à chaque changement de dosage. Le nombre de particules

à l'eau filtrée était mesuré en continu par le compteur de particules au pilote. Cette approche permettait ainsi de s'assurer que l'eau filtrée, et celle arrivant dans le bassin de transfert, était représentative des nouvelles conditions de floculation.

Tableau 5-2. Configuration des filtres utilisés lors des essais

Filtre		Bicouche	Monocouche
Sable	Hauteur de matériau (cm) – L	25	75
	Taille effective (mm) – D	0,5	0,65
Anthracite	Hauteur de matériau (cm) – L	50	-
	Taille effective (mm) – D	1,0	-
L/D		1050	1150
Ø de chaque colonne filtrante (cm)		15,2	15,2
H _{milieu} totale du milieu filtrant (cm)		75	75
Submergence (cm)		100	100
H _{total}		175	175
Vitesse de filtration (m/h)		10	5

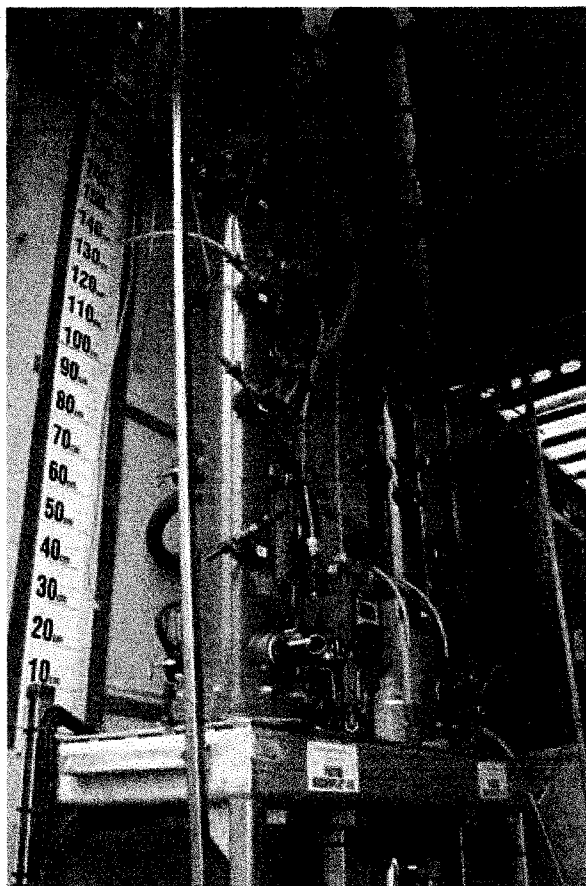


Figure 5-2. Colonnes de filtration du laboratoire pilote (monocouche à gauche et bicouche à droite)

Pour la condition $G = 0 \text{ s}^{-1}$, l'eau coagulée a été envoyée directement au bassin de transfert. Le temps de résidence dans la conduite dans ce cas était de 20 ou de 55 secondes, pour un débit de 1550 L/h et 520 L/h, respectivement.

Le Dynamic Particle Analyzer (DPA2100 par Brightwell Technologies; voir chapitre 4 pour une description de cet instrument et la figure 5-3 pour un image typique d'un floc détecté avec l'instrument) a été utilisé pour faire le suivi du diamètre pondéré volumétrique, d_v , de l'eau floculée (le paramètre d_v est également défini au chapitre 4). L'aiguille d'échantillonnage du compteur a été installée à l'entrée du bassin de transfert,

avec une longueur de tube de 75 cm, ajoutant environ 75 s au délai de détection à l'instrument.

La turbidité de l'eau filtrée fut suivie par des échantillonnages périodiques et déterminée à l'aide d'un turbidimètre Hach 2100AN.

Il est à noter que le « Photometric Dispersion Analyzer » (*cf* chapitre 4) n'a pas été utilisé pour ces essais en raison de son incapacité à détecter la floculation sous des conditions de basse concentration de matières solides.

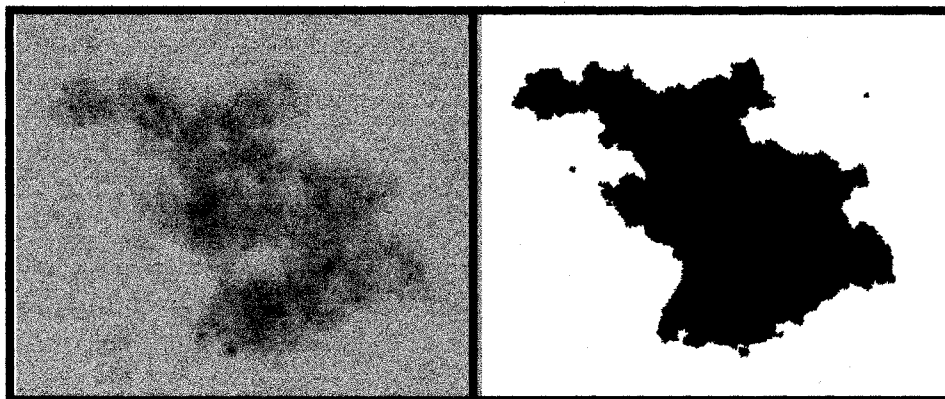


Figure 5-3. Photo de floc prise avec le Dynamic Particle AnalyzerTM. Gauche : Photo, droite : aire de floc détectée par l'instrument

5.2.3. Modélisation du diamètre volumétrique moyen (d_v)

Une représentation graphique des valeurs de d_v mesurées pendant les essais en laboratoire en fonction du temps (voir chapitre 4) produit une courbe en forme de « S ». Cette courbe est bien représentée par l'équation logistique (Éq. 5-2) développée par Verhulst (1845) pour décrire la croissance démographique d'une population. La version intégrée (Éq. 5-3) permet de prédire le nombre d'individus, ou dans ce cas, le diamètre pondéré d_v à un temps t décrit à l'équation 5-3.

$$\text{Équation 5-2} \quad \frac{dd_v}{dt} = \frac{rd_v(K - d_v)}{K}$$

Équation 5-3
$$d_v(t) = \frac{K d_{vEB} e^{rt}}{K + d_{vEB} (e^{rt} - 1)}$$

Dans ces équations, $d_v(t)$ est le diamètre moyen pondéré des floes mesuré au temps t de floculation en minutes, d_{vEB} le d_v à l'eau brute avant coagulation-floculation, K une constante empirique représentant la valeur maximum atteignable de d_v et le taux r de croissance des floes. Le comportement décrit par cette équation est donc semblable à celui des floes étudiés dans le jar test qui, selon les résultats, croissent rapidement dans un premier temps, pour ensuite voir le d_v des floes se rapprocher lentement d'une valeur maximale (K).

Cette équation a été adaptée pour modéliser la floculation en continu. À l'aide de l'essai de traçage, le floclateur du pilote industriel peut être représenté par une série de réacteurs en cuvette. La valeur du temps de séjour dans le floclateur divisé par le nombre équivalent de bassins donne le temps passé dans chaque bassin théorique. L'équation 5-3 peut donc être utilisée pour calculer le d_v à la sortie de chacun de ces « bassins », en utilisant le temps passé dans chacun d'eux comme les valeurs de « t » et le $d_v(t)$ pour le bassin précédent comme valeur de d_{vEB} . Le $d_v(t)$ au dernier bassin est donc le d_v prédit à la sortie du floclateur.

Le nombre de bassins théoriques requis pour simuler le comportement du floclateur industriel a été calculé à partir des équations 5-5 et 5-6 avec le temps de séjour déduit par régression non linéaire à partir du fonction Gamma (voir section 5.3.1)

5.2.4. Effets de pompage sur les floes

Tel que décrit précédemment, l'eau floclée du pilote est pompée en haut des filtres. Il a donc été jugé prudent de mesurer l'effet de cette action potentiellement destructive sur les floes. Pour ce faire, l'eau avant et après la pompe a été filtrée en continu à 10 m/h à tête constante par une mini-colonne filtrante (voir description au chapitre 4) dans le but d'étudier les pertes de charges et la turbidité à l'eau filtrée résultante. Le même média

filtrant, l'anthracite ($D_{10} = 0,6 \text{ mm}$) a été placé dans des colonnes de diamètre de 30 mm pour donner une hauteur de média de 30 cm. L'anthracite fut lavée de la même façon qu'en laboratoire. Après chaque essai, elle a été enlevée de la colonne et rincée soigneusement à trois reprises avec de l'eau ultrapure (MilliQ) avant d'être ensuite remise dans la colonne.

Chacun des essais sur l'impact du pompage a duré 350 minutes en moyenne. La progression des pertes de charge a été notée à l'aide d'un piézomètre inséré dans l'anthracite avec le bout à 5 cm de la surface. La turbidité à l'eau filtrée fut mesurée à tous les 5 minutes.

5.3. Résultats

Les résultats de l'essai de traçage sont présentés à la section 5.3.1. La comparaison avec les essais en laboratoire est le sujet de la section 5.3.2. La modélisation du paramètre, d_v , est présenté à la section 5.3.3. Finalement, les résultats du test sur l'effet du pompage d'eau floculée sur la performance des filtres sont décrits à la section 5.3.4.

5.3.1. Essai de traçage et modélisation des flocculateurs

Les résultats de la montée de concentration de F^- pendant l'essai de traçage sont indiqués à la figure 5-4 (les résultats brutes pour la montée et la descente sont montrées à l'Annexe A) et résumé au tableau 5-3. Le temps de séjour pour les débits de 1550 et 520 L/h était respectivement de 10 et 15 minutes, déduits par régression non linéaire à l'aide de la distribution Gamma :

$$\text{Équation 5-4} \quad f(x) = \beta(\beta x)^{\alpha-1} \frac{e^{-\beta x}}{\Gamma(\alpha)}$$

où β et α sont des paramètres caractérisant la distribution et $\Gamma(\alpha) = (\alpha-1)!$.

L'équation 5-5 donne la variance σ_θ^2 de la distribution du temps de séjour (où t = temps mesuré, t_m = temps de séjour moyen), qui est relié au nombre de réservoirs N en série par l'équation 5-6 (Hayes 2001).

Équation 5-5
$$\sigma_\theta^2 = \int_0^\infty \left(\frac{t}{t_m} - 1 \right)^2 f(t) dt$$

Équation 5-6
$$\sigma_\theta^2 = \frac{1}{N}$$

Pour les deux temps de floculation,

N calculé était d'environ 6.

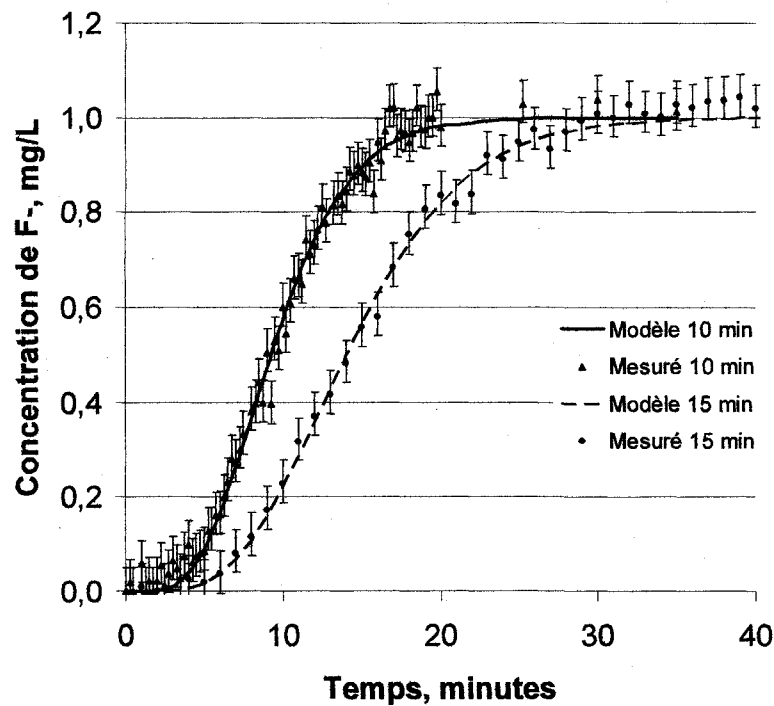


Figure 5-4. Essais de traçage des flocculateurs pour 10 minutes et 15 minutes de temps de floculation

Tableau 5-3. Tableau synthèse des tests de traçage

$T_{\text{théorique}}$	section de la courbe	T_{50} , min	% récupération
10	montée	9,3	104
	descente	11	85
15	montée	14	104
	descente	12,9	99

5.3.2. Comparaison des résultats du laboratoire et du pilote industriel

Tous les résultats présentés dans cette section sont pour des essais réalisés en eau froide : 1,6-1,8°C au pilote et 4°C $\pm$ 1°C au laboratoire.

Au pilote, l'effet du filtre monocouche opérant à 5 m/h par rapport au filtre bicouche opérant à 10 m/h fut de baisser la turbidité à l'eau filtrée, en moyenne de 0,15 UTN pour l'alun et de 0,04 UTN pour le PASS100.

Le logiciel de statistique Statistica 7.1 (StatSoft, 2006) a été utilisé pour analyser l'effet de certaines variables (concentration de coagulant/polymère, énergie de mélange, temps de floculation et turbidité à l'eau brute) et leurs interactions de premier ordre sur le paramètre d_v et la turbidité à l'eau filtrée. Les figures présentées dans cette section sont issues de ces analyses statistiques.

5.3.2.1 Résultats des essais au Pilote

Les résultats sont d'abord présentés séparément pour les deux coagulants (Alun et PASS100), puis une comparaison est ensuite faite entre les deux.

5.3.2.1.1 Essais avec l'alun

Le tableau 5-4 présente une analyse de variance pour expliquer la turbidité de l'eau filtrée et le diamètre volumétrique en fonction de diverses variables indépendantes dont

l'énergie et le temps de mélange, la turbidité de l'eau brute et la concentration d'alun. Deux approches d'analyses ont été retenues. Dans un premier cas, le paramètre Gt est considéré comme une seule variable (modèle Gt) alors que dans un deuxième cas, les deux variables ont été considérées séparément (modèle G, temps).

L'analyse de ce tableau révèle que, tout dépendant du modèle considéré, la turbidité à l'eau brute et la concentration d'alun expliquent 49-51% de la variabilité de d_v et 56-73% de la variabilité de la turbidité à l'eau filtrée. La turbidité est prédite plus précisément que le paramètre d_v . Il est intéressant de noter que le G, le temps de floculation et/ou le paramètre Gt contribuent peu à expliquer la turbidité à l'eau filtrée.

Tableau 5-4. Analyse de sensibilité Alun : Pourcentages d'explication des variables de contrôle sur les variables prédites (turbidité à l'eau filtrée et diamètre pondéré de floc d_v)

Variables de contrôle	Modèle Gt		Modèle G, temps	
	d_v	Turb.	d_v	Turb.
Turbidité à l'eau brute	24%	42%	30%	36%
Concentration d'alun	25%	14%	21%	37%
Gt	10%	16%	-	-
G	-	-	0% ¹	3%
temps	-	-	13%	4%
Conc. d'alun*Gt	15%	20%	-	-
Conc. d'alun*G	-	-	9%	9%
Conc. d'alun*temps	-	-	-	4%
d_v		0% ¹		0% ¹
Erreur	26%	8%	27%	7%
Total	100%	100%	100%	100%

¹ Contribution non significative ($p < 0.05$)

D'autre part, un Gt croissant n'a pas prédit un d_v croissant ni une turbidité décroissante lors des essais avec l'alun. Ainsi, la figure 5-5 indique que l'augmentation du G de 50 s^{-1} (Gt de 30 000 et 45 000) à 100 s^{-1} (Gt de 60 000 et 90 000) n'a pas eu pour effet d'augmenter le d_v ou de baisser la turbidité à l'eau filtrée comme l'a fait une augmentation du temps de floculation de 10 ($Gt = 30\,000$ et $60\,000$) à 15 minutes ($Gt = 45\,000$ et $90\,000$).

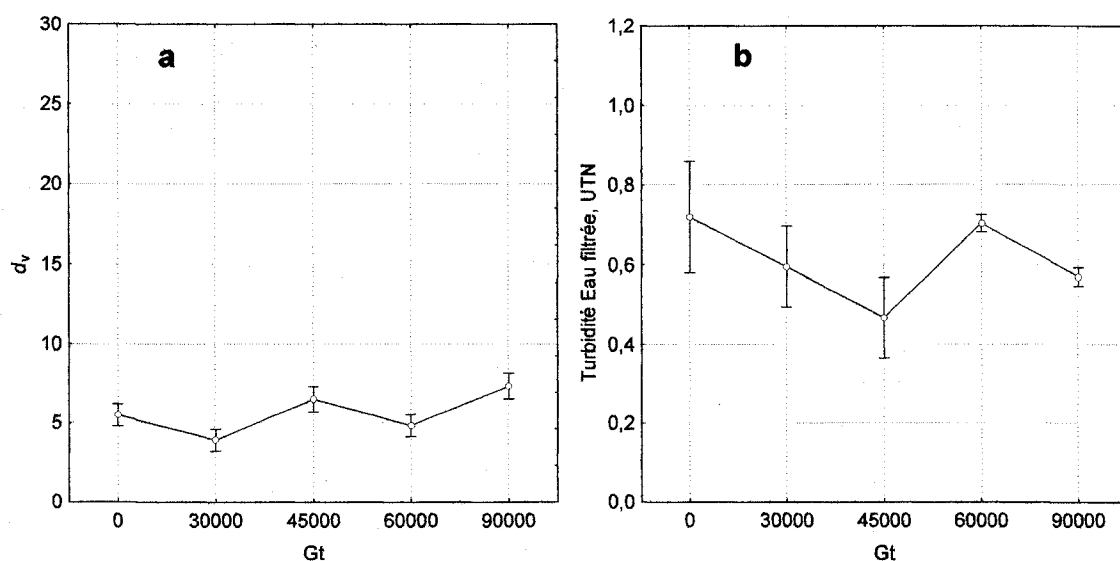


Figure 5-5. Effet du Gt sur d_v (a) et la turbidité à l'eau filtrée (b). Coagulant : alun, résultats des deux filtres combinés.

La turbidité élevée serait due à une coagulation sub-optimale, un phénomène expliqué à la section 5.4.1.

L'augmentation du G de 50 à 100 s^{-1} a donc eu un effet négligeable sur la turbidité à l'eau filtrée comparativement à la concentration du coagulant qui a un effet beaucoup plus important. La figure 5-6b démontre d'ailleurs que la turbidité à l'eau filtrée s'accroît légèrement pour un G de 100 s^{-1} à 0.05 mM/L par rapport à un G de 50 s^{-1} . C'est d'ailleurs cette même valeur qui affecte la tendance décroissante de turbidité en fonction du Gt sur la figure 5-5b. La figure 5-7 démontre que, mis à part les résultats à

0.02 mM Al/L, l'augmentation du temps de floculation de 10 à 15 minutes a l'effet attendu sur le d_v et la turbidité, i.e. qu'une hausse du temps de floculation accroît d_v et réduit la turbidité à l'eau filtrée.

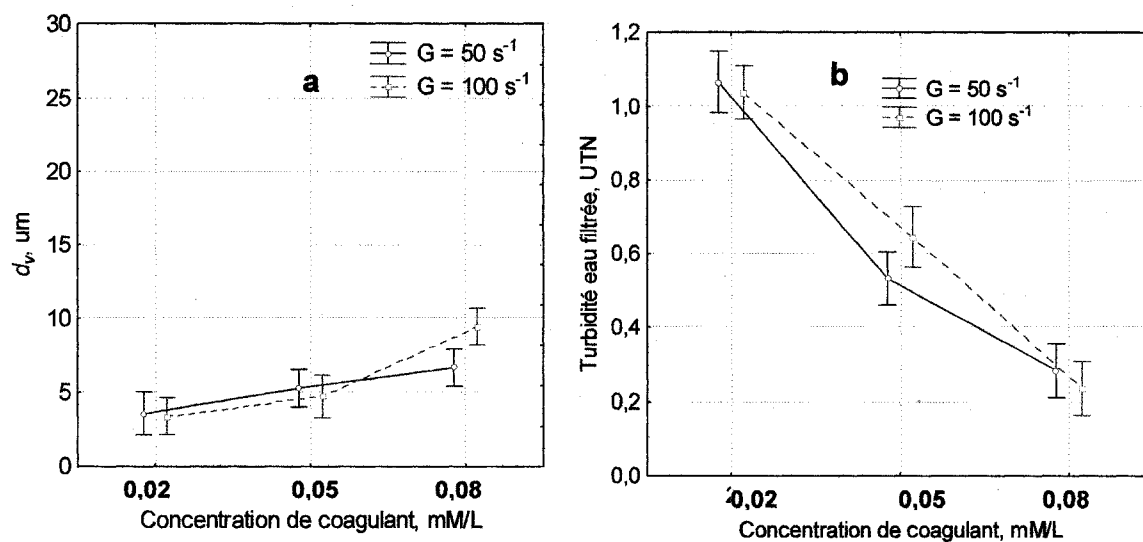


Figure 5-6. Alun: Effet de G sur d_v (gauche) et turbidité à l'eau filtrée (droite)

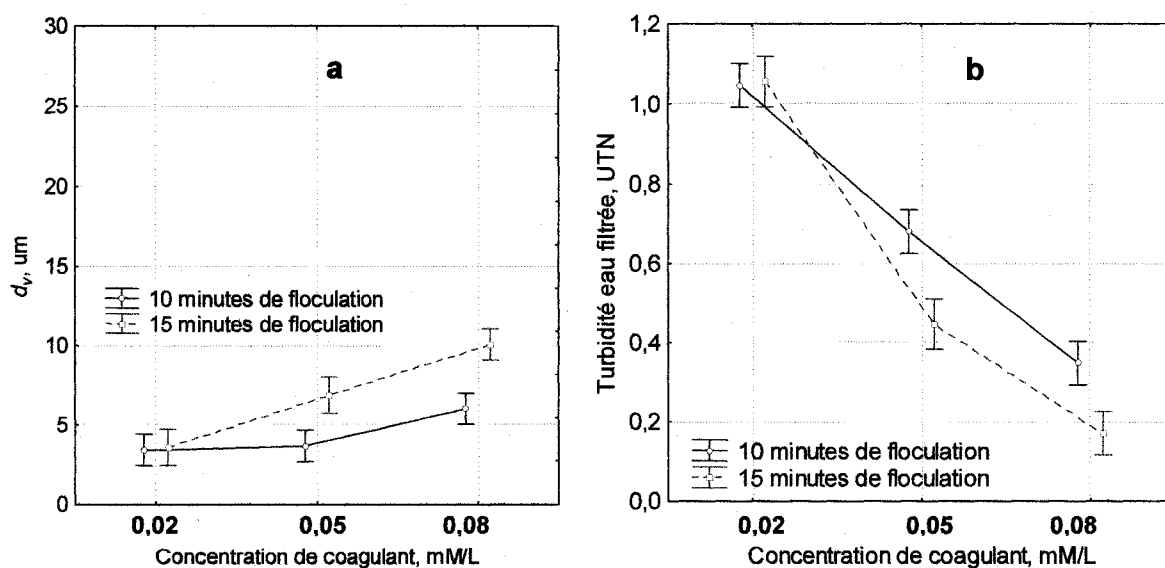


Figure 5-7. Alun: Effet du temps de floculation sur d_v (gauche) et turbidité à l'eau filtrée (droite)

5.3.2.1.2 Essais avec PASS100

Contrairement aux essais avec l'alun, les essais avec PASS100 ont également considérés le polymère comme variable indépendante et non la concentration du coagulant inorganique. Comme il a été observé lors des essais en laboratoire que le polymère jouait un rôle important et modifiait profondément l'analyse de variance, il fut décidé de procéder similairement à une analyse distincte des résultats avec et sans polymère. Cette approche permet de mieux percevoir l'impact de la présence de polymère sur l'effet des autres paramètres, plus précisément pour le Gt , le G et le temps de floculation.

Le tableau 5-5 présente les résultats des analyses de variance pour les différents modèles à l'étude. Dans un premier temps, il est intéressant de constater que le Gt explique plus de 96% de la variabilité de d_v avec ou sans polymère. Dans le cas du modèle avec G et temps considérés séparément, le G et le temps sont moins importants sans polymère, soit 48% d'explication. Pourtant, en présence de polymère le G et le t expliquent toujours environ 91% de la variabilité.

La turbidité à l'eau filtrée est expliquée avec beaucoup moins de précision que le paramètre d_v . Les modèles ont des coefficients de corrélation de 0,42 en moyenne. Elle est d'ailleurs affectée beaucoup plus par la turbidité à l'eau brute. Le Gt explique plus de variabilité que le G et le temps séparés quand il n'y a pas de présence de polymère.

Tableau 5-5. Analyse de sensibilité PASS100 : Pourcentages d'explication des variables de contrôle sur les variables prédites (turbidité à l'eau filtrée et diamètre pondéré de floc d_v)

Variables de contrôle	Modèle Gt				Modèle G, temps			
	0 mg/L polymère		0,25 mg/L polymère		0 mg/L polymère		0,25 mg/L polymère	
	d_v	Turb.	d_v	Turb.	d_v	Turb.	d_v	Turb.
Gt	96%	17%	98%	25%	-	-	-	-
G	-	-	-	-	2%	2%	41%	3%
temps	-	-	-	-	46%	7%	50%	3%
G*temps	-	-	-	-	0% ¹	6%	3%	28%
Turbidité EB	2%	23%	0% ¹	13%	51%	25%	2%	16%
d_v		0% ¹		0% ¹		0% ¹		0% ¹
Erreur	2%	60%	2%	62%	1%	60%	4%	50%
Total	100 %	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%

¹ Contribution non significative ($p < 0.05$)

Le diamètre pondéré d_v des flocs de PASS100 augmente généralement avec la valeur de Gt (voir figure 5-8). La turbidité est réduite par 0,05 UTN en moyenne avec l'utilisation du polymère, sinon elle reste à peu près stable pour toutes les valeurs de Gt étudiées.

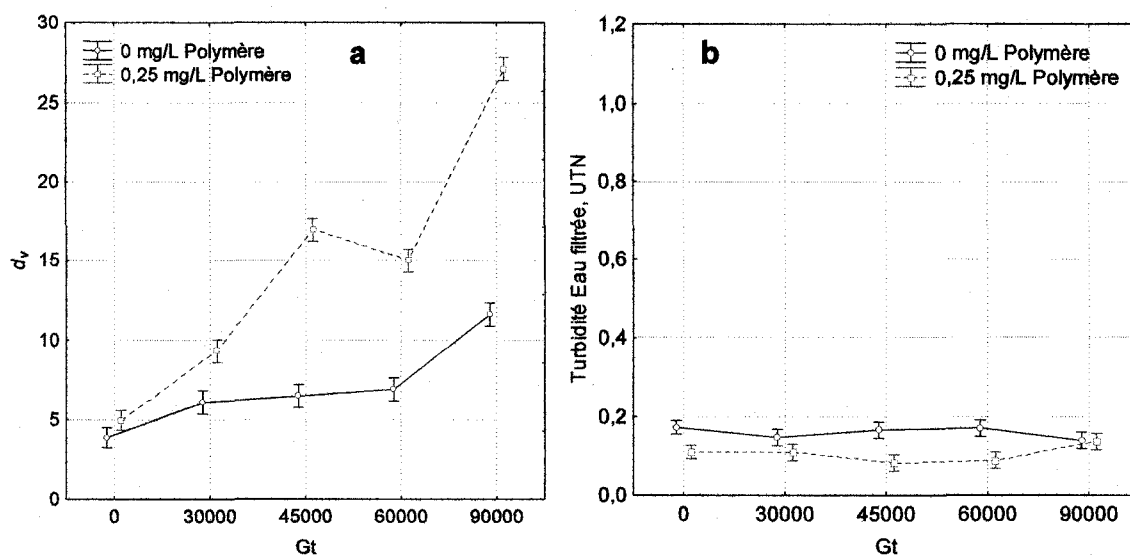


Figure 5-8. PASS100 : Effet de Gt sur d_v (a) et turbidité à l'eau filtrée (b) (toutes conditions confondues)

5.3.2.1.3 Comparaison entre l'alun et le PASS100

Les résultats qui démontrent l'effet du Gt sur l'alun et le PASS100 à une concentration de 0,05 mM Al/L et en absence de polymère sont présentés à la figure 5-9. Bien que les valeurs de d_v soient semblables pour les deux coagulants, la turbidité à l'eau filtrée est beaucoup plus basse (0,46 UTN en moyenne) pour les essais utilisant le PASS100.

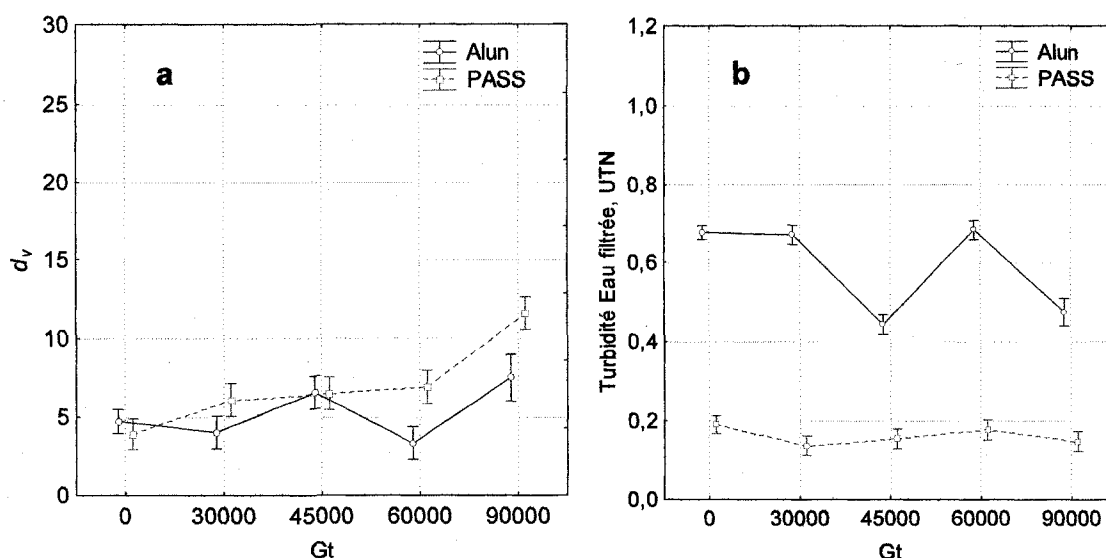


Figure 5-9. Effet de Gt sur d_v (a) et turbidité à l'eau filtrée (b) pour 0.05 mM Al/L et 0 mg/L polymère

5.3.2.2 Comparaison entre les tendances des résultats des essais au laboratoire et ceux des essais au pilote

5.3.2.2.1 Essais avec l'alun

La comparaison entre les résultats des essais avec alun au laboratoire et au pilote est présentée à la figure 5-10. Les valeurs de d_v obtenus au laboratoire sont plus élevés (> 160 %) qu'au pilote. Les turbidités à l'eau filtrée sont légèrement plus basses en laboratoire pour les Gt de 0 et de 90 000, mais ne sont pas comparables à cause des configurations différentes dans les deux endroits. Outre quelques observations aberrantes, la taille des floccs augmente dans les deux cas avec la concentration d'alun alors que la turbidité à l'eau filtrée diminue. La même observation est faite pour un Gt croissant, soit une augmentation du d_v et une baisse de la turbidité. Cependant, en pilote, les valeurs de d_v sont assez faibles, et s'approchent de la variabilité naturelle causée par l'erreur expérimentale.

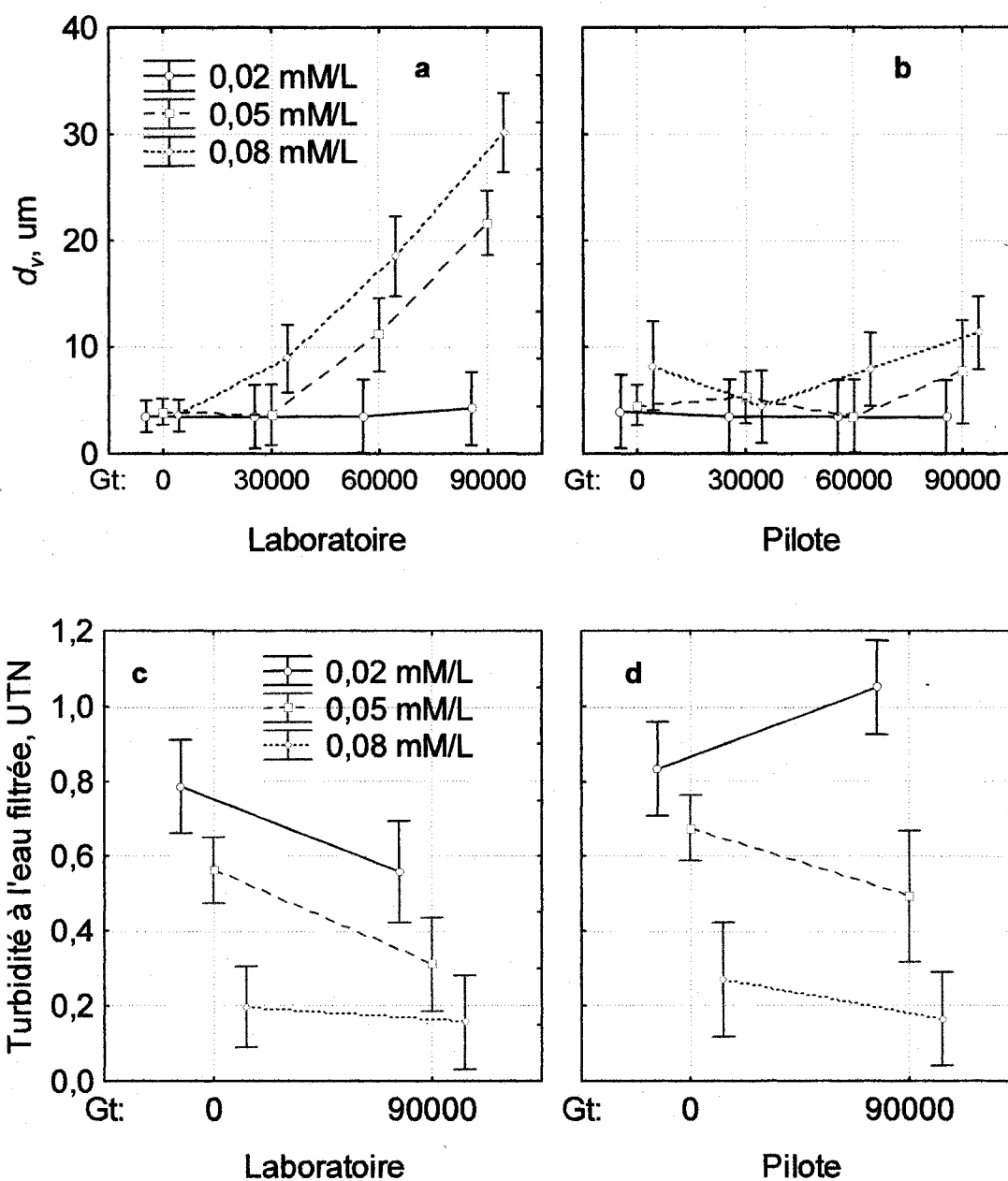


Figure 5-10. Alun : Effet de Gt sur d_v (a+b) et turbidité à l'eau filtrée (c+d), au laboratoire (a+c) et au pilote (b+d)

5.3.2.2.2 *Essais avec le PASS100*

La figure 5-11 présente l'effet du PASS100 et du polymère pour les essais en laboratoire et en pilote. Les tendances sont identiques dans les deux cas, mais plus prononcées au laboratoire. Ainsi, le polymère réduit plus la turbidité à l'eau filtrée en laboratoire et l'effet du Gt y est plus prononcé pour la croissance des floes. Le polymère a un effet moins dramatique au pilote car les essais sans polymère produisent déjà de bons résultats.

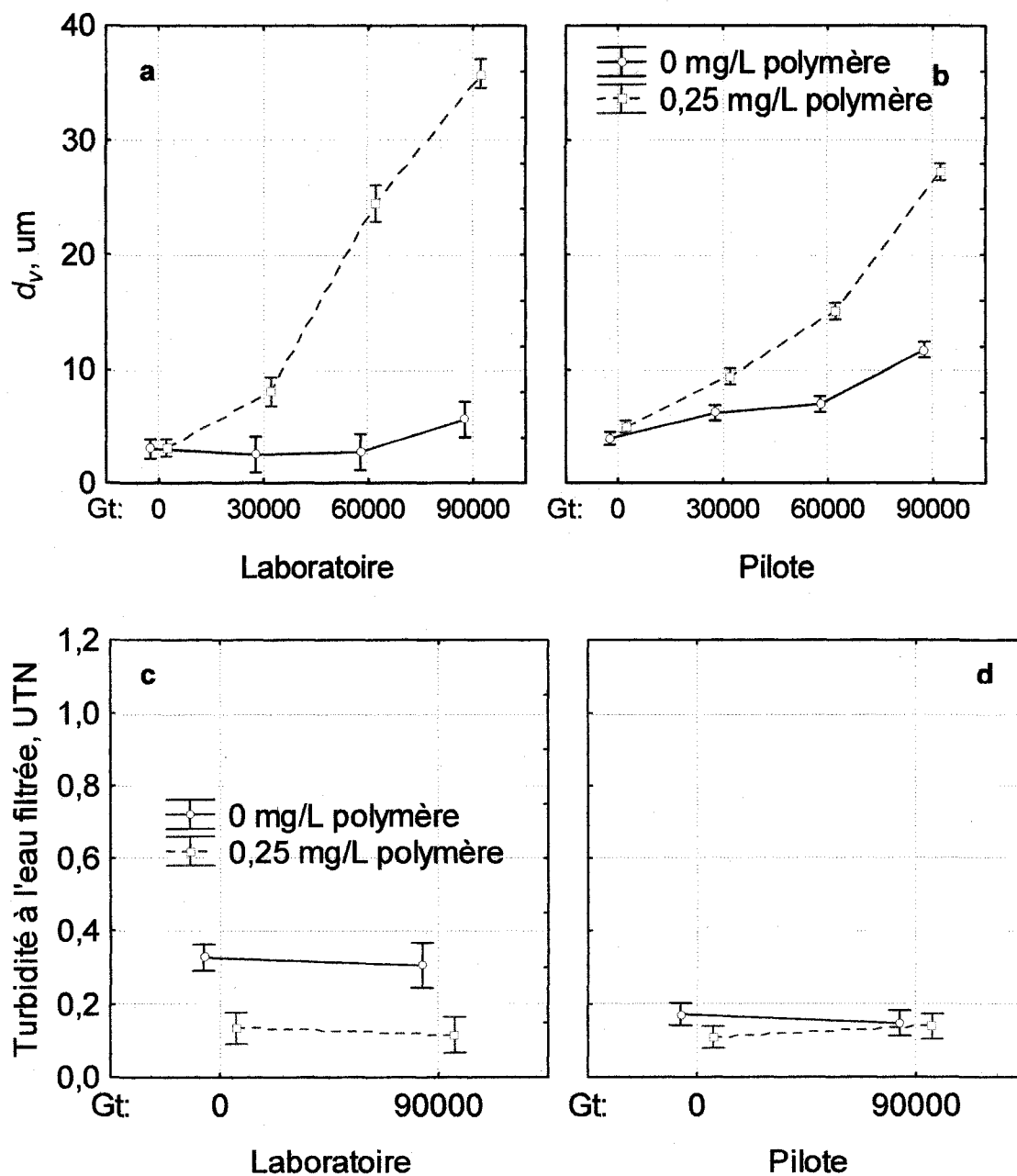


Figure 5-11. PASS100 : Effet de Gt sur d_v (a+b) et turbidité à l'eau filtrée (c+d), au laboratoire (a+c) et au pilote (b+d) à 0,05 mM Al/L

Finalement, une analyse de l'importance des paramètres de contrôle (concentration de coagulant/polymère, G), de la turbidité à l'eau brute, du d_v à l'eau flocculée et du lieu de

l'essai a été effectuée pour les essais au laboratoire et au pilote combinés. Les diagrammes de Pareto pour ces évaluations sont présentés à la figure 5-12. « Où » signifie le lieu où l'essai a été effectuée, c'est-à-dire, au laboratoire ou en pilote. Pour l'alun, ces analyses démontrent l'importance de sa concentration au-delà de tout autre paramètre, et pour le PASS100, c'est l'ajout de polymère qui affecte la turbidité, mais surtout l'endroit où ont été fait les essais (labo vs pilote). Pour l'alun et le PASS100, les paramètres d_v ne sont pas significatifs selon les diagrammes de Pareto, mais il est tout de même très près du seuil de signification dans le cas du PASS100. Ces diagrammes semblent aussi indiquer que les résultats d'essais faits avec l'alun se prêtent plus facilement à une simulation statistique, c'est-à-dire qu'ils sont plus facilement prédits.

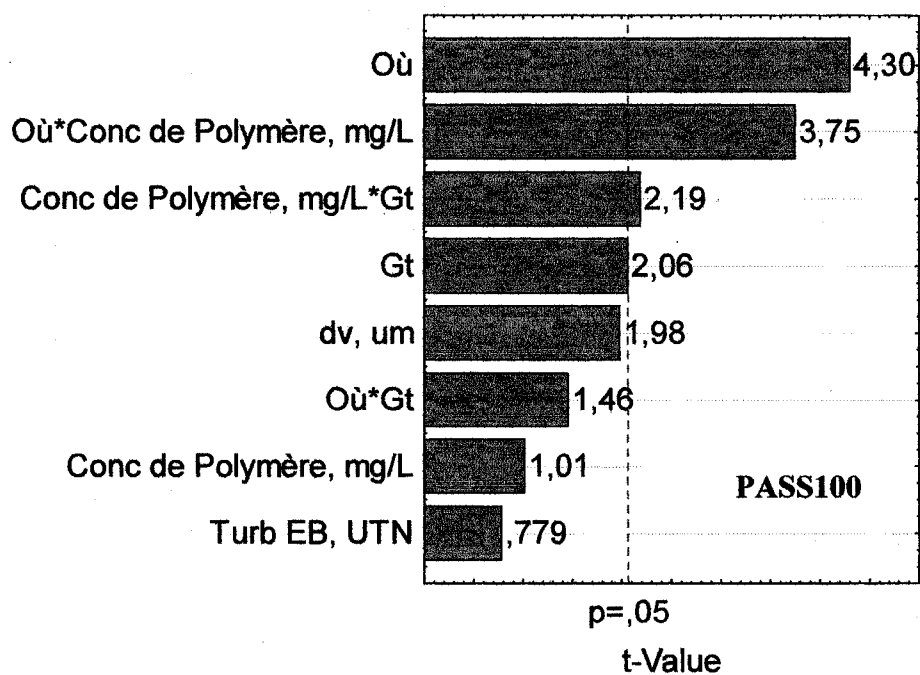
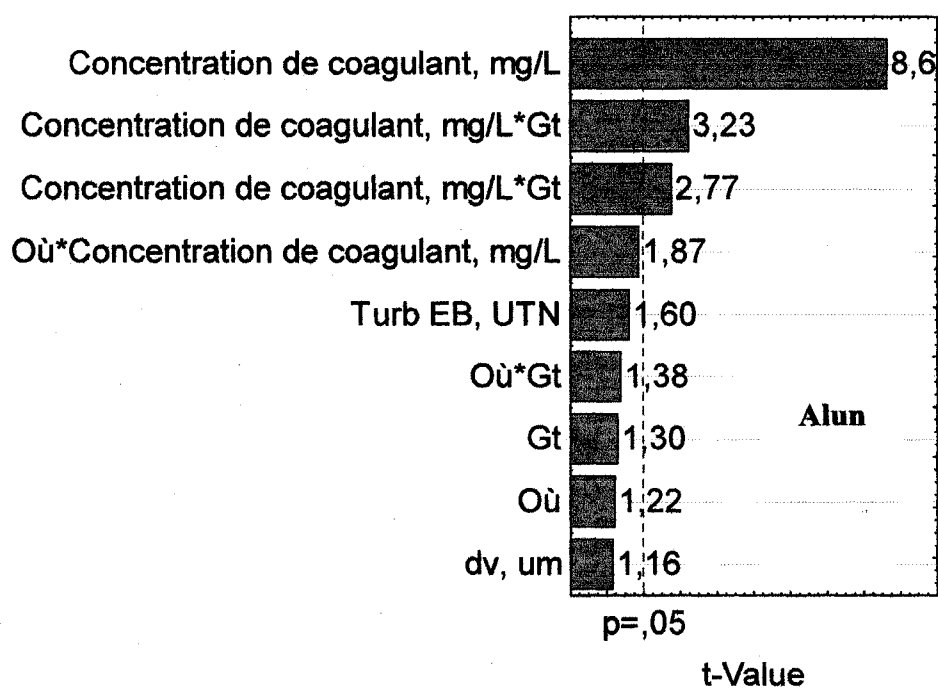


Figure 5-12. Diagrammes de Pareto : Effets des paramètres sur la prédiction de la turbidité à l'eau filtrée, essais au laboratoire et en pilote combinés

5.3.3. Modélisation du diamètre des floes

Dans un premier temps, les paramètres de K et r de l'équation 5-2 ont été déduits pour chaque essai par régression non linéaire pour tous les essais faits en laboratoire avec l'alun et le PASS100 à 4°C, pour modéliser le d_v au temps 0, 5, 10 et 15 minutes de floculation, avec le d_v à chacun de ces incréments de 5 minutes utilisé comme d_{vEB} pour le calcul du d_v dans le prochain incrément. Rappelons que le paramètre r décrit la cinétique de floculation alors que le paramètre K indique la valeur maximum de taille des floes. Quelques exemples d'ajustement du modèle sont illustrés à la figure 5-13.

Ensuite, pour arriver aux d_v s mesurés au pilote en utilisant l'équation logistique, les valeurs de K et r ont été déduits de la même façon que les d_v s au laboratoire. Par exemple, pour un temps de floculation de 10 minutes, le d_v à l'eau brute a été utilisé dans l'équation comme la valeur de d_{vEB} , pour un temps de (10 minutes divisé par 6 bassins) = 1,67 minutes pour donner la valeur de d_v à la sortie du premier bassin théorique. Ensuite, cette valeur de d_v fut utilisée dans l'équation comme la valeur de d_{vEB} , pour le même temps de 1,67 minutes mais cette fois pour donner la valeur de d_v à la sortie du deuxième bassin théorique. Après six itérations, la valeur de d_v pour l'eau floculée dans les six bassins théoriques était obtenue. En déduisant ainsi les valeurs du r et K pour chaque essai, la valeur de ce d_v a été rendue équivalente à celle mesurée après les flocculateurs. Pour un temps de floculation de 15 minutes, le temps t utilisé dans l'équation était de 2,5 minutes.

L'analyse a été faite de la façon décrite ci-haut, et non en utilisant les valeurs de K et r obtenus pour les essais en pilote pour calculer le d_v attendu parce que les valeurs de d_v obtenus ainsi étaient très loins de ce qui a été mesuré au pilote.

Une forte corrélation a été observée entre K et G et K et la concentration d'alun lors de l'étape de déduction des paramètres r et K . La valeur du paramètre K a donc été fixée à des valeurs précises pour chaque concentration et valeur de G pour le modèle pilote alun, et à une valeur fixe pour modèle pilote PASS100 (G semblait l'affecter peu dans ce cas). Les valeurs de r contiennent donc toute la variation dans le modèle pilote.

Dans un deuxième temps, ces paramètres furent l'objet d'une analyse statistique pour déterminer l'importance de chacune des variables contrôlées (type et concentration de coagulant, présence de polymère, G , turbidité à l'eau brute) dans leurs valeurs. Le temps étant déjà inclus dans l'équation, l'effet du G a été évalué et non celui du Gt . L'effet cinétique se retrouve en effet décrit par le paramètre r .

Cette analyse a été effectuée pour répondre à la question suivante : est ce que K et r sont fonctions de ces variables, et si oui, lesquels et à quel degré?

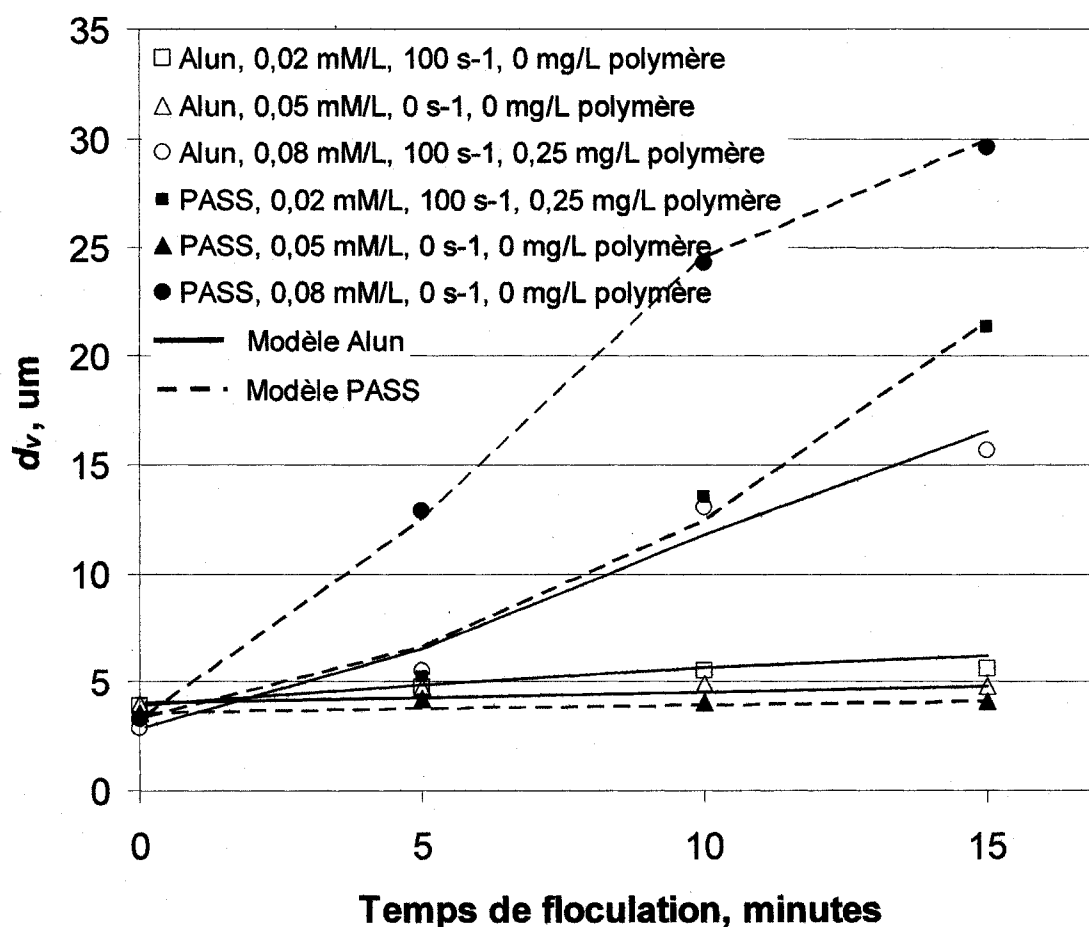


Figure 5-13. Six exemples de modélisation des résultats de floculation au laboratoire

Le tableau 5-6 dresse la liste des résultats de cette analyse en termes d'effet de chacune des variables sur les paramètres d'ajustement K et r . Le tableau est divisé en « Labo » et

« Pilote » pour refléter le fait que les paramètres ont presque toujours une importance relative différente pour les essais de laboratoire et ceux du pilote. Par exemple, le G explique environ 20% de la variabilité de r (le taux de croissance de floes) dans les résultats pour les essais fait avec alun au pilote ainsi qu'au laboratoire, mais pour les résultats du PASS100, le G explique seulement 16% de sa variabilité au pilote contre 51% au laboratoire. De plus, la turbidité à l'eau brute affecte de manière plus importante la valeur de r pour l'alun alors que pour le PASS100, les floes formés ne semblent aucunement affectés par ce paramètre non contrôlé.

La valeur de K , constante représentant la valeur maximum de d_v , n'est pas bien prédite par les paramètres de contrôle, mais on y voit tout de même l'indication d'une certaine influence. Dans le modèle alun pilote, la valeur de K a été fixée à une valeur précise pour chaque concentration et chaque G pour être plus représentative des valeurs de d_v aux G s de 50 et 100 s^{-1} qui semblaient être fonction de G et de la concentration de coagulant. Elle a été fixée à une valeur déterminée pour le PASS100, qui a été dosé à une seule concentration lors des essais au pilote, car elle ne semblait pas être fonction du G au pilote.

De plus, les analyses statistiques ont démontré que les deux paramètres ne sont aucunement corrélés.

Tableau 5-6. Importance des variables de contrôle de la floculation pour expliquer les valeurs de K et r

r	Labo		Pilote	
Variables de contrôle	Alun	PASS	Alun	PASS
G	22%	51%	21%	16%
Concentration de coagulant	13%	13%	22%	-
Présence de polymère	9%	4%	-	38%
Présence de polymère*G	1%	3%	-	43%
Concentration de coagulant*G	12%	8%	16%	-
Turbidité à l'eau brute	0% ¹	0% ¹	31%	0% ¹
Autres effets	11%	8%	-	-
Erreur	32%	13%	10%	3%
Total	100%	100%	100%	100%
K	Labo		Pilote	
Variables de contrôle	Alun	PASS	Alun	PASS
Concentration de coagulant	8%	0% ¹	50%	-
G	4%	52%	50%	0%
Présence de polymère	3%	2%	-	0%
Autres effets	22%	4%	-	-
Erreur	63%	42%	0%	0%
Total	100%	100%	100%	0%²

¹ Contribution non significatif ($p < 0.05$)

² K était constant pour le modèle pilote PASS100

Suite à cette analyse de l'effet des variables sur les paramètres r et K , ces derniers ont été remplacés dans l'équation 5-2 par des équations empiriques basées sur les variables de contrôle du procédé de floculation (Éq. 5-7).

Équation 5-7

$$d_v(t) = \frac{(k_4 C + k_5 G) d_{vEB} e^{(k_1 C + k_2 G + k_3 P) \text{Turb}_{EB} t}}{(k_4 C + k_5 G) + d_{vEB} (e^{(k_1 C + k_2 G + k_3 P) \text{Turb}_{EB} t} - 1)}$$

où C = concentration de coagulant en mM/L; G = énergie de mélange en s^{-1} ; P = concentration de polymère en mg/L; TurbEB = turbidité à l'eau brute en UTN; d_v en μm ; t = temps en minutes, et les constants « k » sont définis au tableau 5-7.

Toutes les équations de calcul de d_v (basés sur des Ks et rs individuels jusqu'à présent) ont ensuite été reliées à des ks communs. Là, les valeurs de k_1 à k_5 ont été déduits par régression non linéaire pour réduire à un minimum la différence carrée entre le modèle et les valeurs mesurés de d_v . Les valeurs de d_v finaux estimés avec ce modèle étaient à une moyenne respective de 42% et 28% des valeurs mesurés pour l'alun au labo et pilote, et de 57% et 20% pour le PASS100 au labo et au pilote, avec des valeurs de R^2 indiqués au tableau 5-7.

Les valeurs des k obtenus durant cet exercice d'ajustement sont présentées au tableau 5-7. Quelques exemples de courbes obtenues avec le modèle pour certaines valeurs expérimentales sont présentés à la figure 5-14. Le tableau 5-7 souligne le fait que l'effet de la concentration du coagulant sur le taux de croissance des floccs (r) est très semblable pour l'alun et le PASS100, surtout pour les résultats obtenus en laboratoire. L'effet du G est identique partout sauf pour l'alun au pilote, et ce, encore une fois à cause du coagulation suboptimale. Le polymère a un effet constant sur la croissance des floccs de PASS100.

Tel que mentionné, la constante représentant la valeur maximale atteignable de d_v (K) est difficilement représentée par les résultats, mais sa valeur plus petite pour le modèle pilote démontre tout de même bien la croissance réduite des floccs à grande échelle. La concentration de coagulant l'influence moins au pilote, et le G aussi, surtout pour l'alun.

Tableau 5-7. Valeurs proposées pour les constantes pour la modélisation de d_v avec l'équation 5-7

Constante			Alun		PASS	
remplace	effet sur		Labo	Pilote	Labo	Pilote
k_1		C	0,5	0,75	0,5	-2
k_2	r	G	0,0023	0,00012	0,002	0,0019
k_3		P	-0,14	N/A	0,5	0,6
k_4	K	C	800	400	1410	950
k_5		G	-0,12	-0,04	0,25	0,2
R^2			0,96	0,66	0,81	0,96

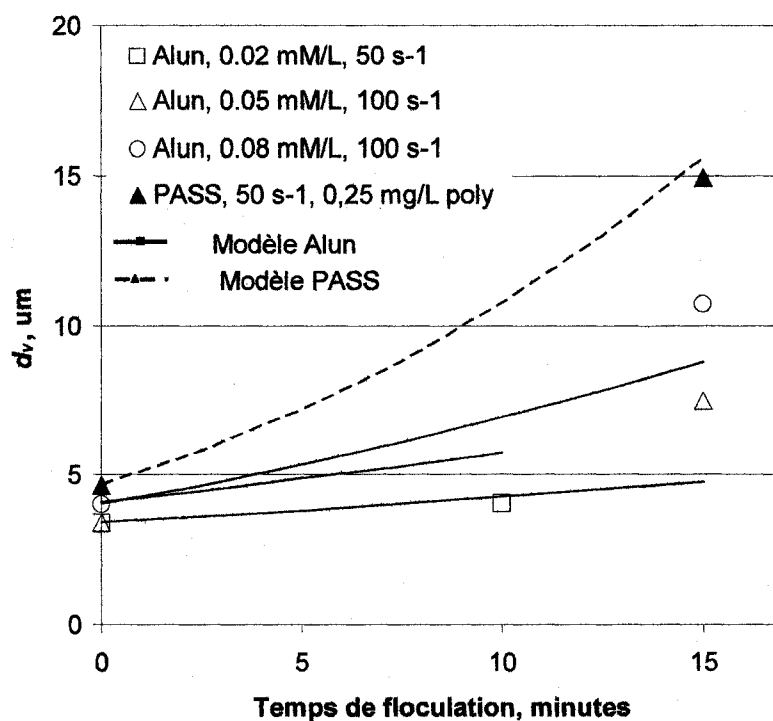


Figure 5-14. Quatre exemples de modélisation des résultats de floculation au laboratoire pilote avec les valeurs de k proposées au tableau 5-7 (pour temps de floculation de 10 et 15 minutes)

5.3.4. Impact du pompage sur les floccs

Un premier test pour évaluer l'effet du pompage de l'eau flocculée vers le haut des colonnes de filtration a été de comparer les résultats de l'analyse de particules avant et après pompage. Les conditions et résultats de cet essai sont décrits au tableau 5-8. On remarque que la pompe a comme effet de briser les plus grands floccs et ainsi réduire le d_v .

Tableau 5-8. Effet de pompage sur les floccs : Compte de particules avant et après (pour 0,05 mM/L de PASS100 + 0,25 mg/L polymère à 2°C et 10 minutes de floculation)

	$d_v, \mu\text{m}$	no de part 1-10 $\mu\text{m/ml}$	no de part > 10 $\mu\text{m/ml}$
G = 50 s⁻¹			
Eau brute	3,9	10 889	64
Avant pompe	11	12 268	374
Après pompe	8,4	13 591	338
différence, %	-22	11	-10
G = 100 s⁻¹			
Eau brute	4,6	11 398	80
Avant pompe	15	12 894	812
Après pompe	7,0	16 604	549
différence, %	-54	29	-32

Le fait de réduire la taille des gros floccs affecte-il la performance des filtres granulaires ? Les résultats des essais de pompage faits avec une coagulée avec de l'alun présentés à la figure 5-15a indiquent que, mis à part pour un dosage sous-optimal de 0,02 mM/L d'alun, l'effet de pompage n'affecte pas de façon significative l'enlèvement de la matière particulaire par filtration granulaire. Il est cependant possible que l'effet soit

seulement discernable après la durée de l'essai qui a été limitée à 250 minutes de filtration. Une évaluation plus en profondeur serait toutefois requise pour le confirmer. L'effet sur les pertes de charge est facilement observé. La figure 5-15b indique que le pompage ralentit l'accumulation des pertes de charge. De plus, cet effet semble plus important pour les concentrations plus élevées d'alun.

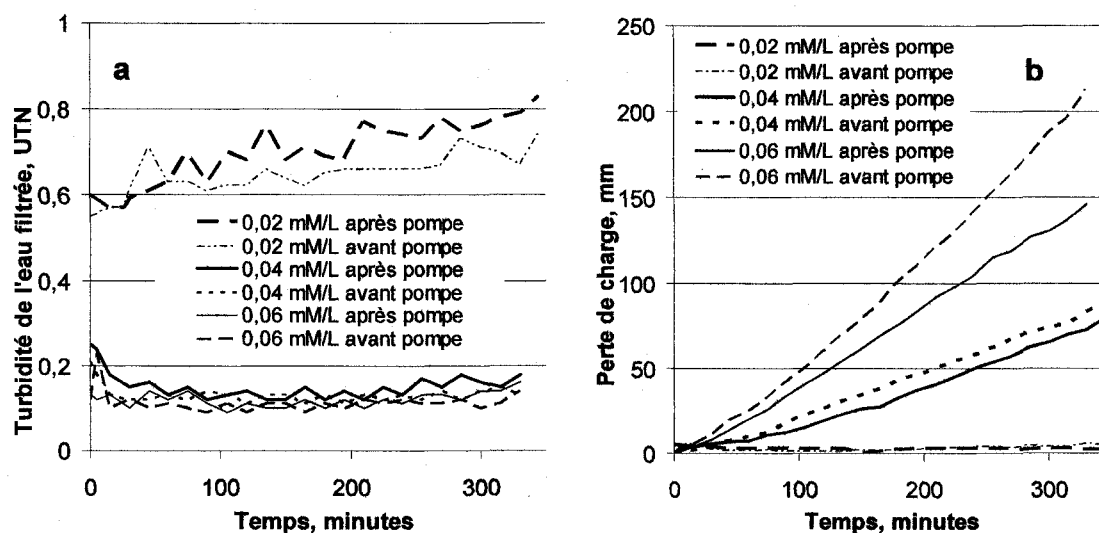


Figure 5-15. Effet de pompage sur les floes d'alun : turbidité (a) et perte de charge (b) avec une turbidité à l'eau brute de 1,5 – 1,75 UTN

5.4. Discussion

5.4.1. Performance de floculation et filtration en pilote et en laboratoire, pour alun et PASS100

Cette section présente une discussion des résultats obtenus en pilote et une comparaison de ces derniers avec ceux en laboratoire.

Les deux configurations de filtre à l'étude avaient des ratios L/D similaires (1050 bicouche vs. 1150 monocouche) et des vitesses différentes (5 m/h monocouche vs. 10 m/h bicouche). Le filtre monocouche a produit des turbidités plus basses que le filtre

bicouche; diminuer la vitesse a eu l'effet d'augmenter le temps dans le filtre et donc d'y permettre une meilleure floculation. Il est anticipé qu'un filtre bicouche opéré à 5 m/h produise une turbidité encore plus faible sur une durée de cycle plus longue puisque les gros flocs sont captés dans les pores de la couche d'anthracite, et évitent ainsi une accumulation rapide de pertes de charge dans la couche de sable à fines pores (O'Melia et Shin 2001). De plus, le temps de stabilisation après le lavage serait réduit car un bon enlèvement des particules serait assuré par la couche de sable pendant la période de maturation de la couche d'anthracite.

En pilote, le paramètre d_v des flocs d'alun, présenté à la figure 5-4a, n'a pas augmenté avec le Gt. La différence entre les d_v mesurés à $G = 50$ et 100 s^{-1} n'est pas significative. Il est possible que la turbidité et la concentration des solides en suspension fussent trop basses pour permettre aux flocs de se former même à des Gs élevés ou que la coagulation était suboptimale. En effet, le concept Gt s'applique mieux à une concentration de 0,05 mM/L qu'à 0,02 mM/L, et encore mieux à 0,08 mM (voir figure 5-16). Il est donc suggéré que 0,02 mM d'alun était insuffisant pour neutraliser les charges des particules en suspension. Les figures 5-6 et 5-7 indiquent que pour des G de 50 et 100 s^{-1} , l'augmentation du paramètre d_v permet d'obtenir une turbidité plus basse après filtration.

Cette manque d'effet de Gt, ainsi que le fait que la turbidité de l'eau brute soit significative dans plusieurs analyses de variance sont les résultats d'une coagulation suboptimale. Quand la coagulation est suboptimale, la turbidité à l'eau filtrée est tout simplement fonction de celle à l'eau brute, soit la situation actuelle des filtres à l'usine Atwater.

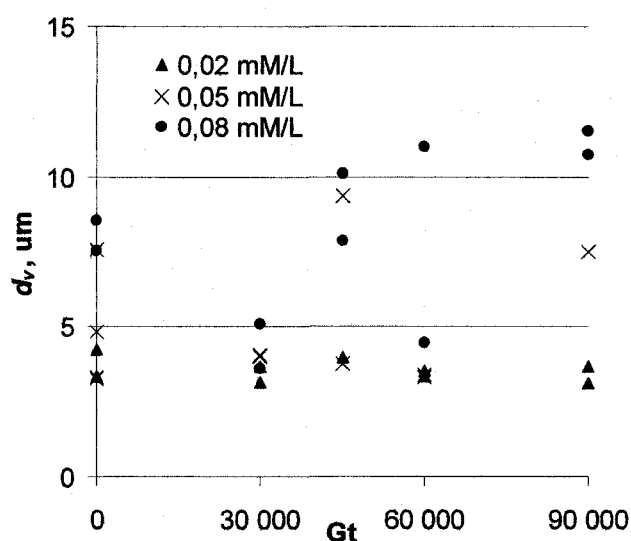


Figure 5-16. Effet de la concentration d'alun sur la croissance des flocs en fonction du Gt appliqué

Plusieurs des valeurs de d_v pour $Gt = 0$ sont plus élevées que des résultats avec des Gts de 30 000 (voir figure 5-16). Ce phénomène est probablement expliqué par le fait que pour les essais de filtration en ligne ($Gt = 0$), les plus gros flocs formés suite au mélange rapide n'ont pas été érodés par les forces de cisaillement dans le flocculateur avant d'être détectés par l'analyseur de particules, comme l'ont été les plus gros flocs formés pendant les essais de filtration directe ($Gt > 0$). Les gros flocs pour $Gt = 0$ ont donc augmenté la valeur moyenne du d_v sans toutefois prédire un meilleur enlèvement de la turbidité. La majorité des particules n'ont pas eu l'interaction nécessaire (ni avec le coagulant ni entre eux-mêmes) pour neutraliser leurs charges superficielles et ensuite coalescer dans des flocs qui auraient été mieux enlevés par le filtre.

Pour l'eau flocculée avec alun à $G = 100 \text{ s}^{-1}$, la turbidité à l'eau filtrée était plus élevée au pilote qu'au laboratoire pour les mêmes conditions. En laboratoire, l'essai en jar test assure une excellente dispersion dès le mélange rapide. En pilote, il est possible que l'injection des produits chimiques à 2,6 m (2,3 s de temps) avant le mélangeur statique a eu pour effet de ne pas disperser les coagulants d'une façon optimale lors de leur

premier contact avec l'eau brute. De plus, les temps de résidence non uniformes pour chaque incrément d'eau dans le flocculateur a pour conséquence de réduire la performance du traitement (pour un $T_{rés}$ trop bas la floculation n'est pas complétée, et pour un $T_{rés}$ trop élevée les forces de cisaillement cassent les floes). À l'opposée, un temps de contact de 15 minutes en cuvée au laboratoire a donné juste assez d'interactions entre les particules déstabilisées pour former des floes qui étaient enlevées même avec la mini-colonne de filtration.

Les conditions de mélange rapide ont aussi possiblement nuit au traitement avec alun, qui doit être assujéti à un mélange rapide avec G très élevé pour pouvoir atteindre son taux maximum de déstabilisation de particules (environ 450 s^{-1} selon Ebie et Azuma 2002). L'importance du flash mix est fonction du mécanisme de déstabilisation : neutralisation de charge vs. « sweep floculation » (Rossini et al. 1999). Dans ce cas, de très faibles concentrations de coagulant ajouté, le mécanisme de déstabilisation dominant est la neutralisation de charge. La dispersion de coagulant doit donc se faire très rapidement pour permettre aux produits d'hydrolyse d'aluminium de s'adsorber complètement aux colloïdes sans l'eau brute. Kan et al. (2002) mentionnent que les composés hydroxo-aluminium les plus efficaces en déstabilisation de particules se forment dans le premier 0,1 seconde de contact entre l'eau et l'alun, donc les conditions de mélange rapide lors des essais au pilote n'étaient pas optimales.

Le caractère pré-hydrolysé du PASS100 assure une meilleure réaction avec le peu de matières en suspension présente à l'eau brute et ce, même sous les conditions non-idéales de mélange rapide. Une représentation graphique des diamètres d_v des floes formés au pilote en fonction du Gt produit une courbe qui ressemble plus à celle des essais en laboratoire, où l'on observait le d_v croître en fonction de la valeur de Gt . De plus, tout comme au laboratoire, un diamètre d_v plus élevé est loin d'être le facteur le plus important pour prédire la turbidité détectée à l'eau filtrée. Ainsi, le PASS100 (surtout avec polymère) a produit une turbidité qui est uniformément basse, même pour les $d_v < 5 \text{ }\mu\text{m}$. En pilote, les floes formés sous les mêmes conditions ont toutefois un d_v

plus important (au maximum 50%) pour le PASS100 que pour ceux formés par l'alun. La turbidité à l'eau filtrée pour l'eau floculée avec de l'alun est par contre 2,5 fois plus importante que celle floculée avec du PASS100.

Selon la figure 5-11, le PASS100 semble être moins dépendant en pilote qu'au laboratoire de la présence de polymère pour produire une faible turbidité à l'eau filtrée. Ces observations sont aussi le résultat d'une lacune de données fiables à 0,05 mM/L au laboratoire (parmi les points pour cette condition en eau froide, 33% semblent être des observations aberrantes) et non du coagulant ou des filtres utilisés. Ainsi, un impact aussi important du polymère sur la turbidité à l'eau filtrée n'a pas été détecté à 0,02 ni à 0,08 mM/L en laboratoire. De plus, l'effet du polymère sur les deux paramètres d_v et turbidité à l'eau filtrée est plus petite au laboratoire car au laboratoire la coagulation-floculation est plus efficace; le polymère est donc moins utile. Finalement, le ratio L/D avantageux des filtres au pilote assure un meilleur enlèvement de matières en suspension. Il est à noter que les flocs de PASS100 formés en laboratoire sont uniquement plus grands que ceux formés en pilote pour les conditions d'ajout de polymère et de $G = 100 \text{ s}^{-1}$.

Ducoste et Clark (1998a) ont étudié le rôle que jouent la mise à échelle et la géométrie de l'impulseur dans la floculation. Ils ont démontré que le diamètre moyen de flocs baisse toujours avec une mise à plus grande échelle pour floculation avec G équivalent, et ce, à cause de l'effet des « turbulent fluctuating velocities » différents étalés sur le diamètre de la cuve. Les grands flocs seraient assujettis à des forces de cisaillement plus élevées à grande échelle. Cette différence est fonction de la vitesse de l'extrémité de l'impulseur et de la géométrie même de l'impulseur (i.e. du nombre de puissance ou « power number »). Ils ont conclu explicitement qu'assurer un G et un temps de floculation équivalent pour deux systèmes à échelles différentes n'est pas suffisant pour prédire la performance de floculation d'un système à l'autre. Ainsi, le « power number » N_p de l'impulseur (inconnu pour les tests en cuvées ainsi que pour le pilote, en raison de sa difficulté de calcul, Chapple et al. 2002) serait préférable au G pour prédire

le diamètre moyen des floccs, particulièrement le contrôle de la vitesse à l'extrémité de l'impulseur. Avec cette relation, ils ont réussi à prédire les diamètres moyens des floccs formés dans une cuve de 560 L avec les données d'une cuve de 5 L (remarquez que même leurs études à grand échelle ont été faits en cuvée et non en continue). Étant limité aux impulseurs décrits précédemment lors de cette étude, une prédiction mathématique précise de la performance de la floculation au laboratoire pilote avec les résultats des essais faits à petite échelle n'a pas été possible.

La comparaison des tailles de floccs et de la turbidité à l'eau filtrée obtenus au laboratoire et au pilote fut concluante : les données produites au laboratoire peuvent être utilisées pour prédire les tendances observées à une échelle pilote. Il est cependant important de prendre l'hydraulique en compte, afin d'assurer une imitation aussi fidèle que possible de cette dernière ainsi que de la géométrie des mélangeurs lors de la mise à l'échelle. Il est proposé que les résultats d'un plan expérimental réalisés au laboratoire pourraient ainsi être validés par quelques essais au pilote, sans devoir évaluer toutes les conditions.

5.4.2. Modélisation de d_v

Les floccs sont plus petits en pilote ($> 160\%$ pour les floccs d'alun et d'environ 60% pour les floccs de PASS100 formés avec du polymère et pour un G de 100 s^{-1} , sinon il n'y a pas eu de différence significative). Cette situation a rendu difficile l'utilisation de l'équation logistique car, à cette échelle, les tendances de croissance sont sujettes à de plus grandes marges d'erreur. L'équation logistique a tout de même permis un ajustement adéquat aux données sur une base de cas-par-cas (K et r différents pour chaque essai), sauf quand il y a de l'érosion des floccs qui entraîne alors une baisse de d_v après un certain temps.

Il est intéressant de noter l'effet négatif qu'a le G sur le diamètre $d_{v\max}$ d'alun (voir k_5 au tableau 5-7), effet prédit par Adler (1981). Ainsi, une hausse des forces de cisaillement (i.e. du G) a l'effet d'éroder les floccs ou de simplement réduire l'efficacité des collisions entre particules, ce qui est déduit par la réduction de la valeur de d_v . On n'observe pas

cet effet avec les floes de PASS100, à cause de leur indépendance apparente au paramètre G .

Une des plus grandes limitations du modèle basé sur l'équation logistique est qu'elle ne prend pas en compte les interactions entre les paramètres. Par exemple, à un G plus bas, la concentration de coagulant a une importance moindre, mais pour un G de 100, l'effet de la concentration est exponentiel.

D'autre part, il y a certains des résultats qui ne semblent pas explicables par les variables de contrôle de la floculation. Par exemple, pour un G de 100 s^{-1} au laboratoire, à une concentration de 0,02 et 0,05 mM/L de PASS100, l'ajout de 0,25 mg/L de polymère augmente le diamètre du floc par un facteur de 2 et 6 respectivement, mais à 0,08 mM/L, les essais avec polymère donnent des floes avec un d_v légèrement plus petit que ceux sans polymère ajouté. Plus d'essais sont requis pour produire un modèle empirique plus robuste. Il est possible, par exemple, que le stockage de l'eau utilisée pour les essais en laboratoire (conservée au maximum deux jours au froid) puisse avoir eu un impact en termes d'auto-floculation et causé quelques unes des données aberrantes.

De plus, il est important d'évaluer l'utilité de modéliser le d_v s'il ne prédit pas toujours l'enlèvement de la turbidité. Les diagrammes de Pareto à la figure 5-12, issus d'une évaluation statistique de la signification des paramètres prédictives de la turbidité après filtration, indiquent que le d_v n'est pas significatif (son p est légèrement au-delà du seuil de signification de 0,05), ni pour les floes d'alun, ni pour ceux de PASS100. Ce peu de corrélation témoigne de l'utilité limitée de prédire le d_v . Il est suggéré que bien que le modèle ne puisse pas directement prédire la turbidité, il pourrait être utilisé pour approximer des valeurs de d_v pour différentes conditions de floculation. Ces valeurs pourraient ensuite donner une idée générale des tendances dans la turbidité à l'eau filtrée après floculation sous de telles conditions.

5.4.3. Effets de pompage sur les floes

Selon les résultats présentés à la section 5.3.4, c'est essentiellement l'accumulation des pertes de charge qui a été affectée par le pompage de l'eau floculée et non la turbidité après filtration. Le pompage a réduit le taux d'accumulation des pertes de charges. La réduction du diamètre des floes a probablement réduit l'effet de tamisage, lequel se produit en surface des filtres et est reconnu pour hausser la perte de charges. L'analyse des profils de pertes de charge en fonction de la profondeur permettrait d'élucider cette hypothèse. Globalement, il peut donc être conclu que l'applicabilité des résultats de cette étude pilote n'est pas affectée significativement par l'étape de pompage, et ce, pour les résultats des essais au laboratoire autant qu'au pilote (l'étape de pompage de l'eau floculée vers la mini-colonne utilisée au laboratoire). Il est cependant à noter que l'effet semble s'accroître avec une hausse de la dose de coagulant (et donc de la taille des floes). Cette conclusion s'applique donc particulièrement au cas où les doses de coagulant utilisées sont faibles, ce qui est le cas pour cet étude.

5.5. Conclusions

Comme les essais en laboratoire l'ont démontré, les résultats des essais de floculation et filtration au pilote prouvent que le PASS100 est un meilleur coagulant que l'alun. De plus, ce coagulant a la capacité de produire une turbidité basse à l'eau filtrée avec peu ou pas de floculation. La prédiction du d_f atteint lors de l'étape de floculation avec l'alun ne permet cependant pas de prédire la turbidité à l'eau filtrée, mais peut toutefois contribuer à prédire ses tendances.

Quant à la mise à l'échelle et la prédiction des résultats, ce sont un mélange rapide non-optimal, des impulseurs différents dans les deux laboratoires et des forces de cisaillement accrues dans les grandes cuves du flocculateur qui n'ont pas permis une modélisation adéquate des résultats des deux laboratoires avec une seule et même équation. Le dosage de coagulant n'a pas été suffisant non plus. Les tendances au

pilote reflètent tout de même bien celles au laboratoire. Réaliser des essais en laboratoire reste par conséquent une pratique utile pour prédire les tendances en l'absence d'un accès à un pilote, ou dans l'objectif de compléter une matrice d'essais.

CHAPITRE 6 : DISCUSSION ET CONCLUSION GÉNÉRALE

6.1. Discussion générale

Le présent projet de recherche est divisé en deux principales parties que sont les chapitres 4 et 5. Le chapitre 4 présente une évaluation du Photometric Dispersion AnalyzerTM et du Dynamic Particle AnalyzerTM comme outils indirect et direct, respectivement, de suivi de la floculation de l'eau brute de l'usine d'eau potable Atwater. L'effet de plusieurs variables (type et concentration de coagulant, la température et l'énergie de mélange) sur la taille des floes et la turbidité à l'eau filtrée est étudié. Le chapitre 5 présente les résultats d'une mise à échelle sur un pilote industriel d'une série d'essais représentatifs de ceux entrepris dans le cadre du Chapitre 4, ainsi qu'une modélisation des résultats.

Le diamètre volumétrique pondéré d_v , a été calculé à partir du compte de particules pour les eaux brutes et floculées étudiées lors de la première étape du projet. Il a été identifié comme un bon paramètre ($r^2 = 0,81$) pour évaluer les effets des variables (température, énergie de mélange, concentration et type de coagulant) sur la floculation. La taille des floes n'est cependant pas suffisante pour prédire la turbidité à l'eau filtrée, bien que les tendances vers un d_v plus élevé indiquent presque toujours des tendances vers une turbidité plus basse à l'eau filtrée. Une exception à cette conclusion concerne le résultat des essais avec le coagulant pré-hydrolysé PASS100, qui donne basses turbidités indépendamment de la taille des floes produits. Par ailleurs, l'utilisation d'un polymère cationique a eu comme effet d'améliorer la turbidité à l'eau filtrée sans affecter le d_v pour autant.

Le paramètre d_v a été sélectionné comme étant le meilleur indice mesurable avec les instruments utilisés pour faire le suivi de la floculation. Cependant, il représente essentiellement une valeur agrégée de la distribution de taille de particules et ne peut donc pas décrire tous les caractéristiques importantes à viser pour la filtration directe dont la dimension fractale ou la résistance des floes. Par exemple, le Dynamic Particle Analyzer fournira un même diamètre en mesurant un gros floe avec porosité très élevée

que pour un floc plus dense mais plus petit, même si l'observation des floes sur l'écran pendant la floculation permet une description qualitative de leur structure. De plus, il ne prend pas en compte les particules à diamètres inférieurs à 1 μm , ce qui ne permet malheureusement pas de faire un bilan complet sur les particules lors de la floculation. Il serait utile de vérifier si la performance de la filtration directe est maximale lorsqu'on minimise la concentration de particules inférieure à 1 μm . Le diamètre pondéré d_v a toutefois été sélectionné parmi les paramètres calculés à partir des données du compteur de particules comme étant celui qui est le mieux prédit par les conditions variables de floculation. De plus, en comparaison, le signal du PDA n'est presque que du bruit aux conditions étudiées et ne donne de l'information que sur les plus gros floes. Cependant, la très bonne performance du PASS100 pour réduire la turbidité à l'eau filtrée demeure inexpliquée par le d_v .

Le concept « Gt » et son effet sur les floes ont également été explorés dans le chapitre 4. Le nombre de Camp a bien prédit la qualité de la floculation telle qu'indiquée par un d_v élevé, mais seulement pour des G s au-delà du seuil requis pour garder les particules en suspension et assurer leur interaction, car sinon, le d_v n'était pas fonction de Gt . Cette observation supporte les travaux de Lawler et al. (1992) qui suggèrent qu'un G minimal est nécessaire à la floculation. L'ajout d'un polymère semble annuler l'effet bénéfique d'augmenter le Gt sur la turbidité à l'eau filtrée. Cette observation est probablement causée par la résistance accrue des floes aux forces de cisaillement en présence de polymère. Le fait d'augmenter le d_v permet donc d'abaisser la turbidité à l'eau filtrée mais seulement quand le polymère n'est pas utilisé. Il est à noter que les valeurs de d_v en fonction du temps forment une courbe en forme de « S ». Cette tendance a servi à la modélisation de la floculation tel que décrite au chapitre 5.

Il est important de connaître les conditions hydrodynamiques dans le flocculateur du pilote industriel pour pouvoir bien comparer les résultats des deux échelles d'expérimentation. Un essai de traçage fut donc effectué dans les bassins de floculation du pilote pour déterminer le temps de rétention hydraulique et le nombre théorique de

bassins complètement mélangés qui le représente. Ensuite, une série d'essais fut effectuée pour évaluer l'effet de certaines variables (G, temps de floculation, type de filtre, concentration et type de coagulant) sur la floculation au pilote. Les floccs étaient mesurés directement avec le Dynamic Particle Analyzer avant d'être pompés aux filtres. Il fut démontré que, pour des faibles doses de coagulant, l'effet du re-pompage n'était pas significatif. La turbidité est difficilement comparable entre le labo et la pilote car les filtres sont différents, mais les tendances sont identiques. Par exemple, bien que les floccs formés sous les mêmes conditions aient un d_v plus important (au maximum 50%) pour le PASS100 que pour ceux formés par l'alun, la turbidité à l'eau filtrée pour l'eau flocculée avec de l'alun est 2,5 fois plus importante que celle flocculée avec du PASS100. De plus, la turbidité de l'eau brute est significative dans l'explication de la turbidité à l'eau filtrée après coagulation avec alun, ce qui semble indiquer une coagulation suboptimale.

Une analyse statistique des variables qui affectent le plus la turbidité à l'eau filtrée a démontré l'importance de la concentration d'alun au-delà de tout autre paramètre, et pour le PASS100, l'ajout de polymère était déterminant. L'équation logistique,

$$d_v(t) = \frac{Kd_{vEB}e^{rt}}{K + d_{vEB}(e^{rt} - 1)}, \text{ donne une courbe qui a permis de modéliser la}$$

cinétique de d_v obtenus lors des essais au laboratoire. Cette relation fut donc utilisée pour modéliser les résultats des essais en eau froide des deux parties du projet. Étant donné que l'hydraulique en cuvée est plus favorable à une bonne floculation que celle d'un réacteur en continu, la cinétique de floculation qui y règne est non seulement plus rapide, mais aussi plus complète. C'est-à-dire que les floccs sont plus gros et les périodes de croissance détectables plus rapidement.

La géométrie de l'impulseur influence probablement la mise à échelle d'une floculation (Ducoste et Clark 1998a). Or, les impulseurs diffèrent entre le laboratoire et la pilote, donc une prédiction mathématique précise de la performance de la floculation au pilote

basée sur les résultats des essais faits à petite échelle n'a pas été possible. Les résultats ont donc été modélisés avec des équations aux paramètres différents.

La modélisation de la floculation des deux étapes a été accomplie avec succès avec le modèle logistique (R^2 moyen de 0,85). Grâce à sa grande facilité d'utilisation pour l'eau d'Atwater, ce modèle est plus utile que celui de Smoluchowski pour prédire la formation de flocs. Ce dernier requiert en effet la connaissance des classes de particules divisées selon leurs tailles, une information difficile à obtenir au début d'une floculation et impossible à obtenir pour après. Par contre, pour rendre ce modèle réellement utile en termes de prédiction de la turbidité à l'eau filtrée, il faudrait mieux comprendre le comportement des flocs à l'intérieur de filtres granulaires. Il serait donc intéressant d'étudier l'effet de filtrer une même eau floculée avec toute une série de filtres granulaires de configurations variables tout en faisant varier les caractéristiques de flocs pour ensuite connaître l'effet sur leur enlèvement.

6.2. Conclusion générale

L'objectif principal de ce projet était de déterminer la relation entre les caractéristiques générales des flocs et l'enlèvement de la matière particulaire par une filtration granulaire directe. Le degré de floculation a été évalué avec deux instruments, le Dynamic Particle AnalyzerTM et le Photometric Dispersion Analyzer (PDA), et ce fut le diamètre pondéré volumétrique, d_v , calculé à partir du compte de particules, qui s'est avéré le plus précis pour décrire la floculation. Établir une relation claire entre le d_v et la turbidité à l'eau filtrée n'a pas été possible. Cette relation est influencée par des facteurs non contrôlés ni détectés lors des essais, tels que la résistance des flocs aux forces de cisaillement et les particules à diamètre en bas de 1 μm . Généralement accroître la valeur de d_v indique presque toujours des tendances vers une turbidité plus basse à l'eau filtrée. Cependant, certaines conditions de floculation (utilisation du PASS100 ou de polymère) réduisent l'importance de d_v pour prédire la turbidité de l'eau filtrée.

Quant aux objectifs spécifiques, les conclusions suivantes ont été tirées suite à l'évaluation de données obtenues dans le cadre de ce travail :

- Le PASS100 est le meilleur coagulant des trois coagulants inorganiques pour ces eaux en termes de réduction de la turbidité à l'eau filtrée à 4°C. Ses performances sont équivalentes à celles des autres coagulants à 22°C.
- Une température élevée accélère la formation de floccs et donc l'enlèvement de la matière particulaire.
- L'utilisation d'un polymère organique augmente de peu la taille mesurée des floccs, mais produit une turbidité significativement plus basse à l'eau filtrée pour des conditions équivalentes de floculation.
- Augmenter l'énergie de mélange G de 0 à 100 s^{-1} améliore l'enlèvement de la turbidité au laboratoire, mais ce, uniquement pour les essais sans polymère. Les impacts liés à une hausse du G en pilote sont variés : il y a eu peu d'effet sur la floculation et la turbidité à l'eau filtrée pour l'alun et pour la turbidité à l'eau filtrée pour le PASS100, mais a un effet important sur la taille des floccs de PASS100.
- La taille des floccs est fonction directe du Gt , jusqu'à l'atteinte d'une valeur seuil,
- Le PDA n'est pas un outil assez sensible pour évaluer le degré de floculation pour l'eau de l'usine Atwater.
- Les tendances des résultats des essais au pilote reflètent celles au laboratoire mais à avec des plus faibles variations.

Des futures études pourraient se pencher sur la question de l'effet des particules à diamètre inférieur à 1 μm sur la turbidité à l'eau filtrée et leur comportement lors de la

floculation et dans des filtres granulaires. Ce serait aussi important d'élucider les raisons pour l'efficacité du PASS100 et du polymère en terme des caractéristiques de floes.

BIBLIOGRAPHIE

Adler, P. M. (1981). "Heterocoagulation in shear flow." Journal of Colloid and Interface Science **83**(1): 106-115.

Ammary, B. Y. and J. L. Cleasby (2004). "Effect of addition sequence on dual-coagulant performance." Journal / American Water Works Association **96**(2): 90-101.

APHA, AWWA, WPCF. (1998). Standard methods for the examination of water and wastewater 20th Edition. Washington, D.C., American Public Health Association Inc.

Argaman, Y. and W. J. Kaufman (1970). "Turbulence and Flocculation." Journal of the Sanitary Engineering Division, ASCE **96**(2): 223-241.

Averill, D. W., G. T. Eastwood, et al. (1991). "Analysis and modelling of particle size distributions in flocculant suspensions." Water Supply **9**(supp): 103-108

Bernhardt, H. and H. Schell (1993). "Effects of energy input during orthokinetic aggregation on the filterability of generated flocs." Water Science and Technology **27**(10): 35-65.

Camp, T. R. and P. C. Stein (1943). "Velocity gradients and internal work in fluid motion." Boston Society of Civil Engineers -- Journal **30**(4): 219-237.

Chapple, D., S. M. Kresta, et al. (2002). "The effect of impeller and tank geometry on power number for a pitched blade turbine." Chemical Engineering Research and Design **80**(4): 364-372.

Cheng, W. P., Y. P. Kao, et al. (2008). "A novel method for on-line evaluation of floc size in coagulation process." Water Research **42**(10-11): 2691-2697.

Chuang, C. J. and K. Y. Li (1997). "Effect of coagulant dosage and grain size on the performance of direct filtration." Separation and Purification Technology **12**(3): 229-241.

Drewes, J. E., T. Ingels, et al. (2007). Optimizing Filtration Processes through Online Floc Particle Characterization. AWWARF.

Ducoste, J. J. and M. M. Clark (1998a). "Influence of tank size and impeller geometry on turbulent flocculation: I. Experimental." Environmental Engineering Science **15**(3): 215-224.

- Ducoste, J. J. and M. M. Clark (1998b). "Influence of tank size and impeller geometry on turbulent flocculation: II. Model." Environmental Engineering Science **15**(3): 225-234.
- Ebie, K., T. Kawaguchi, et al. (2006). "Dynamic analysis of coagulation of low turbidity water sources using Al- and Fe-based coagulants." Water Science and Technology **53**(6): 67-74.
- Ernest, A. N., J. S. Bonner, et al. (1995). "Determination of particle collision efficiencies for flocculent transport models." Journal of Environmental Engineering **121**(4): 320-329.
- Fitzpatrick, C. S. B., E. Fradin, et al. (2004). "Temperature effects on flocculation, using different coagulants." Water Science and Technology **50**(12): 171-175.
- Graham, N. J. D. (1986). "Orthokinetic Flocculation in Rapid Filtration." Water Research **20**(6): 715-724.
- Gregory, J. and D. W. Nelson (1984). A new optical method for flocculation monitoring. Solid-Liquid Separation. J. Gregory. Chichester, UK, Ellis Horwood: 172-182.
- Gregory, J. (1985). "Turbidity Fluctuations in Flowing Suspensions." Journal of Colloid and Interface Science **105**(2): 357-371.
- Gregory, J. (1989). "Fundamentals of Flocculation." CRC Critical Reviews in Environmental Control CCECAU **19**(3): 185-230.
- Haarhoff, J. and H. Joubert (1997). "Determination of aggregation and breakup constants during flocculation." Water Science and Technology **36**(4): 33-40.
- Haase, D., N. Spiratos, et al. (1991). Polymeric basic aluminum silicate-sulphate U. P. T. Office. United States. **4,981,675**.
- Hahn, H. H. and W. Stumm (1968). "Kinetics of coagulation with hydrolyzed Al(III)." Journal of Colloid and Interface Science **28**(1): 134-144.
- Han, M. and D. F. Lawler (1992). "(Relative) insignificance of G in flocculation." Journal of the American Water Works Association **84**(10): 79-91.
- Hanson, A. T. and J. L. Cleasby (1990). "Effects of temperature on turbulent flocculation. Fluid dynamics and chemistry." Journal of the American Water Works Association **82**(11): 56-73.

Hayes, R. E. (2001). Introduction to Chemical Reator Analysis. Amsterdam, Gordon and Breach Science Publishers.

Hopkins, D. C. and J. J. Ducoste (2003). "Characterizing flocculation under heterogeneous turbulence." Journal of Colloid and Interface Science **264**(1): 184-194.

Huang, H. (1994). "Fractal properties of flocs formed by fluid shear and differential settling." Physics of Fluids **6**(10): 3229.

Ives, K. J. (1968). "Theory of operation of sludge blanket clarifiers." Institution of Civil Engineers -- Proceedings **39**: 249-260.

Janssens, J. G. and A. Buekens (1987). "THEORETICAL ANALYSIS AND PRACTICAL APPLICATION OF THE KINETIC MODEL OF FLOCCULATION IN THE INPTERPRETATION OF JAR TESTS." Aqua (Oxford)(2): 91-97.

Kan, C., C. Huang, et al. (2002). "Time requirement for rapid-mixing in coagulation." Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects **203**(1-3): 1-9.

Kang, L.-S. and J. L. Cleasby (1995). "Temperature effects on flocculation kinetics using Fe(III) coagulant." Journal of Environmental Engineering **121**(12): 893-901.

Kau, S. M. and D. F. Lawler (1995). "Dynamics of deep-bed filtration: Velocity, depth, and media." Journal of Environmental Engineering **121**(12): 850-859.

Kim, J. and D. F. Lawler (2006). "Aspects of particle attachment in filtration." Water Science and Technology: Water Supply **6**(4): 125-134.

Kusters, K. A., J. G. Wijers, et al. (1997). "Aggregation kinetics of small particles in agitated vessels." Chemical Engineering Science **52**(1): 107-121.

Lawler, D. F. (1993). "Physical aspects of flocculation: from microscale to macroscale." Water Science and Technology **27**(10): 165-180.

Lemelson-MIT (2000). Wallace Coulter (1913-1998) Automated Blood Analysis. <http://web.mit.edu/invent/iow/coulter.html>

Li, D.-h. and J. Ganczarczyk (1989). "Fractal geometry of particle aggregates generated in water and wastewater treatment processes." Environmental Science and Technology **23**(11): 1385-1389.

Liu, H.-L., D.-S. Wang, et al. (2006). "Effects of pre-ozonation on organic matter removal by coagulation with IPF-PACI." Journal of Environmental Sciences **18**(3): 453-458.

MWH, Ed. (2005). Water Treatment Principles and Design, Wiley.

Matsui, Y., A. Yuasa, et al. (1998). "Dynamic analysis of coagulation with alum and PACl." Journal / American Water Works Association **90**(10): 96-106.

Matsui, Y. and N. Tambo (1991). "Online floc size evaluation by photometric dispersion analyzer." Water Supply **9**(1): 71-78.

O'Melia, C. R. and J. Y. Shin (2001). "Removal of particles using dual media filtration: Modeling and experimental studies." Water Science and Technology: Water Supply **1**(4): 73-79.

Quintern, D., A. Kellil, et al. (1987). CHARACTERIZATION OF FLOCCULATED PARTICLES, Miami Beach, FL, USA, Hemisphere Publ Corp, Washington, DC, USA.

Rawlings, M. M., C. S. B. Fitzpatrick, et al. (2006). "The effect of polymeric flocculants on floc strength and filter performance." Water Science and Technology **53**(7): 77-85.

Rossini, M., J. G. Garrido, et al. (1999). "Optimization of the coagulation-flocculation treatment: Influence of rapid mix parameters." Water Research **33**(8): 1817-1826.

Sakohara, S., H. Unno, et al. (1981). "REMOVAL OF TURBIDITY BY THE USE OF AN ORGANIC, POLYMERIC FLOCCULANT. ANALYSIS USING A SIMPLE BRIDGING MODEL." International Chemical Engineering **21**(4): 652-658.

Shin, J. Y. and C. R. O'Mella (2006). "Pretreatment chemistry for dual media filtration: Model simulations and experimental studies." Water Science and Technology **53**(7): 167-175.

Smoluchowski, M. V. (1917). "Versuch einer mathematischen Theorie der Koagulationskinetik kolloidaler Lösungen." Z. Phys. Chem. **92**: 129-168.

Spicer, P. T. and S. E. Pratsinis (1996). "Coagulation and fragmentation: universal steady-state particle-size distribution." AIChE Journal **42**(6): 1612-1620.

Tambo, N., T. Takakuwa, et al. (1979). "A mathematical model of turbulent flocculation process." Memoirs of the Faculty of Engineering, Hokkaido University **15**(2): 163-73.

Thomas, D. N., S. J. Judd, et al. (1999). "Flocculation modelling: A review." Water Research **33**(7): 1579-1592.

Tufenkji, N., D. R. Dixon, et al. (2006). "Multi-scale Cryptosporidium/sand interactions in water treatment." Water Research **40**(18): 3315-3331.

Verhulst, P. F. (1845). "Recherches Mathematiques sur la Loi d'Accroissement de la Population." Nouveaux Memoires de l'Academie Royale des Sciences et Belles-Lettres de Bruxelles **18**(1): 1-45.

Vigneswaran, S., S. Notthakun, et al. (1984). "FLOCCULATION TIME OPTIMIZATION IN DIRECT WATER FILTRATION." Effluent & Water Treatment Journal **24**(7): 270-274.

Wang, Y., B.-Y. Gao, et al. (2005). "On-line optical determination of floc size of Fe(III) coagulants." Journal of Environmental Sciences **17**(6): 921-925.

Wang, D. and H. Tang (2006). "Quantitative model of coagulation with inorganic polymer flocculant PACI: Application of the PCNM." Journal of Environmental Engineering **132**(5): 434-441.

Xu, G. R. and C. S. B. Fitzpatrick (2006). "The effects of filtration temperature and alum dosing on Cryptosporidium sized particle breakthrough." Water Science and Technology: Water Supply **6**(1): 193-200.

Young, S., S. J. Stanley, et al. (2000). "Effect of mixing on the kinetics of polymer-aided flocculation." Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA **49**(1): 1-8.

Yukselen, M. A. and J. Gregory (2004). "The effect of rapid mixing on the break-up and re-formation of flocs." Journal of Chemical Technology and Biotechnology **79**(7): 782-788.

Zhang, J.-J. and X.-Y. Li (2003). "Modeling particle-size distribution dynamics in a flocculation system." AIChE Journal **49**(7): 1870-1882.

ANNEXE 1 : Les concentrations de F^- pendant l'essai de traçage des flocculateurs en pilote : Montée et descente

