



HAL
open science

Procédé de traitement anaérobie des boues et de valorisation du biogaz

Jin Bai Zhang

► **To cite this version:**

Jin Bai Zhang. Procédé de traitement anaérobie des boues et de valorisation du biogaz. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2011. Français. NNT : 2011INPL106N . tel-01749534

HAL Id: tel-01749534

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749534>

Submitted on 29 Mar 2018

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

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



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

École Nationale Supérieure des Industries Chimiques

Laboratoire Réactions et Génie des Procédés

École Doctorale RP2E

THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine

Spécialité : Génie des Procédés et des Produits

Par

Jin Bai ZHANG

Sujet :

**PROCEDE DE TRAITEMENT ANAEROBIE DES BOUES ET
DE VALORISATION DU BIOGAZ**

Soutenance publiquement le 12 Décembre 2011

Membres du jury

Président	M. Noël MIDOUX, Professeur (LRGP-ENSIC, Nancy)
Rapporteurs	Mme. Dominique TOYE, Professeur (Institut de Chimie-Université de Liège, Liège) M. Renaud ESCUDIE, Chargé de recherche INRA (LBE-INRA, Narbonne)
Examineurs	M. Michel HAMELIN, Directeur adjoint de l'action internationale (ADEME, Paris) M. Thomas THOUVENOT, Ingénieur de recherche (Centre R&D Véolia, Maison-Laffitte) M. Huai Zhi LI, Professeur (Directeur de thèse, LRGP-ENSIC, Nancy) Mme. Souhila PONCIN, MdC (Co-directrice de thèse, LRGP-ENSIC, Nancy)

Remerciements

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont été menés au sein du Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP) de l'Ecole Nationale Supérieure des Industries Chimiques (ENSIC). Je remercie M. Michel Sardin, ancien directeur du LRGP et M. François Lapique puis M. Huai Zhi Li, responsables successifs de l'équipe SYSPOL, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire.

En premier lieu, je remercie mon directeur de thèse, M. Huai Zhi LI, pour son soutien inconditionnel qui a permis la réalisation de ce travail dans les meilleures conditions.

Je remercie Mme. Souhila Poncin, ma codirectrice de thèse, pour l'intérêt qu'elle a porté au sujet, pour les discussions fructueuses autour des manipulations, sa gentillesse et sa patience.

Je tiens également à exprimer toute ma reconnaissance à Mme Jing Wu, professeur de l'université Tsinghua, qui a beaucoup contribué à la réalisation de ce travail.

Je tiens également à remercier les deux organismes qui ont soutenu financièrement ce projet, l'ADEME et la région Lorraine.

Je tiens à remercier M. Noël Midoux, professeur de l'ENSIC, président du jury d'une part d'avoir accepté de présider le jury et d'autre part pour l'intérêt qui a toujours porté à ce travail.

Je veux également exprimer toute ma gratitude aux autres membres du jury : M. Michel Hamelin, directeur adjoint de l'action internationale de l'ADEME et M. Thomas Thouvenot, ingénieur de recherche du centre R&D Véolia. Plus particulièrement aux deux rapporteurs, Mme. Dominique Toye, professeur de l'université de Liège et M. Renaud Escudie, chargé de recherche de l'INRA, pour avoir accepté de juger ce travail.

Un grand merci au personnel technique du LRGP des différents services: Atelier de mécanique, secrétariat.

Je remercie également mes collègues, pour leurs conseils et leur disponibilité, Denis Fünfschilling, Tao Tao Fu, Nicolas Dietrich, Odile Carrier, Sajia Khelifi, lokmane Abdelouahed et Jian Kai Jiang.

TABLE DES MATIERE

INTRODUCTION GENERALE..... 1

CHAPITRE I. SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE

I.1 DIGESTION ANAÉROBIE..... 9

I.1.1 Définitions sur l'application de la méthanisation 9

I.1.2 Processus anaérobies de méthanisation..... 10

I.1.2.1 Hydrolyse et acidification 11

I.1.2.2 Acétogénèse 12

I.1.2.3 Méthanogénèse 13

I.1.2.4 Autres voies de production du méthane..... 15

I.1.3 Composition et valorisation du biogaz..... 15

I.1.3.1 Composition du biogaz 15

I.1.3.2 Valorisation énergétique du biogaz 17

I.1.3.2.1 Energie thermique 17

I.1.3.2.2 Electricité 17

I.1.3.2.3 Carburant automobile..... 18

I.1.3.2.4 Réseaux locaux de gaz 18

I.1.4 Evolution des procédés anaérobies..... 19

I.1.4.1 Evolution des réacteurs anaérobies 19

I.1.4.2 Différents types de bioréacteurs anaérobies 21

I.1.4.2.1 Réacteurs à boues libres ou « contact » 22

I.1.4.2.2 Réacteurs UASB ou à boues granuleuses 23

I.1.4.2.3 Réacteurs à boues immobilisées et réacteurs à lits fluidisés..... 30

I.2. BOUES GRANULAIRES ANAÉROBIES DANS LES BIOREACTEURS 34

I.2.1 Caractéristiques des boues granulaires anaérobies..... 34

I.2.1.1 Composition..... 34

I.2.1.2	Microstructure.....	35
I.2.1.3	Taille, forme et densité	37
I.2.1.4	Cavités, canaux et porosité	38
I.2.1.5	Résistance	39
I.2.1.6	Hydrophobicité	39
I.2.2	Contraintes biologiques des boues granulaires	40
I.2.2.1	Influence du pH des effluents	40
I.2.2.2	Influence de la température.....	41
I.2.2.3	Influence du substrat	43
I.2.2.4	Influence des acides gras volatils.....	44
I.2.2.5	Influence du débit d'entrée de liquide	45
I.3.	HYDRODYNAMIQUE DANS DES BIOREACTEURS	
.....	46
I.3.1	Fluidisation.....	47
I.3.1.1	Différents modes de fluidisation triphasique	47
I.3.1.2	Comportement hydrodynamique du lit triphasique	48
I.3.1.2.1	Comportement de la phase liquide.....	48
I.3.1.2.2	Comportement de la phase gazeuse	50
I.3.1.2.3	Rétentions des phases	51
I.3.2	Modèle d'écoulement	52
I.3.2.1	Écoulement dispersif.....	52
I.3.2.2	Écoulement en cascade	53
I.3.3	Contraintes de cisaillement hydrodynamiques.....	54
I.3.3.1	Notion du cisaillement	55
I.3.3.2	Vitesse de cisaillement.....	56
I.3.3.3	Contrainte de cisaillement.....	56
I.3.3.4	Viscosité.....	57
I.3.3.5	Effet du cisaillement	58
I.3.3.5.1	Cas particulier de l'UASB	59
I.3.3.5.2	Cas particulier du CSTR	59
I.3.3.5.3	Cas particulier du réacteur IC	60

CHAPITRE II. DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET TECHNIQUES DE MESURES

II.1. DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX	65
II.1.1 Réacteurs multi-échelles.....	65
II.1.1.1 Colonne 2D et bioréacteur 2D	65
II.1.1.2 Microréacteur.....	66
II.2. TECHNIQUES DE MESURES	66
II.2.1 Caméra rapide numérique	67
II.2.2 Vélocimétrie par Images de Particules (PIV).....	68
II.2.2.1 Montage du système PIV	68
II.2.2.2 Ensemencement de la phase liquide par les particules de traceur	69
II.2.2.3 Traitement d'images	70
II.2.2.4 Principe du système PIV.....	71
II.2.3 Micro-Vélocimétrie par Images de Particules (μ -PIV).....	71
II.2.4 Microscope.....	74
II.2.5 pH mètre, chromatographie et mesure de DCO	75

CHAPITRE III. ETUDE EXPERIMENTALE MULTI ECHELLE

III.1 ETUDE EXPERIMENTALE A MESOECHELLE	80
III.1.1 Etude en maquette froide dans la colonne 2D.....	80
III.1.1.1 Etude hydrodynamique lors de l'ascension des bulles dans l'eau.	82
III.1.1.2 Trajectoires des granules de boue	84
III.1.1.2.1 Granules de boue entraînés dans le sillage des bulles.....	88
III.1.1.2.2 Granules de boue en mouvement descendant.....	89
III.1.1.2.3 Granules de boue dont les trajectoires ascendantes sont influencées par les boucles de recirculation du liquide.....	91

III.1.1.2.4 Trajectoires de granules de boue influencées par les boucles de recirculation	95
III.1.1.3 Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue	98
III.1.1.3.1 Définition de la vitesse de cisaillement	98
III.1.1.3.2 Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue entraînées dans le sillage des bulles.....	101
III.1.2 Influence de la vitesse superficielle de liquide en maquette chaude dans le réacteur bidimensionnel	107
III.1.2.1 Conditions opératoires expérimentales	108
III.1.2.2 Procédure expérimentale et méthodes analytiques.....	110
III.1.2.3 Résultats et discussion.....	111
III.1.2.3.1 Influence du débit de liquide sur le débit de production de biogaz.....	112
III.1.2.3.2 Interprétation des caractéristiques des bulles produites	115
III.1.2.3.3 Vitesses de cisaillement autour de granules de boue en maquette chaude	119
III.1.2.4 Conclusion.....	128
III.1.3 Influence de la concentration DCO de substrat en maquette chaude dans le bioréacteur bidimensionnel.....	129
III.1.3.1 Conditions opératoires expérimentales	130
III.1.3.2 Procédure expérimentale et méthodes analytiques.....	131
III.1.3.3 Résultats et discussion.....	131
III.1.3.3.1 Influence de la concentration DCO sur le débit de production de biogaz.	132
III.1.3.3.2 Interprétation des caractéristiques des bulles produites	134
III.1.3.3.3 Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue en maquette chaude.....	140
III.1.3.4 Conclusion.....	146

III.2 ETUDE EXPERIMENTALE A MICROECHELLE

.....	147
III.2.1 Influence de la vitesse superficielle de liquide.....	147
III.2.1.1 Dispositif expérimental et conditions opératoires	147
III.2.1.2 Procédure expérimentale	148
III.2.1.3 Résultats et discussion.....	151
III.2.1.3.1 Phénomènes observés.....	151

III.2.1.3.2	Caractéristiques des bulles et débit de production de biogaz.....	154
III.2.1.3.3	Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue	167
III.2.1.4	Conclusion.....	170
III.2.2	Influence de la concentration DCO du substrat	170
III.2.2.1	Conditions opératoires et procédure expérimentale	170
III.2.2.2	Résultats et discussion.....	171
III.2.2.2.1	Caractéristiques des bulles et débit de production de biogaz.....	173
III.2.2.2.2	Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue	176
III.2.2.3	Conclusion.....	177
 CONCLUSION GENERALE		181
 PERSPECTIVES		185
 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES		193
 ANNEXES		209
A1.	Corrélation entre la vitesse de cisaillement suivant l'axe x et d_2 (d_2/d_1).....	211
A2.	Vitesse de cisaillement exercée sur un granule de boue à différentes concentration DCO en fonction du temps.....	215

NOMENCLATURE

Symboles latins

A	aire de la section	m^2
C	concentration	$kg.m^{-3}$
d, D	distance, diamètre	m
d_b	diamètre équivalent de la bulle	m
D_H	diamètre hydraulique	m
D_i	Coefficient de diffusion	$m^2.s^{-1}$
D_m	diamètre moyen des bulles	m
e	épaisseur	m
E	distribution des temps de séjour	s^{-1}
F	force	N
g	accélération de la pesanteur terrestre	$m.s^{-2}$
h, H	hauteur	m
L	longueur	m
m	masse	kg
P	pression	$N.m^{-2}$
t	temps	s
Q	débit volumique	$m^3.s^{-1}$
u	vitesse	$m.s^{-1}$
u_b	vitesse de la bulle	$m.s^{-1}$
V	volume	m^3
S	surface	m^2

Symboles grecs

ε	taux de rétention	-
$\dot{\gamma}$	vitesse de cisaillement	s^{-1}
μ	viscosité dynamique	Pa. s
η	viscosité cinématique	$m^2.s^{-1}$

ρ	masse volumique	kg.m^{-3}
τ	contrainte de cisaillement	N.m^{-2} ou Pa
σ	tension superficielle ou interfaciale	N.m^{-1}
ψ	taux de dissipation d'énergie	$\text{m}^2.\text{s}^{-3}$

Indices

$1,2,3,4$	numéro de l'expérience
b	bulle
C	Phase continue
D	Phase dispersée
g	gaz
L, l	liquide
p	particule
s	solide
x	composant horizontal
y	composant vertical

Grandeurs adimensionnelles

Re	$= \frac{\rho.u.d}{\mu}$	nombre de Reynolds
Re_D	$= \frac{\rho_C.u_D.d_D}{\mu_C}$	nombre de Reynolds de particule
Mo	$= \frac{\Delta\rho.g.\mu_C^4}{\rho_C^2.\sigma_C^3}$	nombre de Morton
P	$= \frac{\rho_C^2.\sigma_C^3}{\Delta\rho.g.\mu_C^4}$	nombre de capillarité-poussée
Pe	$= \frac{uL}{D_i}$	nombre de Péclet
Ca	$= \frac{\mu_C.u}{\sigma}$	nombre de capillarité

$$Bo = \frac{\rho_c d_D^2 g}{\sigma}$$

nombre de Bond/Eötvös

Abréviations

AGV	Acides Gras Volatils
CCD	Dispositif à transfert de charge (Charge-Coupled Device)
CMOS	Semi-conducteurs complémentaires à l'oxyde de métal (Complementary Metal-Oxyde Semiconductor)
CSTR	Réacteur continu parfaitement agité (Continuous Stirred Tank Reactor)
DCO	Demande Chimique en Oxygène
DTS	Distribution des Temps de Séjour
EGSB	Lit de boue granulaire en expansion (Expanded Granular Sludge Bed)
IC	Réacteur à recirculation interne (Internal Circulation Reactor)
MES	Matières En Suspension
MS	Matière Sèche
MVS	Matière Volatile en Suspension
PEC	Polymères Extra Cellulaires
PIV	Vélocimétrie par Images de Particules (Particle Image Velocimetry)
TRH	Temps de Rétention Hydraulique
UASB	Lits de boue anaérobie à flux ascendant (Upflow Anaerobic Sludge Blanket)

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

Aujourd'hui, la consommation d'énergie, spécialement celle des combustibles fossiles causée par le développement rapide de l'économie provoque une augmentation de la concentration de gaz à effet de serre dans l'atmosphère et entraîne des changements climatiques. D'autre part, les réserves de combustibles fossiles sont bientôt finies et, au rythme de consommation actuel, leur épuisement doit être envisagé. Il est donc nécessaire de diminuer la dépendance aux combustibles fossiles et d'explorer les nouvelles énergies renouvelables.

Le biogaz issu de méthanisation est un mélange inflammable composé principalement de méthane (CH_4) et de dioxyde de carbone (CO_2). Ce biogaz est une source d'énergie renouvelable dans la mesure où il est issu de matières organiques d'origine végétale ou animale, dont les cycles de renouvellement sont courts. La méthanisation s'avère être un outil efficace de réduction des pollutions organiques et de production d'énergie. Les premières tentatives de production de biogaz en digesteur remontent aux années 1930 avec des procédés rustiques mais fiables : digesteur batch, fosse de méthanisation... Ces procédés sont largement utilisés dans des pays en recherche de substitut énergétique aux bois de combustion. Dans les années 1970, suite aux deux crises énergétiques pétrolières, de nombreuses études poussées sur cette technologie ont permis le développement de nombreuses unités. Au niveau industriel et agricole, dépolluer tout en produisant une énergie utilisable a été et reste séduisant. Le succès des bioréacteurs anaérobies d'épuration s'explique par les nombreux avantages par rapport aux procédés de traitement plus conventionnels : faible production de boue, faible coût d'investissement et de maintenance, espace d'installation minimum, production de biogaz valorisable et grande adaptabilité aux effluents chargés en pollution organique (*Lettinga, 1995*). Cependant, beaucoup de ces bioréacteurs

anaérobies utilisent une biomasse active sous la forme granulaire dense de diamètre compris généralement entre 0,5 et 2 mm. Cette forme particulière confère aux boues des propriétés avantageuses : vitesse de sédimentation, rétention de la biomasse dans le système, solidité et une bonne séparation entre la boue granulaire et l'effluent traité (*Hulshoff Pol et al., 2004*).

Jusqu'à présent, l'effet des conditions hydrodynamiques sur l'efficacité du traitement, surtout les caractéristiques de la production de biogaz, est largement inconnu. Ceci est essentiellement dû à l'opacité des boues granulaires qui les rendent difficiles à étudier. Toutefois, il est bien admis que le cisaillement hydrodynamique exercé sur les granules de boue est un facteur déterminant qui influence le débit de production de biogaz et l'efficacité du traitement (*Wu et al, 2006; Liu et Tay, 2002*).

Ainsi, les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont pour but d'initier une approche novatrice pour la compréhension du procédé de traitement de boues et de valorisation du biogaz à travers une étude hydrodynamique autour des granules de boues allant de l'échelle méso dans des digesteurs bidimensionnels à l'échelle micro dans des dispositifs microfluidiques. En particulier, la relation entre les vitesses de cisaillement exercées sur les granules de boues et le comportement physique et/ou biologique tel que l'intégrité et la structure de granules et surtout de l'efficacité de production de biogaz ainsi que les caractéristiques des bulles produites sera particulièrement étudiée.

Le premier chapitre (Chapitre I) de ce mémoire consiste en une synthèse bibliographique visant à développer, dans une première partie, la digestion anaérobie et le fonctionnement général des digesteurs. Les deuxième et troisième parties sont consacrées aux caractéristiques des boues granulaires et aux contraintes s'exerçant sur des boues granulaires.

Les dispositifs expérimentaux et les techniques de mesures sont décrits dans le second chapitre de ce mémoire (Chapitre II). Les réacteurs biologiques utilisés, l'ensemble des moyens mis en œuvre pour caractériser leur fonctionnement et leur mise en œuvre ainsi que les techniques en amont et en aval sont présentés dans cette partie du manuscrit.

Le chapitre suivant (Chapitre III) est principalement consacré aux résultats obtenus à multi échelles et s'organise en deux parties. La première partie est consacrée aux expériences réalisées dans un réacteur anaérobie 2D transparent à mésoéchelle, le but étant d'étudier l'effet de différents paramètres opératoires sur la production de biogaz et d'obtenir une éventuelle relation entre l'efficacité de production de biogaz et le cisaillement subi par les granules de boue. Cependant, compte tenu de la méconnaissance du mécanisme de génération de biogaz sur des granules de boues liée à la complexité de l'écoulement dans le réacteur, cette étude a ensuite été menée dans un dispositif microfluidique avec un écoulement parfaitement contrôlé autour d'un granule de boue. Le but dans ce cas était d'étudier quantitativement le comportement dynamique d'un granule de boue à micro échelle pour différentes conditions opératoires. Ce manuscrit se terminera enfin par une conclusion et des perspectives à ce travail.

**CHAPITRE I. SYNTHÈSE
BIBLIOGRAPHIQUE**

I.1 DIGESTION ANAEROBIE

I.1.1 Définitions sur l'application de la méthanisation

La méthanisation, ou digestion anaérobie, est un processus biologique naturel qui permet de transformer en milieu privé d'oxygène, un substrat complexe pouvant être composé de molécules organiques lourdes, souvent insolubles, en méthane (biogaz). L'illustration la plus spectaculaire de ce phénomène réside dans la formation des nappes pétrolifères à partir de dépôts de végétaux avec comme étape ultime la formation de gisements de gaz naturel.

Au préalable, il convient de distinguer la méthanisation des solides en suspension dans l'eau (méthanisation des boues des stations d'épuration urbaines ou industrielles), plus avantageusement dénommée digestion des boues, de la méthanisation des liquides qui va concerner les matières en solution dans les dits liquides. En effet, même si ces deux technologies mettent en œuvre les mêmes réactions biologiques et les mêmes espèces bactériennes, elles se distinguent par les durées de rétention dans les réacteurs en ce sens que les solides en suspension doivent d'abord être solubilisés avant de pouvoir être méthanisés. L'opération biologique de solubilisation est une opération lente (plusieurs jours, voire plusieurs dizaines de jours de temps de rétention hydraulique (TRH)) qui constitue le facteur limitant de l'opération de digestion. La méthanisation des liquides ne requiert le plus souvent que quelques heures de temps de contact, en particulier lorsqu'on utilise les procédés les plus modernes. Il est donc préférable de procéder à la séparation des solides en suspension (teneur en MES (matières en suspension) admissible de l'ordre de 200 à 300 mg.L⁻¹ (*Boulenger et Gallouin, 2009*) pour réduire les coûts d'investissements.

Dans les usines de traitement des eaux usées, la moitié de l'énergie récupérable est utilisée pour le processus de méthanisation. La dégradation anaérobie produit en effet une quantité de biogaz supérieure à celle que nécessite son fonctionnement et la production de boues des réacteurs anaérobies est faible par rapport à celle des réacteurs aérobies, étant donné les vitesses de croissance relativement lentes des espèces concernées. Donc, les deux caractéristiques principales de la méthanisation des eaux usées sont la production d'un biogaz riche en méthane et une réduction considérable de la production des boues biologiques en excès. Cette technologie est remarquablement adaptée au traitement des eaux usées industrielles. De plus, la méthanisation est une technologie qui s'inscrit parfaitement dans la démarche de développement durable. Elle permet la production d'une énergie renouvelable, du biogaz, à partir de la pollution organique. Le traitement des eaux usées peut se faire dans plusieurs types de réacteurs, mais suit les mêmes étapes biologiques.

I.1.2 Processus anaérobies de méthanisation

L'anaérobiose est un état caractérisé par une absence d'oxygène et la voie de dégradation anaérobie de la matière organique peut être découpée en trois grandes étapes explicitées ci-après (Fig. I. 1). Contrairement aux fermentations aérobies qui s'accompagnent d'un fort dégagement de chaleur, les fermentations anaérobies ne sont que très faiblement exothermiques.

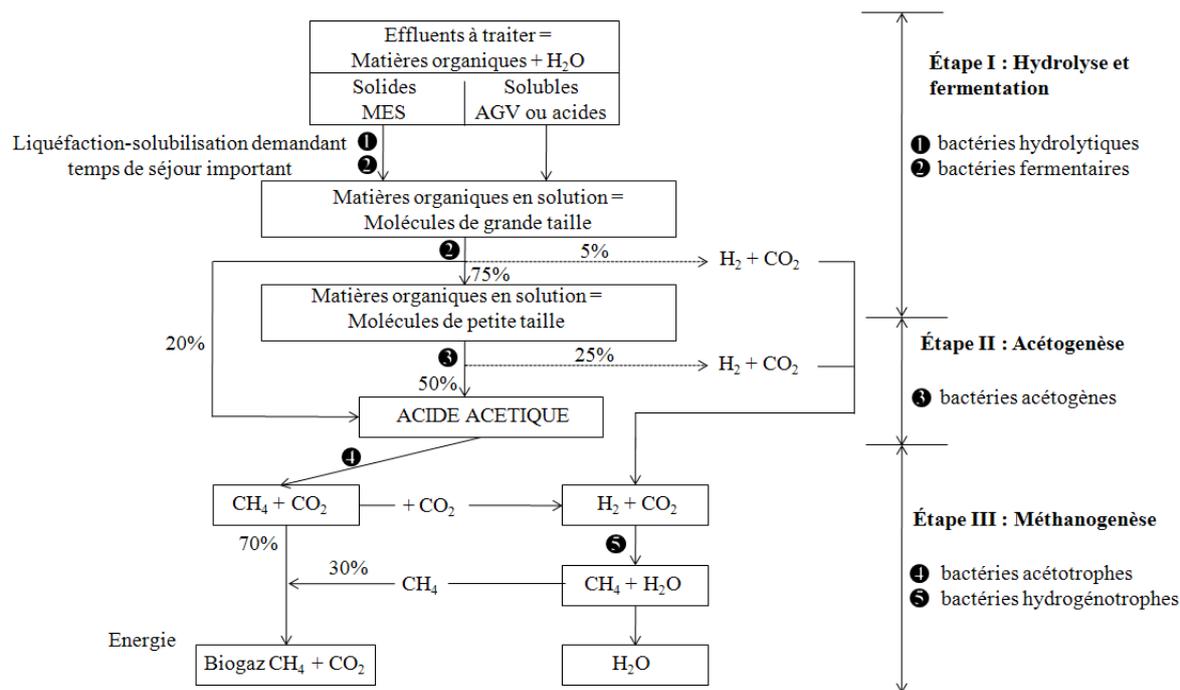


Fig. I. 1. Principales voies de dégradation et nature des populations microbiennes de la digestion anaérobie (Zeikus, 1982).

1.1.2.1 Hydrolyse et acidification

Dans ce paragraphe, nous regroupons les deux premières étapes de la fermentation méthanique que sont la solubilisation-liquéfaction des composés organiques insolubles et l'acidification des molécules solubilisées complexes. Ces deux premières étapes sont effectuées par des micro-organismes appelés bactéries hydrolytiques et fermentaires.

Dans le cas des matières organiques non solubles, les bactéries hydrolysent les substrats organiques (polysaccharides, protéines et lipides) en oligo-éléments ou monomères (monosaccharides, acides gras, acides aminés) à l'aide d'enzymes extracellulaires secrétées (protéases, lipases, cellulases...), permettant de rendre biodisponible la matière organique nécessaire à son assimilation dans le métabolisme microbien. Les plus petites molécules telles que les sucres, les acides organiques complexes peuvent pénétrer dans la cellule. Cette

première étape est limitante du fait de la faible vitesse des réactions d'hydrolyse. L'unité de temps de séjour hydraulique pour le dimensionnement des appareils est le jour.

Au cours de l'acidogénèse, les matières organiques issues de l'hydrolyse et qui sont déjà sous forme soluble sont métabolisées en acides gras volatils (AGV) (acétate, propionate, butyrate, isobutyrate, etc.), en alcools, en acides organiques autres que les AGV, en hydrogène et en dioxyde de carbone. Les bactéries impliquées dans ces réactions d'acidogénèse ont des temps de réplication très courts (de trente minutes à quelques heures) (*Frédéric et Lugardon, 2007*). Les conditions d'environnement, tels que le pH, la température et la pression partielle en H₂ mais également le temps de séjour de la biomasse agissent sur le processus. Il conviendra de veiller au maintien dans le système d'un effet tampon suffisant par ajout de produits chimiques (la soude en particulier) ou par apport d'alcalinité sachant que le pH optimum est de 6,0, le pH d'inhibition étant de 4,5 (*Boulenger et Gallouin, 2009*).

1.1.2.2 Acétogénèse

Les intermédiaires métaboliques produits lors de l'acidogénèse (AGV, alcools, acides organiques, CO₂, H₂) sont transformés en acétate, H₂ et CO₂. Cette étape ne constitue pas une étape limite de la fermentation méthanique, car la vitesse de doublement des bactéries (d'environ une heure) ainsi que les cinétiques enzymatiques sont rapides. Il est toutefois important de veiller à ce que les acides gras en C₃, C₄, C₅ et C₆, en particulier l'acide propionique, ne s'accumulent pas car ils provoqueraient le blocage de la chaîne de dégradation vers l'acide acétique.

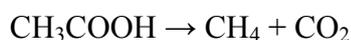
Par contre, les vitesses réactionnelles d'acétogénèse dépendent de la concentration en H₂ qui modifie l'équilibre thermodynamique de la cinétique globale. En effet, les bactéries

acétogènes ne peuvent travailler que si la concentration en acétate, et surtout, la pression d'hydrogène (10^{-4} atm soit 100 ppm au maximum) dans le liquide sont maintenues suffisamment basses par les bactéries méthanogènes. Dans le cas contraire, la voie des acides gras volatils à plus de deux atomes de carbone est privilégiée et les populations mises en jeu sont les homoacétogènes produisant principalement de l'acide propionique et de l'acide butyrique qui ne sont que très lentement dégradables en acide acétique.

1.1.2.3 Méthanogénèse

Cette étape correspond à la dernière phase de la méthanisation qui permet la production de méthane en faisant intervenir deux groupes de bactéries méthanogènes, les bactéries acétotrophes et les bactéries hydrogénotrophes, d'où l'existence de deux voies conduisant à la production du méthane. Le rôle des bactéries hydrogénotrophes et de leur substrat carboné CO_2 sous sa forme bicarbonate HCO_3^- sont essentiels dans le processus industriel. Elles permettent la détoxification du milieu par élimination du dihydrogène.

Production de méthane à partir de l'acide acétique ; il s'agit d'une réaction de décarboxylation produisant environ 70 % du méthane :



Cette réaction est limitée à quelques espèces de bactéries méthanogènes nommées bactéries méthanogènes acétotrophes ou acétoclastes et dont le temps de doublement est compris entre 2 et 10 jours (*Grasius et al., 1997*).

Production de méthane à partir du dioxyde de carbone s'agit d'une réaction de réduction du carbone produisant environ 30 % du méthane :



C'est la voie d'élimination par oxydation de l'hydrogène produit pendant les étapes d'hydrolyse et surtout d'acétogénèse. Cette réaction traduit le rôle important des bicarbonates dans le processus anaérobie et la neutralisation du pH dans les réacteurs.

Une très grande majorité des bactéries méthanogènes est capable d'effectuer cette réduction, néanmoins c'est une réaction peu favorable sur le plan thermodynamique et qui peut être très facilement concurrencée par d'autres réactions libérant plus d'énergie libre comme la réduction des sulfates qui mobilise l'hydrogène sous forme de sulfure d'hydrogène :



Cependant, le groupe de bactéries méthanogènes est le plus largement représenté (20 - 50%) dans les boues granulaires anaérobies avec deux genres bactériens méthanogènes majeurs : les *Methanosaeta* et *Methanosarcina* (Dubourguier et al., 1987 ; De Zeeuw, 1987 ; Hickey et al., 1991). *Methanosarcina* est un microorganisme de forme sphérique, producteur des PEC (Polymères Extra Cellulaires) qui peut utiliser d'autres substrats en plus de l'acétate tels que le méthanol, les méthylamines ainsi que H_2/CO_2 (Chen et Lun, 1993 ; Hulshoff Pol et al., 2004). *Methanosaeta* est un microorganisme de forme allongée qui peut se développer en chaîne courte (constituée de 4 à 10 cellules) ou en chaîne longue. Cette bactérie utilise uniquement l'acétate comme substrat. Cet organisme peut aussi produire des PEC (Quarmby et Forster, 1995a ; Hulshoff Pol et al., 2004).

I.1.2.4 Autres voies de production du méthane

D'autres substrats possibles pour la méthanogénèse tels que l'acide méthanoïque (HCOOH), le méthanol (CH₃OH) et les méthylamines n'ont qu'une contribution très secondaire dans la plupart des processus de dégradation anaérobie (*Boulenger et Gallouin, 2009*).

I.1.3 Composition et valorisation du biogaz

La méthanisation transforme essentiellement la matière organique en un gaz énergétique appelé « biogaz » composé de différents gaz issus des réactions biologiques.

I.1.3.1 Composition du biogaz

Les rendements en méthane et la composition du biogaz produit sont variables et sont liés à plusieurs facteurs (*Bujoczeh et al., 2000*):

- nature des effluents à traiter (proportion de carbone, hydrogène, azote, soufre et oxygène) ;
- teneur en MES des effluents ;
- technologie d'épuration mise en œuvre.

De différentes sources de production conduisent à des compositions spécifiques et variables (*Tou et al., 2001 ; Saidi et Abada, 2007 ; Boulenger et Gallouin, 2009*). Durant la digestion méthanique, les composés organiques sont finalement convertis en:

- méthane (CH₄) : sa teneur dans le biogaz peut varier de 50 à 80 % ;

- dioxyde de carbone (CO_2): le biogaz issu de la méthanisation des liquides contient généralement entre 10 et 30 % (moyenne 20 - 25 %) de CO_2 . Le biogaz issu de la digestion des solides en contient une quantité généralement supérieure de 35 à 50 % ;
- hydrogène sulfuré (H_2S) : la teneur de ce composé dans le biogaz dépend de la teneur en produits soufrés dans les effluents à traiter. Présent le plus souvent à des teneurs inférieures à 0,5 - 1 %, il peut, dans certains cas, représenter jusqu'à 4 - 5 % du biogaz produit;
- ammoniac (NH_3) : compte tenu de son origine (dégradation de la matière organique azotée), ce gaz peut être présent en quantité significative dans le biogaz. En pratique, il est rarement analysé. Nous noterons qu'en cas de teneurs importantes, la production d'oxydes d'azote devra être considérée lors de la combustion du biogaz ;
- poussières et particules solides dans le biogaz : à pleine production de biogaz, des particules solides peuvent être entraînées par le courant du biogaz produit ;
- gaz hydrogène : il est aussi en très faible teneur. La présence de quantités importantes d'hydrogène dans le biogaz est le signe d'un mauvais fonctionnement des bactéries méthanogènes dans le réacteur. La présence de ce gaz augmente la plage d'explosivité du mélange air-biogaz au-delà de la plage 5 - 17 % généralement admise ;
- autres gaz détectables : ils peuvent être présents à l'état de traces comme le monoxyde de carbone (CO), l'oxygène (O_2), l'azote (N_2) ou des substances présentes dans le substrat d'origine (par exemple fréon, solvants, peintures présents dans les décharges).

Le biogaz produit par la réaction de méthanisation dans les unités d'épuration des eaux usées ou de digestion des boues doit être séparé des effluents méthanisés avant la sortie du réacteur. Dans ce but, les réacteurs anaérobies sont équipés de dispositifs permettant de récupérer le biogaz au sommet des réacteurs de méthanisation. La plupart des technologies utilisent des réacteurs fermés par un dôme permettant de récupérer le gaz au sommet du réacteur.

I.1.3.2 Valorisation énergétique du biogaz

Le biogaz est utilisé en tant que combustible ou carburant pour éviter le rejet à l'atmosphère du méthane, gaz participant à l'effet de serre. Il peut servir à la production de la chaleur ou de l'électricité ou les deux à la fois (co-génération) (AEAG, 2001 ; Bonnier, 2008). Par ailleurs, il peut aussi être injecté dans les réseaux locaux de gaz naturel. Les quantités de biogaz récupérées lors du traitement des effluents sur les installations anaérobies peuvent être importantes et l'économie énergétique non négligeable.

I.1.3.2.1 Energie thermique

La chaleur de combustion du biogaz peut servir pour la production d'eau chaude, de vapeur à moyenne ou haute pression, ou bien dans des fours de procédés (Wauthélet, 2003):

- chaudière au gaz naturel : le biogaz est en général utilisé en mélange avec le gaz naturel pour réduire l'impact de l'hydrogène sulfuré ;
- chaudière à autre combustible : le biogaz est introduit à l'aide d'un brûleur annexe (chaudière à fuel) ou d'une lance (solide, charbon) et l'apport de biogaz ou le fonctionnement du brûleur ou de la lance doit se faire en parallèle du brûleur principal.

Les calories produites dans ces conditions servent à produire de l'eau chaude utilisée soit pour réchauffer les effluents à l'entrée de la station d'épuration, soit pour un besoin en usine.

I.1.3.2.2 Electricité

Le biogaz peut alimenter un moteur à gaz ou une turbine qui produit de l'électricité ou la cogénération (électricité et chaleur). Lorsque l'électricité est produite seule, celle-ci est le plus souvent exportée par le réseau public. La chaleur peut être utilisée pour le chauffage des digesteurs et le reste peut servir à tout autre usage. Bien que couramment privilégiée dans le cas des décharges, cette voie reste peu utilisée en industrie. Cependant la récente augmentation du prix des énergies fossiles et du prix de rachat de l'électricité produite à partir des énergies renouvelables est en train d'influer positivement sur ce choix.

Dans le cas de la solution « moteur à biogaz », une désulfuration et une déshydratation seront en principe nécessaires; les performances dépendront des spécifications des motoristes.

I.1.3.2.3 Carburant automobile

Assez répandue en Suède, la valorisation du biogaz sous forme de carburant automobile ne fait l'objet en France que de quelques installations pilotes en cours d'optimisation : Lille, Sonzay, Chambéry (*Wauthelet, 2003*). Elle est destinée, pour l'instant, à l'alimentation des véhicules des collectivités locales : collecte des ordures ménagères, transport en commun. Son intérêt est à la fois économique et environnemental compte tenu de la qualité des rejets des moteurs à gaz.

I.1.3.2.4 Réseaux locaux de gaz

Lorsqu'une unité de méthanisation se trouve à proximité d'une canalisation de gaz naturel, l'injection du biogaz dans le réseau peut être envisageable. La composition finale du biogaz injectable (teneurs en méthane, en gaz carbonique, en sulfure d'hydrogène et en oxygène) ainsi que sa pression dépendent des spécifications imposées par le réseau. Cette méthode est

courante dans certains pays comme le Danemark, les Pays-Bas et la Nouvelle-Zélande (Frédéric et Lugardon, 2007).

I.1.4 Evolution des procédés anaérobies

I.1.4.1 Evolution des réacteurs anaérobies

Un digesteur anaérobie traite les rebuts organiques, essentiellement des eaux usées, afin d'en recueillir le biogaz (CH_4 , CO_2 et H_2S). Ce dernier peut être récupéré et converti ensuite en chaleur ou en électricité. Les eaux usées traitées sont composées des eaux domestiques, des eaux industrielles et des eaux de pluie. Le débit et la qualité des eaux à traiter varient donc fortement d'un endroit à l'autre. L'eau est traitée par des granules de boues qui sont constituées de milliers de microorganismes différents et qui ne peuvent agir de façon isolée pour traiter les effluents. Contrairement au domaine de traitement des boues où l'utilisation de l'anaérobiose est ancienne, le traitement par anaérobiose des eaux contenant une concentration en matière organique beaucoup plus faible et surtout avec des substrats moins complexes.

L'industrie française a alors porté son effort de recherche dans la voie des réacteurs de troisième génération (« films fixés » en filtres bactériens anaérobies) puis dans celle des « lits fluidisés ». Les filtres ont constitué l'essentiel des réalisations françaises jusqu'en 1987. Parallèlement à l'étranger, et tout particulièrement aux Pays-Bas, se développait depuis de nombreuses années (début des années 1970) une technologie de seconde génération utilisant les lits de boues très denses au travers desquels l'eau est traitée en un flux ascendant comme le procédé UASB (Upflow Anaerobic Sludge Blanket).

En fait, le système de traitement le plus adéquat doit répondre aux critères suivants, donnés par *Seghezzo et al., (1998)* :

- géométrie et équipements les plus simples possibles ;
- bonne efficacité d'élimination des polluants ;
- consommation faible en énergie ;
- réutilisation de l'eau et valorisation des déchets.

Seghezzo et al., (1998) détaillent les avantages et les inconvénients de la digestion anaérobie.

Parmi les avantages, on peut citer :

- bonne efficacité obtenue dans la dépollution à débits élevés ;
- adaptation aux faibles températures;
- simplicité et flexibilité du système;
- faible besoin d'espace;
- faible consommation d'énergie;
- faible production de boues (2 à 30 fois moindre qu'en traitement aérobie) ;
- besoin de peu d'éléments nutritifs ou de produits chimiques pour le fonctionnement ;
- adaptation des bactéries pour la destruction de nombreux produits toxiques.

Les inconvénients résident en

- difficulté d'enlever les nutriments ou les cellules pathogènes ;
- longue période de démarrage ;
- mauvaises odeurs ;
- nécessité d'un post traitement pour les éléments nutritifs et les cellules pathogènes ;

- dilution du gaz produit.

I.1.4.2 Différents types de bioréacteurs anaérobies

Moletta et Torrijos. (1999) ont schématiquement parlé de quatre générations de procédés qui sont apparues successivement. Nous pouvons les énumérer dans l'ordre d'apparition et de complexité :

- première génération : réacteurs à boues libres ou « contact » ;
- deuxième génération : réacteurs UASB ou à boues granuleuses;
- troisième génération : réacteurs à boues immobilisées ou « fixées »;
- quatrième génération : réacteurs à lits fluidisés.

Des techniques dérivées ou combinées sont apparues comme par exemple les lagunes aérobies (boues libres en réacteurs extensifs sans clarification finale), les réacteurs hybrides (combinaison de boues immobilisées et de boues libres dans un même réacteur), les réacteurs EGSB (expanded granular sludge bed), les réacteurs à circulation interne IC (internal circulation reactor). Compte tenu du marché actuel, certaines technologies dépassées techniquement ne sont plus appliquées à l'exception de cas particuliers.

La technologie UASB (y compris les réacteurs IC et EGSB) domine le marché avec 75 % de toutes les réalisations fonctionnant dans le monde jusqu'à 2006 et 85 % des réalisations pour la période 2002 - 2006 (Fig. I. 2).

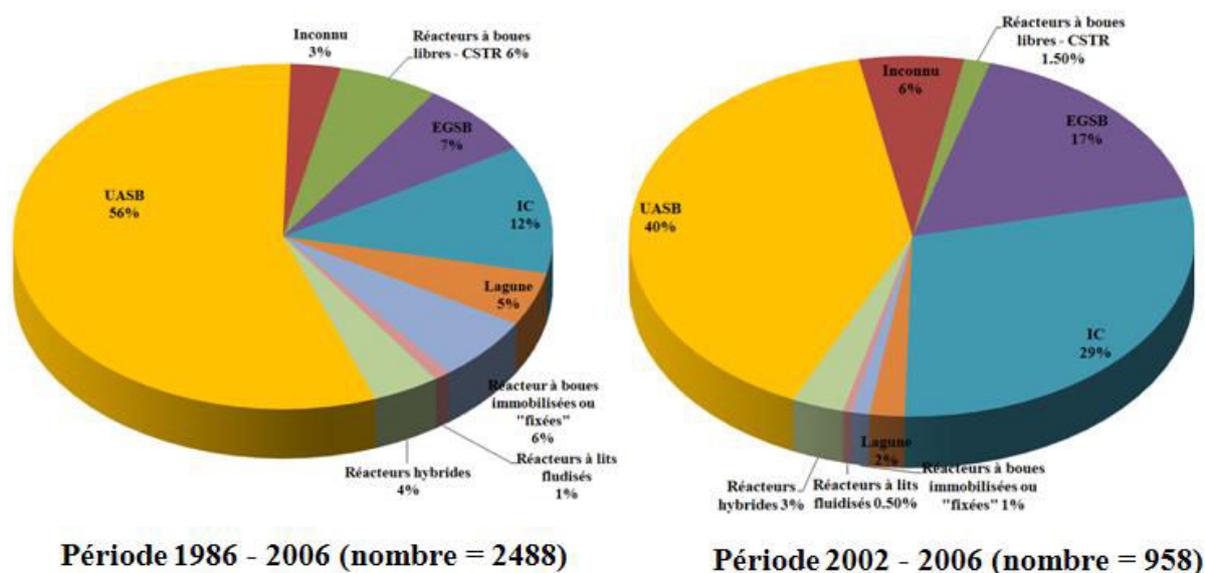


Fig. I. 2. Technologies anaérobies répertoriées par technologie (Paques B.V.).

I.1.4.2.1 Réacteurs à boues libres ou « contact »

C'est la première technologie disponible qui consiste en la mise en œuvre d'une biomasse libre dans un réacteur infiniment mélangé s'apparentant à la technologie aérobie des boues activées.

Les différents procédés développés à partir de cette technologie tels que le lagunage, le procédé contact, le réacteur agité appelé procédé CSTR (contact stirred tank reactor), ont l'inconvénient de mettre en jeu de faibles concentrations de boues (8 à 12 kg MS.m⁻³ de réacteur (MS : matière sèche)) nécessitant, par conséquent, des volumes de bassins importants (Boulenger et Gallouin, 2009). Dans le procédé CSTR (Fig. I. 3), le mélange est réalisé de façon mécanique. Un décanteur externe est placé au niveau de la sortie liquide. Les solides retenus dans le décanteur sont recyclés dans le réacteur, ce qui permet de concentrer la biomasse dans le milieu réactionnel. Ce système a permis d'améliorer les capacités d'épuration avec la possibilité d'atteindre des charges organiques de 3 à 5 kg DCO. m⁻³.j⁻¹, contre 0,1 à 2 kg DCO. m⁻³.j⁻¹ avec les lagunes (Michaud, 2001). Le temps de séjour hydraulique est de

l'ordre de la semaine. Il est particulièrement adapté au traitement de rejets contenant des particules solides difficiles à dégrader, qui sont recyclées dans le réacteur en même temps que la biomasse. Les limitations de ce procédé proviennent de la non maîtrise de la décantation ou de la floculation des boues dans certaines conditions, ainsi que des conditions de mélange adéquat difficiles à obtenir sur des volumes très importants qui pourraient alourdir non seulement le fonctionnement de l'installation mais également les coûts d'investissement. Cette technologie a été abandonnée sauf pour quelques cas particuliers tels que le traitement des effluents contenant de fortes concentrations de matières en suspension très difficilement séparables.

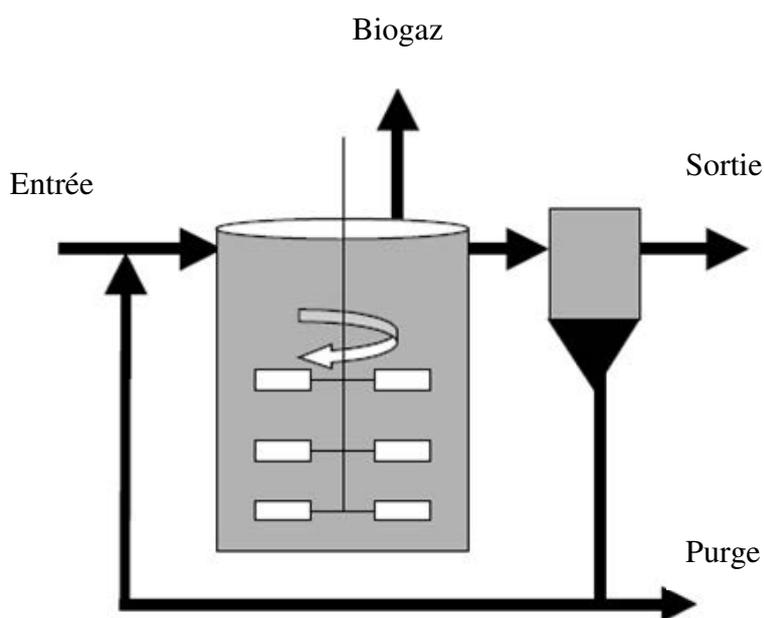


Fig. I. 3. Réacteurs à boues libres équipés d'un système de rétention de biomasse (Michaud, 2001).

I.1.4.2.2 Réacteurs UASB ou à boues granuleuses

Cette technologie, développée aux Pays-Bas, est apparue au niveau industriel à la fin des années 1970 après plusieurs années de mise au point (Yu et al., 2001). Elle est considérée comme la technologie de seconde génération (Fig. I. 4). Elle correspond à un réacteur

composé d'un lit granuleux. La croissance de ce lit est essentiellement due aux particules solides en suspension qui entrent dans le réacteur et à la croissance des bactéries. La mise en mouvement du lit se fait par une turbulence naturelle, provoquée par le flux d'entrée des effluents et par la production de biogaz, permettant ainsi d'avoir un bon contact entre les eaux usées et la biomasse au sein du réacteur. Ce système permet un gain de place par rapport aux systèmes fonctionnant en aérobie et a un coût de fonctionnement réduit (*Rajeshwari et al., 2000*). On peut aussi remarquer que l'UASB produit peu de boues, tout en produisant du biogaz que l'on peut valoriser. Les applications de ces réacteurs sont multiples. Il peut être utilisé pour le traitement des eaux usées des municipalités, des aciéries et fonderies, de l'industrie chimique, des installations de l'industrie agro-alimentaire, de l'industrie automobile et des pâtes et papiers (*Bu'lock et Kristiansen, 1987; Vembu et Tyagi, 1990*).

Le lit de boues se formant à la base du réacteur peut atteindre au repos des concentrations de l'ordre de 100 à 120 kg.m⁻³ contenant en général 75 à 80 % de MVS (matière volatile en suspension) (*Boulenger et Gallouin, 2009*). Aucun support n'est présent pour aider à la formation du granule. Il utilise la propriété naturelle des boues à s'agréger pour former des granules de 1 à 5 mm ayant des vitesses de sédimentations élevées (de l'ordre de 30 à 80 m.h⁻¹) (*Tay et Yan, 1996 ; Gonzalez et al., 1997; Ahn, 2002*). Il s'agit d'un véritable écosystème. Les granules apparaissent comme de véritables microréacteurs dans lesquels la totalité des réactions de la méthanisation peut être effectuée. Suivant le dimensionnement du réacteur, les turbulences créées par les débits d'effluents et de biogaz produit et la masse de boues nécessaire à la réduction de la charge en DCO, il a été possible de passer de concentrations en 30 à 60 kg MS.m⁻³ de réacteur. Cette concentration en boues autorise l'application de charges volumiques plus importantes déterminant une réduction du volume et de la surface des réacteurs. Compte tenu des concentrations élevées en boues dans le réacteur, la charge volumique applicable est de l'ordre de 10 à 15 kg DCO. m⁻³.j⁻¹ selon le type d'effluents à

traiter (Tchobanoglous et Burton, 1991 ; Driessen et Yspeert, 1999 ; Driessen et Vereijken, 2003).

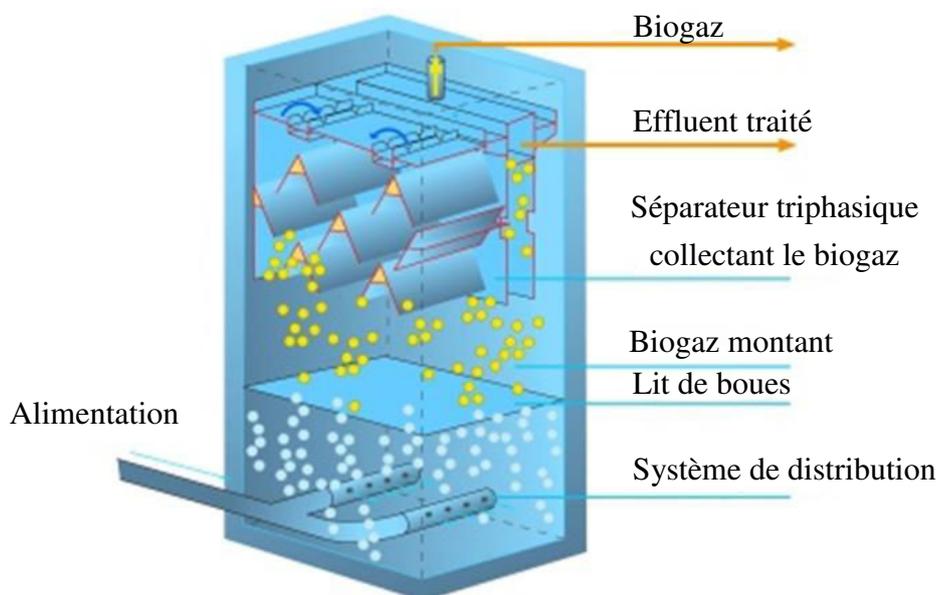


Fig. I. 4. Vue schématique d'un réacteur UASB (Paques B.V.).

Seghezzo et al., (1998) et Liu et Tay, (2002) estiment que le principal problème des UASB est leur longue période de mise en route (2 à 8 mois). Dans le but de diminuer cette durée, une idée consiste à prendre des semences provenant d'un autre réacteur UASB en fonctionnement, mais ceci nécessite un coût qui n'est pas négligeable sans compter l'inconvénient du transport des semences qui n'est pas bien maîtrisé. De plus, Liu et Tay, (2002) précisent que le démarrage de l'UASB peut parfois être empêché en procédant de cette façon.

C'est la technique la plus développée puisqu'elle représente plus de 80 % des réacteurs construits. Elle a donné lieu à un développement de variantes que sont les réacteurs EGSB et la technologie à double étage (IC).

Réacteurs EGSB :

Seghezzi et al., (1998) ont démontré que le mélange n'était pas optimal dans l'UASB du fait de la présence de volumes morts qui entraînent une perte d'efficacité. Pour améliorer cela, il est nécessaire de mieux distribuer l'effluent. L'utilisation d'une recirculation avec des réacteurs plus grands a conduit au réacteur EGSB au sein duquel la vitesse superficielle est plus importante (Fig. I. 5). *Liu et al., (2002)* expliquent que l'EGSB a été développé avec des particules de transport denses comme par exemple, le sable, le charbon actif ou les polymères. On parle alors de réacteur à film biologique anaérobie plutôt que de boues granulaires. Au démarrage, l'EGSB estensemencé avec de la boue en suspension.

Dans ce réacteur, les boues granulaires peuvent croître et se maintenir sous de fortes vitesses de fluide ascendant ($< 12,5 \text{ m.h}^{-1}$; *McHugh et al., 2004*). Ces fortes vitesses entraînent l'expansion du lit et permettent d'éviter les volumes morts et d'améliorer le contact entre la boue et les eaux usées. De plus, ces réacteurs peuvent opérer avec des temps de séjour hydraulique extrêmement faibles et un taux de chargement en boue plus important que dans les réacteurs UASB. Compte tenu des concentrations élevées en boues dans le réacteur, la charge volumique applicable est de l'ordre de $15 \text{ à } 18 \text{ kg DCO. m}^{-3}.\text{j}^{-1}$ selon le type d'effluents à traiter (*Driessen et Yspeert, 1999*). Grâce à la facilité de recirculation de l'effluent, les réacteurs EGSB sont mieux adaptés pour traiter des effluents contenant des composés toxiques et/ou récalcitrants, comme le formaldéhyde.

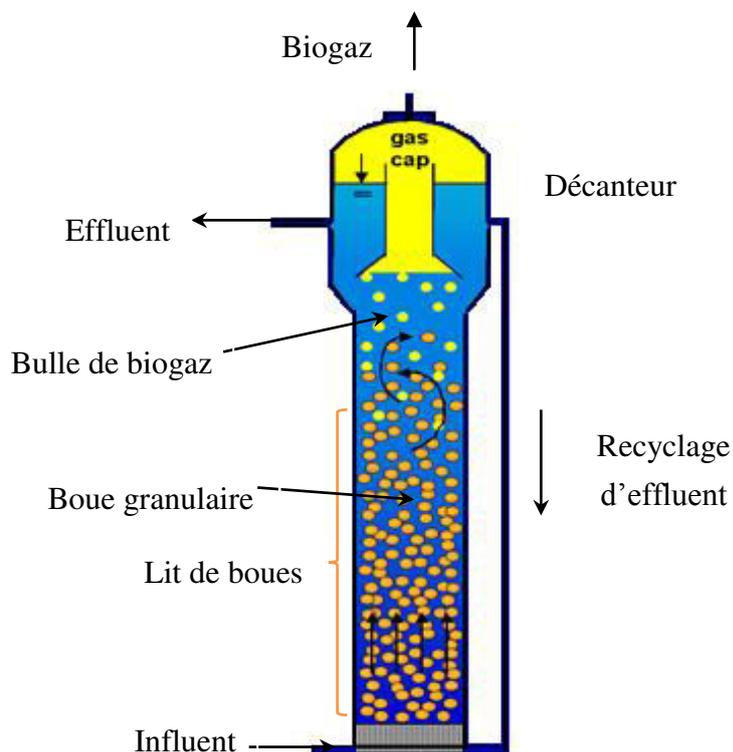


Fig. I. 5. Schéma d'un réacteur EGSB (Mutombo, 2004).

Réacteur IC :

Le réacteur IC permet de contourner le principal problème d'évacuation de la boue rencontré pendant la période de démarrage de l'UASB. Les réacteurs à circulation interne se présentent sous forme de cylindres de hauteur variable (entre 16 et 28 m de haut). Ils sont composés de 2 compartiments UASB connectés l'un au dessus de l'autre (Fig. I. 6). Le premier étage travaille à haute charge et le second à faible charge. La principale caractéristique de ces réacteurs réside dans la collecte du biogaz au niveau de chacun des deux étages. Le gaz collecté dans le premier étage est acheminé par une canalisation, dénommée « riser », au sommet du réacteur en générant un gaz-lift (pompe à gaz) pompant également le mélange boueux (effluent + boues) dans le premier étage. Après séparation du mélange boueux et du biogaz dans la cuve de dégazage située au sommet du réacteur, l'effluent et les boues sont directement renvoyés vers la base du réacteur via la canalisation centrale, dénommée «

downer » du fait de la différence de densité existante entre le riser et le downer. Un débit de recirculation interne est ainsi créé donnant son nom au réacteur. Le biogaz sortant en tête de réacteur est envoyé vers le gazomètre via une canalisation.

Le réacteur IC peut être considéré comme un système comprenant trois compartiments différents, connectés par la recirculation interne, complétant ses caractéristiques spécifiques :

- compartiment de mélange : les effluents arrivant à la base du réacteur sont mélangés avec les boues et l'eau déjà largement épurée provenant de la recirculation interne. Cela aboutit à la dilution et au conditionnement complémentaire (ajustement du pH de l'effluent par le retour de bicarbonates contenus dans le mélange recirculé);
- compartiment de type lit expansé : cet étage contient un lit expansé de boues granuleuses fortement concentrées (80 à 90 kg MS.m⁻³) (*Boulenger et Gallouin, 2009*). L'expansion et la fluidisation du lit sont assurées grâce au flux ascendant important généré par les effluents entrants à traiter et provenant de la recirculation interne ainsi qu'au biogaz produit. Le contact entre les effluents à traiter et la biomasse épuratrice est optimal et aboutit à d'importants taux de conversion de la DCO permettant l'application de charges élevées. Le biogaz produit est collecté par un séparateur diphasique placé entre les deux étages, ce qui permet de générer la recirculation interne grâce au gaz-lift ;
- compartiment de finition : l'épuration ultime avec une plus faible charge de boues (30 à 35 kg MS.m⁻³) et une rétention de la biomasse se produit à ce niveau. Ces deux phénomènes sont favorisés par une turbulence générale plus réduite dans cet étage suite à l'élimination importante de la DCO biodégradable dans le premier étage et à la collecte du biogaz dans le premier séparateur. Ces deux facteurs fournissent donc des conditions idéales de rétention de la biomasse, comparables aux conditions des

réacteurs UASB en dépit d'une importante charge volumique globale pour le réacteur IC. Le biogaz produit dans le compartiment supérieur est collecté au niveau du séparateur triphasique (eau/boues/gaz) supérieur tandis que l'effluent anaérobie quitte le réacteur anaérobie par une surverse.

Ces fortes concentrations en boues permettent de travailler à une charge volumique nominale de $20 \text{ kg DCO} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{j}^{-1}$ et à une charge volumique maximale de $25 \text{ kg DCO} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{j}^{-1}$. Il est même possible d'appliquer pendant quelques heures des charges de l'ordre de $30 \text{ kg DCO} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{j}^{-1}$ sans déstabiliser l'épuration (Driessen et al., 1997; Paques, 2003).

La récupération du biogaz à mi-hauteur du réacteur permet de s'affranchir des turbulences liées au gaz dans le second étage. Dans ces conditions, il est possible d'appliquer des vitesses de passage hydrauliques dans le second étage pouvant atteindre $8 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ pour les réacteurs les plus hauts. Le réacteur IC possède des capacités hydrauliques très supérieures à celles des autres réacteurs anaérobies.

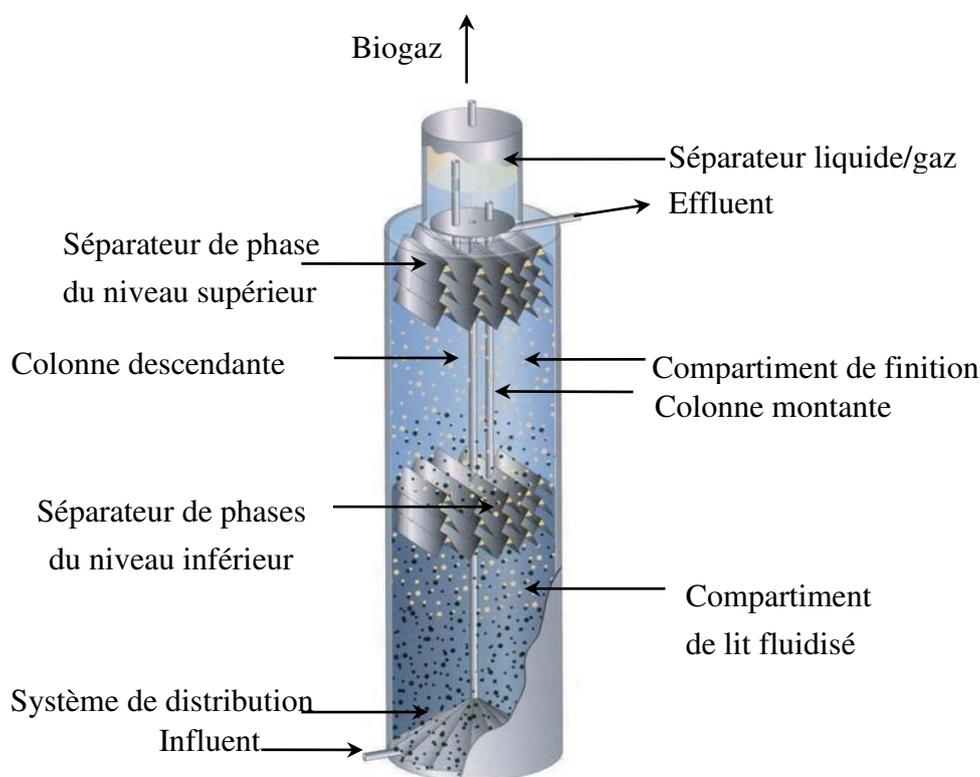


Fig. I. 6. Schéma d'un IC (Paques B.V.).

I.1.4.2.3 Réacteurs à boues immobilisées et réacteurs à lits fluidisés.

Pendant les années 1980, les autres constructeurs parmi lesquels les constructeurs français, ont porté leurs efforts de recherche sur des réacteurs dits « de troisième génération » (réacteur à boues fixées) et de « quatrième génération » (réacteurs à lits fluidisés).

Les réacteurs à boues fixées sont directement dérivés de la technique des lits bactériens aérobies. Des supports sont placés entre deux plaques perforées ou deux treillis permettant de les maintenir dans le réacteur. Il s'agit de supports ordonnés ou en vrac en matière plastique offrant des surfaces de fixation sur lesquelles des films bactériens se développent. Tout comme pour la technologie UASB, la biomasse épuratrice est conservée dans le réacteur. Différents procédés ont vu le jour comme les réacteurs à flux ascendant (alimentation par la base) (Fig. I. 7), les réacteurs à flux descendant (alimentation par le haut du réacteur), les réacteurs hybrides (combinaison d'un lit de boues et d'un biofilm fixé sur support) (*Michaud, 2001*). Les principaux avantages de ce type de procédé sont leur facilité de fabrication et l'absence de mélange mécanique. Ils présentent également une robustesse et une bonne stabilité vis à vis des chocs organiques, ainsi qu'un démarrage rapide de l'activité bactérienne après une longue période d'arrêt (*Rajeshwari et al., 2000*).

Il faut toutefois noter que dans ce type de technologie, il est nécessaire de procéder au développement de la biomasse sur les supports avant de pouvoir épurer la charge nominale, cette étape pouvant prendre plusieurs mois. La maîtrise de la biomasse épuratrice est plus difficile dans ces réacteurs contrairement au cas de la technologie UASB, ce qui nécessite de choisir des supports offrant une porosité importante (supérieure à 90 %) et développant de grandes surfaces spécifiques afin de fixer le maximum de biomasse. L'expérience a montré que les meilleurs résultats étaient obtenus avec des surfaces spécifiques développées de

l'ordre de 250 à 300 m².m⁻³ de matériau sur lesquelles se développe un film accroché (55 à 60 g.m⁻², soit environ 15 à 20 kg de boues actives MVS.m⁻³ de support) (Boulenger et Gallouin, 2009).

Il a été observé qu'une masse importante de boues non fixées s'accumule dans les espaces libres entre les matériaux supports. Avec les boues immobilisées, on peut atteindre des concentrations en MVS de l'ordre de 20 - 25 kg.m⁻³ de support. Cette concentration en boues plus importante permet l'application d'une charge volumique plus élevée que pour les réacteurs à boues libres. Les charges volumiques applicables sont de l'ordre de 7 à 12 kg DCO. m⁻³.j⁻¹ permettant d'obtenir une méthanisation satisfaisante (Michaud, 2001). Par ailleurs, ces réacteurs peuvent être sensibles aux matières en suspension dans les effluents qui peuvent colmater le support servant au développement du biofilm. Ils peuvent nécessiter des étapes de détassage et une clarification de l'effluent.

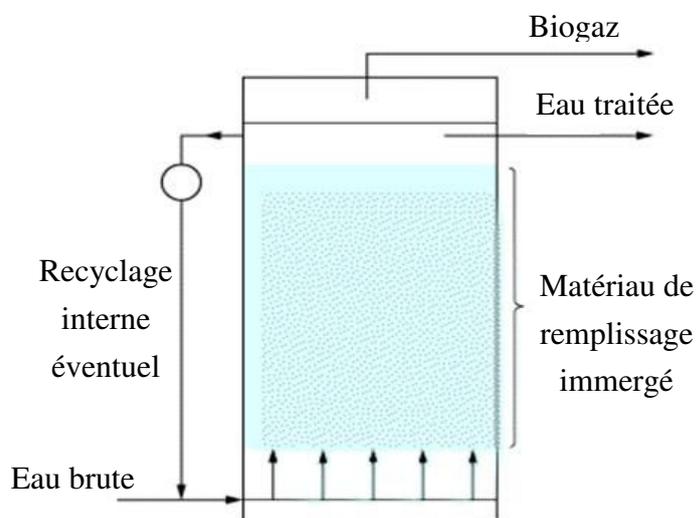


Fig. I. 7. Réacteurs à boues immobilisées.

La technologie des réacteurs à lits fluidisés est directement dérivée des réacteurs à boues fixées sur des supports de très petites dimensions (sable, biolite... qui présentent des capacités de décantation importante) sur lesquels les populations bactériennes épuratrices se fixent et se

développent (Fig. I. 8). L'avantage majeur des lits fluidisés provient de la mobilité des particules qui permet d'assurer un bon mélange du milieu réactionnel et réduit les possibilités de colmatage. Le matériau support minéral possède des caractéristiques particulières: structure poreuse de surface spécifique élevée (1000 à 2500 m².m⁻³) avec un diamètre faible compris entre 0,25 et 1 mm (Henze et Harremoës, 1983) assurant une colonisation maximale de la biomasse, de masse volumique faible pour permettre une bonne mise en suspension et possédant une résistance mécanique à l'attrition. Ainsi les concentrations en biomasse dans le réacteur se situent couramment entre 15 et 30 kg.m⁻³ (Chen et al., 1988) et peuvent atteindre 50 kg.m⁻³ (Van Loosdrecht et Heijnen, 1993), permettant l'application de charges volumiques voisines de 15 à 25 kg DCO. m⁻³.j⁻¹ selon la nature de l'effluent à traiter (Aivasidis et Wandrey, 1988 ; Ehlinger et al., 1994).

L'effluent à traiter est admis à la base du réacteur à un débit suffisant pour assurer la fluidisation du support sur lequel est accrochée la biomasse épuratrice. Pour obtenir une bonne fluidisation, il est fait par ailleurs appel à une recirculation partielle de l'effluent à traiter. L'ordre de grandeur des vitesses de mise en suspension est de 5 à 12 m.h⁻¹ selon les supports. Cependant, le fonctionnement intensif à des charges élevées entraîne des problèmes hydrodynamiques liés à la production importante de biogaz et à une forte colonisation du support qui modifie la densité des particules. La colonisation du support n'est pas identique pour toutes les particules. Cela se traduit par une stratification des bioparticules sur toute la hauteur du lit avec les particules vierges en bas du réacteur et les particules les plus colonisées en haut. Ce phénomène modifie les conditions hydrodynamiques à appliquer afin d'obtenir un fonctionnement continu du bioréacteur (Myska et Svec, 1994). La vitesse de fluidisation doit alors être adaptée à la variation de taille et de densité du support, afin de maintenir les particules les plus lourdes (les moins colonisées) en suspension, tout en évitant de perdre les particules les plus légères (les plus colonisées) en tête du réacteur. Ce paramètre est cependant

difficile à contrôler et des problèmes d'entraînement de particules hors du réacteur peuvent apparaître (Schwarz *et al.*, 1998). Après avoir traversé le lit mobile, l'effluent épuré passe en haut du réacteur dans un séparateur triphasique qui assure le dégazage et la récupération par décantation des matériaux supports colonisés qui auraient éventuellement échappé au lit fluidisé. Ce procédé est toujours utilisé en dissociant la phase d'acidogenèse réalisée dans un bassin en amont du réacteur, de la phase de méthanogenèse. On procède si nécessaire à un réchauffage de l'effluent à traiter par de l'eau chaude produite à partir du biogaz, pour opérer à une température régulée à 30 - 35 °C.

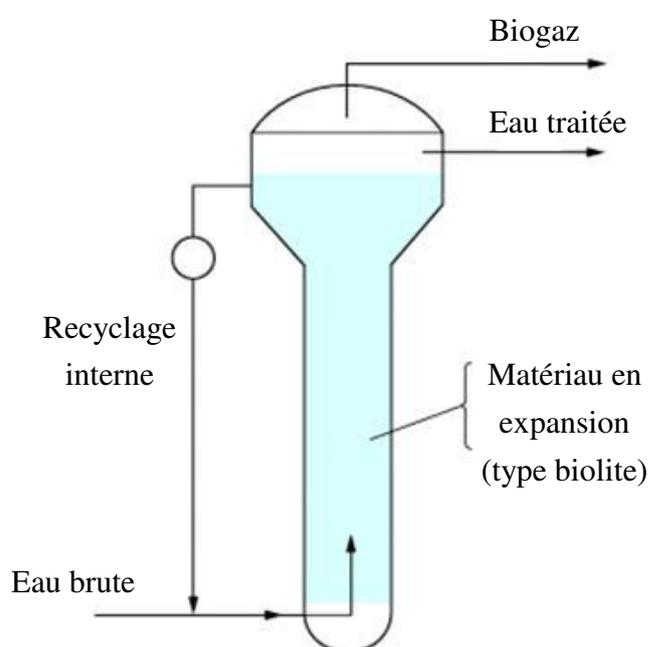


Fig. I. 8. Réacteurs à lits fluidisés.

La comparaison des caractéristiques des différents types de réacteurs anaérobies est reportée ci-dessous (Tableau I. 1):

Réacteur	Charge volumique (kg DCO. m ⁻³ .j ⁻¹)	Volume moyen de réacteur (m ³ . tonne DCO à traiter.j ⁻¹)	Charge de boue (kg MS.m ⁻³)
Réacteurs à boues libres- CSTR	3 - 5	300	8 - 12

Réacteurs à boues granuleuses-UASB	10 - 15	100	30 kg MS.m ⁻³ de support
Réacteurs à boues fixées	7 - 12	100	20 - 30
Réacteurs à lits fluidisés	15 - 20	70	15 - 30
EGSB	15 - 18	60	/
			compartiment bas :
			80 - 90
IC	20 - 30	40	compartiment haut :
			30 - 35

Tableau I.1. Tableau récapitulatif pour les différents types de réacteurs.

I.2. BOUES GRANULAIRES ANAEROBIES DANS LES BIOREACTEURS

I.2.1 Caractéristiques des boues granulaires anaérobies

Le succès des bioréacteurs anaérobies de type UASB, EGSB, CSTR... réside dans l'utilisation d'une biomasse sous forme de boues granulaires pour la dégradation de la pollution organique (Hulshoff Pol et al., 2004). Le caractère granulaire de la boue génère des propriétés particulières, déterminées par leurs caractéristiques microbiologiques et physico-chimiques. Ainsi, l'étude de ces caractéristiques permettra une meilleure compréhension du comportement général de ces granules.

I.2.1.1 Composition

Les granules anaérobies sont constituées de microorganismes, de polymères extracellulaires et de minéraux inorganiques (silicates, carbonates, oxydes ferriques, phosphate de calcium, sulfures) (Bhatti et al., 1995). Les travaux reportés dans la littérature (Dolfing, 1987) montrent

que 30 % de la fraction inorganique est composée de sulfures de fer, conférant aux granules leur couleur noirâtre. Le taux des PEC présent dans les granules représente entre 0,6 et 20 % de la MVS (*Morgan et al., 1991*). Les PEC proviennent de débris cellulaires ou de bactéries lysées et se composent essentiellement de protéines, de polysaccharides et dans une moindre mesure de lipides (*Bhatti et al., 1995*).

La composition bactérienne des granules anaérobies est complexe à cause de la présence de plusieurs espèces bactériennes, représentant plusieurs millions d'organismes par gramme de biomasse (*Liu et Tay, 2002*). Cependant, le groupe des bactéries méthanogènes est le plus largement représenté (20 - 50%) dans les boues granulaires anaérobies (*Dubourguier et al., 1987 ; De Zeeuw, 1987 ; Hickey et al., 1991 ; Hulshoff Pol et al., 2004*) avec deux genres bactériens méthanogènes majeurs : les *Methanosaeta* et *Metanosarcina*. L'activité métabolique peut aussi être utilisée comme un indicateur d'évaluation de la performance d'un réacteur et des effets d'éventuel toxiques ou inhibiteurs sur les granules anaérobies.

1.2.1.2 Microstructure

Initialement, certains auteurs pensaient que la distribution des différents groupes trophiques, dans tout l'espace du granule, était complètement aléatoire (*Dolfing, 1987*). Plus récemment, une approche plus structurelle a permis de décrire la microstructure des boues granulaires anaérobies (*MacLeod et al., 1990 ; Guiot et al., 1992b ; Quarmby et Forster, 1995b ; Liu et al., 2003*). En effet, les chercheurs *Kalogo et Verstraete (2001)* ont montré des différences dans la répartition des espèces de microorganismes entre la surface et l'intérieur du granule anaérobie. En effet, les bactéries de forme sphérique sont plutôt abondantes sur la surface du granule alors que, des bactéries plus filamenteuses tels que les *Methanosaeta* sont prédominantes dans la partie la plus intérieure (*Kalogo et Verstraete, 2001*).

Cependant, l'organisation spatiale des bactéries dans le granule diffère d'un auteur à l'autre. En se basant sur des observations microscopiques, certains auteurs proposent une microstructure sous forme de multicouches concentriques (*MacLeod et al., 1990 ; Guiot et al., 1992b ; Ahn, 2000*) alors que d'autres n'observent pas de structure en couche mais plutôt une structure homogène (*Dubourguier et al., 1987 ; Grotenhuis et al., 1991 ; Fang et al., 1995*). *Dubourguier et al., (1987)* proposent une structure de granule composé de groupes de microflocs agrégés par un réseau de microorganismes filamenteux : les *Methanosaeta* qui sont prédominants dans tout le granule. Quelques années après, *Grotenhuis et al., (1991)* ont montré, pour des granules développés avec des substrats riches en éthanol, propionate ou sucrose, une structure organisée en clusters composés de différentes espèces bactériennes. Ces recherches ont permis d'aboutir à la conclusion que la microstructure des granules méthanogènes est largement dépendante de la nature du substrat présent dans les effluents à traiter. Ainsi, des granules alimentés avec du propionate (*Fang et al., 1995*), des protéines (*Rocheleau et al., 1999*) ou avec des AGV (*Ahn, 2000*) ne développeront pas de structure en couche. A l'inverse, un substrat riche en sucre développera des granules avec une microstructure multicouches (*Fang et al., 1995*).

La complexité du substrat et la vitesse de dégradation de ce dernier, sont considérés comme des éléments majeurs pour expliquer la localisation et l'organisation des bactéries dans le granule anaérobie. Lorsque l'étape initiale de la dégradation du substrat par les bactéries responsables de l'hydrolyse et présentes à la surface des granules, est beaucoup plus rapide que celle effectuée par les bactéries situées à l'intérieur des granules, la quantité de substrat consommée par les bactéries responsables de l'hydrolyse des substrats sera plus importante. Ainsi, un gradient de concentration est généré, provoquant une diffusion des produits de l'hydrolyse du substrat vers l'intérieur du granule, où ils seront ensuite dégradés. Par conséquent, les substrats facilement fermentescibles ou hydrolysables favoriseront la

croissance de granules avec une structure en deux ou trois couches (selon la complexité du substrat), tel est le cas des sucres. A l'inverse, lorsque la dégradation initiale du substrat est lente, la structure du granule sera uniformément simple ou complexe, comme pour la dégradation des protéines.

1.2.1.3 Taille, forme et densité

Les granules anaérobies ont une forme approximativement sphérique et une surface bien définie mais variable selon les conditions opératoires du bioréacteur (*De Zeeuw, 1987 ; Hulshoff Pol, 1989 ; Alphenaar, 1994 ; Schmidt et Ahring, 1996*).

Généralement, la littérature rapporte les caractéristiques physiques suivantes pour les boues granulaires anaérobies issues de bioréacteurs de type UASB: une taille de granule comprise entre 0,1 et 5 mm de diamètre et une densité de 1,00 à 1,05 (*Tay et Yan, 1996 ; Ahn, 2002*). Les vitesses de sédimentation des boues granulaires anaérobies sont comprises entre 2 et 100 m.h⁻¹ avec une proportion importante des valeurs comprises entre 18 et 50 m.h⁻¹ (*Forster, 1981 ; Hulshoff Pol, 1989 ; Guiot et al., 1992a ; Schmidt et Arhing, 1996*). Dans les bioréacteurs de type UASB, la vitesse de sédimentation des granules ayant de bonnes caractéristiques est supérieure à 36 m.h⁻¹ (*Ghangrekar et al., 2005*).

Les variations de certains paramètres de granules comme la taille et la densité, ont une influence sur les performances du bioréacteur. En effet, un granule de taille et/ou de densité trop faible peut facilement être entraîné hors du réacteur. De la même façon, des granules trop grosses peuvent s'effriter ou se désagréger sous l'influence des forces de cisaillement (vitesse de l'effluent entrant, ascension des bulles de biogaz...) et être aussi entraînées à l'extérieur du réacteur. C'est pourquoi, dans la pratique industrielle, un diamètre moyen de granule de 1 à 2

mm et une densité d'environ 1,06 semblent être les plus recherchés pour obtenir une meilleure performance du réacteur.

Certains auteurs ont utilisé des caractéristiques physiques pour différencier les types d'agrégats de boues entre eux, comme par exemple les floccs et les granules. Ainsi, *Alphenaar (1994)* utilise la vitesse de sédimentation comme critère de distinction et montre que, des agrégats de boues avec des vitesses de sédimentation supérieures à 15 m.h^{-1} sont considérés comme étant des granules. A l'inverse, des vitesses inférieures à 15 m.h^{-1} sont attribuées à des floccs.

1.2.1.4 Cavités, canaux et porosité

La présence de cavités dans les granules anaérobies a été observée par plusieurs auteurs (*Kosaric et al., 1990 ; MacLeod et al., 1990*) et doit probablement être reliée à la taille des granules (*Kosaric et al., 1990*). En effet, le substrat pénètre à l'intérieur du granule seulement par diffusion ; ainsi, lorsque la taille des granules excède une certaine limite, la concentration de substrat à l'intérieur peut devenir insuffisante pour la survie des bactéries. A cet endroit, l'absence de substrat va provoquer l'autolyse de la population microbienne, diminuant ainsi la densité du granule anaérobie. Les gaz présents dans le milieu pourront y être plus facilement piégés et entraîner la flottaison des boues granulaires anaérobies dans le réacteur. De plus, dans certains granules, l'existence de canaux (*Dubourguier et al., 1987*) et d'orifices de tailles variables (*Hickey et al., 1991*) ont été rapportés comme favorisant le transport et la libération des biogaz mais aussi le transport de nutriments à l'intérieur du granule. Le transport de substrats solubles (produits intermédiaires et produits finis) au travers des granules est déterminé par la vitesse de diffusion et par le volume total de pores. Les processus de convection peuvent aussi accroître le transport, au travers des pores les plus grands. Le

transport des molécules de différentes tailles est contrôlé par la porosité et la distribution en taille des pores (Alphenaar, 1994). Selon Alphenaar (1994), pour la plupart des boues granulaires, le volume total des pores disponibles dans le granule varie de 40 à 80%. Toutefois, des valeurs au dessous de 10 % et au dessus de 95 % ont été rapportées pour certaines boues granulaires.

1.2.1.5 Résistance

La résistance des granules est généralement associée à leur stabilité. La résistance du granule peut être définie comme étant la résistance à la friction et/ou cassure générée par des forces de compression (Hulshoff Pol, 1989) ou par une contrainte de cisaillement exercée par le liquide ou le biogaz (Pereboom, 1997).

Certains auteurs (Quarmby et Forster, 1995a ; Zhou et al., 2006) ont montré l'importance du caractère filamenteux des *Methanosaeta* ainsi que leurs capacités à produire des PEC, pour le maintien de la stabilité des granules. En effet, les *Methanosaeta* produisent davantage des PEC que les *Methanosarcina*. Pereboom (1997) a montré que l'élimination du calcium de la matrice granulaire réduisait la résistance structurelle du granule. De plus, les plus grosses granules montrent une plus faible résistance.

D'autres facteurs comme les caractéristiques des bactéries, la composition de la fraction inorganique, les caractéristiques et la vitesse d'entrée de l'effluent à traiter sont aussi reconnues pour affecter la résistance du granule anaérobie.

1.2.1.6 Hydrophobicité

Dafonchio et al., (1995) ont montré que les surfaces bactériennes des granules anaérobies étaient majoritairement hydrophobes. Parmi les microorganismes présents dans les granules anaérobies, ces auteurs constatent que les bactéries acidogènes sont hydrophiles alors que les bactéries acétogènes et méthanogènes sont hydrophobes. L'étude de *Mahoney et al.*, (1987) a montré que les granules lessivées hors du bioréacteur présentent un caractère plus hydrophile que les granules retenues à l'intérieur du système. Ceci semble indiquer l'influence des conditions opératoires du bioréacteur sur l'hydrophobicité des boues granulaires anaérobies. De plus, de nombreux auteurs (*Tay et al.*, 2000 ; *Teo et al.*, 2000 ; *Liu et al.*, 2004) ont rapporté le rôle important joué par l'hydrophobicité des surfaces bactériennes dans le procédé de granulation anaérobie.

I.2.2 Contraintes biologiques des boues granulaires

Les micro-organismes composant la biomasse épuratrice nécessitent, comme tous les êtres vivants, des conditions de milieu particulières pour le bon fonctionnement de leur métabolisme. Dans cette partie seront présentés les principaux facteurs influençant les granules de boue comme : la vitesse d'entrée du fluide, la température, le pH, les substrats présents dans les eaux usées à traiter etc...afin de créer des conditions de fonctionnement stables et optimales.

I.2.2.1 Influence du pH des effluents

Le pH joue un rôle important dans la croissance bactérienne des espèces présentes dans le granule anaérobie. L'ion H^+ présent dans le milieu est toxique pour la plupart des micro-organismes qui rechercheront plutôt un milieu avec un pH proche de la neutralité. Les bactéries acidifiantes réalisent l'étape d'acidification des effluents en amont du réacteur

anaérobie. Elles produisent par conséquent des quantités importantes d'ions hydrogène suite à l'hydrolyse des molécules avec pour conséquence une diminution du pH des effluents. Les bactéries productrices de méthane peuvent fonctionner, au mieux de leurs capacités, dans un intervalle très restreint de pH, compris entre 6,7 et 7,4 (*Bitton 1999*). Leur activité décroît avec la chute du pH jusqu'à une inhibition totale au-dessous d'une valeur de pH de 4,5. Une régulation du pH peut s'avérer nécessaire pour favoriser la réaction d'acidification, particulièrement dans le cas d'effluents fortement chargés en matières organiques.

Sous des conditions opératoires normales, la réduction du pH causée par les bactéries productrices d'acides peut être tamponnée par les hydrogénocarbonates produits par les bactéries génératrices de méthane. Si la suspension de boues granulaires n'est pas bien tamponnée, il se crée une limitation de diffusion des protons générant un gradient de pH dans les granules. En effet, la mesure du profil des pH à l'intérieur des granules dans une suspension de faible capacité tampon, a montré que les valeurs de pH à plusieurs profondeurs de granules sont plus faibles que le pH du surnageant tamponné (*Lens et al., 1995*). *Teo et al., (2000)* ont étudié les effets d'une variation de pH sur la résistance des granules UASB. Les résultats montrent que sous des conditions de pH élevées (8,5 - 11,0), la structure granulaire est affaiblie alors que dans l'intervalle de pH compris entre 5,5 et 8,0, la structure granulaire est relativement stable.

1.2.2.2 Influence de la température

Toute l'activité enzymatique des bactéries dépend de la température. Il convient de respecter les limites biologiques des micro-organismes selon leur appartenance à un groupe : psychrophile, mésophile ou thermophile. Dans la majorité des cas, les installations industrielles fonctionnent dans des conditions mésophiles entre 20 et 40 °C. Dans les

bioréacteurs, un changement de conditions mésophiles (température de 30 à 40°C) à thermophiles (température de 50 à 60°C) peut causer des modifications structurelles aussi importantes que celles générées par la source de substrat (*Macario et De Macario, 2001*).

Les fortes et brusques variations de température des effluents peuvent entraîner des dysfonctionnements de l'épuration anaérobie en créant un choc thermique. Dans le cas d'une baisse subite de plusieurs degrés de la température, l'activité des bactéries chute avec pour conséquence une diminution des capacités épuratoires. Il s'agit alors simplement d'une inhibition et une remontée de la température permettra de retrouver une épuration correcte (*Boulenger et Gallouin, 2009*). Ainsi, *Bitton (1999)* a remarqué que les bactéries méthanogènes se développent en 3 jours à 35°C alors que le temps de croissance est de 50 jours à 10°C (conditions psychrophiles). Lorsque la température du réacteur est au dessous de 30°C, l'activité des bactéries méthanogènes est fortement réduite. C'est pourquoi, pour en assurer un bon fonctionnement, les réacteurs UASB mésophiles doivent opérer à une température comprise entre 30 et 35°C. Plus récemment, l'étude de *Chou et al., (2004)* a montré que des réacteurs UASB fonctionnant à 30°C développent des tailles de granules plus grosses que des réacteurs fonctionnant à 25°C. Ainsi, dans ces derniers réacteurs, la perte de biomasse par lessivage est plus importante.

D'autres études ont également été réalisées pour étudier l'influence de températures faibles sur la performance des bioréacteurs à boues granulaires anaérobies (*Angenent et al., 2001 ; Lettinga et al., 2001 ; Lew et al., 2003 ; Singh et Viraraghavan, 2003*). Ainsi, *Singh et Viraraghavan (2003)* ont montré qu'une bonne réduction de la DCO (70 à 90 %) peut-être atteinte dans un réacteur UASB fonctionnant en dessous de 11°C et avec un temps de séjour hydraulique de 6 H. L'activité optimale des bactéries anaérobies mésophiles se situe dans la plage de température 30 - 38 °C. En dessous de 30 °C, nous notons un net ralentissement de

l'activité des bactéries; seulement 35 % de l'activité à 35 °C subsiste à une température de 20 °C.

1.2.2.3 Influence du substrat

Les bactéries anaérobies, comme tous les êtres vivants, ont besoin d'éléments nutritifs pour vivre et se reproduire. Selon plusieurs auteurs (*Ahn, 2000 ; Tay et al., 2000 ; Batstone et Keller, 2001, Batstone et al., 2004*), la composition de l'effluent à traiter est le facteur le plus déterminant dans les caractéristiques physico-chimiques et microbiologiques des granules anaérobies. Pour *Batstone et Keller, (2001)*, le substrat affecte davantage la granulométrie des granules que la vitesse d'entrée du fluide, le design du réacteur ou les conditions opératoires telles qu'une pré-acidification de l'effluent.

Les bactéries anaérobies ont principalement besoin d'une source d'azote sous forme organique (azote ammoniacal ou urée) et d'une source de phosphore (orthophosphates). Ces nutriments sont utilisés pour la synthèse de matière vivante et pour le stockage de l'énergie produite lors des réactions biologiques. D'autres éléments du type métaux (nickel, cobalt, manganèse, fer, molybdène...) ou minéraux (calcium) sont également nécessaires pour permettre le bon développement de la biomasse anaérobie. Ces composés sont généralement présents en quantité suffisante dans les effluents à traiter, car ils sont nécessaires à très faible concentration. Dans la plupart des cas, aucun ajout n'est nécessaire. Le tableau I. 2 indique une liste d'inhibiteurs associés aux concentrations critiques correspondantes.

Substances	Modérément inhibitrices (mg.L ⁻¹)	Fortement inhibitrices (mg.L ⁻¹)
Chlorure de sodium	10 000	40 000

Sodium	3 500 à 5 500	8 000
Potassium	2 500 à 4 500	12 000
Calcium	2 500 à 4 500	8 000
Magnésium	1 000 à 1 500	3 000
Azote ammoniacal	1 500 à 3 000	> 3 000
Sulfure		200
Cuivre		50 à 70
Chrome (VI)		200 à 600
Chrome (III)		180 à 420
Nickel		30

Tableau I. 2. Liste des inhibiteurs connus et de leurs concentrations seuils pour la méthanisation

(Frédéric et Lugardon, 2007).

I.2.2.4 Influence des acides gras volatils

Les AGV représentent une part importante des substrats convertis par les bactéries méthanogènes et constituent aussi une menace pour la production du méthane. En effet, les AGV sont des acides faibles qui ne sont pas complètement dissociés dans l'eau contrairement aux acides forts. Selon le pH du milieu, la forme moléculaire subsiste dans le milieu en quantité plus ou moins importante :

- à pH = 4,7, 50 % de l'acide acétique est sous forme ionisée et 50 % sous forme moléculaire;
- à pH = 5,7, seulement 10 % de l'acide acétique est sous forme moléculaire (Fig. I. 9).

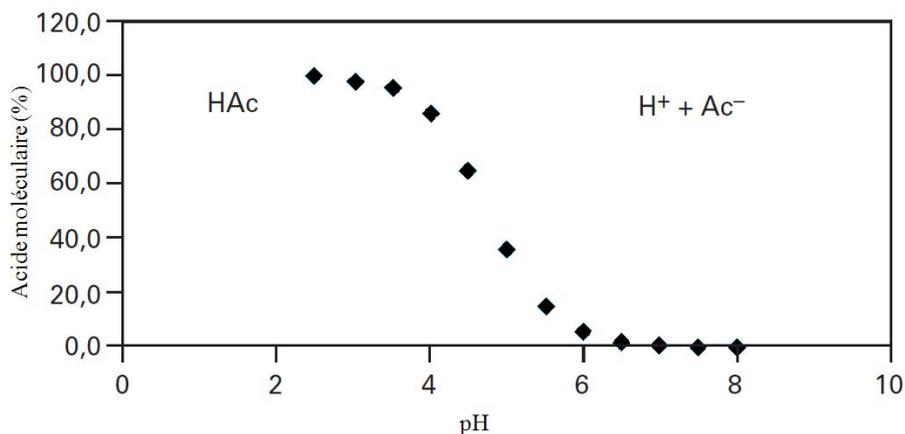


Fig. I. 9. Courbe de dissociation de l'acide acétique dans l'eau selon le pH (Boulenger et Gallouin, 2009).

Assimilés sous leur forme moléculaire par les bactéries, ils peuvent devenir toxiques si leur concentration dans le milieu devient trop importante. En revanche, la forme ionisée n'est pas toxique (impossibilité de pénétrer dans la cellule). Il convient donc de maintenir un équilibre très favorable à la forme ionisée dans le milieu afin de ne pas intoxiquer les bactéries. Dans ces conditions, le substrat leur sera fourni à des doses biologiquement acceptables. La régulation du pH des effluents à l'entrée du réacteur anaérobie permet de favoriser l'ionisation des acides gras volatils. L'utilisation d'un débit de recirculation d'effluents méthanisés contenant beaucoup de bicarbonates est aussi une solution permettant de réguler le pH du réacteur anaérobie.

1.2.2.5 Influence du débit d'entrée de liquide

Les conditions hydrodynamiques dans les réacteurs UASB sont le plus largement représentées en fonction du débit d'entrée de l'effluent à traiter.

De nombreuses études ont rapporté qu'un débit d'entrée de l'effluent dans les réacteurs UASB relativement élevé était favorable à la granulation anaérobie, alors qu'aucune

granulation n'est observée pour de faibles débits (*Alphenaar, 1994 ; Arcand et al., 1994 ; O'Flaherty et al., 1997 ; Alves et al., 2000*). *Alphenaar (1994)* a montré que la combinaison d'un débit d'entrée de l'effluent élevée et d'un temps de séjour hydraulique court (3,5 h) était bénéfique au procédé de granulation dans les réacteurs UASB.

Toutefois, des débits d'entrée du fluide trop élevés peuvent entraîner la désintégration de granules à cause des importantes forces de cisaillements hydrauliques générées. La conséquence se traduit alors par le lessivage de fragments de granules à l'extérieur du réacteur. Aux faibles débits d'entrée, un noyau caverneux peut se développer à l'intérieur du granule, ce qui, avec l'action combinée des bulles de biogaz, peut entraîner la flottation et l'élimination des granules à l'extérieur du réacteur.

En augmentant dans leur réacteur les vitesses superficielles du liquide de 3 à 9 m.h⁻¹, *Rodriguez et al., (2001)* constatent que la densité, la résistance et l'activité méthanogène des granules sont peu affectées par les forces de cisaillement engendrées. De plus, les effets positifs de ces forces de cisaillement se portent sur la structure, le transfert de masse et la production des PEC des biofilms (*Liu et Tay, 2002*).

I.3. HYDRODYNAMIQUE DANS DES BIOREACTEURS

L'hydrodynamique des réacteurs triphasiques à solide suspendu a été largement étudiée. Dans ces réacteurs la phase solide est fluidisée par la phase liquide (ce qui correspond à la phase de démarrage des bioréacteurs anaérobies), par la phase gaz ou encore par les deux phases gaz et liquide (lorsque le biogaz commence à se produire dans le cas des bioréacteurs anaérobies).

I.3.1 Fluidisation

La fluidisation consiste à mettre en suspension un matériau granulaire par un courant de fluide (*Fan, 1989*). Les particules forment un lit plus ou moins dense selon la vitesse d'écoulement du fluide. Lorsqu'un débit de fluide est appliqué au travers de l'empilement de particules, ce dernier se comporte d'abord comme un milieu poreux. Le lit solide est fixe aux faibles débits gazeux et/ou liquide et la perte de charge dans le réacteur augmente avec le débit du fluide. Le lit s'expande ensuite et les particules se réarrangent au sein du liquide ; elles sont alors en suspension. Ce phénomène intervient lorsque la vitesse minimale de fluidisation est atteinte, le lit de particules est alors fluidisé. Dans le cas des réacteurs utilisés en traitement anaérobie des eaux, la fluidisation triphasique est une solution intéressante pour améliorer les conditions de mélange.

I.3.1.1 Différents modes de fluidisation triphasique

La fluidisation triphasique est définie comme l'opération permettant de maintenir en suspension des particules solides en milieu gaz/liquide sous l'effet de forces d'entraînement. Il existe différents modes de fluidisation triphasique, à flux de phases à co-courant ou à contre courant. Suite au développement de ce procédé dans l'industrie, de nombreuses configurations du lit fluidisé triphasique ont vu le jour. Ces configurations se différencient par le choix de la phase continue, le sens de fluidisation, ascendant ou descendant, et la densité du support (Fig. I. 10).

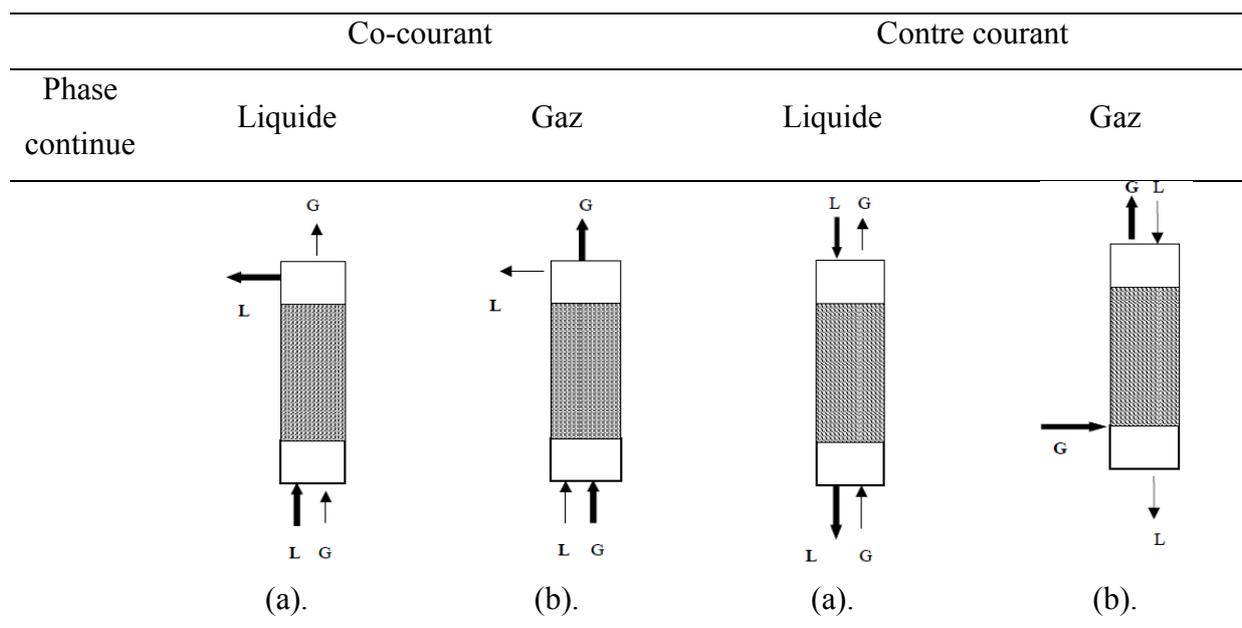


Fig. I. 10. Les configurations de la fluidisation triphasique (Muroyama et Fan, 1985).

Pour la fluidisation à co-courant, le liquide et le gaz circulent dans la même direction ascendante avec une densité du support plus élevée que la densité de la phase continue. Dans le modèle à co-courant (a), la phase continue est liquide et le gaz est introduit sous la forme de bulles traversant le lit. Pour la configuration (b), la phase continue est gazeuse ; le liquide qui constitue la phase dispersée se présente sous la forme d'un film ou de fines gouttelettes. Dans la fluidisation à contre courant, le liquide et le gaz ont des directions opposées. On l'appelle fluidisation triphasique inverse car ici, le lit de particules est de densité inférieure à celle du liquide. Il est fluidisé par un courant descendant de liquide opposé à la force ascensionnelle des particules (a) ou un courant ascendant de gaz (b). Dans nos études, nous nous concentrons sur la fluidisation à co-courant ascendant.

I.3.1.2 Comportement hydrodynamique du lit triphasique

I.3.1.2.1 Comportement de la phase liquide

Pour l'hydrodynamique globale d'un lit fluidisé du liquide, on observe différents régimes selon le débit de liquide utilisé. A faible vitesse de liquide, le lit de particules est fixe, le fluide ne faisant que percoler à travers le milieu poreux (Fig. I. 11 (a)). A partir d'une certaine vitesse appelée vitesse minimale de fluidisation et correspondant à un équilibre entre le poids apparent du lit et les forces de frottement entre les particules et le fluide, les particules sont en suspension dans le courant ascendant du fluide et commencent à bouger les unes par rapport aux autres : le régime à fluidisation minimale est alors atteint (Fig. I. 11 (b)). En augmentant la vitesse au-delà de la vitesse minimale de fluidisation, l'augmentation du débit se traduit par une expansion progressive du lit. Ce dernier conserve une grande stabilité. Cela correspond à une fluidisation particulière ou homogène (expansion du lit pouvant atteindre 300%) (Fig. I. 11 (c)).

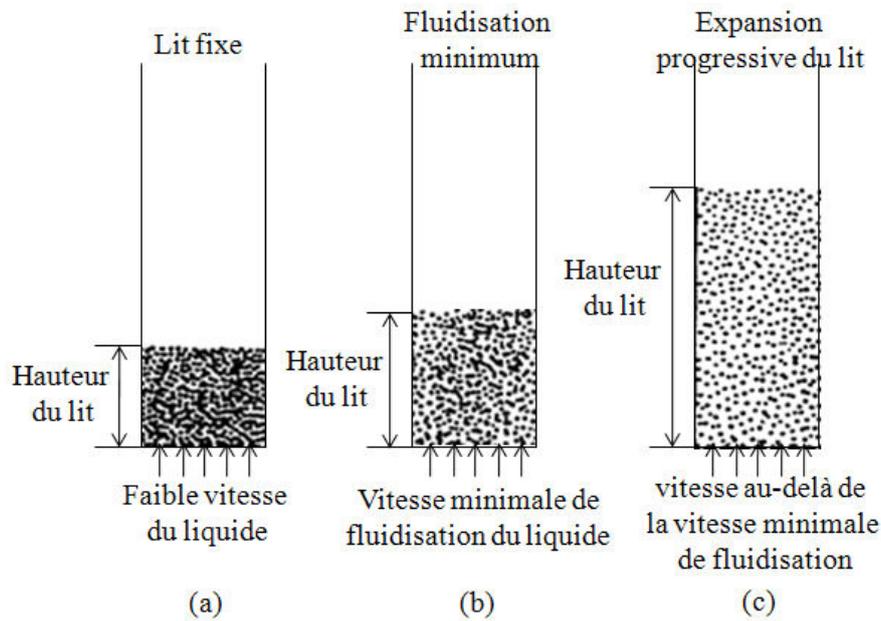


Fig. I. 11. Différents types de lits (Kunii et Levenspiel, 1991).

Selon *Stronach et al.*, (1986), la limite entre un lit expansé et un lit fluidisé est indéfinie et dépend du degré de fluidisation; ce dernier est fonction de la densité, de la porosité et de la taille des particules ainsi que de la vitesse du fluide. Un bioréacteur à lit expansé offre de

nombreux avantages : une plus grande surface de contact entre les micro-organismes et le fluide ; des problèmes minimes de circulation, de congestion et de passages de gaz ; une épaisseur de biofilm contrôlée par le type de particules ; une faible résistance à la diffusion à travers le biofilm; peu d'infrastructures requises et une distribution plus homogène du courant liquide.

I.3.1.2.2 Comportement de la phase gazeuse

L'hydrodynamique du lit est aussi lié à celui des bulles de gaz. Les paramètres qui ont une influence sur le régime d'écoulement du gaz sont : la taille de bulles et de particules, le degré d'expansion du lit et les vitesses de liquide et de gaz (Fan, 1989). Il existe trois régimes d'écoulement pour les bulles (Fig. I. 12) :

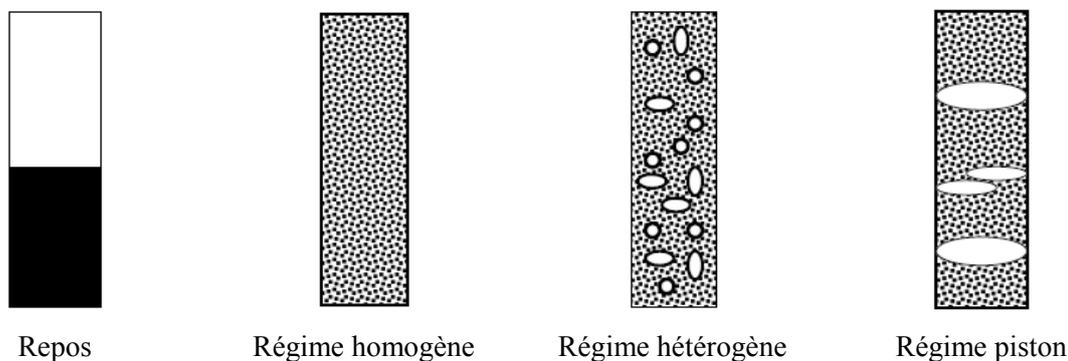


Fig. I. 12. Différents régimes d'écoulement d'un lit triphasique (Michaud, 2001).

- régime homogène : les bulles sont toutes de même taille et ne coalescent pas. Leur taille ne dépasse pas celle des particules solides. Ce régime s'observe à forte vitesse de liquide et faible vitesse de gaz ;
- régime hétérogène à bulles coalescentes : les bulles sont de tailles différentes et ont tendance à coalescer lorsqu'elles montent dans la colonne. Les bulles de grande taille ainsi formées ont des vitesses ascensionnelles supérieures à celles des petites bulles.

La transition du régime de bulles uniformes à celui de bulles coalescentes est principalement fonction des propriétés du liquide (viscosité, tension superficielle et distributeur de gaz) ;

- régime en bouchons ou piston : les bulles coalescent jusqu'à occuper toute la section de la colonne. Il se forme des poches de gaz dans le lit qui occupent une grande section de surface. Ce phénomène est très souvent observé dans le cas de colonnes de faible diamètre.

I.3.1.2.3 Rétentions des phases

Le rapport du volume occupé par une phase sur le volume total du réacteur est appelé rétention. Les valeurs des rétentions varient en fonction des conditions hydrodynamiques dans la colonne. Les taux de rétentions sont liés par l'expression:

$$\varepsilon_s + \varepsilon_g + \varepsilon_l = 1 \quad (\text{Eq. I. 1})$$

La fraction volumique de solide peut être exprimée en fonction de la masse du lit de particules (m_s), la masse volumique du solide (ρ_s), l'aire de la section droite (A) de la colonne et la hauteur du lit (H) :

$$\varepsilon_s = \frac{m_s}{\rho_s AH} \quad (\text{Eq. I. 2})$$

L'ensemble des rétentions de phases peut être déterminé à partir du gradient axial de pression dans la colonne. En régime permanent, il représente le poids total du lit par unité de volume :

$$-\frac{dP}{dZ} = (\varepsilon_s \rho_s + \varepsilon_l \rho_l + \varepsilon_g \rho_g) g \quad (\text{Eq. I. 3})$$

La mesure de ce gradient de pression, permet, en combinant les équations I.1 – I.3, d'évaluer les rétentions globales des phases. Cette méthode du gradient de pression est très utilisée mais n'est pas applicable dans tous les cas, en particulier pour des particules très petites ou très légères. D'autres méthodes ont été développées telle que la conductimétrie (*Begovich et Watson, 1978*). Dans cette approche, la porosité du lit est exprimée comme le rapport entre sa conductivité et la conductivité du liquide seul.

I.3.2 Modèle d'écoulement

I.3.2.1 Ecoulement dispersif

L'écoulement dans les réacteurs réels peut parfois être considéré comme proche d'un écoulement en piston ou en mélange parfait. Toutefois, il y a des cas où les besoins de l'étude, ou encore la complexité de l'écoulement, nécessitent de faire appel à des modèles d'écoulement plus proches de la réalité.

L'écoulement de la phase liquide dans un réacteur à lit fluidisé est communément décrit par un modèle de dispersion axiale (*Nicolella et al., 2000*). Pour des colonnes à faible rapport diamètre/hauteur, comme par exemple les bioréacteurs concernés, la dispersion radiale peut être négligée par rapport à la dispersion axiale (*Turan et Ozturk, 1997*). Le mélange axial de la phase liquide d'un réacteur est une situation intermédiaire entre deux cas idéaux : parfaitement agité ou écoulement piston (*Villermoux, 1992*).

Pour caractériser le degré de dispersion axiale de la phase liquide, le nombre de Péclet est souvent utilisé.

$$Pe = \frac{uL}{D_i} \quad (\text{Eq. I. 4})$$

- si $Pe \rightarrow 0$: dispersion infinie, agitation complète ;
- si $Pe \rightarrow \infty$: dispersion nulle, écoulement piston.

Les réacteurs triphasiques sont généralement caractérisés par des mélanges d'une grande intensité, avec des coefficients de dispersion D_i très élevés et des nombres de Péclet faibles.

I.3.2.2 Ecoulement en cascade

La modélisation de la DTS peut utiliser une combinaison d'écoulements idéaux pour représenter les écoulements réels.

Ces réacteurs sont placés en série ou en parallèle (Fig.I. 13).

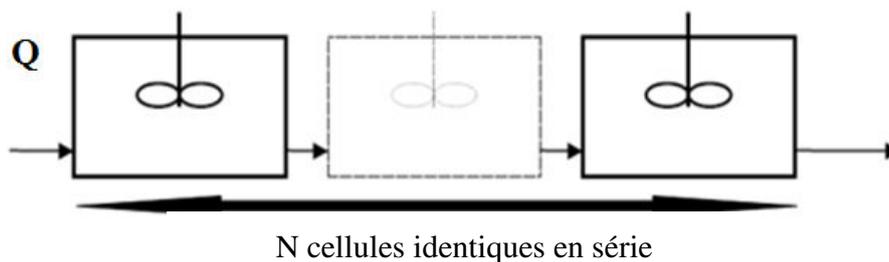


Fig. I. 13. Représentation du modèle d'écoulement à N réacteurs parfaitement mélangés en série.

Les réacteurs réels peuvent être caractérisés grâce à l'allure de la DTS adimensionnelle paramétrée par le nombre n de réacteurs équivalents dans le cas d'un modèle de réacteurs en cascade.

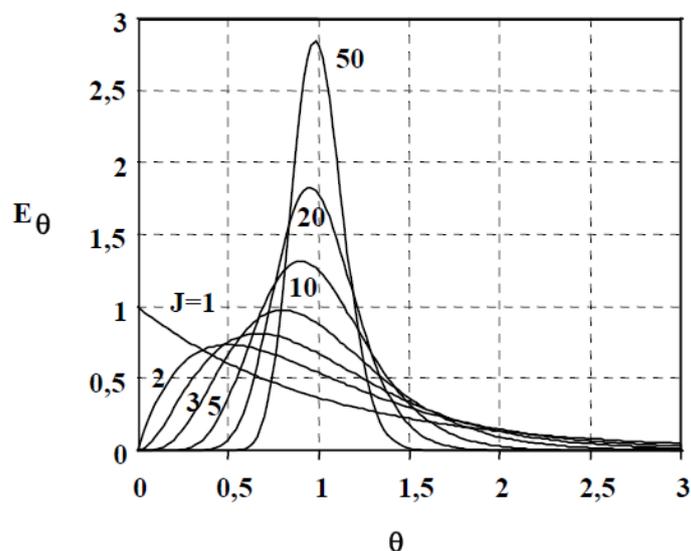


Fig. I. 14. Courbes de Distribution des Temps de Séjour. Modèle des réacteurs en cascade (Villermaux, 1992).

Les réacteurs réels ont une allure de DTS située entre celle des deux réacteurs idéaux : le réacteur parfaitement mélangé (Fig. I. 14, $J = 1$) et le réacteur à écoulement piston caractérisé par un nombre de réacteurs J très grand.

I.3.3 Contraintes de cisaillement hydrodynamiques

La contrainte de cisaillement exercée sur les granules de boue issues du traitement biologique des eaux usées a été appliquée pour répondre à des problèmes de la résistance, la stabilisation, la structure etc. Les contraintes de cisaillement hydrodynamiques sont générées par l'ascension du liquide et des bulles de biogaz produit ; elles représentent ainsi un paramètre déterminant pour l'efficacité de traitement des eaux et la production de biogaz.

I.3.3.1 Notion du cisaillement

Un matériau soumis à un ensemble de forces est susceptible de se déformer. Les mouvements des différents points du matériau sont dépendants de la répartition et de l'intensité des forces appliquées (Midoux, 1988).

Supposons le mouvement laminaire d'un échantillon à une certaine vitesse (\vec{u}) entre deux surfaces planes d'épaisseur (e), l'une immobile, l'autre animée d'un déplacement parallèle à la première (Fig. I. 15). Le cisaillement du matériau sera quantitativement caractérisé par deux grandeurs: la vitesse et la contrainte de cisaillement notées respectivement $\dot{\gamma}$ et τ .

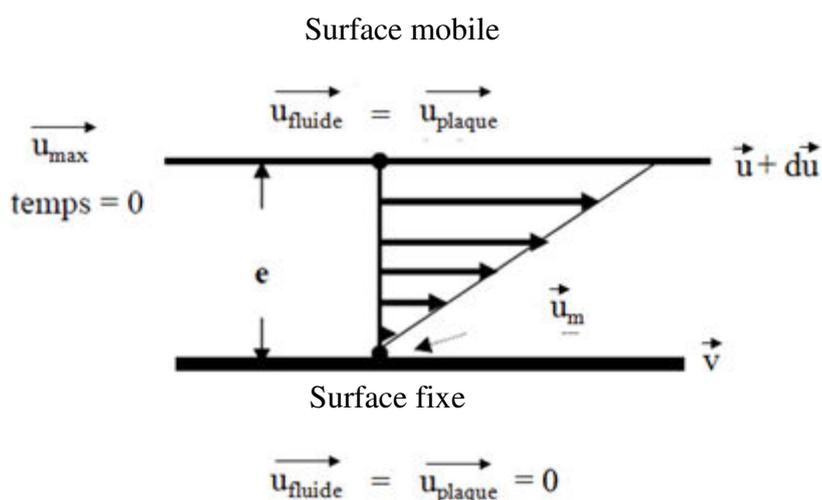


Fig. I. 15. Mouvement linéaire de cisaillement entre deux plans parallèles.

Les hypothèses du système pendant toute la durée de l'écoulement (du cisaillement) sont : un mouvement linéaire de Couette. La structure du matériau est assimilée à une superposition de couches adjacentes (en lamelles) d'épaisseur infiniment minces. La déformation du matériau s'effectue par un glissement relatif des différentes couches les unes sur les autres, sans qu'il y ait transfert de matière d'une couche à l'autre. Il s'agit d'un mouvement strictement ordonné qui se produit sans brassage de matériau et sans variation de son volume.

I.3.3.2 Vitesse de cisaillement

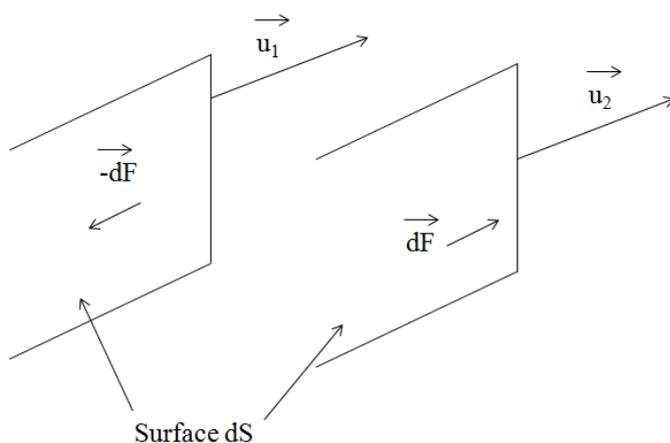
La vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ caractérise la variation de la vitesse (\vec{du}) correspondant à une épaisseur de couche limite (de) et s'exprime sous la forme suivante (Fig. I. 15) :

$$\dot{\gamma} = \frac{\vec{du}}{de} \quad (\text{s}^{-1}) \quad (\text{Eq. I. 5})$$

La valeur de $\dot{\gamma}$ dépend non seulement de la vitesse de déplacement de la plaque mobile \vec{du} mais aussi, de l'épaisseur e cisailée. Si e est faible, il est possible d'obtenir des valeurs de $\dot{\gamma}$ élevées même avec des vitesses \vec{u} relativement faibles.

I.3.3.3 Contrainte de cisaillement

Sous l'effet, du déplacement relatif des différentes couches, il apparaît à l'interface des forces de frottement qui s'exercent tangentiellement à la surface de ces couches appelées forces de cisaillement (Fig. I. 16).



$$\vec{u}_1 > \vec{u}_2$$

1 exerce sur 2 une force \vec{dF} qui tend à accélérer 2.

D'après le principe des actions réciproques, 2 exerce sur 1 une force $-\vec{dF}$ qui tend à freiner 1.

Fig. I. 16. Forces agissantes sur deux éléments de couches voisines.

En rapportant ces forces de cisaillement (\vec{F}) à l'unité de surface (S), on définit la contrainte de cisaillement τ :

$$\vec{\tau} = \frac{\vec{F}}{S} \quad (\text{N.m}^{-2} \text{ ou Pa}) \quad (\text{Eq. I. 6})$$

La contrainte de cisaillement varie en général d'une couche à l'autre mais est constante en tout point de la même couche (*Coussot et Grossiord, 2001*).

1.3.3.4 Viscosité

La détermination de ces deux grandeurs ($\tau, \dot{\gamma}$) permet de définir la viscosité du fluide étudié. La contrainte de cisaillement augmente avec la vitesse de cisaillement. Mais le rapport entre ces deux grandeurs va dépendre des propriétés du matériau considéré, c'est la viscosité, notée μ . L'expression de μ est donnée par l'équation 7 et caractérise la résistance à la déformation du fluide sur les forces appliquées (*Coussot et Grossiord, 2001*).

$$\mu = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (\text{Pa. s}) \quad (\text{Eq. I. 7})$$

La viscosité est une grandeur permettant de caractériser le comportement rhéologique d'un fluide si celui-ci se trouve être un fluide newtonien pour lequel la viscosité est indépendante du cisaillement. Dans le cas d'un fluide non newtonien, la viscosité varie en fonction du cisaillement et montre ainsi un comportement rhéologique beaucoup plus complexe. Dès lors, on parlera de viscosité apparente définie par la même équation 7.

I.3.3.5 Effet du cisaillement

Liu et al., (2002) résument les travaux relatifs à la force de cisaillement lors de la formation d'un film biologique et des boues granuleuses. Ils ont clairement montré que la contrainte de cisaillement avait une influence significative sur :

- structure : une contrainte de cisaillement importante provoque un amaigrissement et une densification du film biologique. Mais une contrainte de cisaillement minimale est requise pour produire une structure stable et compacte du film biologique ;
- transfert de matière : le cisaillement influence l'efficacité de diffusion du substrat et par conséquent la qualité de l'effluent. On peut noter que le transfert du substrat au granule augmente avec la turbulence et est inversement proportionnel à la densité du film biologique. L'hydrodynamique a donc un double effet sur le comportement du transfert de matière : une forte turbulence facilite le transfert du substrat par convection mais augmente la densité du film ce qui diminue le transfert ;
- comportement des espèces biologiques et des granules anaérobies : un fort cisaillement sur le film entraîne une diminution de l'activité déhydrogénase du film. Il est possible que le film biologique réponde à la contrainte de cisaillement en régulant sa voie métabolique ; mais ces effets ne sont pas encore bien compris.

Liu et al., 2002 concluent finalement que le cisaillement influence la formation du film biologique, sa structure, ainsi que le métabolisme et le comportement cinétique des boues granulaires. Cependant, il y a encore peu de travaux sur des effets du cisaillement dans la littérature.

I.3.3.5.1 Cas particulier de l'UASB

La faisabilité et l'efficacité des réacteurs de type UASB pour éliminer les déchets organiques biodégradables ont été largement démontrées. Cependant, on connaît peu de choses sur le rôle de la contrainte de cisaillement sur la formation des cellules granulaires anaérobies.

Dans les réacteurs UASB, la contrainte de cisaillement est majoritairement due à la vitesse du flux de liquide et à la production de biogaz. La granulation anaérobie se déroule à forte vitesse de liquide ascendant, tandis que l'absence de granulation a été remarquée à de faibles vitesses de cisaillement.

On peut donc faciliter le procédé de granulation en contrôlant la contrainte de cisaillement. Des expériences (*Noyola et al., 1994*) ont montré que la boue pouvait être convertie en cellules granulaires anaérobies en augmentant l'agglomération par simple augmentation de la contrainte de cisaillement durant une courte période (moins de 8 h).

I.3.3.5.2 Cas particulier du CSTR

Vanderhaegen et al., (1992) ont obtenu des granules anaérobies dans CSTR. Ils ont observé une disparition des boues granulaires en moins de trois semaines, lorsque les réacteurs étaient incubés sans agitation. Ceci montre que, dans les réacteurs CSTR, les contraintes de cisaillement jouent un rôle essentiel dans le maintien de la structure du granule anaérobie. *Liu et Tay, (2002)* ont analysé la contribution, du modèle d'écoulement dans les réacteurs, sur le procédé de granulation. D'un point de vue hydrodynamique, le réacteur UASB et CSTR présentent des comportements hydrodynamiques très différents, en termes d'interaction entre l'écoulement et les agrégats microbiens. La géométrie d'entrée du liquide ou du biogaz dans la colonne des réacteurs UASB, peut engendrer un écoulement circulaire relativement

homogène le long de la hauteur du réacteur. Dans ces conditions, les agrégats microbiens sont constamment soumis à ces forces hydrauliques circulaires (Fig. I. 17 (a)) et peuvent présenter des surfaces de granules réguliers. Dans le cas de réacteur CSTR, les agrégats microbiens se déplacent avec un écoulement dispersé dans toutes les directions du système (Fig. I. 17 (b)). Ainsi, les agrégats microbiens sont soumis à des contraintes de cisaillement localisées, suivant la trajectoire adoptée et la collision possible avec la surface du réacteur.

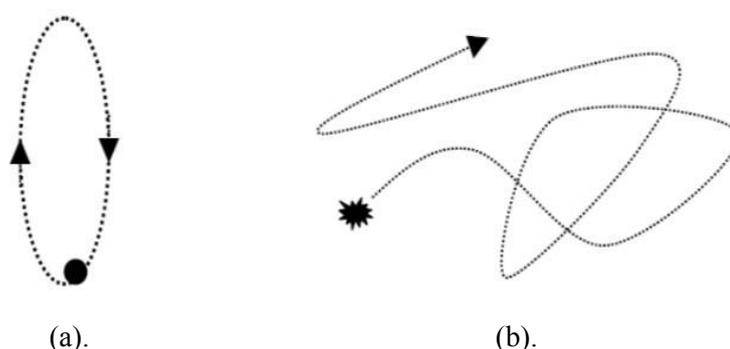


Fig. I. 17. Modèles d'écoulement. (a). Dans un réacteur de type UASB ; (b). Dans un réacteur de type CSTR (Liu et Tay, 2002).

I.3.3.5.3 Cas particulier du réacteur IC

Pereboom et Vereijken, (1994) ont cultivé des granules dans un réacteur à recirculation interne où le cisaillement moyen était le double de celui obtenu dans un réacteur de type UASB. L'étude menée par *Wu et al., (2006)*, a plutôt été focalisée sur le cisaillement global dans le réacteur ; la contrainte de cisaillement ayant été utilisée pour décrire leur effets des forces hydrodynamiques sur des granules. Cette étude montre qu'une augmentation brusque du cisaillement entraîne la mort des cellules tandis qu'une augmentation progressive du cisaillement permet d'atteindre des cisaillements assez élevés sans que les granules ne meurent.

Ainsi, seuls quelques rares travaux de la littérature résumés précédemment ont montré que le cisaillement influençait à la fois la formation du film biologique, sa structure, le métabolisme et le comportement cinétique des boues granulaires. Il est donc nécessaire d'améliorer la compréhension de l'effet du cisaillement sur tous ces paramètres qui conditionnent l'efficacité de production de biogaz.

**CHAPITRE II. DISPOSITIFS
EXPERIMENTAUX ET TECHNIQUES
DE MESURES**

II.1. DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

II.1.1 Réacteurs multi-échelles

Dans cette étude, les travaux sont principalement réalisés à méso et microéchelle. Ce chapitre décrit les réacteurs biologiques utilisés et l'ensemble des moyens mis en œuvre pour caractériser leur fonctionnement et leur mise en œuvre ainsi que les techniques de mesures en amont et en aval.

II.1.1.1 Colonne 2D et bioréacteur 2D

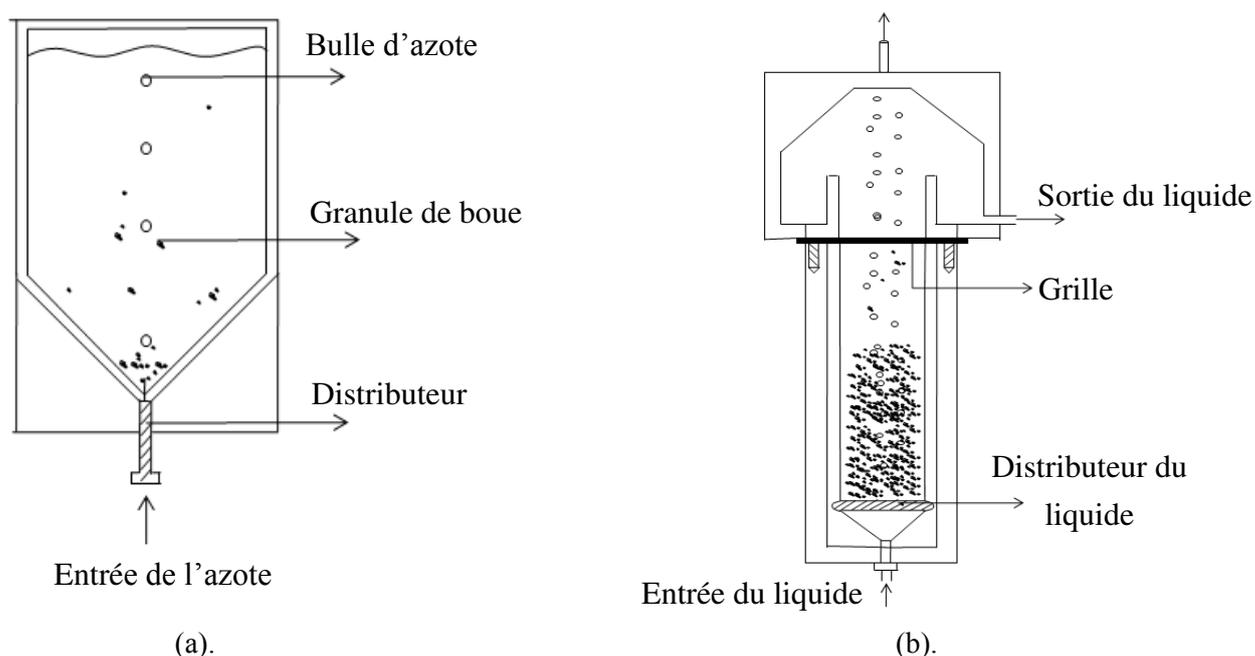


Fig. II. 1. Réacteurs utilisés dans cette étude. (a). Colonne 2D ;(b). Bioréacteur 2D.

Pour se rapprocher des conditions hydrodynamiques présentes dans le bioréacteur, une petite colonne bidimensionnelle (2D) en méthacrylate (PMMA), ayant une section de 95×5 mm et une hauteur de 30 cm est utilisée (Fig. II. 1 (a)). Elle peut être munie au fond de différentes

tailles d'orifice pour la distribution du gaz. Le système eau-azote-granule est choisi en maquette froide. Le bioréacteur de petite taille 2D utilisé (Fig. II. 1 (b)) est aussi fabriqué en PMMA et a une section de 30×5 mm et une hauteur de 25 cm. Il est conçu de manière à travailler en écoulement liquide-solide ou gaz-liquide-solide, l'alimentation du bioréacteur pouvant être liquide ou gazeuse. Ces deux réacteurs ont été réalisés par le personnel de l'atelier mécanique du laboratoire LRGP (Laboratoire Réactions et Génie des Procédés).

II.1.1.2 Microréacteur

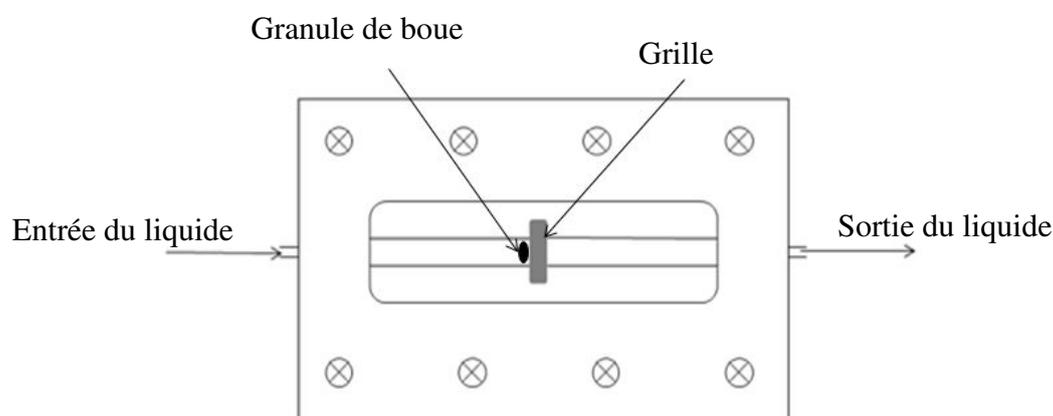


Fig. II. 2. Microréacteur.

Les expériences à microéchelle sont réalisées dans deux microréacteurs en PMMA. Les sections verticales du canal (largeur \times hauteur) sont de 4×2 mm pour le premier et 2×2 mm pour le second. Le granule de boue est retenu par une petite grille fixée au milieu du réacteur (Fig. II. 2).

II.2. TECHNIQUES DE MESURES

Des techniques de mesures permettant d'accéder aux grandeurs locales relatives aux deux phases gaz et liquide ont été utilisées dans ce travail.

II.2.1 Caméra rapide numérique

Une caméra rapide numérique (Optronis CamRecord 600) est utilisée pour visualiser les bulles de biogaz produites et les différents phénomènes rencontrés dans les réacteurs 2D. Le système se compose de la caméra et d'un logiciel d'acquisition. La caméra possède une haute résolution de 1280×1024 pixels et une fréquence d'enregistrement comprise entre 500 images par secondes en haute résolution et 100 000 images par secondes pour une résolution réduite (Fu et al., 2009).

Le capteur CMOS (*Complementary Metal-Oxide Semiconductor*) permet des enregistrements de faible niveau de bruit de fond ainsi qu'une très bonne qualité d'image. Les caméras CMOS fonctionnent avec des tensions plus faibles que les caméras CCD, réduisant ainsi la consommation d'énergie pour les applications portables. Par ailleurs, une gamme d'objectifs et un zoom peuvent être placés sur la caméra selon l'échelle du phénomène à observer. Un bon éclairage est nécessaire, compte tenu de la vitesse de prise de vue. Pour ce faire, un projecteur halogène de 800 W muni d'un variateur de puissance nous permet d'ajuster l'éclairage selon la fréquence de prise de vue. La caméra rapide est reliée à un ordinateur permettant l'acquisition des images qui sont ensuite traitées à l'aide d'un logiciel d'analyse d'image. Le schéma de l'installation est représenté sur la Fig. II. 3.

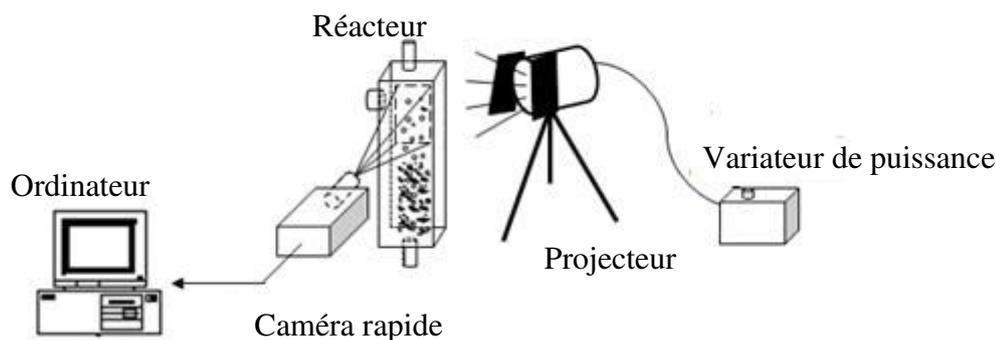


Fig. II. 3. Schéma de l'installation de la caméra rapide numérique.

II.2.2 Vélométrie par Images de Particules (PIV)

La Vélométrie par Images de Particules est une technique optique non intrusive permettant d'évaluer, en fonction du temps et dans un plan de l'écoulement étudié, un champ instantané de vitesses plutôt qu'une vitesse en un point comme un anémomètre. Elle a fait son apparition dans le monde scientifique il y a une vingtaine d'années environ, d'abord dans le domaine de la mécanique des fluides puis du génie des procédés, notamment pour étudier des écoulements monophasiques et diphasiques (gaz-liquide, solide-liquide).

II.2.2.1 Montage du système PIV

Le système PIV disponible dans notre laboratoire est constitué de divers éléments dont deux lasers, deux caméras et un processeur et logiciel de traitement d'images. Les deux faisceaux Lasers sont de type Nd-Yag pulsés (solo 1 – 15 Hz, New Wave Research) (Dietrich *et al.*, 2008). Leur énergie est de 15 mJ chacun. Ils traversent une lentille cylindrique qui les transforme en une nappe Laser de forte intensité lumineuse et de faible épaisseur (2,5 mm maximum). Les deux faisceaux sont focalisés et superposés sur la zone de mesure pour avoir une nappe Laser. Les deux caméras (Flowgrabber Double image 700, Dantec MT) d'une

résolution de 768×484 permettent l'enregistrement de 30 paires d'images par seconde en niveau de gris, sur 8 bits. Le processeur (Flowmap 1500, Dantec MT) permet de synchroniser la prise d'image sur le flash Laser, la durée de ce flash, ainsi que le temps séparant deux prises d'images consécutives. Le logiciel de traitement d'images (Flow Manager version 4.6) permet le calcul des champs de vitesses.

Le schéma du montage de PIV est représenté sur la figure. II. 4:

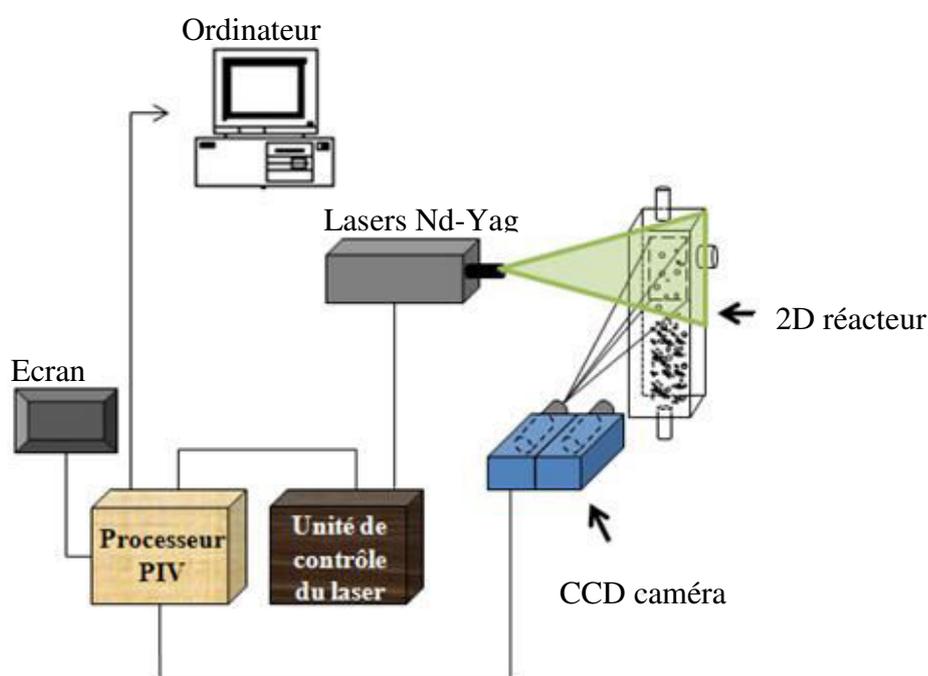


Fig. II. 4. Montage de la Vélocimétrie par Images de Particules.

II.2.2.2 Ensemencement de la phase liquide par les particules de traceur

La Vélocimétrie par Images de Particules est basée sur la mesure de la vitesse des particules de traceur que l'on ajoute à l'écoulement. Pour que le mouvement des particules puisse nous renseigner sur le mouvement du fluide, il faut que les particules soient de très faible dimension. Ces dernières ne doivent pas perturber l'écoulement d'une part et leur quantité ne

doit pas être trop importante d'autre part. En effet, lors de l'analyse d'image et de la détermination du champ de vitesse, il faut un nombre raisonnable de particules traçantes par aire d'interrogation pour obtenir un champ de vitesse acceptable. Ce nombre doit être proche de 4 ou 5. Deux types de traceurs sont fréquemment utilisés: Les particules sphériques de verre creuses avec un diamètre moyen de 15 μm ; les traceurs fluorescents dérivés de la rhodamine qui réfléchit la lumière à une longueur d'onde différente de celle d'excitation (longueur d'onde du laser 532 nm). Dans cette étude, des particules argentées sont utilisées comme traceur.

II.2.2.3 Traitement d'images

Le traitement des résultats est réalisé à l'aide du logiciel (Flow Manager version 4.6, Dantec MT) qui permet de corrélérer les images enregistrées et d'afficher les champs de vitesses calculés. Ce logiciel donne la possibilité de régler certains paramètres :

- taille des aires d'interrogation (de 16×16 à 128×128 pixels). Une aire d'interrogation plus petite demande plus de temps de calcul mais la résolution du champ de vitesse est meilleure;
- choix du recouvrement de 0 ; 25 ; 50 ; ou 75%. Lorsqu'il est de 25 %, la zone de recherche des particules traçantes est élargie de 25% sur les aires voisines. Ceci permet de suivre des particules qui, initialement, sortaient du champ d'étude ;
- temps entre deux pulses du laser (soit entre deux enregistrements successifs) est quant à lui choisi selon la vitesse du phénomène étudié.

II.2.2.4 Principe du système PIV

La technique de mesure PIV est basée sur le suivi de particules jouant le rôle de traceurs entraînés par le fluide pour mesurer la vitesse. Elle consiste à enregistrer des images de particules éclairées par un plan laser et détectées par la caméra à des instants successifs. Le déplacement local de chacune des particules dans le fluide donne accès à un vecteur instantané de vitesse. Par le déplacement de plusieurs particules on accède au champ instantané des vitesses. La condition essentielle est que la particule doit rester dans l'épaisseur du plan d'éclairage. Généralement, la source laser utilisée est un laser impulsionnel délivrant deux impulsions espacées d'un intervalle de temps Δt (réglable en fonction des vitesses à mesurer) et ayant chacune une énergie de plusieurs centaines de milli joules. Les images sont enregistrées par une caméra vidéo. Selon la densité des particules dans l'écoulement et selon le type d'enregistrement, le traitement des images est différent. Néanmoins, dans tous les cas, le résultat obtenu est une cartographie instantanée du champ de la projection des vecteurs vitesses dans le plan d'éclairage.

II.2.3 Micro-Vélocimétrie par Images de Particules (μ -PIV)

La technique PIV appliquée à la micro-fluidique est souvent appelée micro-PIV (μ -PIV). Cette dernière permet d'observer les phénomènes à l'échelle microscopique et de mesurer les champs de vitesse d'un fluide circulant dans des canaux microscopiques grâce à un microscope inversé. Les principaux composants de la μ -PIV sont la caméra, le microscope, le microstroboscope (dans notre étude), le processeur et le logiciel de traitement d'images. Une caméra Flowsense Dantec de 15 Hz permet l'acquisition de 7 images par seconde sur 8 niveaux de gris avec une résolution de 2048×2048 pixels. Un microscope Leica utilisé est muni des objectifs de grossissement $\times 5$, $\times 10$, $\times 40$, et $\times 63$, le grossissement utilisé dans

cette étude étant $\times 10$. L'éclairage de l'écoulement est assuré pour nos expériences grâce à un micro stroboscope (Dantec) de longueur d'onde 532 nm. Le processeur permet de synchroniser la prise d'images avec le flash du stroboscope, la durée de ce flash ainsi que le temps séparant deux prises d'images consécutives. De même que pour la PIV, les images enregistrées sont traitées grâce au logiciel de traitement (Flow Manager version 4.6) qui divise les images en milliers de petites aires d'interrogation de 32×32 pixels. Une corrélation croisée est ensuite effectuée ce qui permet d'accéder au champ de vecteurs vitesses (*Li et al., 2001*).

Pour les deux microréacteurs, les mesures de champs de vitesses par μ -PIV sont réalisées dans le but d'accéder aux vitesses de cisaillement exercées sur les granules de boue maintenues par la grille. Pour ce faire, seule la partie située au voisinage du granule de boue, donc de la grille fixée au centre du réacteur est concernée (zone de visualisation) (Fig. II. 5).

Le principe de fonctionnement, l'enregistrement des images et l'analyse des données de la μ -PIV restent les mêmes que ceux du système PIV, la fonction du laser étant remplacée ici par le stroboscope.

L'échelle de visualisation étant plus petite que celle de la PIV, on utilise, pour l'ensemencement, des particules plus fines qui suivent parfaitement l'écoulement afin d'obtenir des champs de vecteurs vitesses précis. L'ensemencement doit être par ailleurs uniforme et raisonnablement concentré pour suivre au mieux l'écoulement. Dans ce but, la masse volumique doit être voisine de celles du fluide étudié.

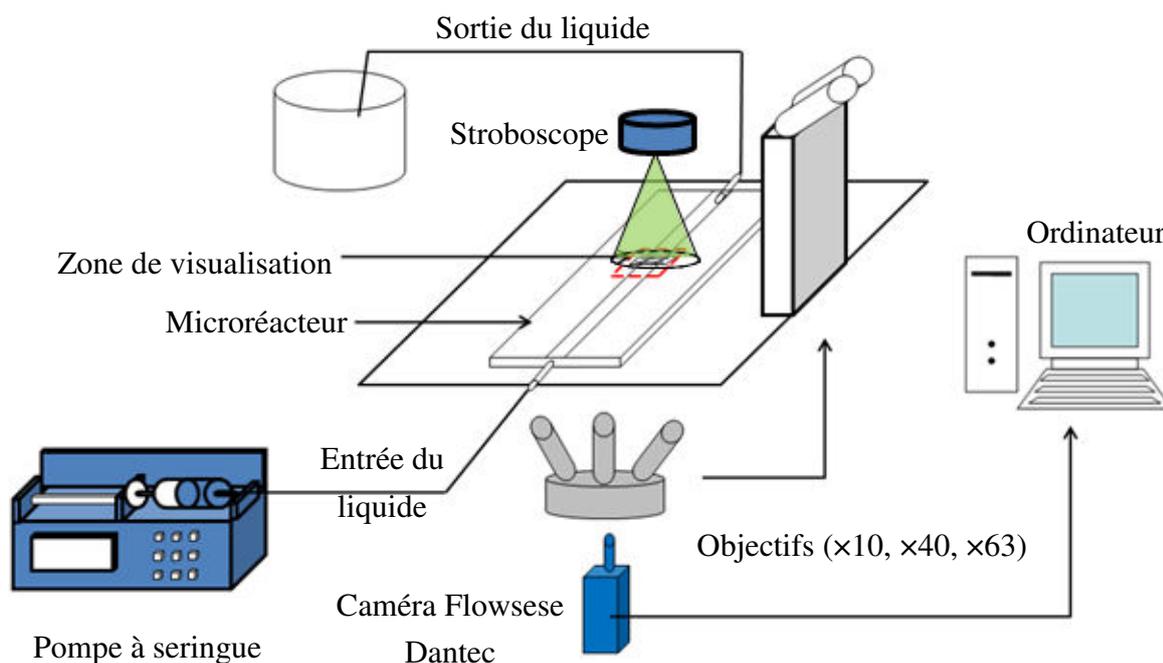


Fig. II. 5. Système μ -PIV.

De plus, le diamètre de ces particules doit être convenablement choisi afin d'éviter les erreurs liées à la taille du traceur. En effet, un diamètre de particules de traceur trop faible induit une erreur relative due au mouvement brownien, mouvement aléatoire des particules qui établit une limite inférieure à la réalisation de la technique μ -PIV. Par ailleurs, le diamètre de ces particules de traceur ne doit pas être trop important afin d'éviter leur sédimentation. La contribution de ces deux phénomènes doit être inférieure à 1% pour maîtriser au mieux l'effet néfaste de ces deux phénomènes. Les vitesses dues à ces deux effets (brownien et sédimentation) ainsi que la somme de ces deux effets sont représentées sur la figure. II. 6. La taille optimale permettant de minimiser ces deux effets est de $2 \mu\text{m}$. Les particules de latex (Merck, France) sont ainsi choisies dans cette étude avec un diamètre moyen de $0,88 \mu\text{m}$ et une masse volumique de $1056 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$. La vitesse liée au mouvement aléatoire brownien est de $1,3 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ environ et la vitesse de sédimentation est de $0,03 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Sachant que la vitesse la plus faible utilisée dans cette étude est de $1000 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, les erreurs liées à ces deux

phénomènes ne dépassent pas 0,14% et sont de ce fait négligeables. Ainsi, les particules choisies pour cette étude sont des particules en latex d'un diamètre de 0,88 μm et d'une masse volumique de 1,056 g.L^{-1} .

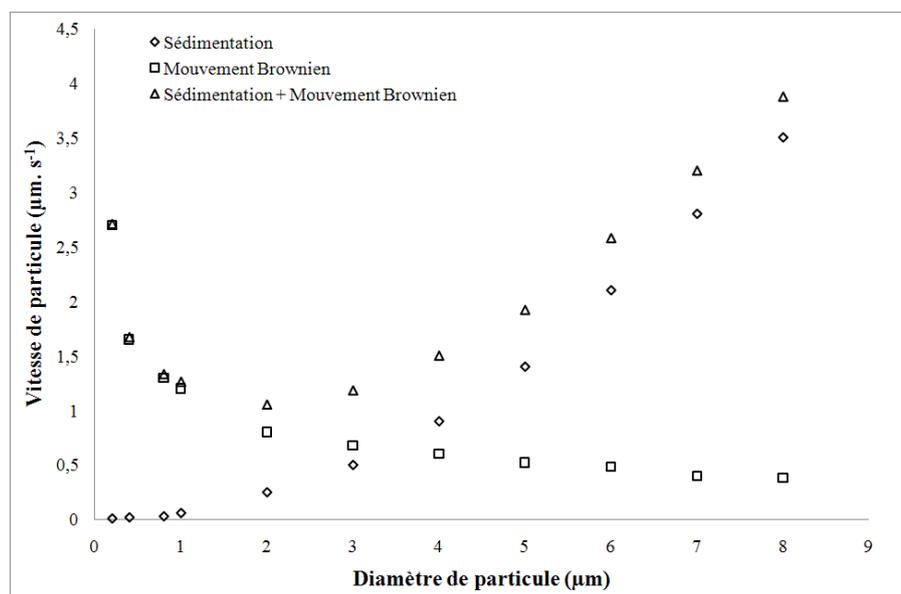


Fig. II. 6. Influence de la vitesse de sédimentation et du mouvement Brownien sur l'écoulement.

II.2.4 Microscope

Le microscope (Motic BA 300) utilisé est un microscope de recherche à haute résolution muni d'une tête optique inclinée à 30° pour un confort de travail optimisé, la rotation étant de 360° (Fig. II. 7). Le microscope possède une tourelle à cinq objectifs ($\times 4$, $\times 10$, $\times 20$, $\times 40$, $\times 60$) ainsi qu'un diaphragme avec porte-filtre (pour les objectifs $\times 10$ et $\times 40$). L'éclairage halogène est incorporé et son intensité est réglable jusqu'à 6 V/30 W. Le microscope est surmonté d'une caméra Moticam 23, d'une résolution de 3.0 millions de pixels. Cette caméra est reliée à l'ordinateur par port USB.

Les images sont traitées avec le logiciel Motic Images Advanced 3.2 qui est un logiciel d'analyse d'images. Il crée des diapositives multimédias avec la possibilité d'ajouter des commentaires audio et de filmer ce que l'on visualise au microscope. Le logiciel permet aussi de visualiser virtuellement les images en 3D en se basant sur l'intensité des pixels.

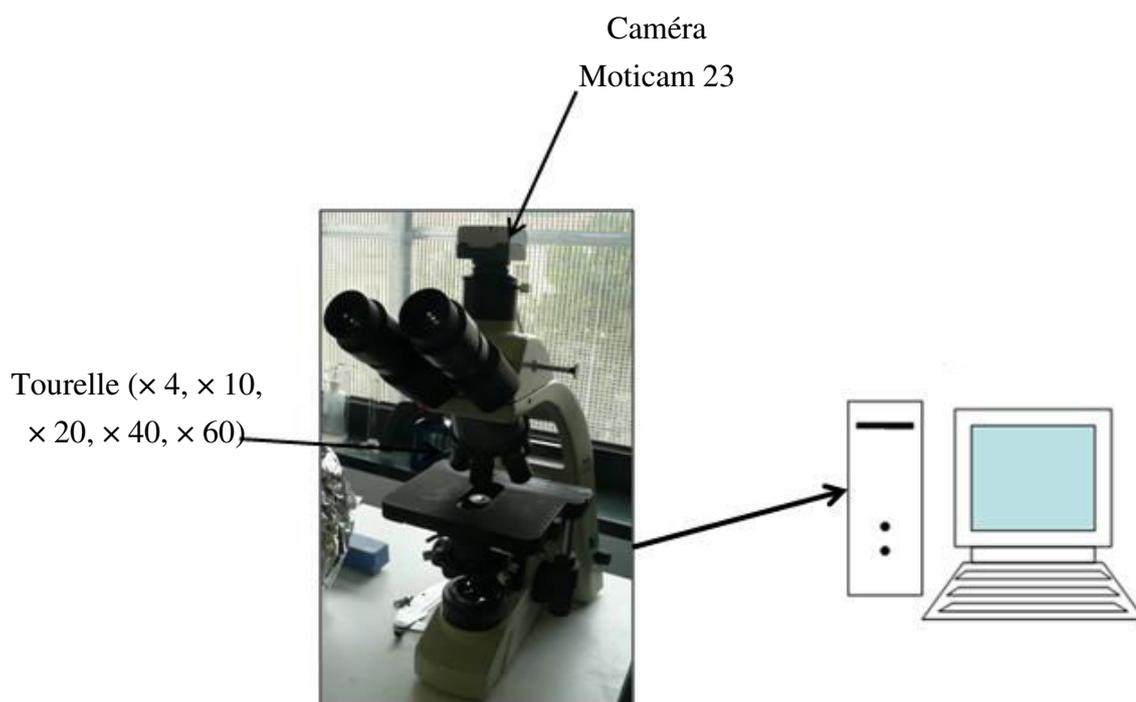


Fig. II. 7. Microscope.

II.2.5 pH mètre, chromatographie et mesure de DCO

Le pH a été mesuré à l'aide d'un pH-mètre (CONSORT C931) et d'une électrode (BIOBLOCK) adaptée aux suspensions riches en matière organique. Le biogaz produit a été analysé avec la chromatographie en phase gazeuse (Varian 430-GC) afin de mesurer la teneur en méthane et en bioxyde de carbone. La DCO a été déterminé par ajout de dichromate de potassium ($K_2Cr_2O_7$), qui est un oxydant puissant utilisé en présence d'acide sulfurique lors d'un chauffage à reflux pendant 2 heures, ce qui permet d'oxyder la matière organique. La méthode est en conformité avec les principaux cours officiels d'analyse chimique dans les

eaux et les eaux usées : Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater (20e édition) méthode 5220D et US Environmental Protection Agency, Methods and Guidance for Analyses of Water (2e édition) méthode EPA 410.4 et ISO 15705-2002.

**CHAPITRE III. ETUDE
EXPERIMENTALE MULTI ECHELLE**

L'optimisation de la production de biogaz et notamment du méthane est encore actuellement un défi difficile à relever du fait d'une part de la méconnaissance du mécanisme de génération de biogaz sur les granules de boues dont la structure est déjà elle-même complexe et d'autre part de l'opacité des bioréacteurs réels dans lesquels l'écoulement est le plus souvent complexe. Ces réacteurs ne peuvent d'ailleurs être considérés que comme une 'boîte noire', puisque seul le débit de biogaz peut être mesuré en sortie du réacteur.

D'après les travaux de la littérature (§ Chapitre I), la production du biogaz dépend de certains paramètres opératoires dont la concentration en DCO du substrat et la vitesse du liquide mais aussi de la vitesse de cisaillement qui en résulte autour des granules de boue. En effet, cette dernière ne doit pas être trop importante afin d'éviter une densification du granule de boue synonyme de limitation diffusionnelle du substrat dans le granule sans compter le problème de désintégration des granules de boue; mais elle doit être suffisamment importante pour améliorer le transfert convectif du substrat. Ainsi, compte tenu de ces effets opposés, il est nécessaire de choisir des paramètres opératoires permettant d'atteindre des vitesses de cisaillement modérées et optimales pour une production efficace du biogaz. Il est par ailleurs nécessaire d'éviter l'utilisation de débits de liquide trop élevés afin de prévenir les problèmes de lessivage de fragments de granules à l'extérieur du bioréacteur. L'efficacité de production de biogaz peut par ailleurs être modifiée par des biopolymères qui induisent l'agrégation entre granules et dont la sécrétion est liée à l'activité biologique et physico-chimique qui dépend de l'écoulement de liquide autour du granule.

Pour mieux appréhender ces problèmes et comprendre à terme le comportement de ces bioréacteurs, il est nécessaire de travailler dans des maquettes si possible transparentes et d'isoler l'influence des différents paramètres opératoires.

Le but de cette étude est de comprendre l'éventuelle relation entre la vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boues et le comportement physique et/ou biologique (intégrité et structure des granules) ainsi que l'efficacité de production de biogaz par ces granules. Il consiste en une étude hydrodynamique autour des granules de boues menée à la fois en maquette froide et en maquette chaude. Les mesures sont réalisées dans les réacteurs transparents à deux échelles différentes : à l'échelle micro, dans un dispositif microfluidique dans lequel l'écoulement de la phase liquide autour d'un granule de boue est parfaitement contrôlé, et à l'échelle méso, dans un digesteur de laboratoire bidimensionnel de type air-lift.

III.1 ETUDE EXPERIMENTALE A MESOECHELLE

Les expériences décrites ci-dessous ont pour but de mieux comprendre l'influence des conditions opératoires sur l'efficacité de la production de biogaz dans les réacteurs bidimensionnels à mésoéchelle. L'étude bibliographique a montré que le cisaillement affecte la structure des granules de boue, le métabolisme et l'évolution temporelle des boues granulaires. Le but de ces expériences est donc de déterminer l'influence de la vitesse de cisaillement sur la production de biogaz et de déterminer les caractéristiques des bulles de biogaz obtenues. Lors de ces expériences, nous avons utilisé des granules de boue sélectionnés par l'équipe chinoise de l'Université de Tsinghua, Pékin, Chine.

III.1.1 Etude en maquette froide dans la colonne 2D

Lors de la réaction anaérobie qui se produit dans le bioréacteur, plusieurs phénomènes sont couplés : le mouvement sédimentaire des granules de boue dans le liquide, l'interaction entre les bulles de biogaz produit et les granules de boue, etc. Pour mieux comprendre l'effet des

différents paramètres, il convient de les découpler et d'isoler chaque phénomène. Pour ce faire, une étude en maquette froide dans une petite colonne transparente bidimensionnelle est abordée dans un premier temps.

Pour mieux contrôler l'injection du gaz et obtenir un régime à bulles séparées ou en chaîne, la colonne peut être munie de différents distributeurs de gaz avec des tailles d'orifice variables (Fig. III. 1) et une électrovanne dont le temps d'ouverture et de fermeture sont respectivement de 0,0005 s et 0,1 s dans toutes les expériences. Dans cette étude, la phase liquide est en batch de sorte que le mouvement des granules de boues ne soit assuré que par l'injection de la phase gaz (de l'azote dans ce cas) contrairement au bioréacteur industriel dans lequel l'agitation du liquide et des granules de boue est principalement assurée par les bulles de biogaz produit. Ces expériences réalisées avec le système eau-azote-granules de boue nous permettent d'observer les trajectoires des granules de boue et de mesurer le cisaillement du liquide sur ces dernières.

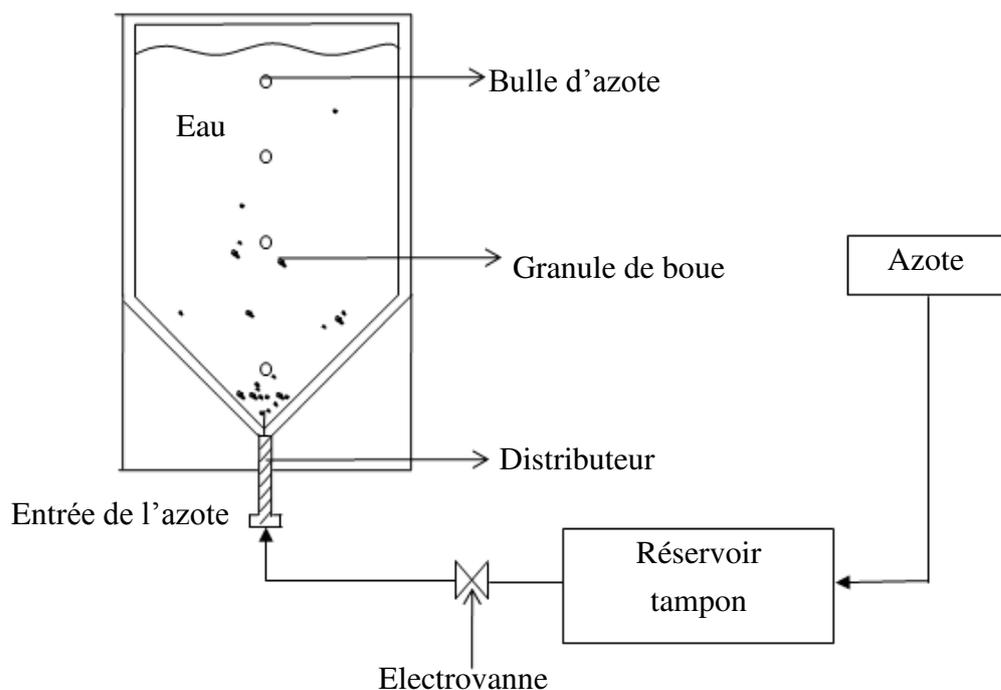


Fig. III. 1. Schéma du montage avec la colonne 2D.

III.1.1.1 Etude hydrodynamique lors de l'ascension des bulles dans l'eau.

L'utilisation de la caméra rapide et du système PIV nous permettent de déterminer la taille et la trajectoire des bulles, le débit de gaz ainsi que les champs de vitesse liquide engendrés par le passage des bulles. La vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue sera alors déterminée à partir des champs de vitesse liquide et du mouvement relatif des granules de boue.

Les premiers essais effectués ont montré que le régime à bulles séparées ou en chaîne ne pouvait être obtenu avec des orifices de distribution de gaz ayant diamètre supérieur à 0,40 mm. L'utilisation d'un orifice de 0,4 mm a par exemple engendré la formation quasi simultanée de 3 ou 4 bulles qui parfois coalescent pour former une grosse bulle suivie d'une plus petite. De plus, la diminution du temps d'ouverture de l'électrovanne n'a pas permis d'améliorer la qualité d'injection du gaz. Ainsi, seul l'orifice de 0,3 mm de diamètre a été utilisé et placé au fond du réacteur pour la distribution de gaz dans toutes les expériences. Pour chaque expérience, la détermination du diamètre moyen des bulles a été basée pour chaque prise de vue sur une centaine de bulles. L'erreur commise sur la taille de la bulle est de l'ordre d'un pixel correspondant à 0,09 mm. Le volume de chaque bulle est alors déterminé en supposant une forme ellipsoïdale des bulles (hypothèse réaliste basée sur l'observation des images obtenues par caméra rapide). Les expériences réalisées pour différents débits de gaz ont permis d'obtenir les résultats rapportés dans le tableau III. 1:

No.	Vitesse de la bulle (u_b) (m.s ⁻¹)	Fréquence de l'électrovanne (s ⁻¹)	Volume de la bulle (mm ³)	Diamètre équivalent de la bulle (d_b) (mm)	Débit de gaz ($\times 10^{-7}$ m ³ .s ⁻¹)	$u_b \times d_b$ ($\times 10^{-4}$ m ² . s ⁻¹)	Re	Eö	Log(M)
1	0,26	8,30	3,32	1,85	1,07	4,80	478	0,46	-10,59

2	0,27	8,31	5,39	2,18	1,74	5,85	583	0,63	-10,59
3	0,28	8,71	6,80	2,35	2,30	6,68	666	0,74	-10,59
4	0,29	10,29	6,16	2,27	2,46	6,62	660	0,69	-10,59
5	0,29	11,08	6,45	2,31	3,15	6,67	665	0,72	-10,59
6	0,31	14,04	6,22	2,28	3,39	6,97	695	0,70	-10,59
7	0,31	13,45	7,51	2,43	3,92	7,62	760	0,79	-10,59

Tableau III. 1. Résultats obtenus en maquette froide pour les différents débits de gaz.

Pour vérifier l'hypothèse faite sur la forme ellipsoïdale des bulles, les nombres adimensionnels d'Eötvös, de Morton et de Reynolds ont été calculés pour les différents débits de gaz utilisés. Les points rapportés sur la figure III. 2. montrent que les points de fonctionnement se situent à la limite de la zone correspondant aux bulles ellipsoïdales, ce qui permet de valider l'hypothèse précédente.

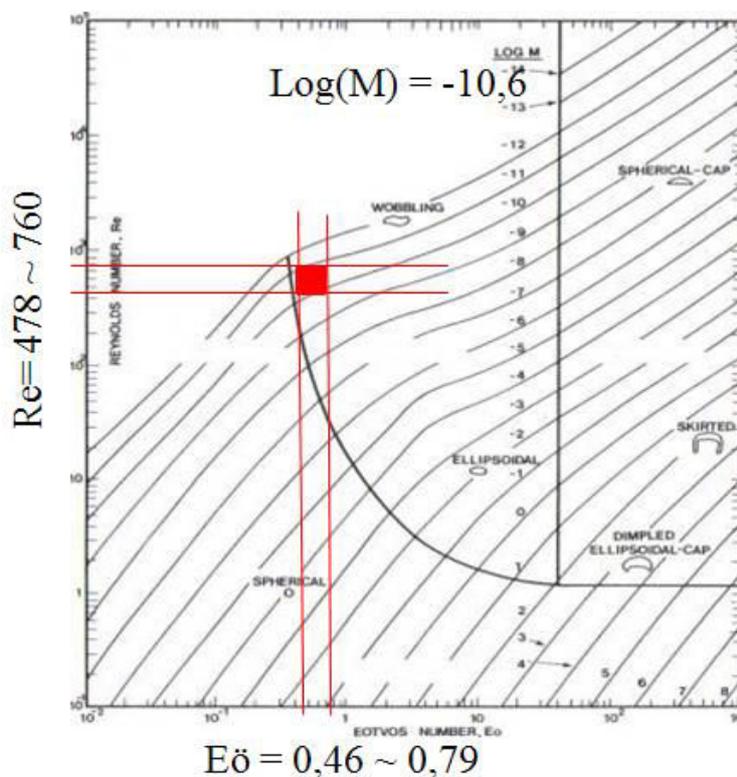


Fig. III. 2. Diagramme de Grace.

Les résultats obtenus avec le système eau-air en utilisant des orifices uniques ou des plateaux perforés ont été rapportés par Heijnen et Van't Riet (1984) sous forme d'un diagramme (figure III. 3) permettant de définir les zones de transition entre les différents régimes observés (à bulles séparées, à bulles en chaîne, à jet). Les valeurs relatives aux caractéristiques des bulles obtenues dans cette étude montrent, en se basant sur ce diagramme, que notre domaine de fonctionnement se situe bien en régime à bulles séparées, le produit $u_b \times d_b$ étant globalement inférieur à $0,001 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (Fig. III. 3).

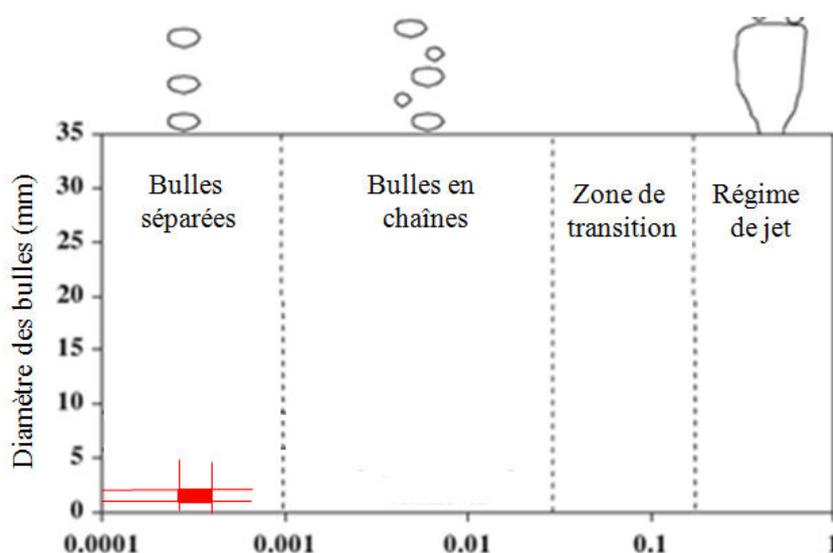


Fig. III. 3. Evolution des tailles de bulles près du distributeur pour un orifice unique ou un plateau perforé (Heijnen et Van't Riet, 1984).

III.1.1.2 Trajectoires des granules de boue

Ces expériences ont été réalisées en plaçant plusieurs granules de boue (diamètre entre 1 - 2 mm) dans la colonne bidimensionnelle. Pour que les granules soient mises en mouvement lors du passage des bulles, leur quantité doit être suffisante pour recouvrir le fond du réacteur (Fig. III. 4). Les granules de boue situées au voisinage de l'orifice de distribution de gaz sont alors

entraînées par les bulles puis redescendent le long des parois pour finalement s'accumuler autour de l'orifice. .

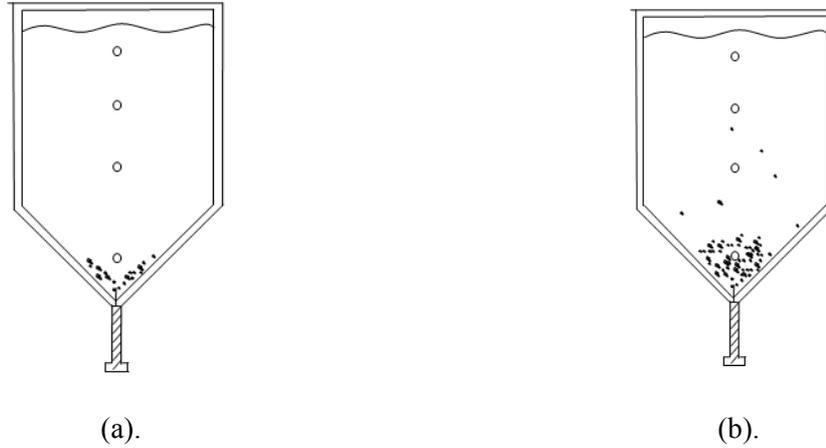
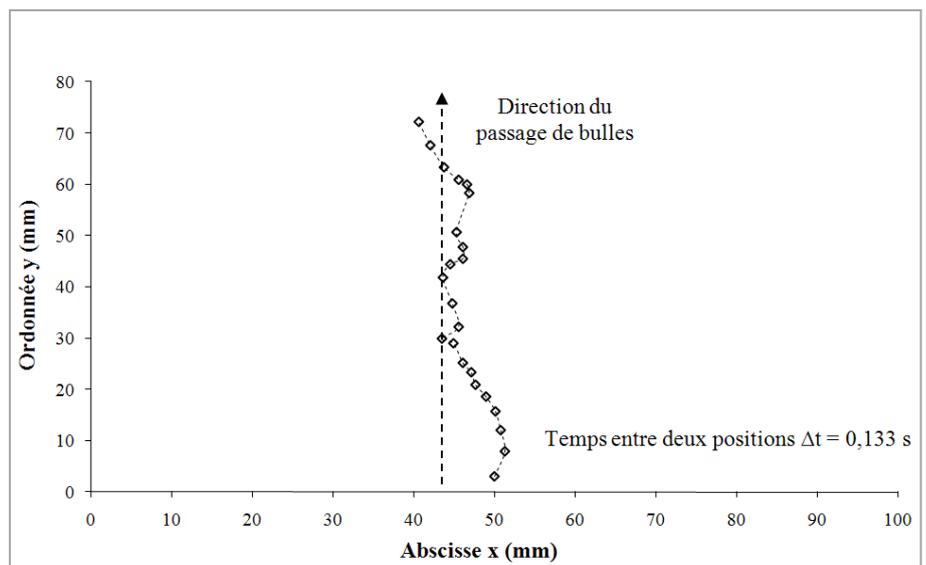


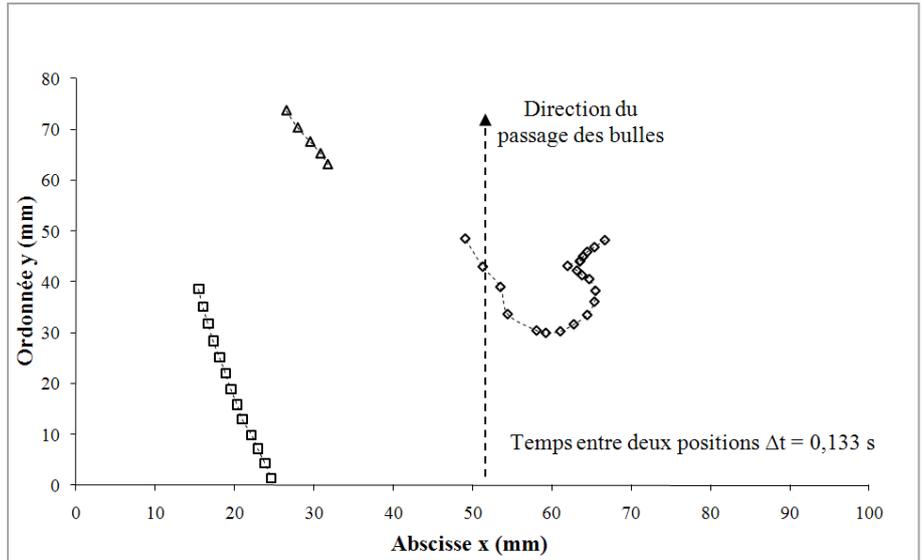
Fig. III. 4. Remplissages du réacteur. (a). Quantité de granules de boue insuffisante ; (b). Quelques granules de boue sont mises en mouvement lorsqu'une quantité suffisante de granules de boue est ajoutée.

Les trajectoires des granules de boue enregistrées pour différents débits de gaz et pendant une certaine durée sont représentées ci-dessous (Fig. III. 5), le temps entre deux positions successives de granule étant de 0,133 s.

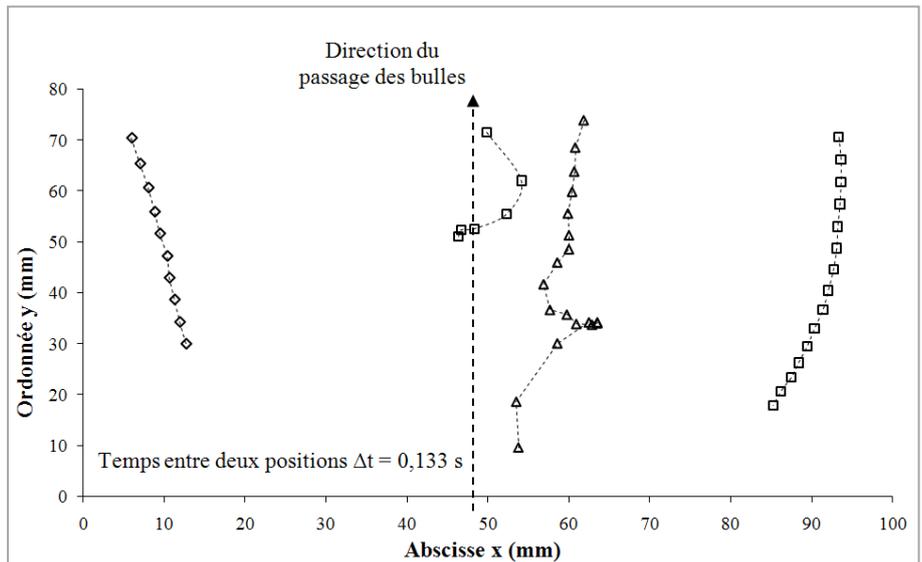
(a). Expérience 1 :
Un granule en mouvement,
Débit de gaz = $1,07 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$



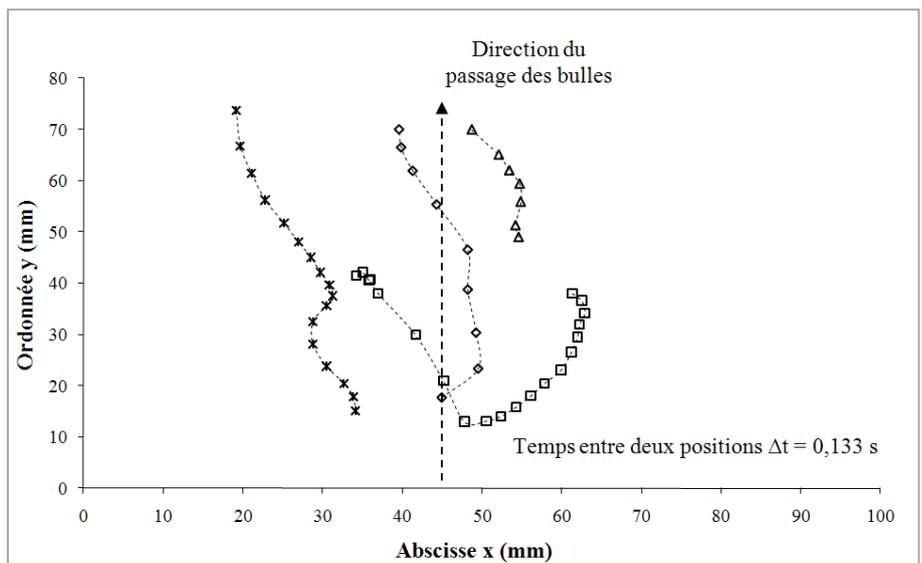
(b). Expérience 2 :
Trois granules en mouvement,
Débit de gaz = $1,74 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$



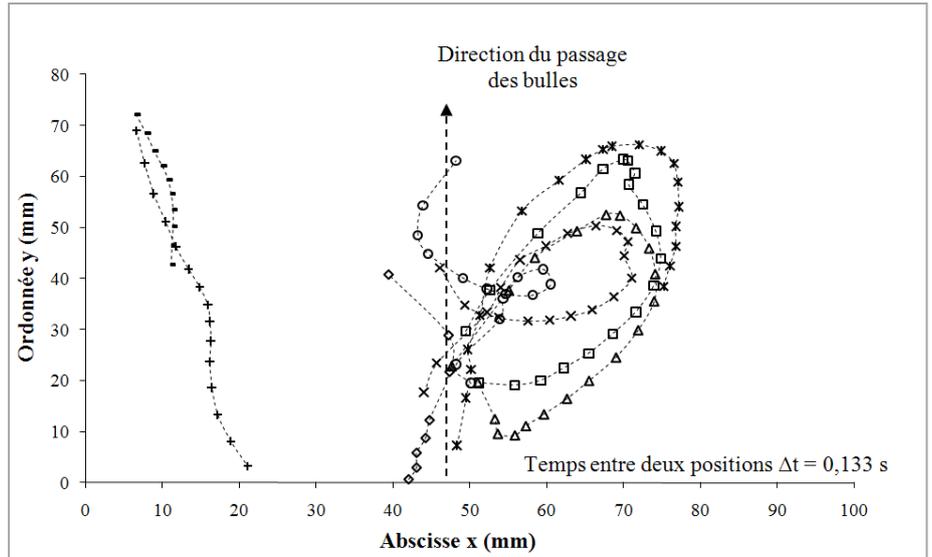
(c). Expérience 3 :
Quatre granules en mouvement,
Débit de gaz = $2,3 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$



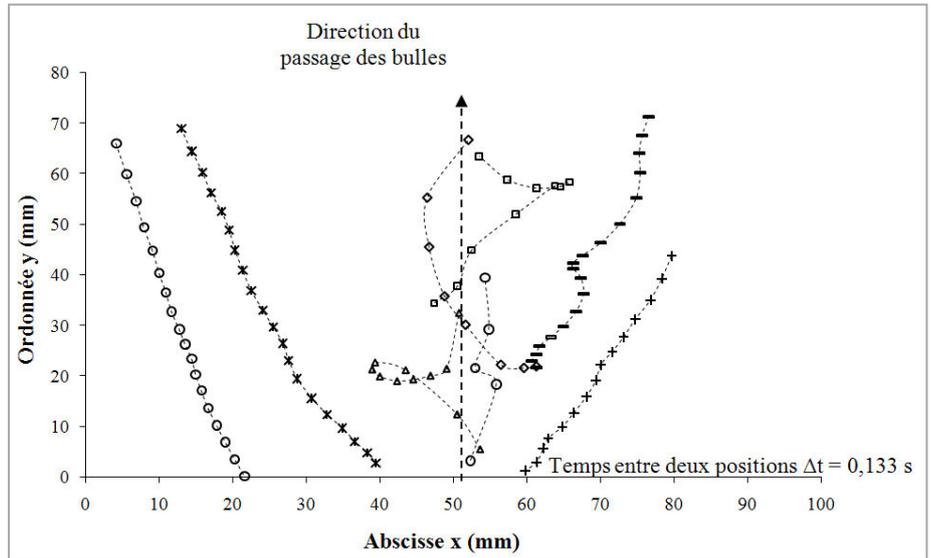
(d). Expérience 4 :
Quatre granules en mouvement,
Débit de gaz = $2,46 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$



(e). Expérience 5 :
Huit granules en mouvement,
Débit de gaz = $3,15 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$



(f). Expérience 6 :
Sept granules en mouvement,
Débit de gaz = $3,39 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$



(g). Expérience 7 :
Six granules en mouvement,
Débit de gaz = $3,92 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$

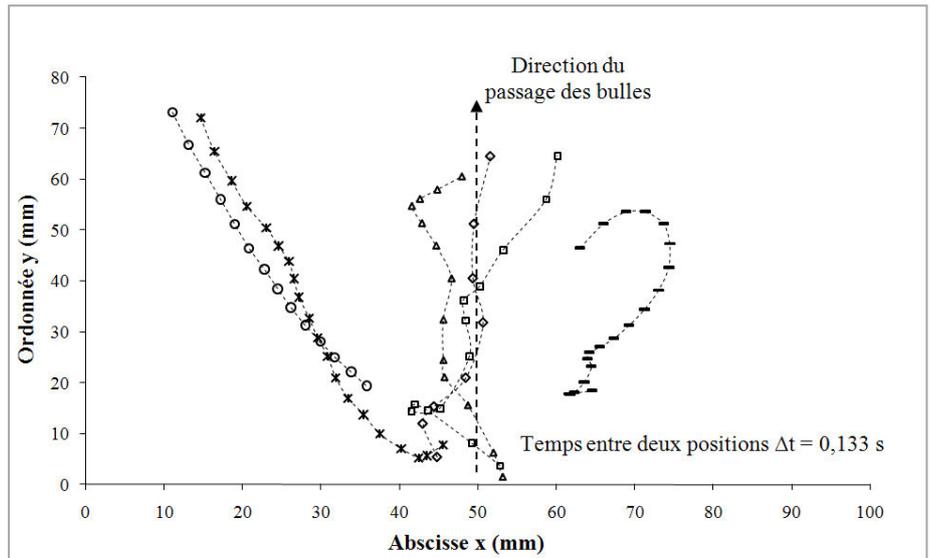
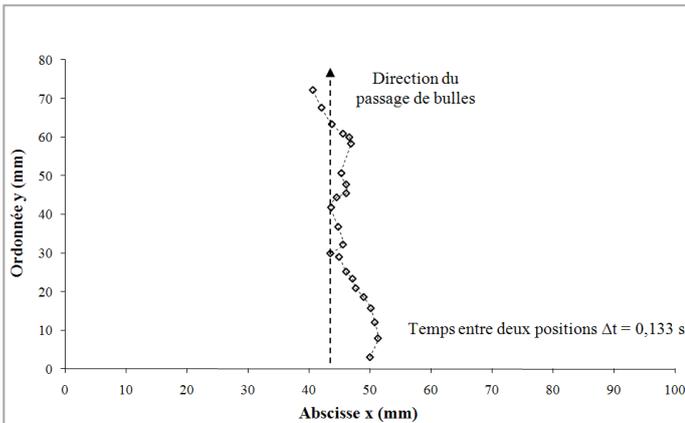


Fig. III. 5. Effet du débit de gaz sur la trajectoire des granules de boue.

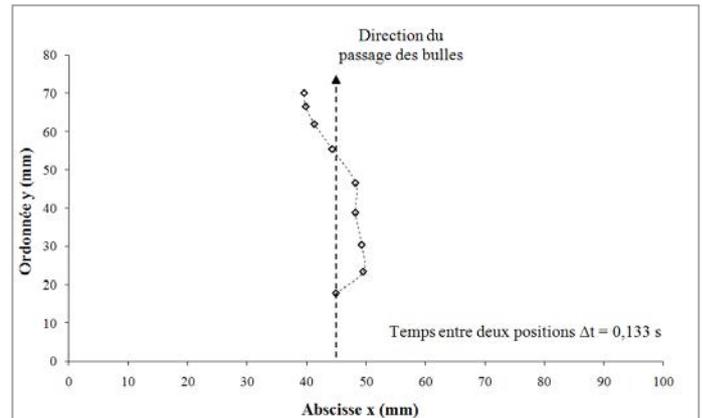
Les granules de boue ont des trajectoires différentes selon leur position par rapport aux boucles de recirculation de liquide dues au passage des bulles de gaz dans la colonne. On recense quatre types de trajectoire :

- granules de boue sont entraînés dans le sillage des bulles et ont des trajectoires ascendantes ;
- granules de boue ont des trajectoires descendantes ;
- granules de boue ont des trajectoires ascendantes mais sont influencées par les boucles de recirculation du liquide ;
- granules de boue ont des trajectoires non rectilignes et suivent les boucles de recirculation du liquide.

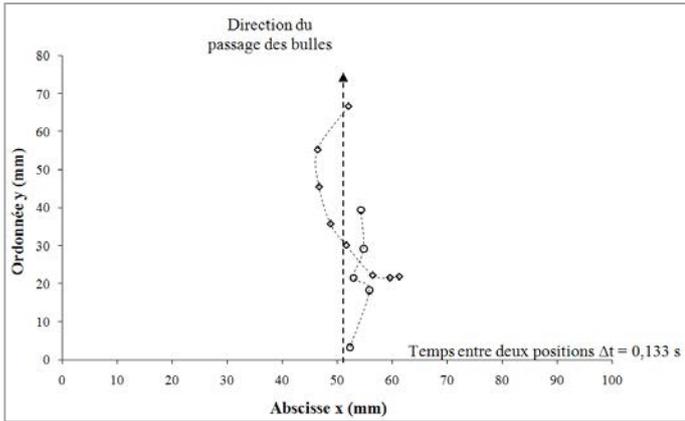
III.1.1.2.1 Granules de boue entraînés dans le sillage des bulles



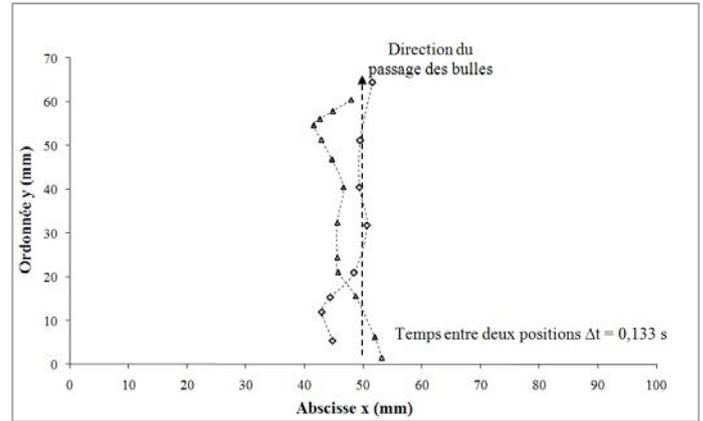
(a). Expérience: 1



(b). Expérience: 4



(c). Expérience: 6

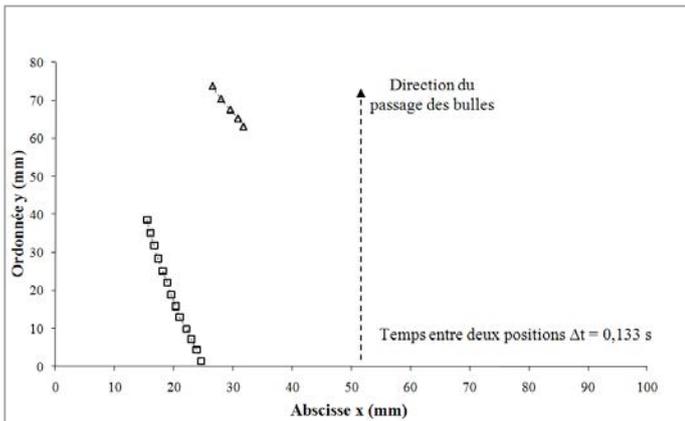


(d). Expérience: 7

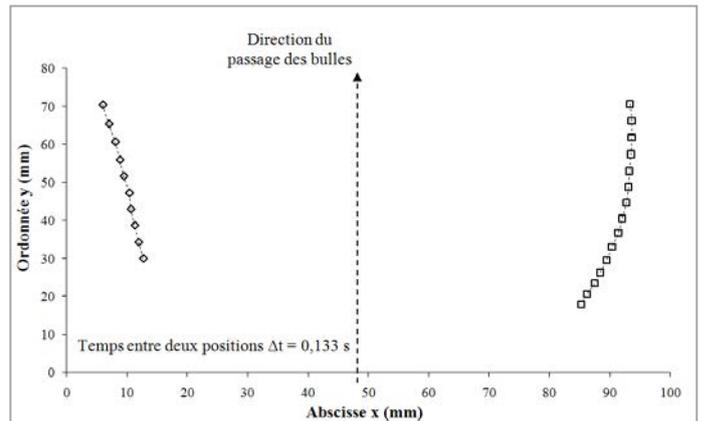
Fig. III. 6. Trajectoires des granules de boue en mouvement ascendant.

Les trajectoires des granules de boue situées dans le sillage des bulles sont généralement rectilignes. Cependant, le granule de boue se décale et est parfois éjecté vers la paroi du réacteur lors du passage d'une bulle.

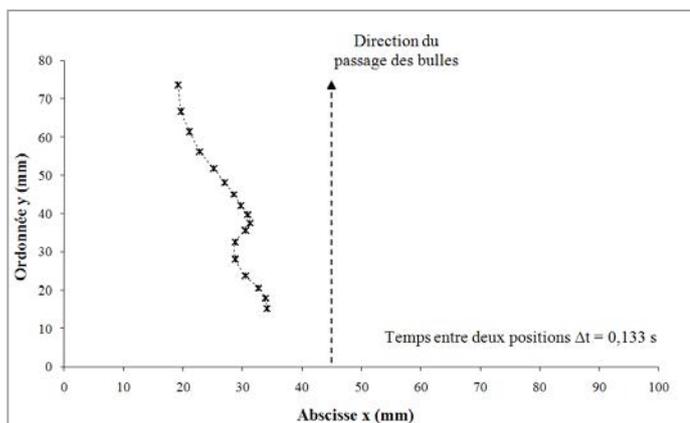
III.1.1.2.2 Granules de boue en mouvement descendant



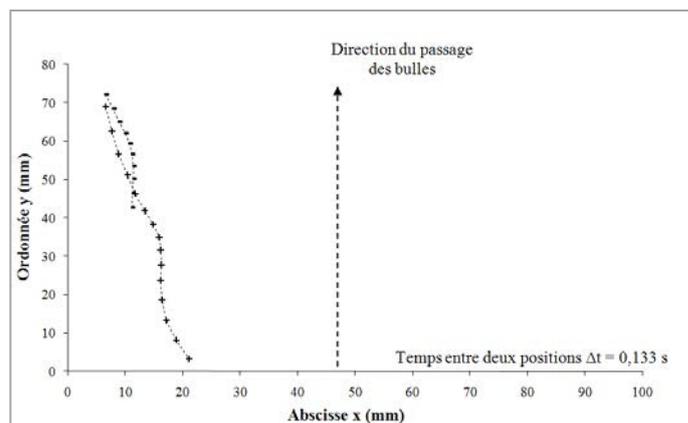
(a). Expérience: 2



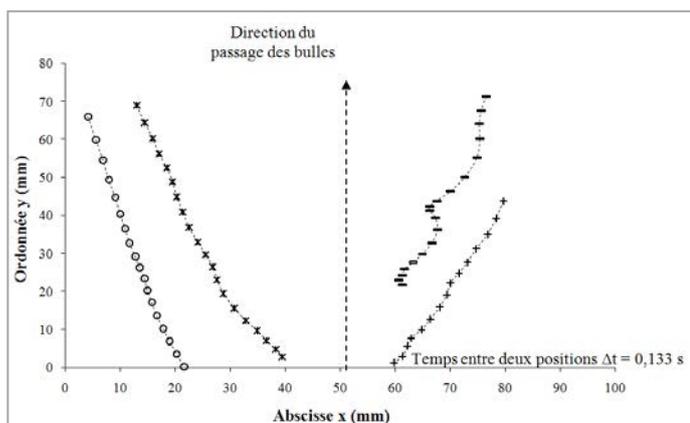
(b). Expérience: 3



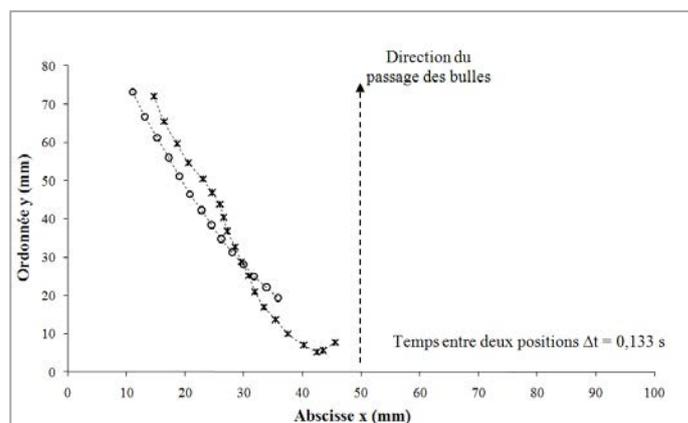
(c). Expérience: 4



(d). Expérience: 5



(e). Expérience: 6



(f). Expérience: 7

Fig. III. 7. Trajectoires des granules de boue en mouvement descendant.

Les granules de boue à mouvement descendant sont généralement situés près de la paroi où le mouvement du liquide est lui-même descendant (Fig. III. 7). Leur trajectoire n'est pas verticale et dépend notamment de la vitesse terminale de chute de ces granules ainsi que des valeurs et directions des vitesses locales du liquide et par conséquent des lignes de courant correspondant aux boucles de recirculation (Fig. III. 8).

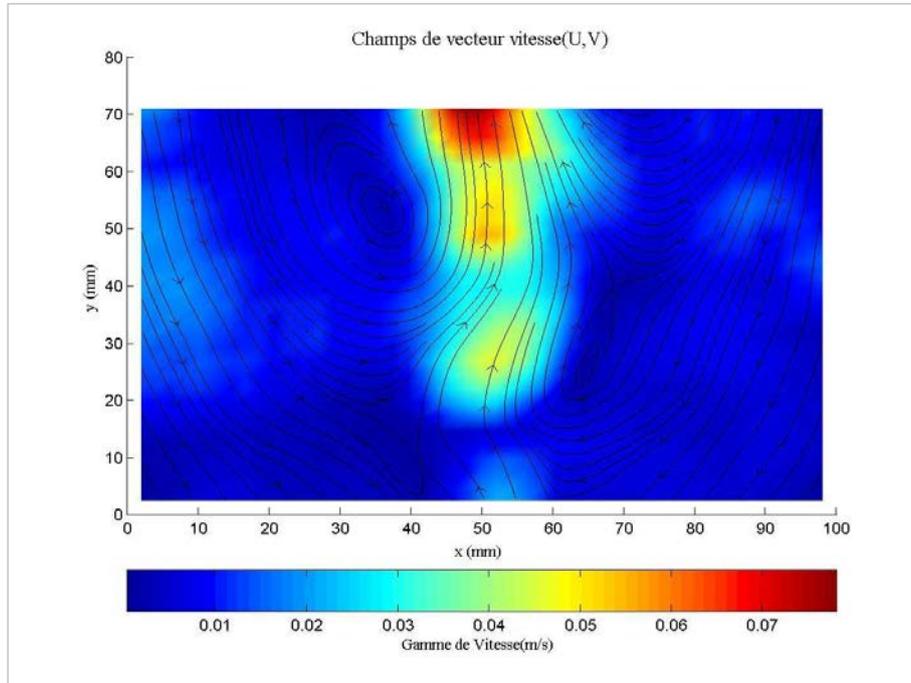
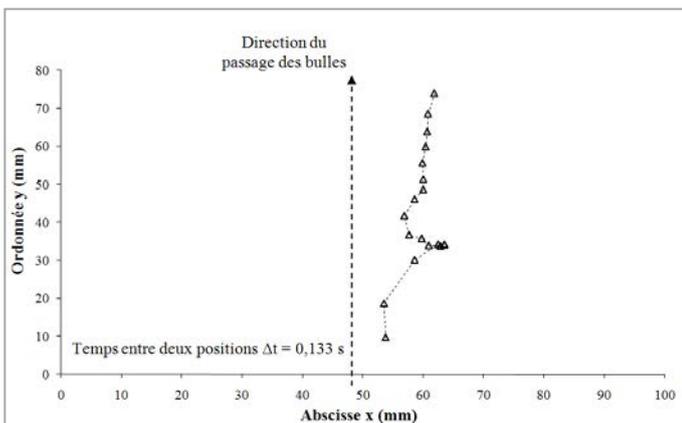
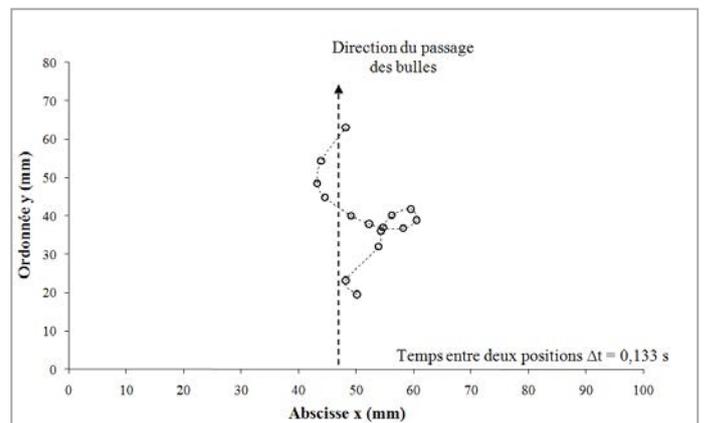


Fig. III. 8. Boucle de recirculation.

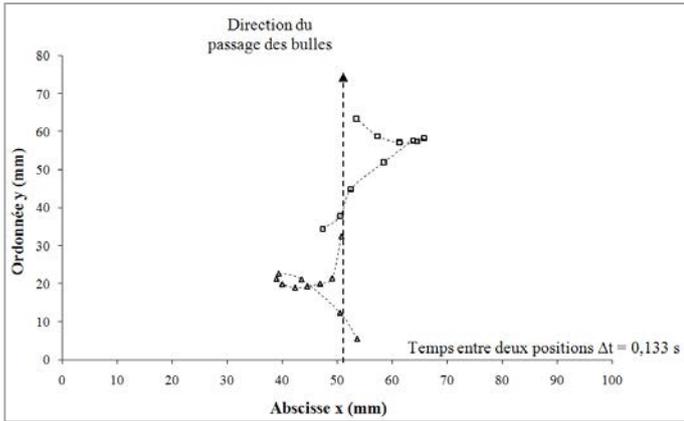
III.1.1.2.3 Granules de boue dont les trajectoires ascendantes sont influencées par les boucles de recirculation du liquide



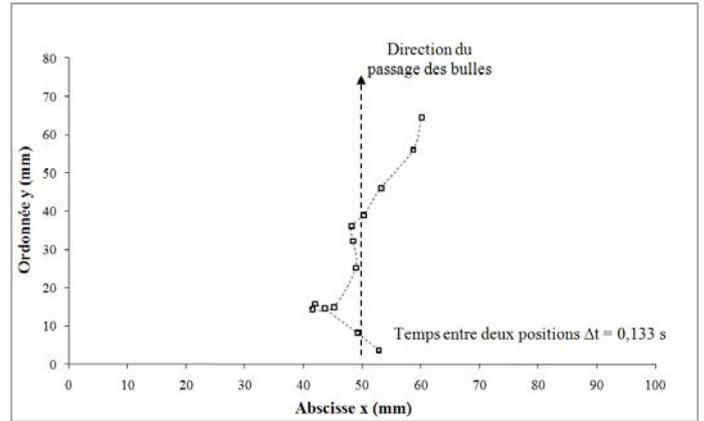
(a). Expérience 3



(b). Expérience 5



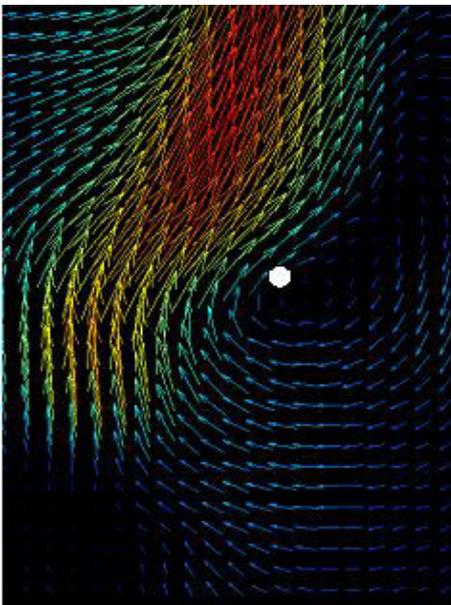
(c). Expérience 6



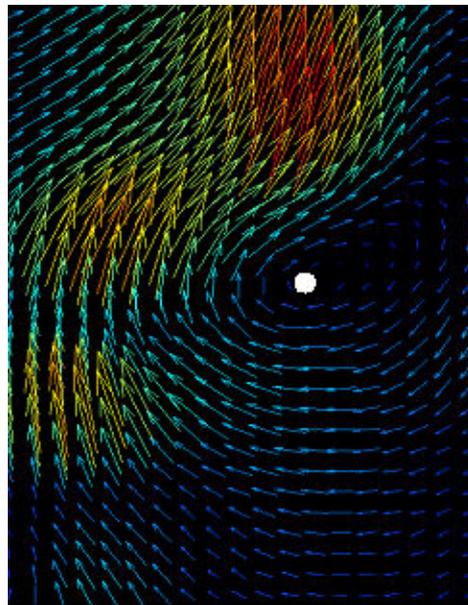
(d). Expérience 7

Fig. III. 9. Trajectoires influencées par la boucle de recirculation.

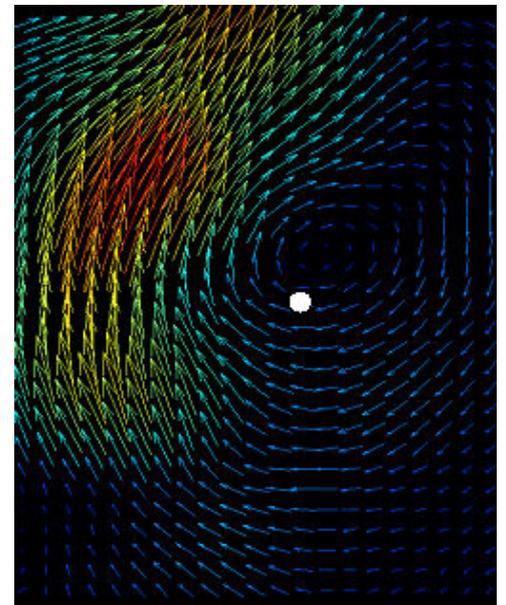
Les champs de vitesse mesurés par PIV et correspondant à l'une des trajectoires ascendantes du granule de boue influencés par la boucle de circulation de la figure III. 9 (expérience 5) est représentée ci-dessous (Fig. III. 10). Le déplacement du granule de boue enregistré est rapporté sur cette figure pour plus de clarté.



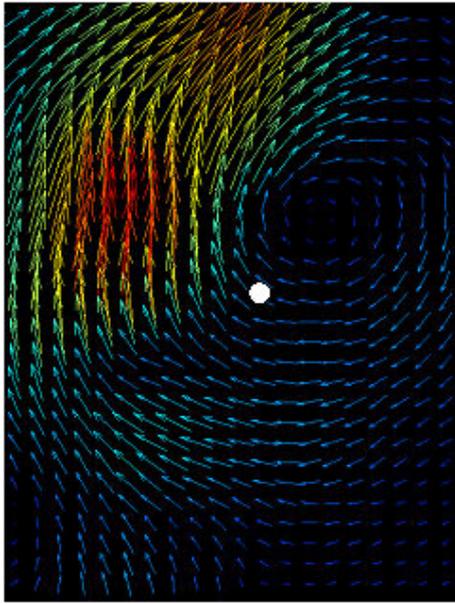
(a). Ordonnée du centre de la boucle de recirculation: 37,56 mm



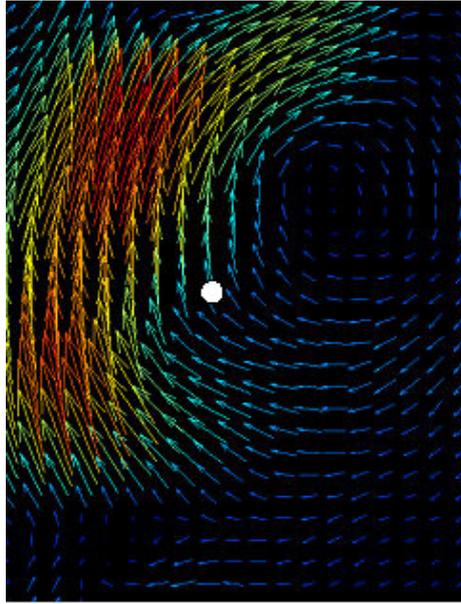
(b). Ordonnée du centre de la boucle de recirculation: 40,18 mm



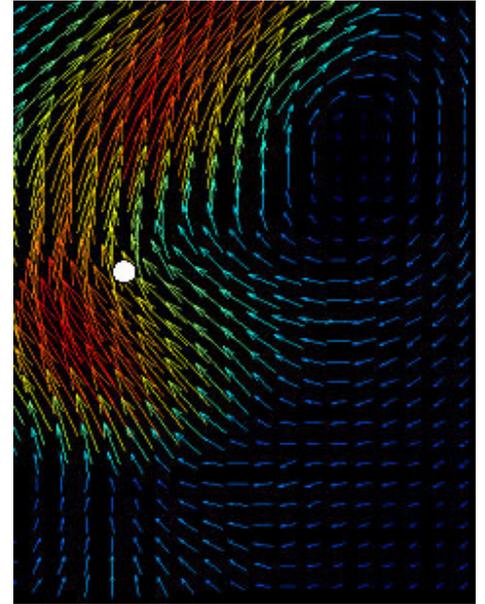
(c). Ordonnée du centre de la boucle de recirculation: 42,79 mm



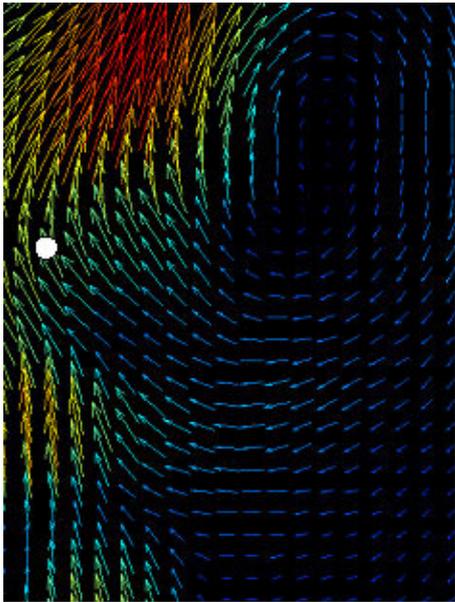
(d). Ordonnée du centre de la boucle de recirculation: 45,87 mm



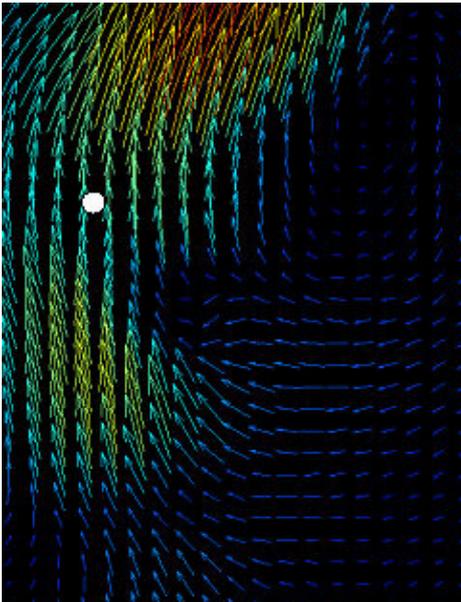
(e). Ordonnée du centre de la boucle de recirculation: 50,18 mm



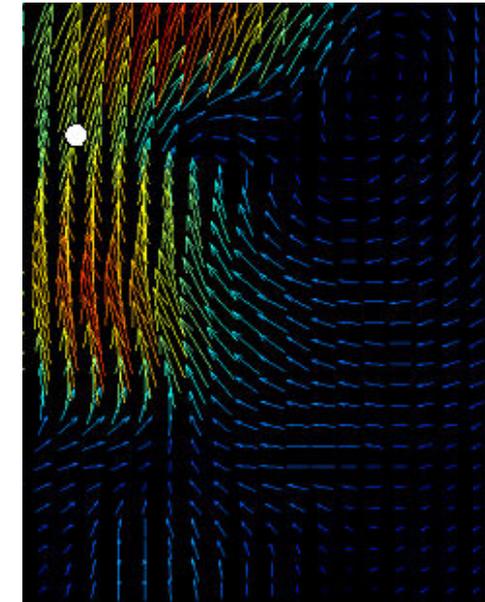
(f). Ordonnée du centre de la boucle de recirculation: 55,26 mm



(g). Ordonnée du centre de la boucle de recirculation: 57,42 mm



(h). Ordonnée du centre de la boucle de recirculation: 59,72 mm



(i). Ordonnée du centre de la boucle de recirculation: 62,34 mm

Δt entre les images = 0,133s. Le rond blanc représente un granule de boue.

Fig. III. 10. Influence de la boucle de recirculation sur la trajectoire d'un granule de boue correspondant à l'expérience 5.

On observe ainsi que toutes les trajectoires des granules de boue influencées par la boucle de recirculation dans ce cas suivent le même processus: Le granule de boue qui est d'abord entraîné par la bulle ascendante se situe au-dessus du centre d'une boucle de recirculation, sa

vitesse étant faible du fait qu'elle soit très proche du centre de cette boucle de recirculation où la vitesse de liquide est nulle. La boucle de circulation formée après le passage de la bulle évolue continuellement suivant la direction de l'écoulement (Fig. III. 11) et le granule de boue se retrouve alors au centre de cette boucle de recirculation. Il est intéressant de noter que l'immobilisation du granule au centre de la boucle de recirculation est observée dans les quatre expériences, la durée d'immobilisation étant d'environ 0,13 - 0,26 s. La boucle de recirculation poursuit ainsi son ascension et le granule de boue s'éloigne peu à peu du centre de cette boucle de recirculation, se rapprochant progressivement de la zone de sillage de la bulle. Lorsque le granule se trouve dans la zone de sillage de la bulle, elle change de direction et son mouvement devient ascendant et est alors influencé par la direction de l'écoulement local du liquide dans le sillage des bulles.

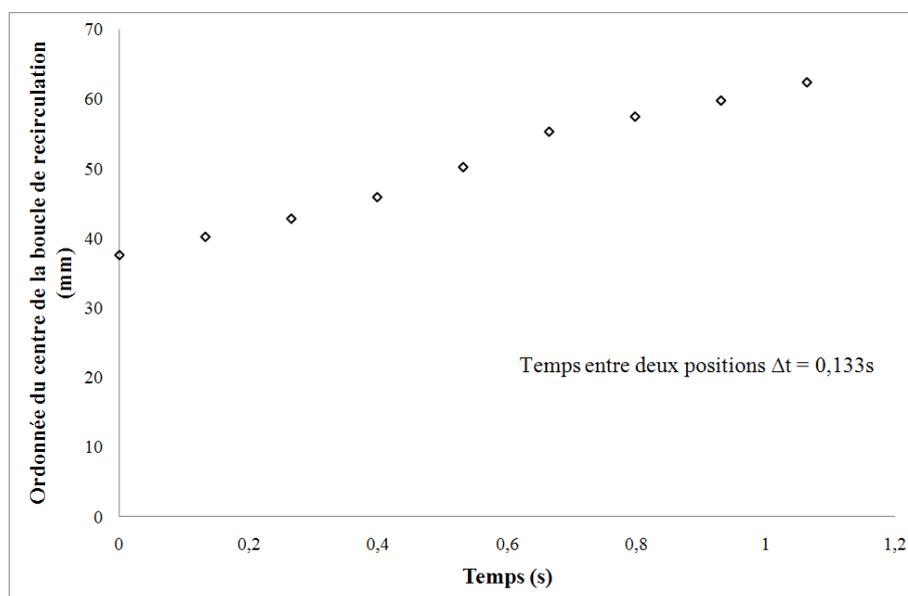
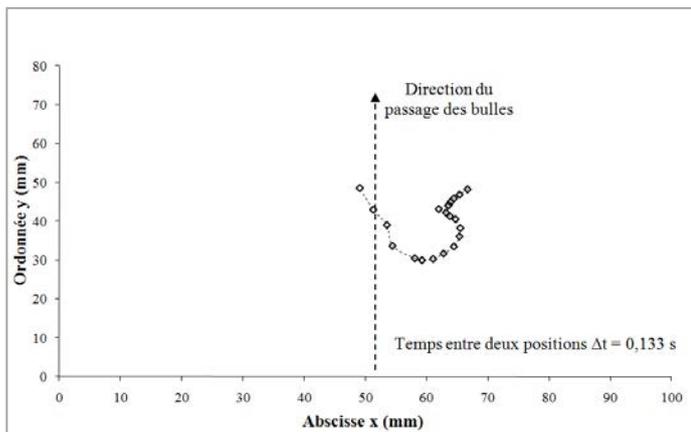
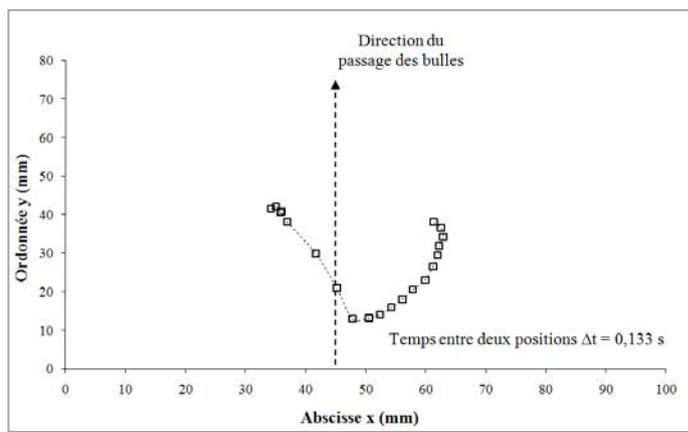


Fig. III. 11. Déplacement du centre de la boucle de recirculation.

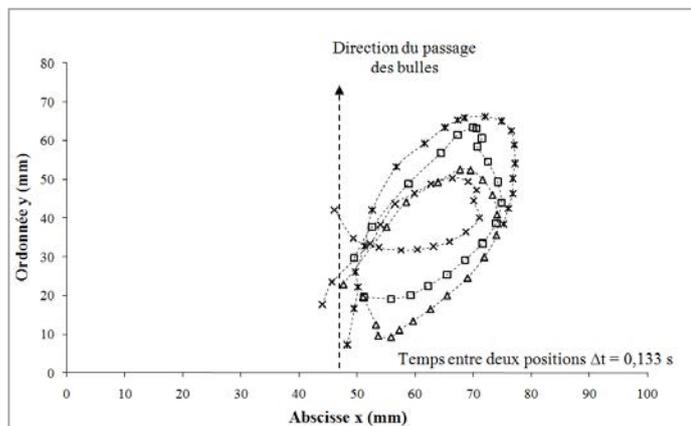
III.1.1.2.4 Trajectoires de granules de boue influencées par les boucles de recirculation



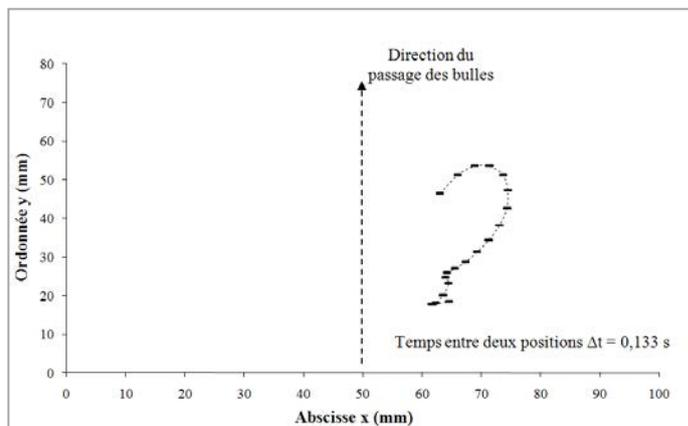
(a). Expérience 2



(b). Expérience 4



(c). Expérience 5

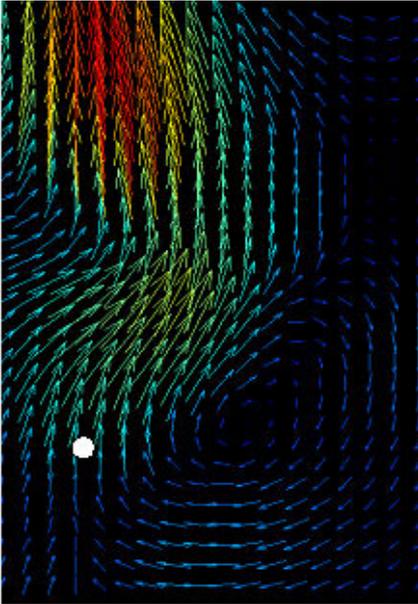


(d). Expérience 7

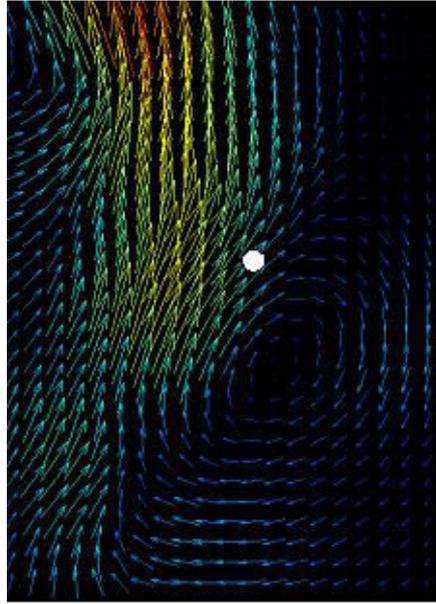
Fig. III. 12. Trajectoires des granules de boue qui suivent la boucle de recirculation.

Une des trajectoires suivant la boucle de circulation est représentée ci-dessous (expérience 5).

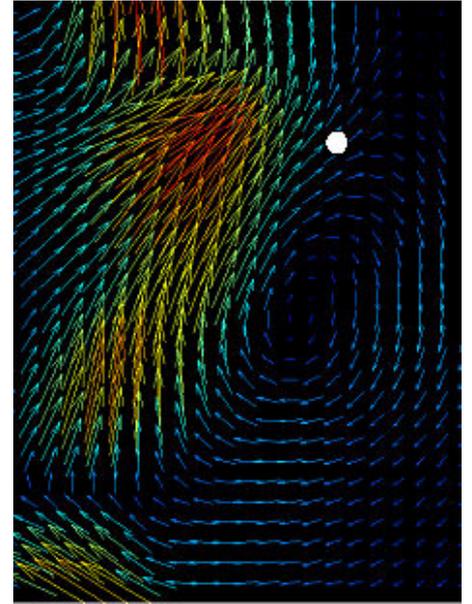
Les champs de vitesse mesurés par PIV ainsi que le mouvement du granule de boue enregistré sont représentés sur la figure III. 13.



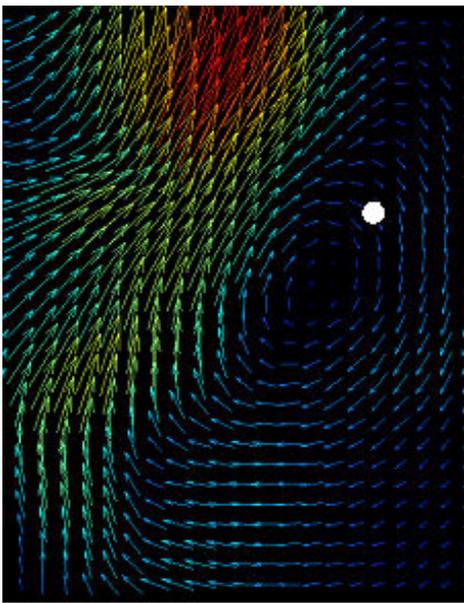
(a). Position du granule de boue (mm): (47,66, 22,9)



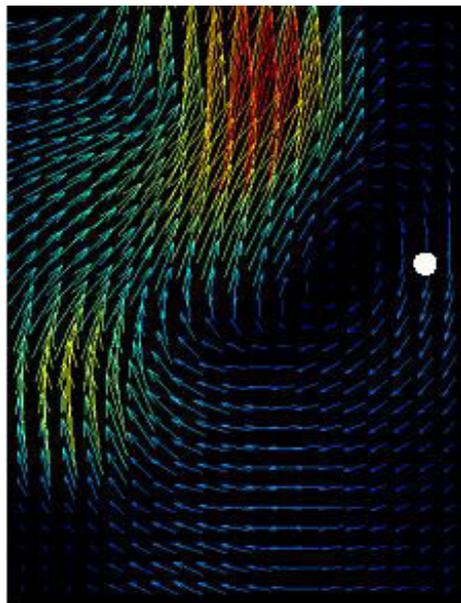
(b). Position du granule de boue (mm): (58,46, 43,81)



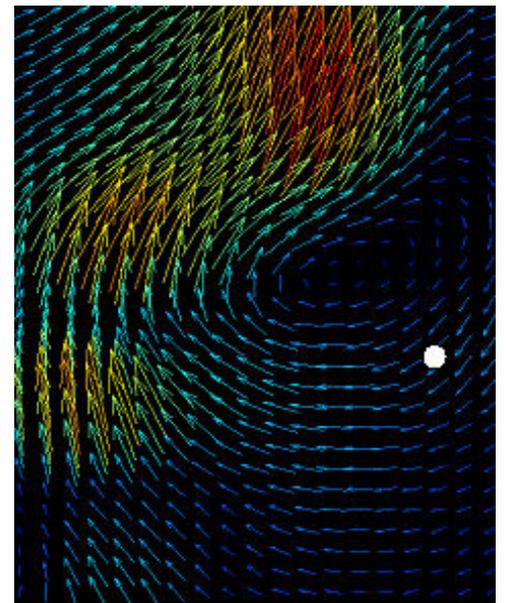
(c). Position du granule de boue (mm): (67,84, 52,51)



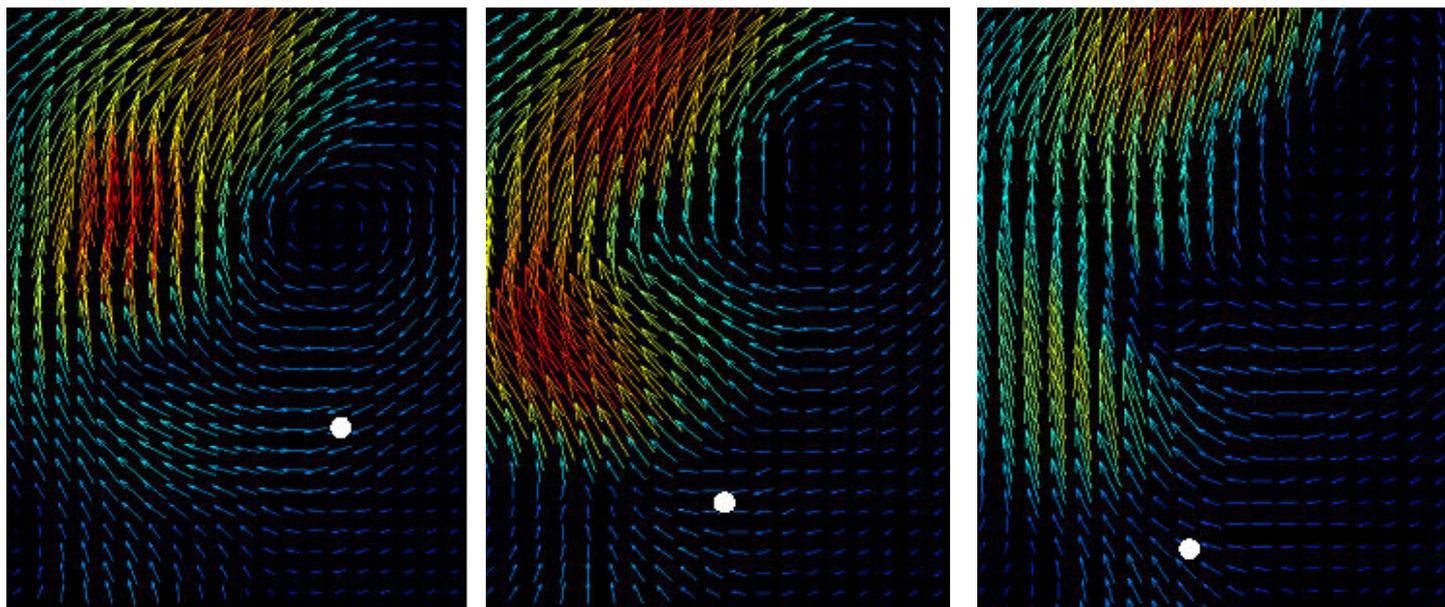
(d). Position du granule de boue (mm): (71,74, 49,92)



(e). Position du granule de boue (mm): (74,35, 41,07)



(f). Position du granule de boue (mm): (72,27, 30,23)



(g). Position du granule de boue (mm): (65,49, 20)

(h). Position du granule de boue (mm): (59,64, 13,43)

(i). Position du granule de boue (mm): (55,73, 9,159)

Fig. III. 13. Déplacement d'un granule de boue qui suit la boucle de recirculation (expérience 5).

Parfois, avec une durée d'observation plus longue, il arrive que le granule de boue suive une boucle de recirculation à droite de la trajectoire des bulles, puis soit déviée vers la gauche pour finalement suivre la boucle de recirculation située à gauche de la bulle. Dans ce cas, on obtient pour le granule de boue une trajectoire ayant la forme d'un "huit" (Fig. III. 14).

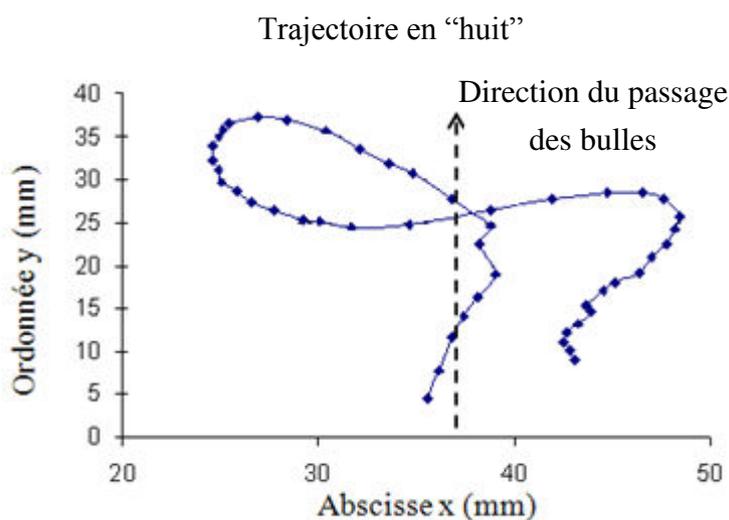


Fig. III. 14. Trajectoire en "huit" correspondant à l'expérience.

La différence observée entre cette trajectoire et la précédente (Fig. III. 10) est due au fait que les granules de boue dans ce cas ne soient pas assez proches du centre de la boucle de recirculation. En effet, compte tenu de l'importance de la vitesse locale du liquide, les granules de boue suivent cette fois la recirculation du liquide et ne peuvent se retrouver au centre de la boucle de recirculation. Dans la plupart des cas, deux boucles de recirculation sont observées de chaque côté des bulles ascendantes. Lorsque les deux boucles de recirculation sont suffisamment éloignées axialement (Fig. III. 15 (a)), le granule de boue suit d'abord la boucle de recirculation avant de se retrouver dans le sillage des bulles. Par contre, si les deux boucles de recirculation se situent presque au même niveau axial, la trajectoire en "huit" peut alors être obtenue pour les granules de boue (Fig. III. 15 (b)).

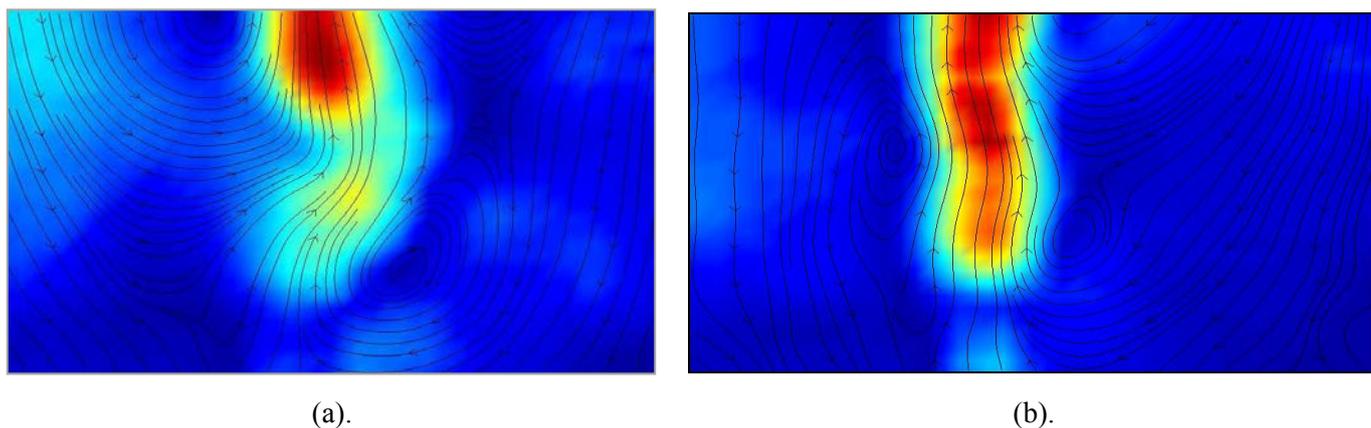


Fig. III. 15. Deux boucles de recirculation. (a). Eloignées ; (b). Proches.

III.1.1.3 Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue

III.1.1.3.1 Définition de la vitesse de cisaillement

En faisant l'hypothèse qu'il n'y a pas de glissement à la surface de la particule, la vitesse de cisaillement exercée sur le granule est calculée comme suit :

$$\dot{\gamma} = \left\| \frac{u_p - u_l}{d} \right\| \quad (\text{Eq. III. 1})$$

Avec

- u_p vitesse de la particule, m.s^{-1} ;
- u_l vitesse de liquide autour de la particule, m.s^{-1} ;
- d distance entre le bord de la particule et le centre du vecteur vitesse.

Les composantes horizontales et verticales de la vitesse de cisaillement (Fig. III. 16) s'écrivent :

$$\dot{\gamma}_x = \left\| \frac{u_{xp} - u_{xl}}{d_y} \right\| \quad \text{et} \quad (\text{Eq. III. 2})$$

$$\dot{\gamma}_y = \left\| \frac{u_{yp} - u_{yl}}{d_x} \right\| \quad (\text{Eq. III. 3})$$

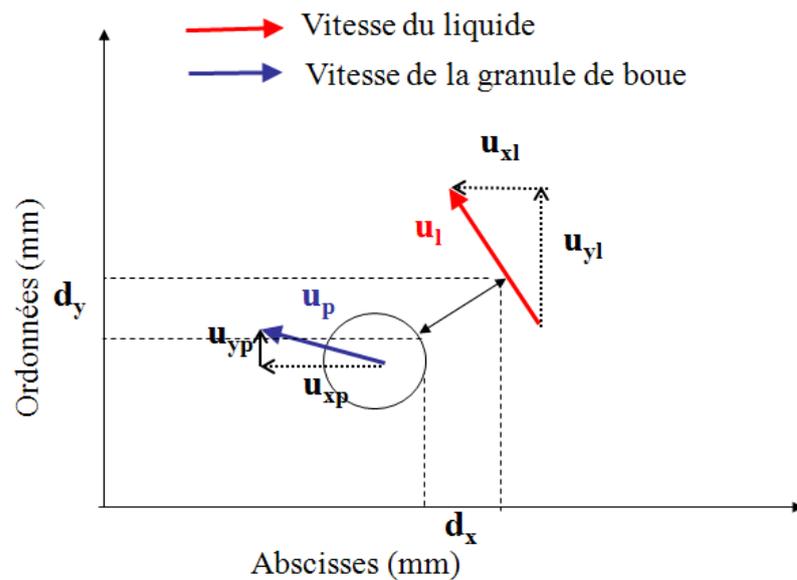


Fig. III. 16. Calcul de la vitesse de cisaillement.

Sachant qu'il existe plusieurs vecteurs vitesse de liquide autour de la particule, et pour limiter les erreurs liées à l'estimation de la distance, la règle suivante a été définie quant à la sélection du vecteur vitesse liquide sur lequel sera basé le calcul de la vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue (Fig. III. 17) : La distance entre le bord de la particule et le milieu du vecteur vitesse sur abscisses d_x et ordonnées d_y ne doivent pas être très petites. Ainsi, pour un point donné situé à la surface de la particule, on évitera de choisir les vecteurs vitesse de liquide parallèles verticalement et horizontalement à ce point pour calculer la vitesse de cisaillement.

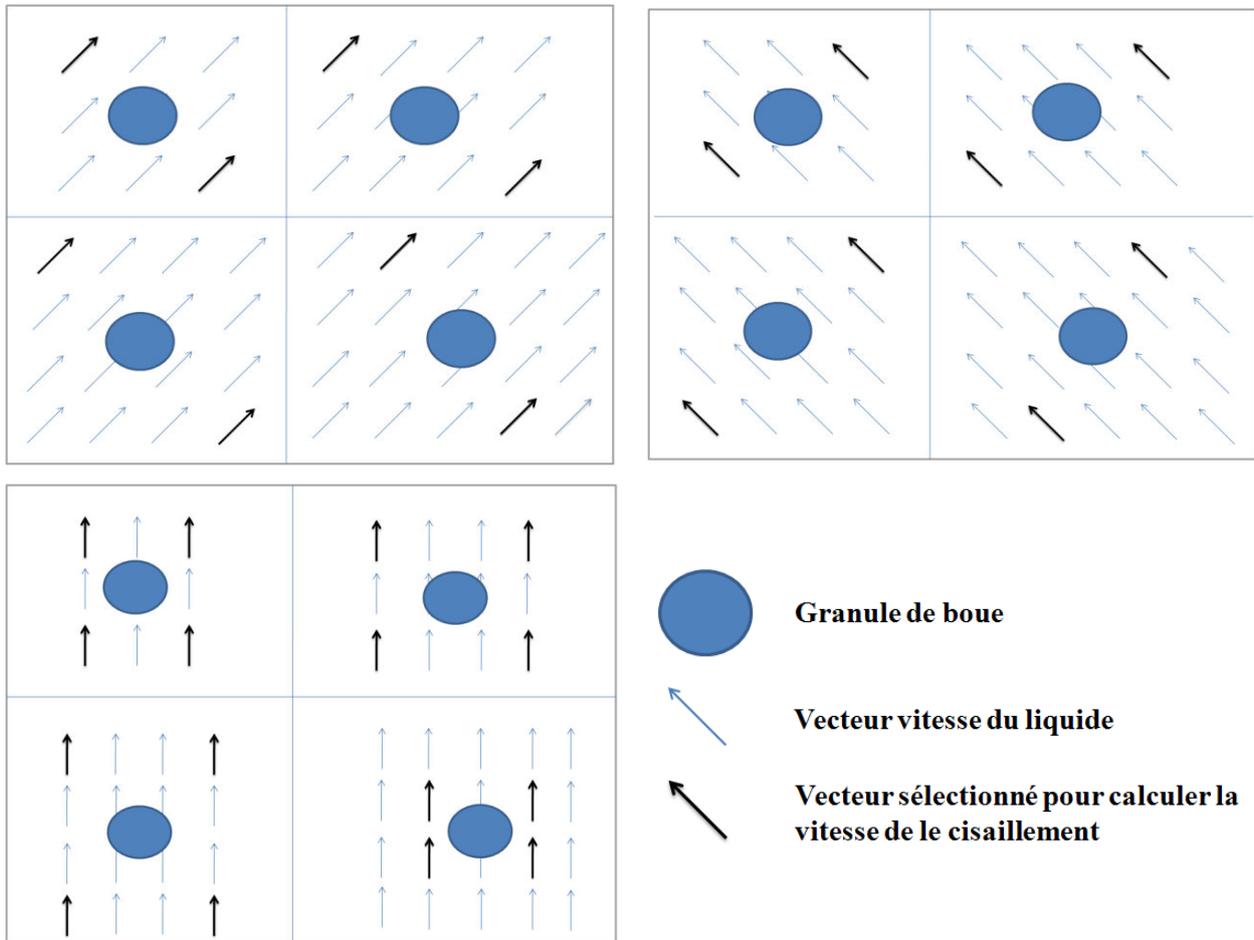


Fig. III. 17. Choix des vecteurs vitesse de liquide pour calculer la vitesse de cisaillement.

III.1.1.3.2 Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue entraînés dans le sillage des bulles

Les valeurs de vitesses de cisaillements exercées sur les granules de boue correspondant aux deux images suivantes. Lorsque le granule de boue se situe dans un champ de faible vitesse de l'ordre de $0,015 \text{ m.s}^{-1}$ (Fig. III. 18 (a)), une vitesse de cisaillement faible de l'ordre de 3 s^{-1} est obtenue. Par contre, la vitesse du fluide étant maximale dans le sillage des bulles (de l'ordre de $0,04 \text{ m.s}^{-1}$), c'est donc dans cette zone que le cisaillement exercé sur les granules de l'ordre de 35 s^{-1} est le plus important (Fig. III. 18 (b)).

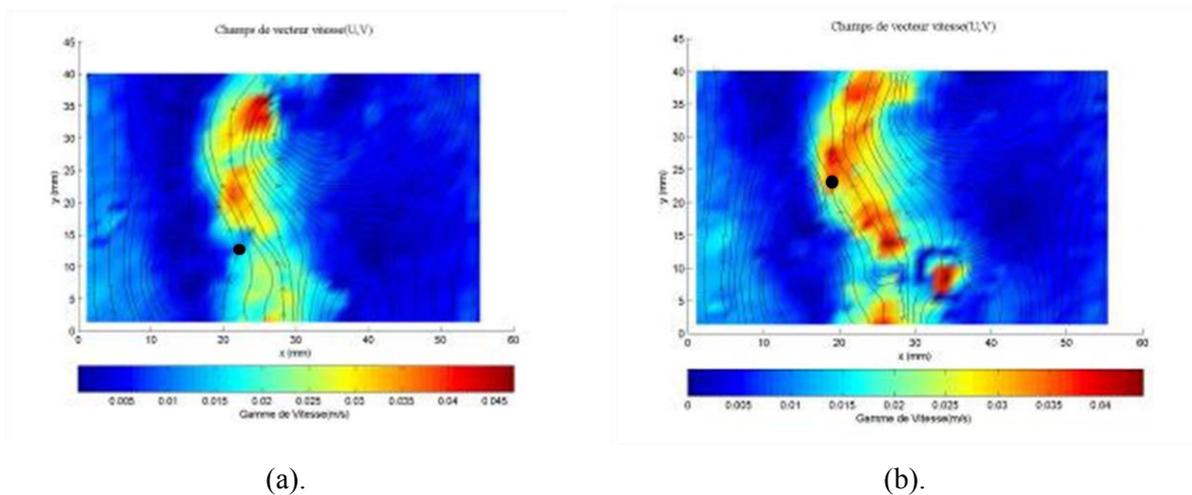


Fig. III. 18. Influence du champ de vitesse sur la vitesse de cisaillement. (a). Granule de boue situé dans un champ de faible vitesse ; (b). Granule de boue situé dans un champ de vitesse élevée. (Point noir : granule de boue).

Compte tenu de ce qui précède, la vitesse de cisaillement autour du granule de boue sera de toute évidence influencée par la distance séparant la bulle du granule de boue. Il convient donc de choisir, pour un granule de boue donnée, la bulle adéquate. Le schéma suivant correspondant à une fenêtre de visualisation d'une image obtenue par PIV (Fig. III. 19) illustre à titre d'exemple la distance d_2 , entre la bulle et le granule de boue, qui sera prise en considération. On appellera dans ce qui suit d_1 la distance entre deux bulles successives.

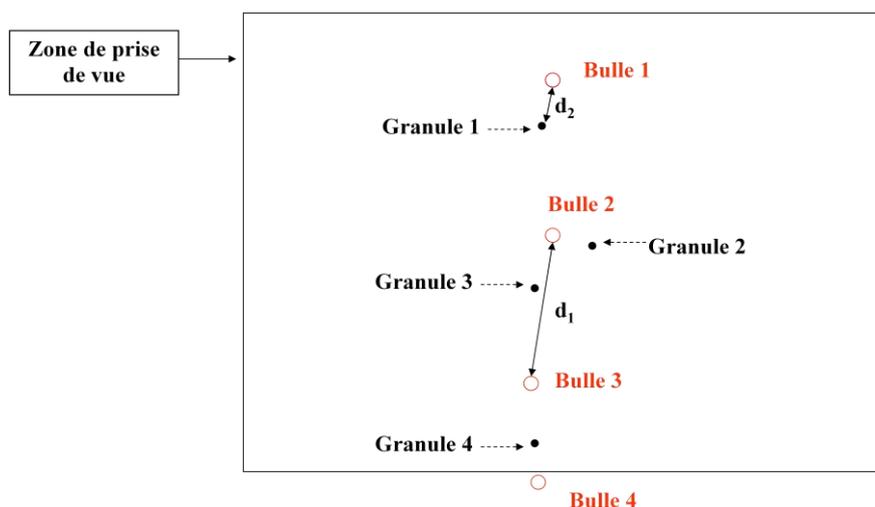


Fig. III. 19. Schéma de la fenêtre de visualisation du système PIV.

Lorsque l'on choisit la distance entre la bulle et le granule de boue, on optera toujours pour la distance la plus proche. Par exemple, on prendra la distance d_2 (inférieure à $d_1/2$) entre le granule 1 et la bulle 1 plutôt que la distance entre le granule 1 et la bulle 2, l'influence de la bulle 1 étant plus importante. Par ailleurs, on ne tiendra pas compte des bulles qui se trouvent en dehors de la fenêtre de prise de vue comme la bulle 4 par exemple. Ainsi, la vitesse de cisaillement autour d'un granule (le granule 4 par exemple) située en bas ou en haut de la fenêtre de prise de vue peut être due à une bulle (bulle 4 dans ce cas) située en dehors de la fenêtre de prise de vue. Il est donc préférable dans ce cas, de ne pas considérer les granules situés aux extrémités de la prise de vue afin d'éviter d'éventuelles erreurs.

Les résultats relatifs à la vitesse de cisaillement suivant l'axe y en fonction de la distance bulle-granule sont rapportés sur les figures suivantes. Les données de l'expérience 1 ont volontairement été écartées ici à cause de la faible quantité de granules de boue présents entre deux bulles en ascension. Ces vitesses de cisaillement sont estimées pour chaque particule, à partir de deux vecteurs vitesse de liquide différents autour de la particule afin d'éviter toute

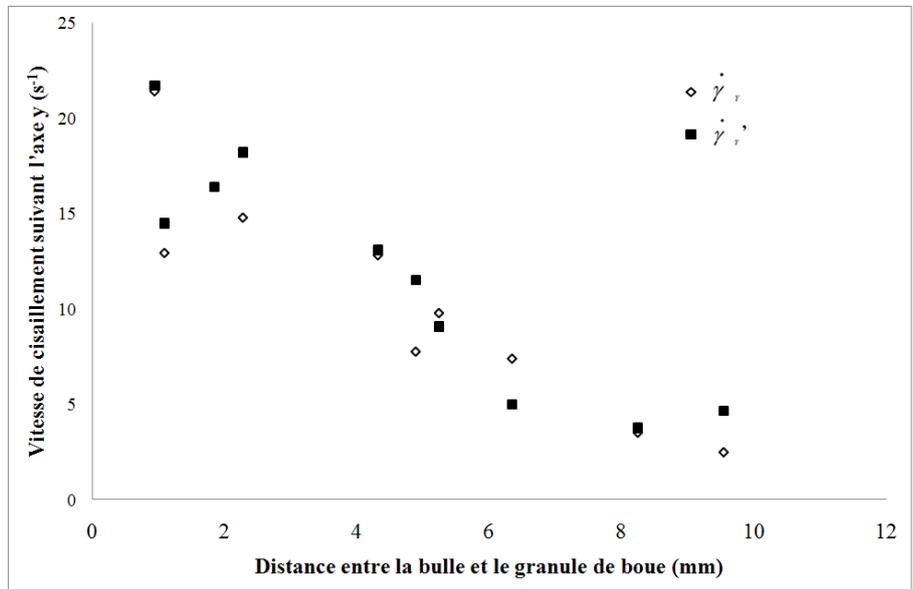
erreur possible quant au choix du vecteur vitesse de liquide à proximité de la particule. Ces

vitesse de cisaillement suivant l'axe y sont appelées $\dot{\gamma}_y$ et $\dot{\gamma}_y'$.

(a). Expérience 2 :

Distance entre deux bulles

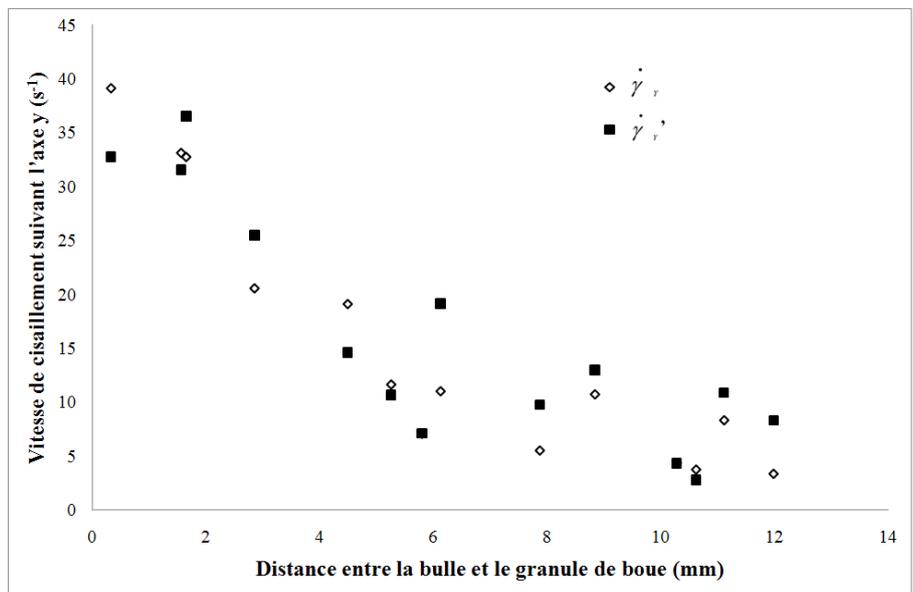
$$d_l = 28,78 \text{ mm.}$$



(b). Expérience 3 :

Distance entre deux bulles

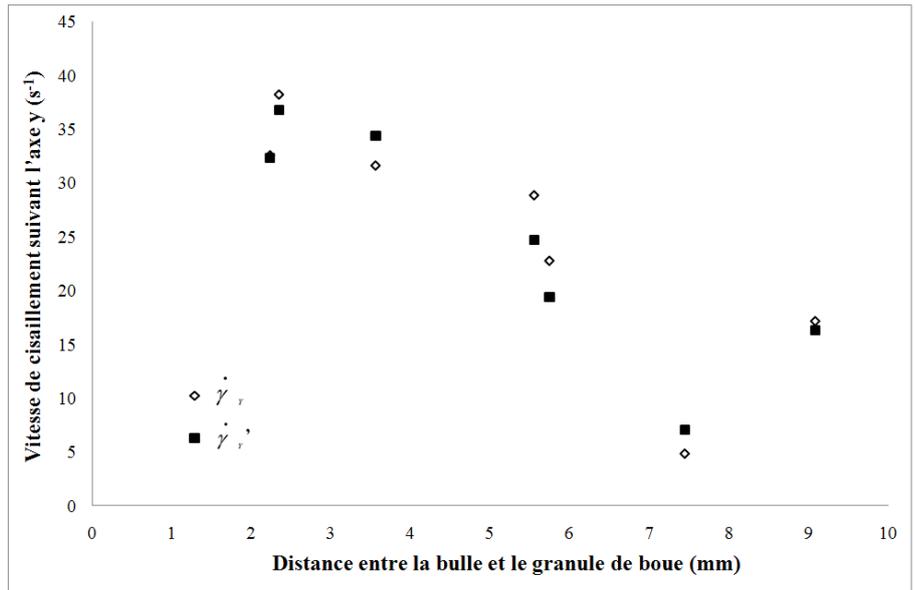
$$d_l = 27,43 \text{ mm}$$



(c). Expérience 4 :

Distance entre deux bulles

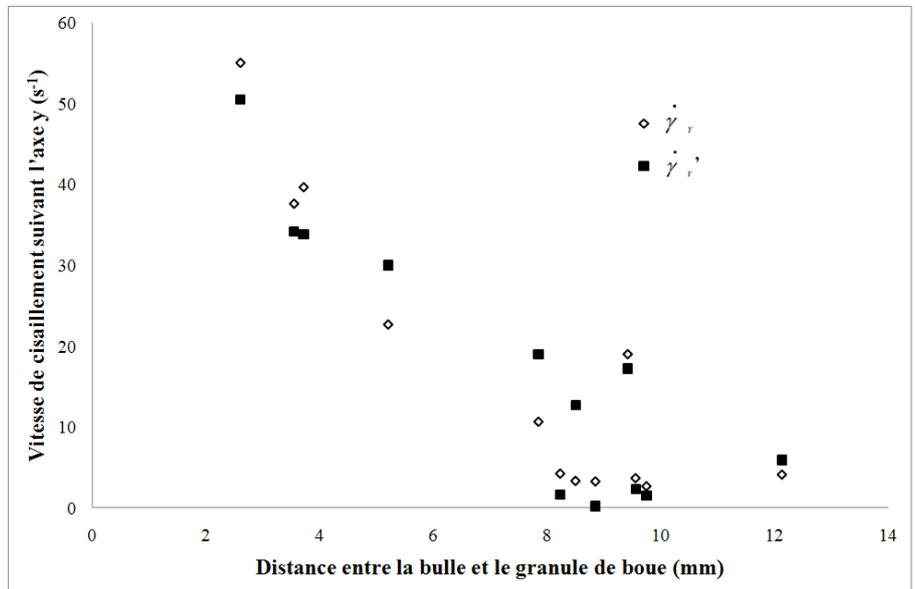
$$d_l = 24,16 \text{ mm}$$



(d). Expérience 5 :

Distance entre deux bulles

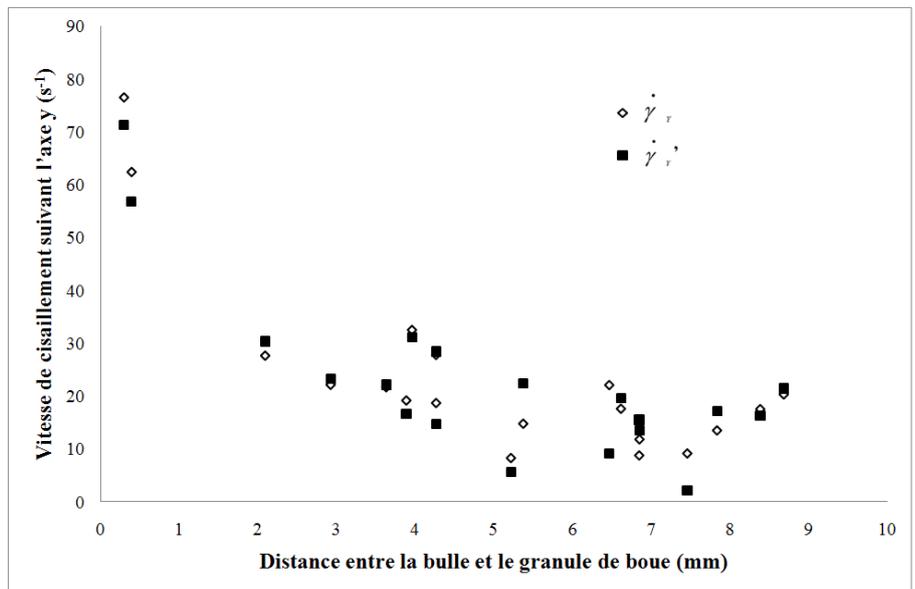
$$d_l = 21,42 \text{ mm}$$



(e). Expérience 6 :

Distance entre deux bulles

$$d_l = 18,93 \text{ mm}$$



(f). Expérience 7 :
Distance entre deux bulles
 $d_1 = 18,32$ mm

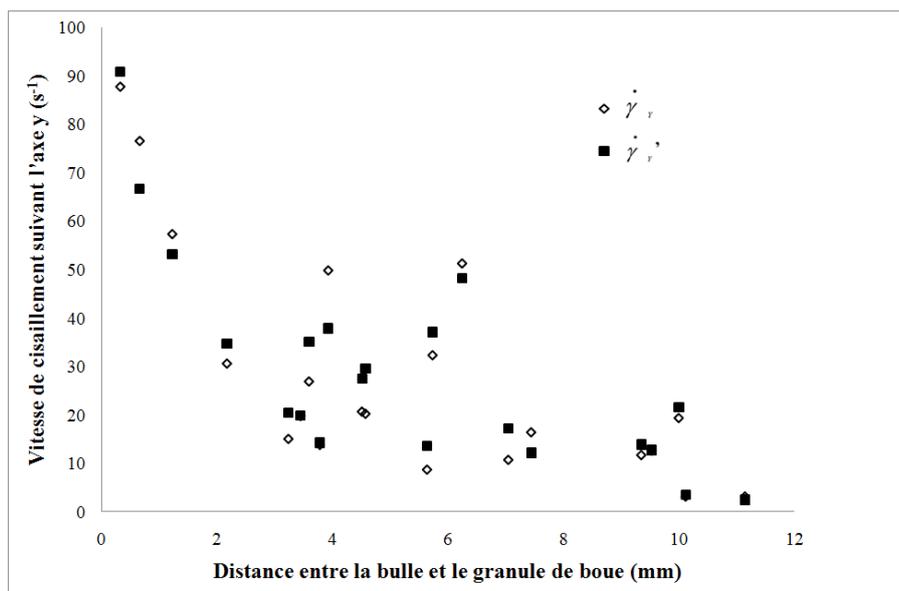


Fig. III. 20. Evolution de la vitesse de cisaillement suivant l'axe y en fonction de distance entre la bulle et le granule de boue d_2 , pour des valeurs de d_1 décroissantes.

La figure III. 20 montre que les courbes $\dot{\gamma}_y$ et $\dot{\gamma}_y'$ représentées en fonction de la distance d_2 et correspondant aux deux vitesses de cisaillement basées sur deux différents vecteurs vitesse autour de la particule présentent la même tendance. Ceci permet donc d'éliminer toute ambiguïté quant au choix des vecteurs vitesse de liquide autour du granule de boue. Cette constatation reste d'ailleurs valable pour les mesures rapportées plus loin et obtenues en maquette chaude (§ III.1.2, III.1.3 et III.2). On sait par ailleurs que la distance d_2 entre les granules et les bulles a une influence sur la vitesse de cisaillement qui est d'autant plus importante que le granule est proche de la bulle.

Pour déterminer l'influence de cette distances d_2 et de la distance entre deux bulles successives d_1 sur la vitesse de cisaillement exercée localement sur le granule, cette dernière a été calculée, afin de minimiser des erreurs, en se basant sur le plus grand des deux vecteurs vitesse de liquide autour du granule pour comparer les résultats obtenus dans les différentes expériences. La vitesse de cisaillement suivant l'axe y ainsi calculée pour les différentes

expériences est représentée en fonction du rapport des distances d_2/d_1 qui est dans tous les cas inférieur à l'unité (Fig. III. 21).

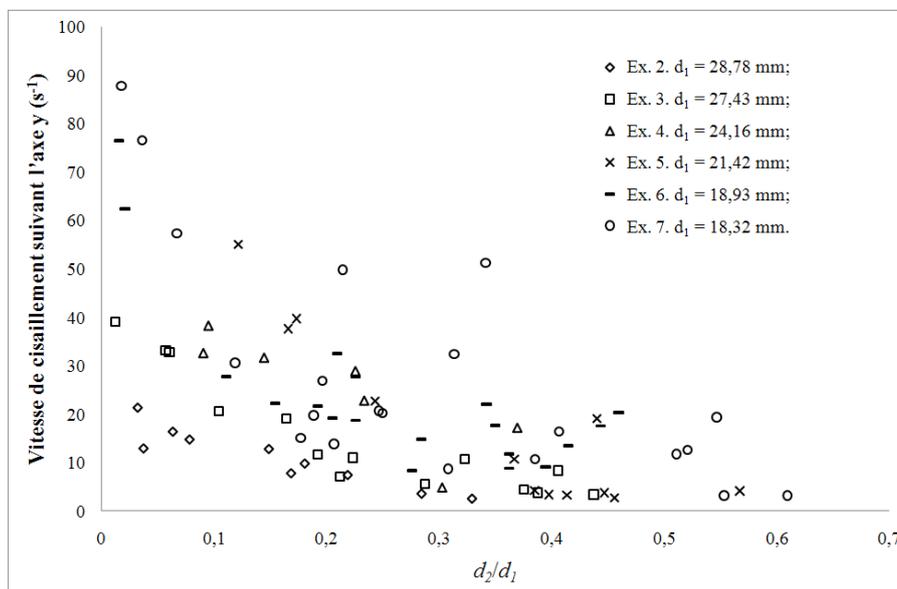


Fig. III. 21. Vitesse de cisaillement suivant l'axe y en fonction de d_2/d_1 pour différentes valeurs de d_1 .

On remarque ainsi que les vitesses de cisaillement élevées sont obtenues pour de faibles rapports d_2/d_1 . Ainsi, pour obtenir des vitesses de cisaillement élevées, le granule de boue doit être d'autant plus proche de la bulle que la distance entre les bulles est grande. Par ailleurs, il est de même intéressant de connaître globalement l'influence du débit de gaz sur la vitesse de cisaillement. Pour ce faire, on estimera, pour chacun des débits de gaz utilisés et pour tous les granules de boue qui se trouvent dans le sillage des bulles, la vitesse de cisaillement moyenne suivant l'axe y exercée sur l'ensemble des granules de boue situées dans le sillage des bulles. L'influence de la valeur moyenne des vecteurs vitesses de liquide autour de chacune des granules sur la vitesse de cisaillement moyenne est ainsi rapportée sur la figure suivante.

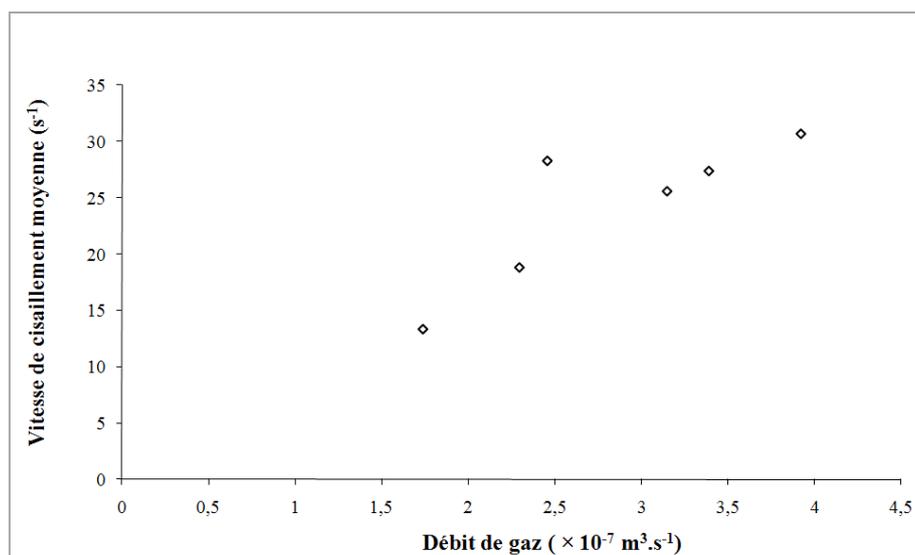


Fig. III. 22. Corrélation entre la vitesse de cisaillement moyenne suivant l'axe y et le débit de gaz.

On constate ainsi une forte corrélation entre la vitesse de cisaillement moyenne suivant l'axe y exercée sur les granules de boue situées dans le sillage des bulles et le débit de gaz. La vitesse de cisaillement suivant l'axe y est logiquement d'autant plus importante que le débit de gaz est élevé. On remarque aussi qu'une tendance stable est obtenue en considérant les vitesses de cisaillement suivant l'axe x, ce qui est certainement dû aux faibles composantes de vitesses de liquide selon l'axe x dans la zone de sillage des bulles (§ Annexe 1). On peut retenir de cette étude que la vitesse de cisaillement dans le sillage des bulles varie avec le débit de gaz et selon la position du granule de boue. Il faut noter que les granules de boue sont mobiles dans le réacteur et que leur vitesse a une influence assez significative sur la vitesse de cisaillement.

III.1.2 Influence de la vitesse superficielle de liquide en maquette chaude dans le réacteur bidimensionnel

Cette étude consiste à développer une approche originale permettant de comprendre certains phénomènes se produisant à l'échelle méso dans un réacteur anaérobie polyphasique bidimensionnel dans le but d'intensifier ses performances. L'accent est notamment mis, en

travaillant à différentes conditions opératoires, sur les interactions entre les granules de boue, sur l'efficacité de production de biogaz et sur l'éventuelle relation entre la vitesse de cisaillement et le débit de production de biogaz. Le système PIV ainsi que la caméra rapide ont de ce fait été utilisés pour quantifier d'une part les champs de vitesse de liquide permettant d'accéder aux valeurs de vitesses de cisaillement et le mouvement relatif entre les granules de boues et les bulles de biogaz d'autre part.

III.1.2.1 Conditions opératoires expérimentales

Le bioréacteur est alimenté par une phase liquide, la phase solide (granules de boue) ayant été préalablement introduite dans le bioréacteur avant chaque expérience. La phase liquide est constituée d'une solution synthétique préparée dans un réservoir de 17 litres. Cette solution est pompée à débit constant et alimente le bioréacteur par la tubulure d'entrée placée en bas du réacteur, la sortie du liquide étant située latéralement en tête du réacteur après séparation du gaz. Le biogaz produit est évacué par une conduite placée en tête du bioréacteur (Fig. III. 23).

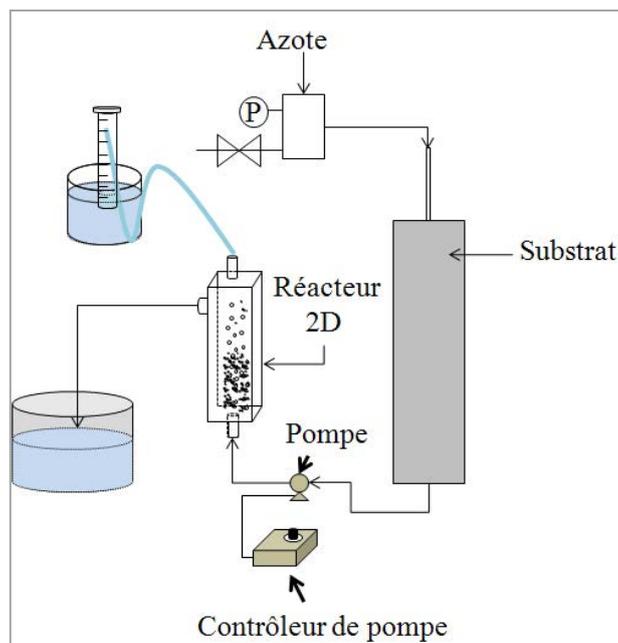


Fig. III. 23. Schéma du montage du bioréacteur 2D.

Toutes les expériences ont été réalisées dans les mêmes conditions concernant la concentration de la solution liquide et la fraction de la phase solide utilisées. Les conditions expérimentales sont rapportées dans le tableau III. 2

Conditions opératoires			Caractéristiques de la phase liquide			Caractéristiques de la phase solide	
Température (°C)	pH	Volume de la zone de réaction (mL)	Concentration	Concentration	Masse volumique de la phase liquide ρ_l (kg.m^{-3})	Masse volumique de la phase solide ρ_s (kg.m^{-3})	Fraction volumique de la phase solide e_s
			DCO (mg.L^{-1})	ions Na^+ (mol.L^{-1})			
30	$7,0 \pm$ 0,05	37,5	3300	< 0,03	993,6	1050	16%

Tableau III. 2. Conditions expérimentales des phases liquide et solide.

Une solution synthétique préparée dans une bouteille de 17 L a été utilisée comme substrat pour ces expériences. Les produits composant ce substrat sont rapportés dans le tableau suivant (Tableau III. 3). Dans notre étude, la température de la solution a été maintenue à 30°C grâce à un bain thermostaté.

Composant	
<i>Macronutriments</i>	
Glucose	3400
Urée	88,50
K ₂ HPO ₄	36
Levure	0,64 mL (1:1 avec de l'eau)
<i>Micronutriments</i>	
MgCl ₂	78,22
FeSO ₄	13,75
NiSO ₄	4,66
CoCl ₂	0,47
NH ₄ MoO ₃	0,17
ZnSO ₄	0,41
MnCl ₂	0,11
CuSO ₄	0.06

Tableau III. 3. Composants du substrat synthétique en mg.L⁻¹ (basés sur la DCO de 3000 mg.L⁻¹).

Les bactéries productrices de méthane peuvent fonctionner, au mieux de leurs capacités, dans un intervalle très restreint de pH compris entre 6,7 et 7,5. Il est donc essentiel que la capacité tampon du substrat puisse assurer la neutralisation de toute éventuelle accumulation d'acide.

III.1.2.2 Procédure expérimentale et méthodes analytiques

La solution d'alimentation du substrat était la même dans toutes les expériences. On introduit dans le réacteur, à la vitesse de liquide souhaitée. La solution de substrat à une certaine

concentration DCO fixée. Le démarrage de cette dernière étape correspond alors au temps zéro de l'expérience réalisée dans des conditions hydrodynamiques fixées.

La production de biogaz correspondant à chaque expérience a été enregistrée grâce à la caméra rapide durant 2 minutes chaque heure de la journée (3586 photos sont ainsi enregistrées à chaque fois pendant 2 minutes). Les diamètres ainsi que le nombre de bulles de biogaz ont ensuite été calculés à partir des images enregistrées. La production de biogaz était contrôlée à partir du déplacement d'eau dans une éprouvette graduée renversée et placée en sortie du bioréacteur 2D. En fin d'expérience, les particules de traceur sont finalement introduites dans le réservoir d'alimentation du réacteur afin de mesurer, dans les conditions de fonctionnement de la maquette chaude, le champ de vitesse instantané de la phase liquide en utilisant la technique PIV. Ces champs de vitesse ont enfin permis d'accéder aux valeurs de vitesses de cisaillement exercées sur les granules de boue. Après chaque expérience, le réservoir et le réacteur sont nettoyés afin d'éliminer toute trace de traceur et d'éviter ainsi de perturber l'activité méthanogène du nouvel échantillon de granules de boue qui sera utilisé pour une autre vitesse superficielle de liquide.

III.1.2.3 Résultats et discussion

Les principaux résultats obtenus avec les cinq échantillons de boue identiques dans les différentes conditions hydrodynamiques sont rapportés dans le tableau III. 4.

Expérience	Débit de liquide ($\times 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	Vitesse superficielle de liquide ($\times 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$)	Débit moyen de production de biogaz ($\times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	Diamètre moyen des bulles (mm)	Nombre de bulles enregistrées	Hauteur du lit de boue (cm)
1	0	0	0,27	0,55	2532	10,5

2	0,06	0,42	0,94	0,82	2753	12,0
3	0,13	0,89	1,37	0,78	4676	13,5
4	0,18	1,2	0,52	0,66	2764	15,0
5	0,27	1,8	0,30	0,62	1983	17,5

Tableau III. 4. Résultats obtenus dans les conditions hydrodynamiques différentes.

III.1.2.3.1 Influence du débit de liquide sur le débit de production de biogaz

Le débit de production de biogaz est étudié ci-dessous. La 1^{ère} expérience étant effectuée en régime statique (vitesse de liquide nulle), le débit de production de biogaz est relativement faible ($0,27 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$). Le transfert de matière dans le bioréacteur n'est dû dans ce cas qu'à la convection induite par la présence des bulles de biogaz produites et par la diffusion moléculaire dans les granules de boue. Ceci est insuffisant pour assurer aux bactéries une alimentation organique constante ; de larges zones d'épuisement sont alors rapidement générées autour des granules de boue, ce qui engendre une diminution rapide de la production de biogaz. Comme les composés organiques sont progressivement consommés, la capacité d'acidogénèse diminue, abaissant ainsi la vitesse de production de méthane qui se traduit par le faible nombre de bulles de biogaz produit. La figure. III. 24 montre que le débit de biogaz atteint un pic de $1,04 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, 70 min après l'ajout de la solution de substrat, puis, diminue rapidement de 96% environ 4 heures après le pic, pour devenir ensuite pratiquement nul ($0,04 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$).

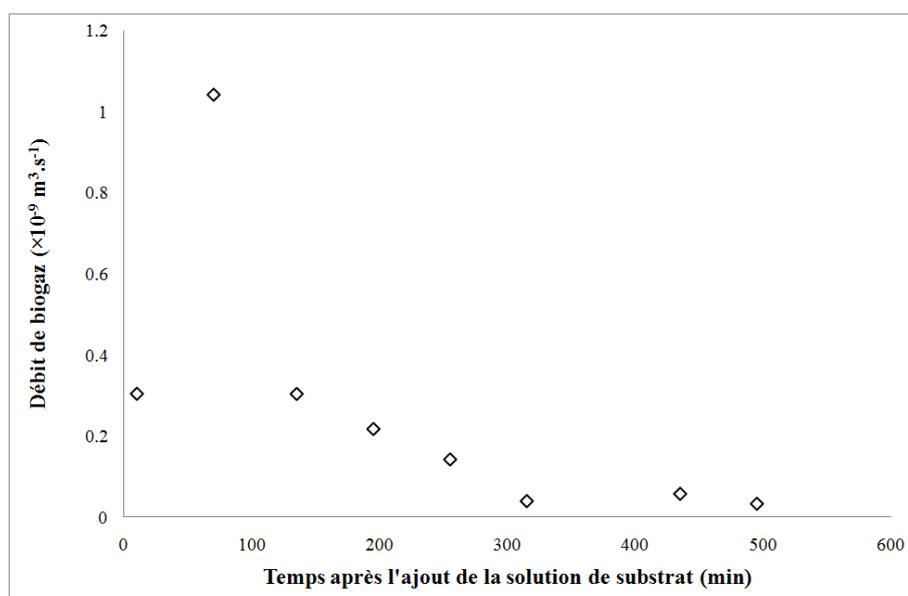


Fig. III. 24. Débit de production de biogaz en fonction du temps en régime statique.

Une démarche similaire a été adoptée en présence d'un écoulement de liquide. Pour toutes les vitesses de liquide étudiées, on constate que le débit de production de biogaz se stabilise au bout de 300 à 400 mn environ après l'ajout de la solution de substrat. La diffusion du substrat à travers les granules poreuses et perméables nécessite un certain temps. Au début de la réaction anaérobie, la faible quantité de biogaz produit est essentiellement dissoute dans la phase liquide. La nucléation de biogaz démarre lorsque la concentration locale en biogaz atteint un degré de saturation suffisant. Pour les vitesses de liquide étudiées, la capacité de production de biogaz se fait dans l'ordre décroissant suivant : $u_L (\times 10^3) = 0,89 > 0,42 > 1,2 > 1,8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ (Fig. III. 25), ce qui pourrait indiquer que l'utilisation de conditions hydrodynamiques adaptées peut considérablement améliorer l'efficacité de production de biogaz, du fait de l'influence de ces conditions hydrodynamiques sur le transfert de substrat dans les granules.

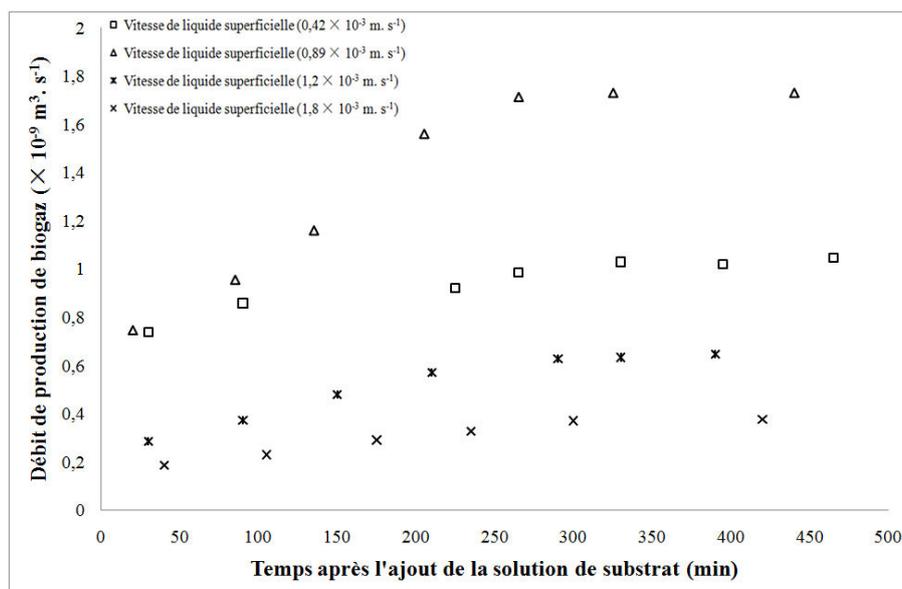


Fig. III. 25. Evolution de la production de biogaz.

La comparaison des résultats de débits de biogaz moyens obtenus à vitesse de liquide croissante pour les expériences 2 à 5 (Fig. III. 26) montre que le débit de biogaz produit passe par un optimum correspondant à l'expérience 3, soit à une vitesse de liquide de $0,89 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$. Ainsi, comme on pouvait s'y attendre du fait de l'augmentation du transfert de matière convectif avec la vitesse de liquide, le débit de production de biogaz augmente d'abord logiquement avec la vitesse de liquide. Cependant, au-delà d'une vitesse de liquide de $0,89 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$, le débit de biogaz diminue lorsque la vitesse de liquide augmente (cas des débits de biogaz obtenus avec les expériences 4 et 5).

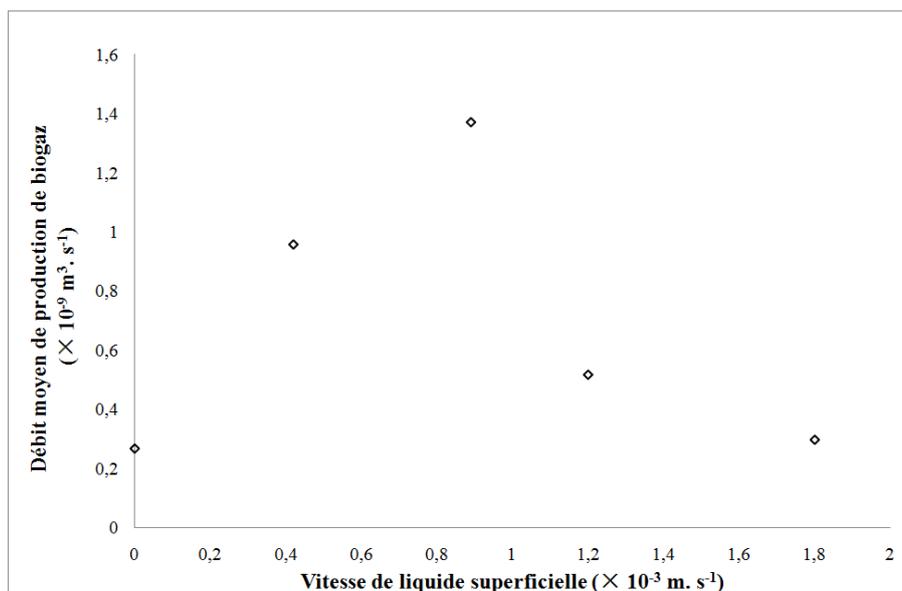


Fig. III. 26. Relation entre le débit moyen de production de biogaz et la vitesse superficielle de liquide.

III.1.2.3.2 Interprétation des caractéristiques des bulles produites

La figure III. 27 montre la distribution des tailles de bulles pour différents débits de liquide.

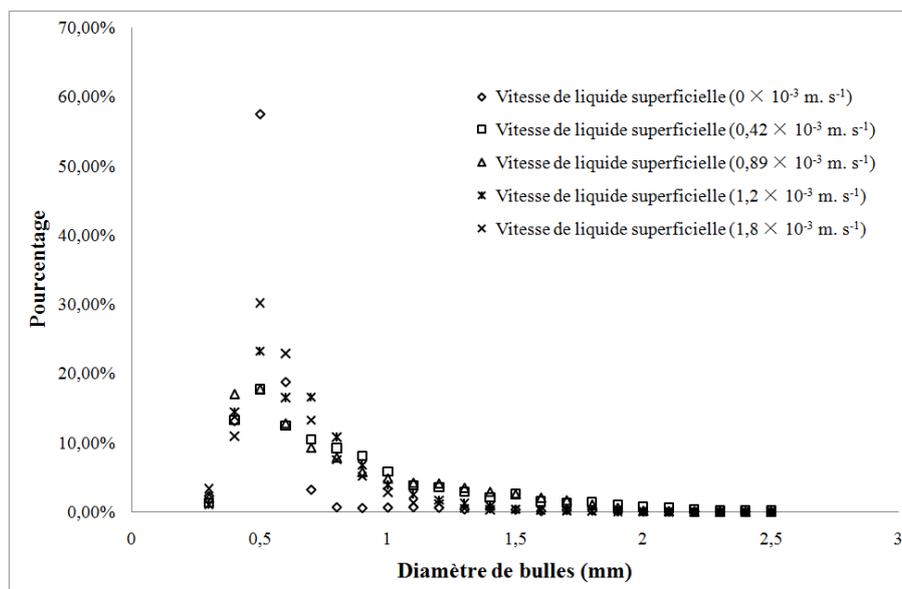


Fig. III. 27. Distribution des diamètres de bulles.

D'une manière générale, pour les différents débits de liquide utilisés, le diamètre de la plupart des bulles se situe autour de 0,5 mm; cependant, la proportion de bulles ayant un diamètre de 0,5 mm dépend de la vitesse superficielle de liquide. On constate aussi que lorsque la vitesse superficielle de liquide est nulle ou très élevée (expériences 1, 4 et 5 réalisées avec les vitesses de liquide de 0, 1,2 et $1,8 \times 10^{-3}$ m.s⁻¹ respectivement), la proportion de bulles ayant un diamètre de l'ordre de 0,5 mm est plus élevée (57,4%, 23,23% et 30,16%, respectivement) que celle obtenue pour les expériences 2 et 3 (17,65% et 17,73%). Toutefois, la tendance inverse est obtenue concernant les bulles de taille importante (diamètre de bulle > 1 mm). En effet, le pourcentage de bulles de grand diamètre est plus élevé (facteur allant d'environ 3 à 7) pour les expériences 2 et 3 (27,79% et 27,61% respectivement) que pour les autres expériences, indiquant ainsi que l'utilisation de conditions hydrodynamiques modérées semble favoriser les bulles de grand diamètre.

Le diamètre moyen des bulles et le nombre de bulles de biogaz sont deux paramètres essentiels pouvant être liés au débit moyen de production de biogaz. Le diamètre moyen des bulles obtenues en régime batch (de l'ordre de 0,55 mm) est plus faible que celui obtenu en présence d'un écoulement de la phase liquide (Fig. III. 28). Dans la 1^{ère} expérience réalisée en batch, le transfert de substrat dans les granules de boue est faible, ainsi, comme les matières organiques sont progressivement consommées, le débit acidogène diminue, entraînant par conséquent un freinage de la croissance et un détachement prématuré des bulles de biogaz ce qui conduit à un diamètre moyen des bulles faible et un nombre de bulles relativement élevée (Fig. III. 29).

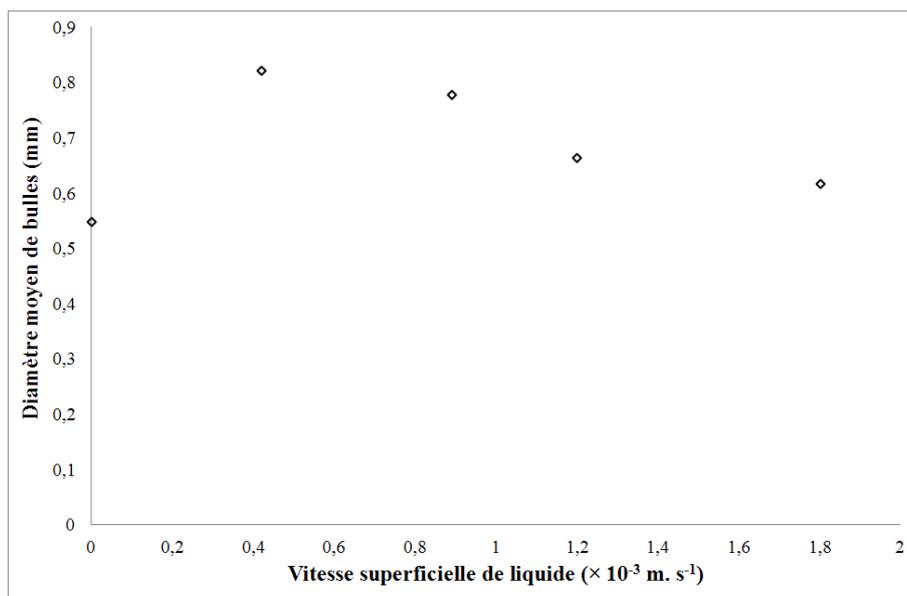


Fig. III. 28. Relation entre la vitesse superficielle de liquide et le diamètre moyen de bulles.

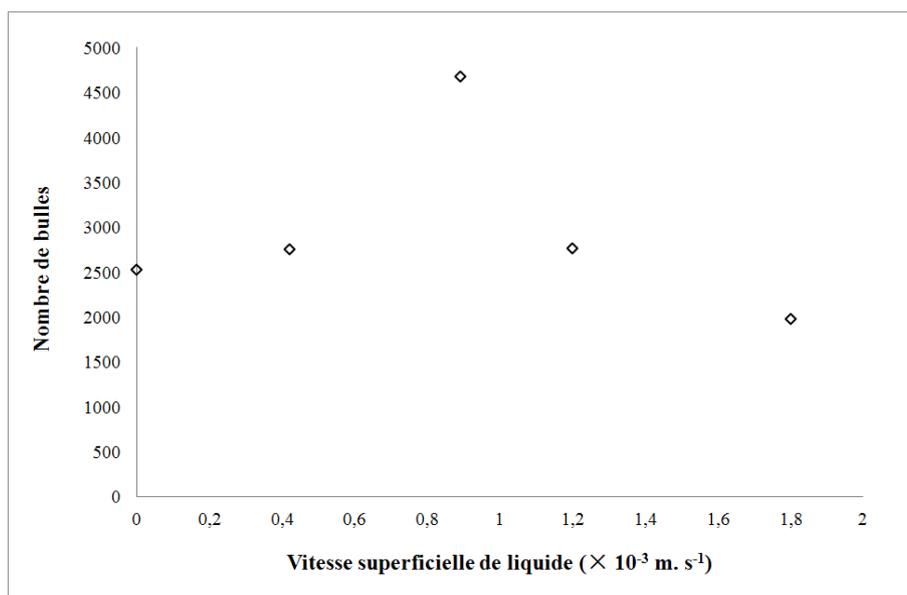


Fig. III. 29. Relation entre la vitesse superficielle de liquide et le nombre de bulles.

Pour la 2^{ème} expérience correspondant à un débit de liquide entrant faible ($u_L = 0,42 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$), la coalescence des bulles observée est importante lors de l'ascension des bulles dans le bioréacteur. Des coalescences sont certainement responsables d'un nombre de bulles relativement faible (de l'ordre de 2753) et d'un diamètre moyen de bulle plus important (de l'ordre de 0,82 mm) que celui estimé pour les autres expériences.

Les deux dernières expériences sont réalisées avec des débits de liquide plus élevés qui augmentent la turbulence améliorant ainsi l'efficacité du transfert de matière convectif. Cependant, le frottement plus élevé exercé sur les granules de boue par la phase liquide rend leur structure plus dense et augmente donc la densité du granule de boue, entraînant une diminution de l'efficacité de diffusion interne du substrat. D'autre part, la vitesse superficielle de liquide étant plus élevée, les contraintes de cisaillements plus importantes ainsi générées peuvent entraîner la désintégration des granules. De plus, une contrainte de cisaillement élevée peut considérablement accélérer la sécrétion des PEC et plus spécialement la protéine. Or, une concentration élevée des PEC peut aussi augmenter la viscosité globale dans le bioréacteur de sorte que les granules de boue soient perturbés, la contrainte de cisaillement étant intensifiée par cette augmentation des PEC :

$$\tau = \mu \dot{\gamma} \quad (\text{Eq. III. 4})$$

En effet, lorsque la protéine des PEC est produite en excès, la cohésion mécanique des granules de boue diminue, ce qui a pour conséquence le lessivage des fragments de granules vers l'extérieur du bioréacteur. Par ailleurs, les granules de boue mises en mouvement s'entrechoquent et ce phénomène est d'autant plus fréquent et intense que la vitesse de liquide est élevée, ce qui peut entraîner l'obturation du site de production de biogaz et aussi la déformation des microcanaux de distribution dans le granule empêchant ainsi la pénétration du substrat dans le granule. La production de biogaz, de l'ordre de $0,52$ et $0,30 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ pour les deux vitesses de liquide les plus élevées ($1,2$ et $1,8 \times 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$), est ainsi plus faible en comparaison de celle correspondant aux expériences 2 et 3 (débits de biogaz de $0,94$ et $1,37 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ respectivement) et il en est de même pour le nombre de bulles qui est de

2764 et 1983 respectivement. Par ailleurs, les vitesses de cisaillement plus élevées dues à des vitesses de liquide plus importantes et à l'agitation causée par le mouvement des bulles, peuvent engendrer un détachement prématuré des bulles de biogaz des granules de boue conduisant à un diamètre moyen des bulles relativement faible (0,66 et 0,61 mm) comparé à celui obtenu dans les expériences 2 et 3 (0,82 et 0,78 mm).

Ainsi, compte tenu de ce qui précède, la production maximale de biogaz ($1,37 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) dans notre réacteur est obtenue, pour les granules de boue et la concentration de substrat utilisées, en choisissant une vitesse superficielle de liquide d'environ $0,89 \times 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, permettant d'optimiser l'efficacité de transfert du substrat dans les granules de boue et entraînant une densité de granules modérée afin de faciliter la diffusion du substrat dans ces granules. Les expériences menées dans ces conditions optimales ont permis d'atteindre, pour notre étude, le nombre de bulles le plus important (4676) et un diamètre moyen de bulles satisfaisant de l'ordre de 0,78 mm.

III.1.2.3.3 Vitesses de cisaillement autour de granules de boue en maquette chaude

Pour chacune des expériences précédentes, le liquide estensemencé par des particules de verre creuses à la fin de chaque expérience qui correspond à un débit de production de biogaz stable. Les champs de vitesse sont alors rapidement mesurés en utilisant le système PIV pour éviter que la production de biogaz n'ait le temps d'être affectée par l'injection des particules de traceur qui pourraient obturer en partie les pores des granules de boue et par conséquent modifier le débit de production de biogaz. En effet, les granules de boue poreuses sont perméables et la taille des pores varie de 300 à $7 \times 10^5 \text{ \AA}$, la plus grande taille étant d'environ 50 à 70 microns (données mesurées par l'équipe de l'Université de Tsinghua). Ainsi, les particules de traceur dont le diamètre moyen est de 15 microns, peuvent pénétrer facilement

dans les granules de boue et bloquer les pores ainsi que les microcanaux qui distribuent de façon ubiquiste dans les granules de boue. Par ailleurs, l'effet de l'ajout de traceur au démarrage de l'expérience a de même été étudié pour tester l'influence de la présence du traceur sur la production de biogaz. Les résultats obtenus en présence et en absence de traceur sont rapportés sur la figure III. 30 à titre de comparaison. On constate, en présence traceur, que le débit de biogaz produit est plus faible et que le temps de stabilisation de ce débit est plus long (300 - 400 min) à partir de l'ajout de la solution de substrat. Cependant, la capacité de production de biogaz suit toujours le même ordre décroissant avec les vitesses superficielles de liquide : $0,89 > 0,42 > 1,2 > 1,8 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$. On sait qu'en début de la réaction anaérobie, le biogaz présent en petite quantité dans les canaux est essentiellement dissous dans le liquide et qu'avec l'avancement de la réaction anaérobie qui produit de plus en plus de biogaz, la concentration locale de biogaz atteint un degré suffisant de sursaturation. Mais, en présence de traceur, la nucléation ne peut avoir lieu ou peut être retardée en raison de l'invasion des particules de traceur dans les microcanaux décalant ainsi le démarrage de la production de biogaz. De plus, le transport de substrat dans les granules est également gêné du fait de l'augmentation de la résistance par diffusion limitant ainsi la production de biogaz.

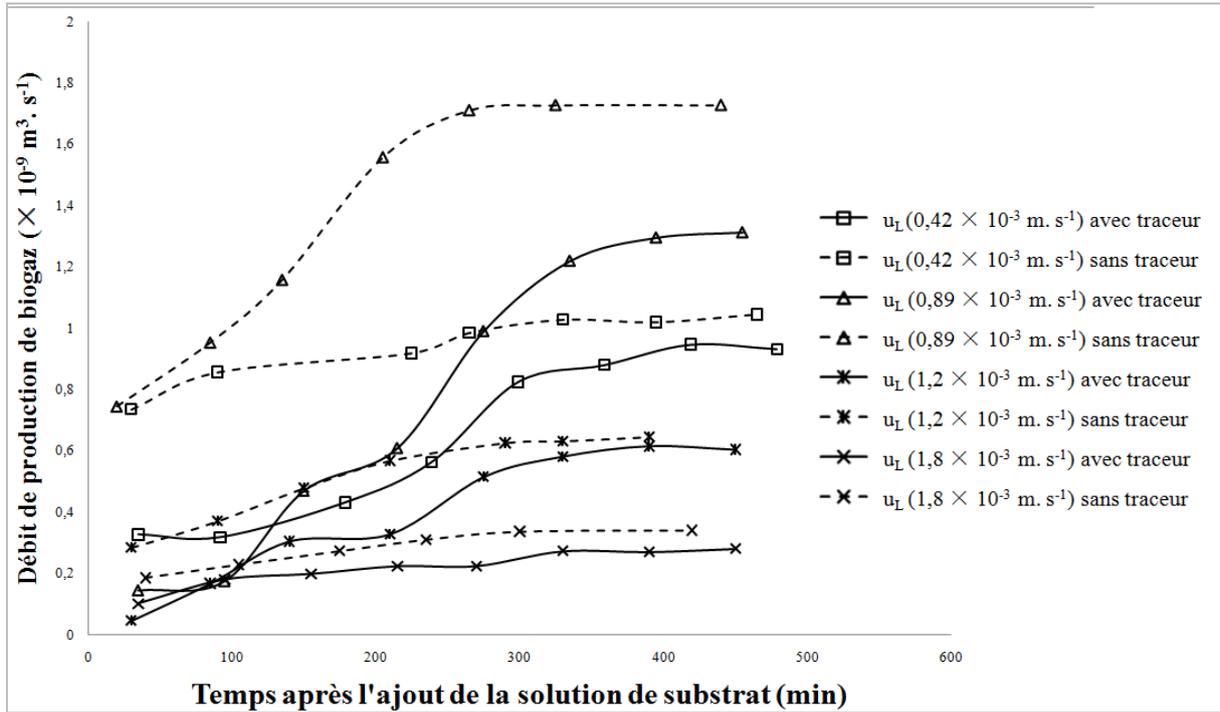
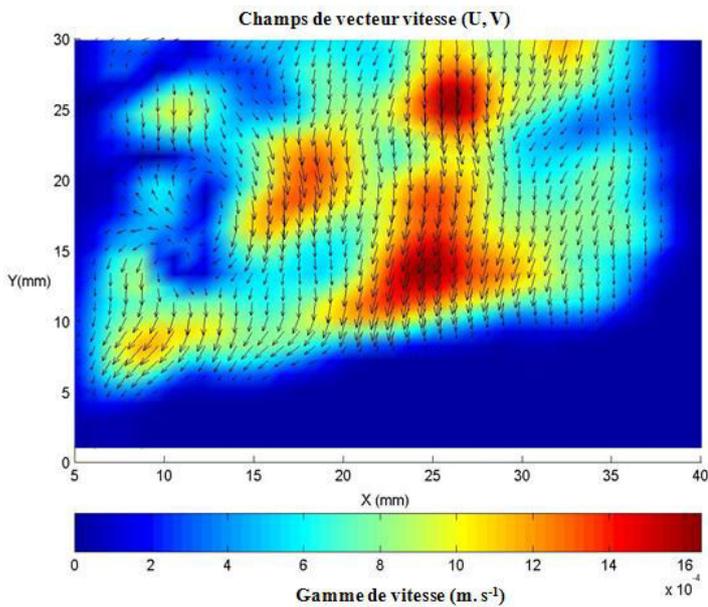
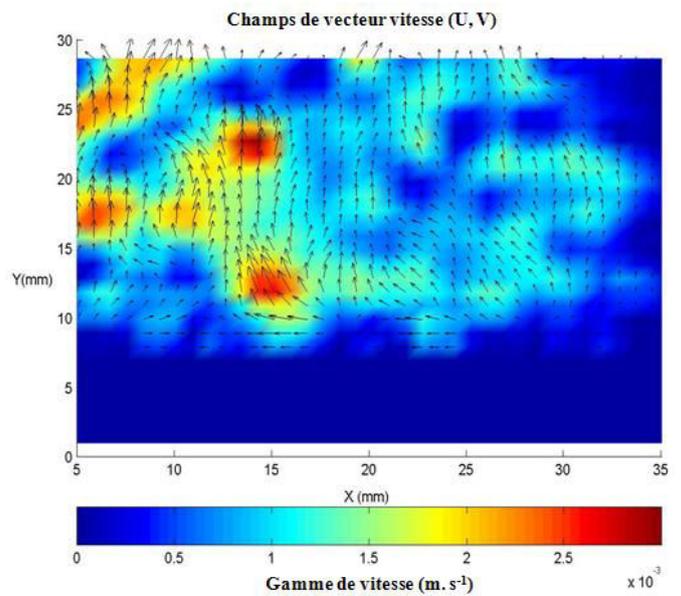


Fig. III. 30. Comparaison des débits de production de biogaz avec et sans traceur pour les vitesses de liquide différentes

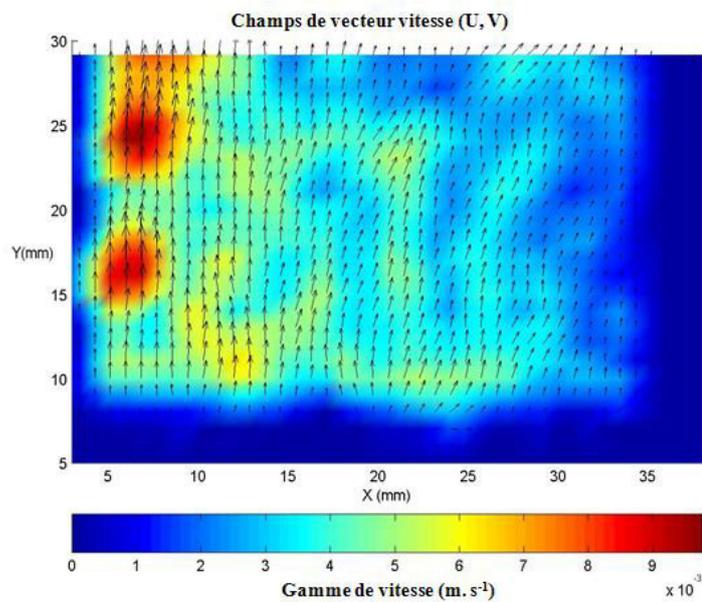
Des exemples de résultats de champs de vitesses mesurés par PIV et obtenus à différents débits de liquide dans le réacteur 2D sont rapportés dans ce qui suit.



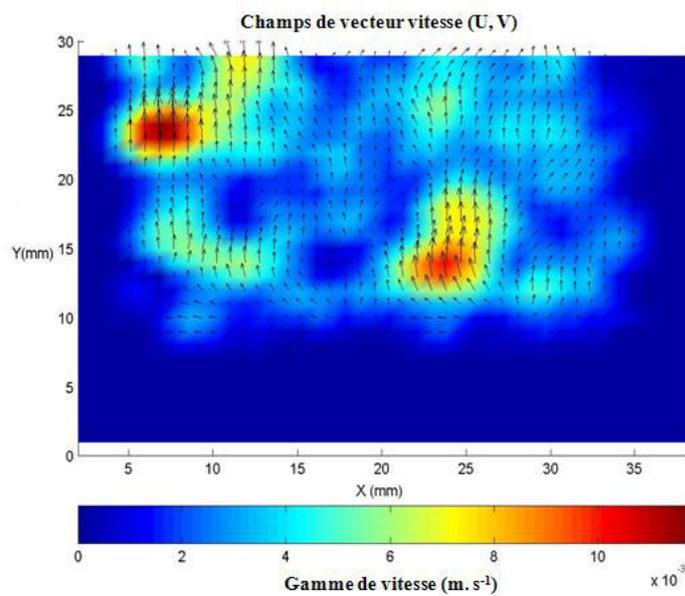
(a). Vitesse superficielle de liquide = $0 \times 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



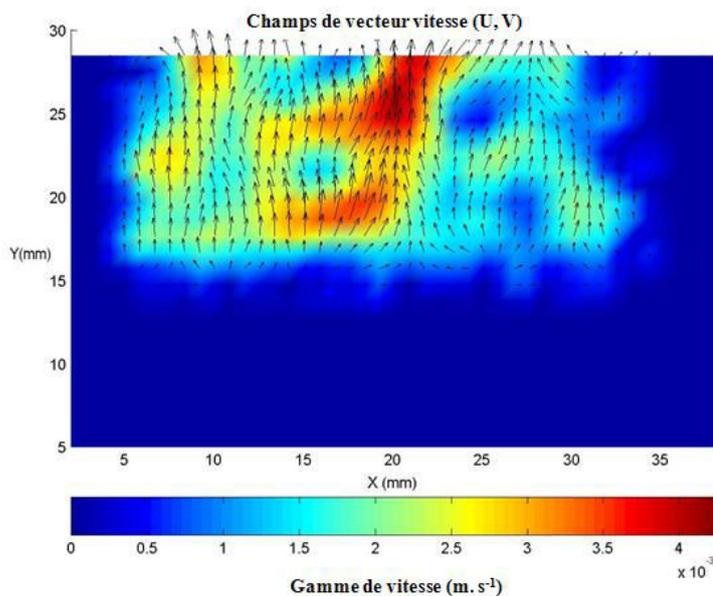
(b). Vitesse superficielle de liquide = $0,42 \times 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



(c). Vitesse superficielle de liquide = $0,89 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$



(d). Vitesse superficielle de liquide = $1,2 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$



(e). Vitesse superficielle de liquide = $1,8 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$

Fig. III. 31. Champs de vitesse instantanés de chaque expérience.

Lors du fonctionnement en batch, le lit de boue est fixe. En présence de liquide, la fluidisation du lit est obtenue pour la plus faible vitesse de liquide utilisée, celle-ci étant supérieure à la vitesse minimale de fluidisation et l'expansion du lit est d'autant plus importante que cette vitesse croît. Les granules de boue situées à la surface du lit et au voisinage des bulles de biogaz détachées ou non des granules de boue ont de plus un mouvement ascendant hors du lit

de boues. Les bulles de biogaz ascendantes après leur détachement des granules de boue accélèrent la vitesse locale du liquide et influencent le champ de vitesse local, ce qui conduit à un champ de vitesse de cisaillement variable. La figure III. 31 montre que les vitesses locales de liquide les plus élevées obtenues au voisinage des bulles sont environ 2 à 3 fois plus importantes que celles mesurées hors de la zone de passage des bulles. Les vitesses de cisaillement hydrodynamiques qui dépendent entre autre de la vitesse et de la taille des bulles sont calculées à partir de ces champs de vitesse pour une ordonnée (hauteur) Y égale à 22 mm dans le seul but d'obtenir un ordre de grandeur de ces vitesses de cisaillement. Les résultats ainsi obtenus sont rapportés sur la figure III. 32 qui montre que les vitesses de cisaillement sont insignifiantes et inférieures à 5 s^{-1} même lors du passage des bulles.

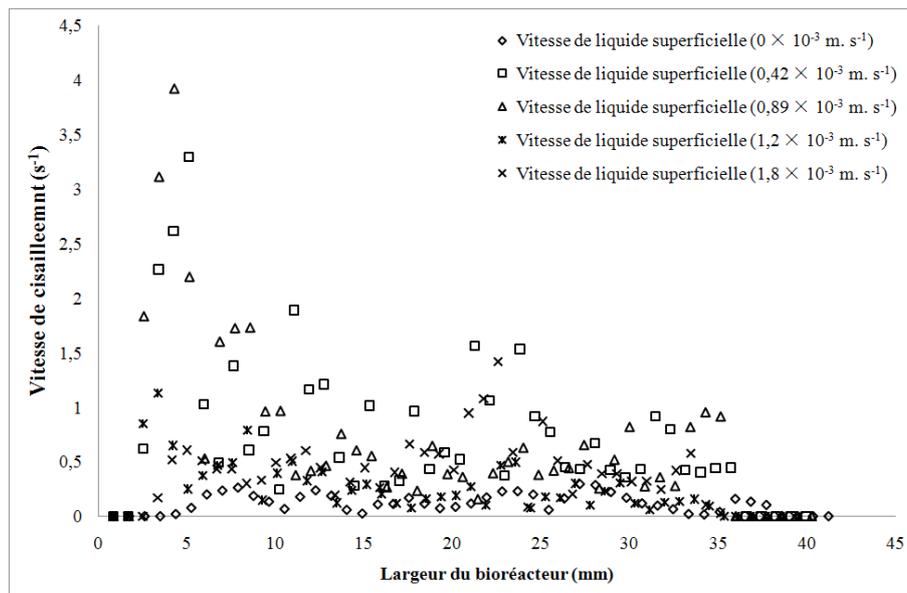


Fig. III. 32. Vitesse de cisaillement pour différentes vitesses de liquide en $Y = 22 \text{ mm}$.

Compte tenu du mouvement relatif entre le granule de boue et la phase liquide, la vitesse de cisaillement exercée sur un granule de boue mobile dépendra de sa position par rapport à la bulle. Deux cas différents ont été observés dans nos études, le second cas n'ayant été observé que pour les expériences 2 et 3, le débit de production de biogaz étant fort par rapport à celui

des 3 autres expériences. Dans le premier cas, la bulle de biogaz attachée à un granule de boue monte avec cette dernière traversant une certaine hauteur avant son détachement. Dans le second cas, le granule de boue située dans le voisinage immédiat de la bulle, est d'abord entraînée vers le haut lors du passage des bulles puis change de direction en s'éloignant de la zone de sillage des bulles et éventuellement des boucles de recirculation latérales pour se diriger vers le lit de boue et s'y déposer (Fig. III. 33).

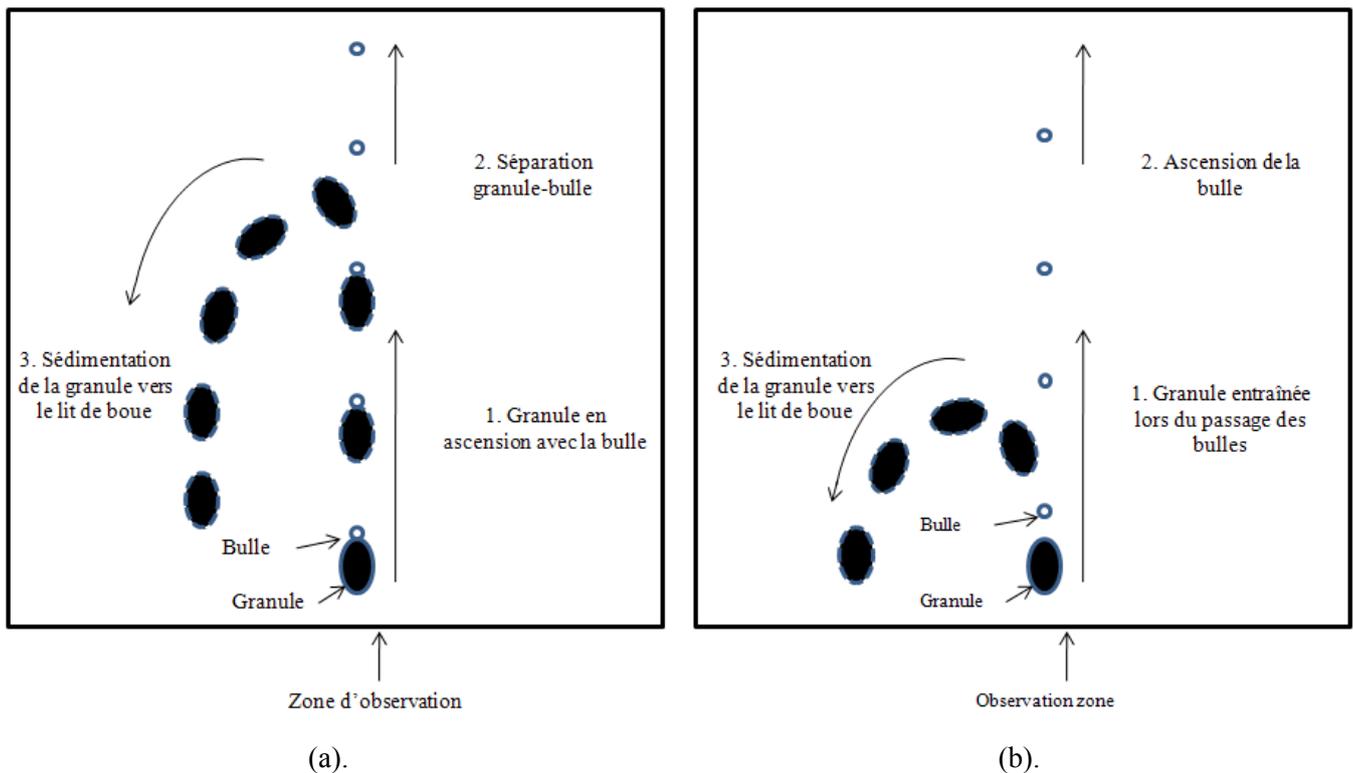
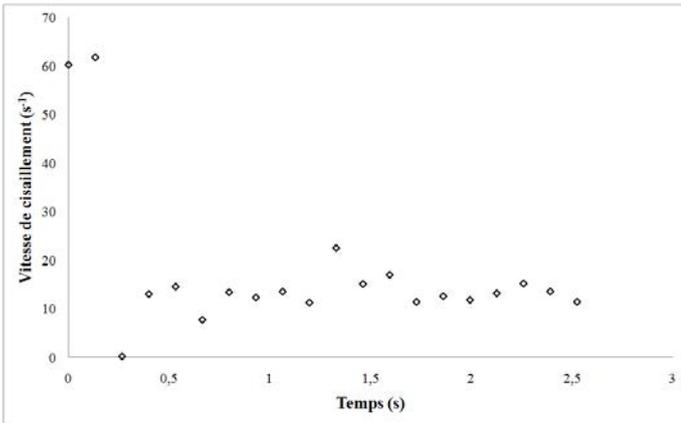
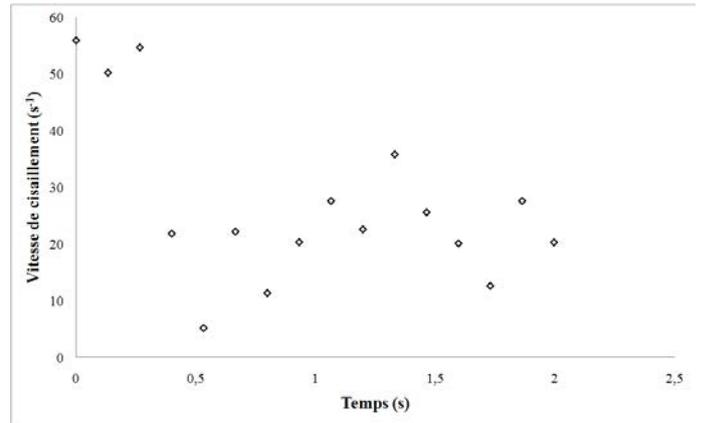


Fig. III. 33. Mouvements des granules de boue observés dans les expériences. (a). 1^{er} cas ;(b). 2^{ème} cas.

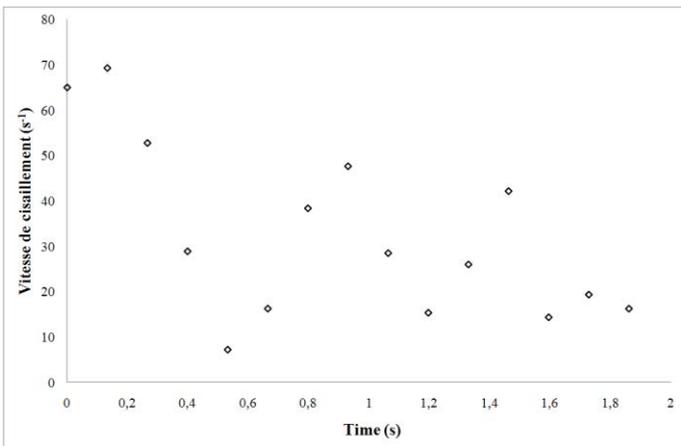
Pour les cinq vitesses superficielles de liquide utilisées dans cette étude, tous les granules de boue en mouvement sont enregistrés, à partir de la stabilisation du débit de biogaz, pendant un certain temps par PIV et la vitesse de cisaillement exercée sur le granule de boue au cours du temps a été déterminée en se plaçant dans les deux cas mentionnés ci-dessus et représentés sur la figure. III. 33. Un exemple correspondant à chacun des deux cas est rapporté sur la figure III. 34.



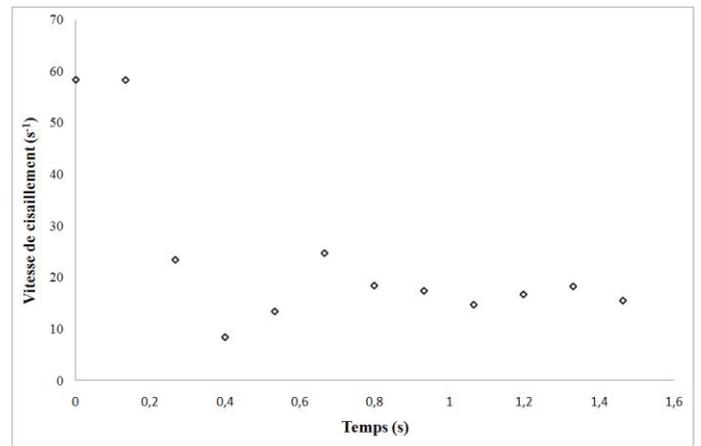
(a). 1^{er} cas: $u_L = 0 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$



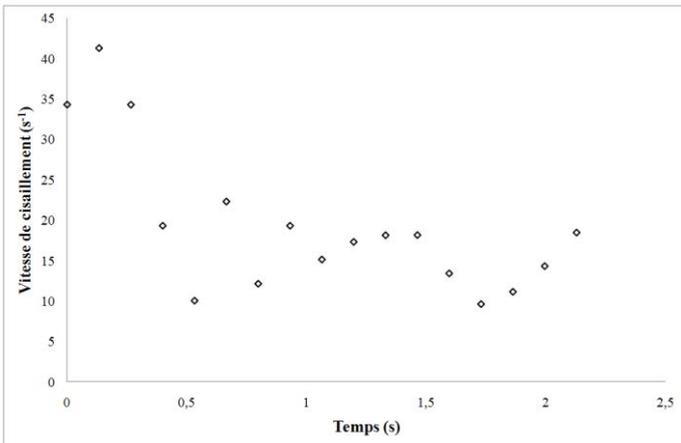
(b). 1^{er} cas: $u_L = 0,42 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$



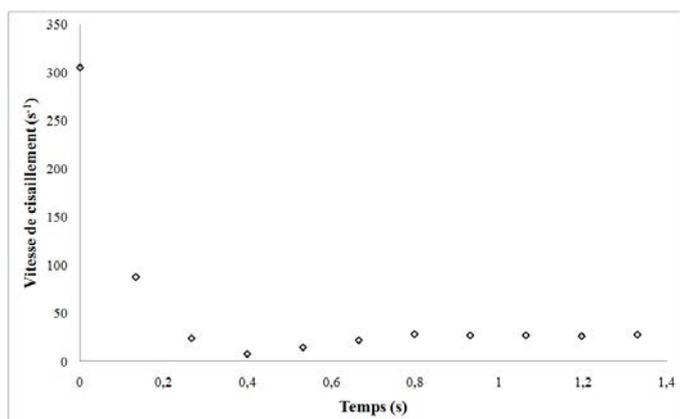
(c). 1^{er} cas: $u_L = 0,89 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$



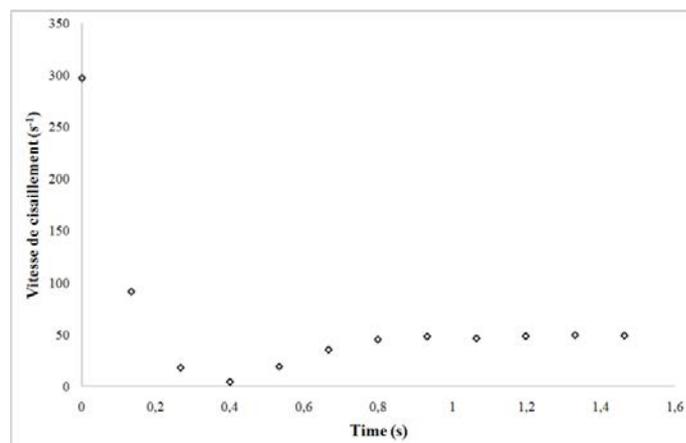
(d). 1^{er} cas: $u_L = 1,2 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$



(e). 1^{er} cas: $u_L = 1,8 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$



(a). 2^{ème} cas: $u_L = 0,42 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$



(b). 2^{ème} cas: $u_L = 0,89 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$

Fig. III. 34. Vitesse de cisaillement exercée sur le granule de boue calculée dans les cas différents.

Dans le premier cas et pour les expériences 2 et 3 correspondant aux vitesses de liquide de $0,42$ et $0,89 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ respectivement, la sédimentation des granules de boue est souvent influencée par le passage de bulles produites. Cet effet est représenté par une fluctuation de la vitesse de cisaillement durant la phase de sédimentation (Fig. III. 34. 1^{er} cas (b) et (c)) conduisant à une augmentation de la vitesse de cisaillement moyennée dans le temps.

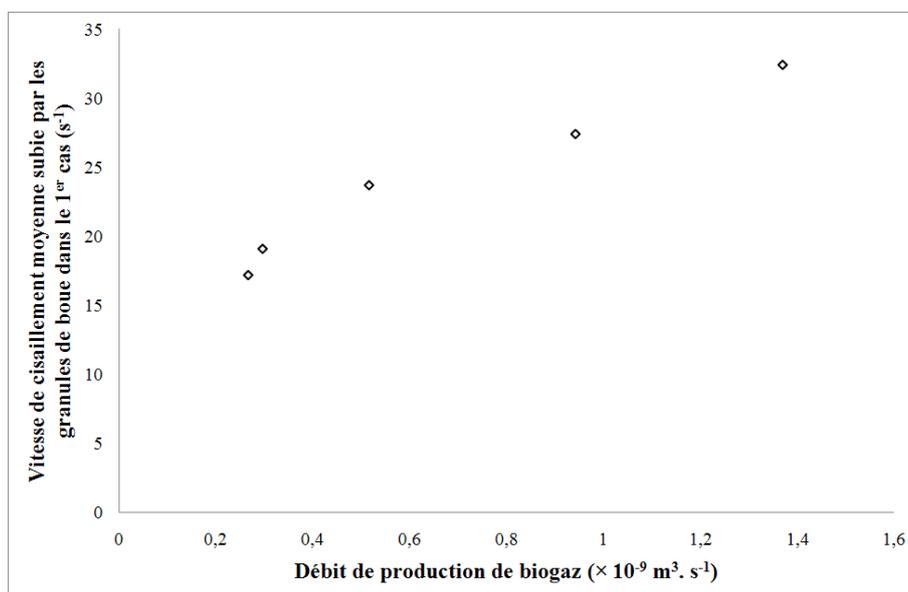
Les expériences réalisées ci-dessus ont été reproduites afin d'estimer la vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue et moyennées à la fois sur le temps et le nombre de granules de boues considérées. Pour ce faire, ce calcul a été basé sur une trentaine de granules de même taille (grand axe: 2 mm; petit axe: 1,5 mm). Les résultats ainsi obtenus sont rapportés dans le tableau III. 5 :

Vitesse superficielle de liquide ($\times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$)	Vitesse de cisaillement moyenne exercée sur le granule de boue (s^{-1}) (1 ^{er} cas)	Nombre de granule choisi pour calculer la vitesse de cisaillement moyenne dans le 1 ^{er} cas	Vitesse de cisaillement moyenne exercée sur le granule de boue (s^{-1}) (2 ^{ème} cas)	Nombre de granule choisie pour calculer la vitesse de cisaillement moyenne dans le 2 ^{ème} cas
0	17,2	30	/	/
0,42	27,4	30	54	5

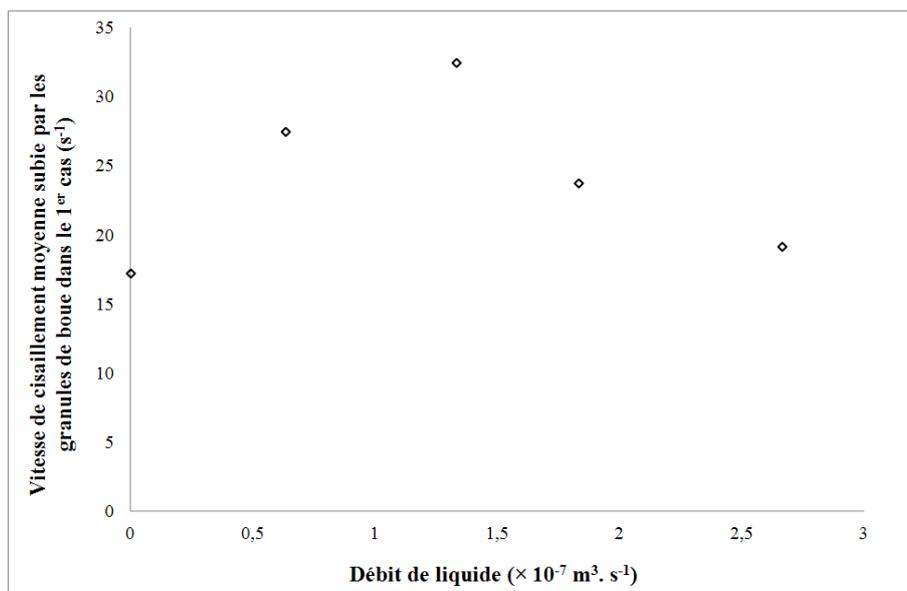
0,89	32,4	30	62,8	5
1,2	23,7	30	/	/
1,8	19,1	30	/	/

Tableau III. 5. Vitesse de cisaillement moyenne exercée sur tous les granules de boue dans les deux cas différents.

Ces résultats montrent que la vitesse de cisaillement moyenne exercée sur les granules de boue varie principalement avec le débit de production de biogaz. La figure III. 35 (a) montre la forte corrélation obtenue entre ces deux paramètres.



(a).



(b).

Fig. III. 35. Relation entre la vitesse de cisaillement moyenne et (a). Débit de production de biogaz ;(b). Débit de liquide.

La condition hydrodynamique optimale apparaît clairement sur la figure III. 35 (b) pour une vitesse superficielle de liquide de $0,89 \times 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, avec une vitesse de cisaillement moyenne exercée sur les granules de boue d'environ $32,4 \text{ s}^{-1}$. Cette valeur élevée est due à la quantité importante de biogaz et correspond aux conditions opératoires les mieux adaptées dans ce bioréacteur 2D et pour les granules utilisés.

III.1.2.4 Conclusion

Les caractéristiques des bulles et la production de biogaz sont mesurées pour la première fois pour différentes vitesses de liquide dans un bioréacteur anaérobie multiphasiques 2D. Les résultats obtenus montrent qu'il est possible d'optimiser la production de biogaz en choisissant judicieusement les conditions opératoires telle que la vitesse de liquide qui doit permettre d'optimiser l'efficacité des transferts convectif et diffusionnel.

La relation directe entre la vitesse superficielle de liquide et la production de biogaz montre l'existence d'un maximum de débit de production de biogaz aux alentours d'une vitesse superficielle de liquide de $0,89 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ avec une vitesse de cisaillement de $32,4 \text{ s}^{-1}$, une vitesse superficielle de liquide trop faible ou élevée étant défavorable pour l'efficacité de production de biogaz. Cet effet est représenté sur la figure III. 36.

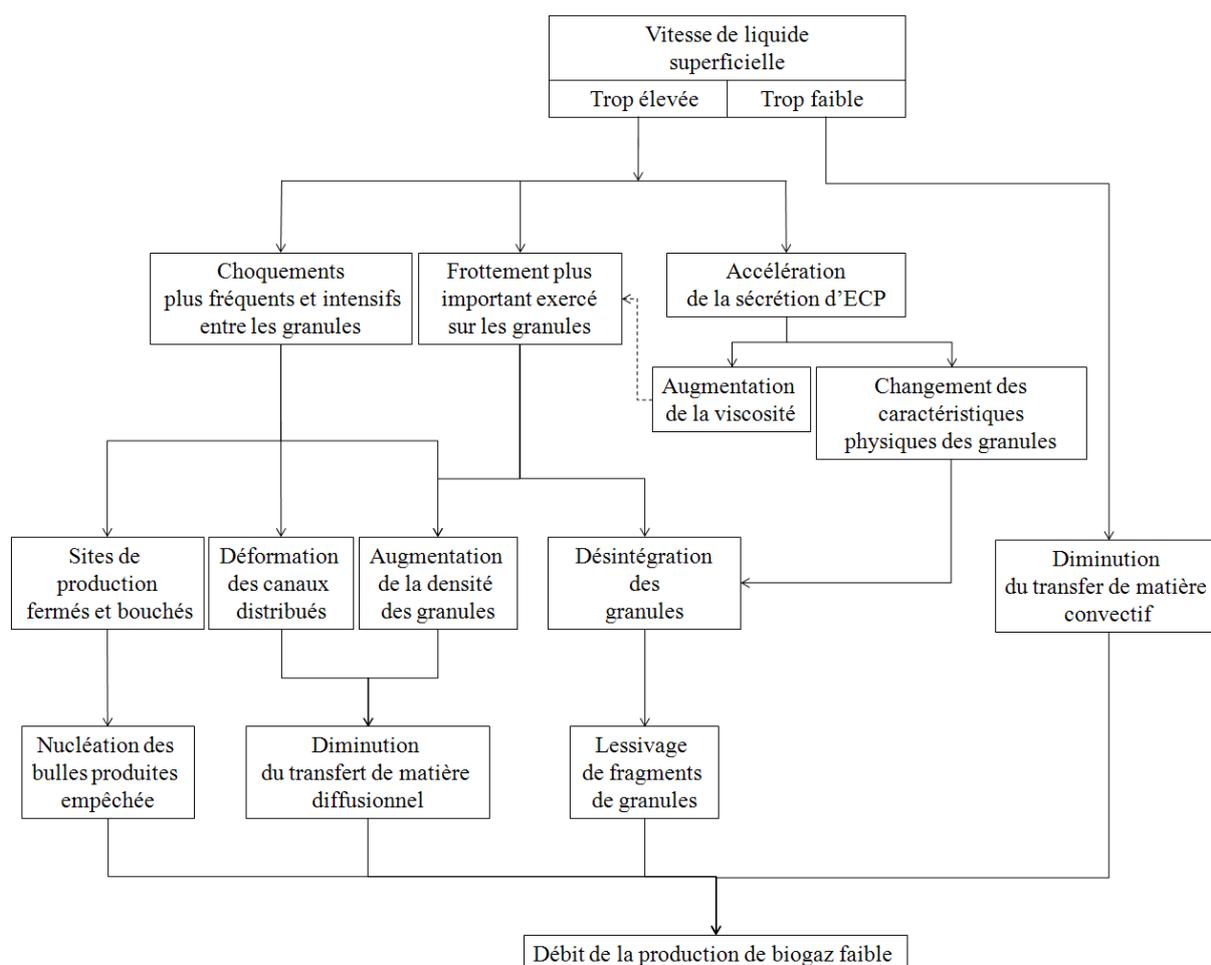


Fig. III. 36. Effet défavorable de la vitesse de liquide trop élevée et trop faible sur la production de biogaz.

III.1.3 Influence de la concentration DCO de substrat en maquette chaude dans le bioréacteur bidimensionnel

Dans cette étude, le même bioréacteur anaérobie 2D a été utilisé, l'objectif principal étant d'examiner l'influence de la concentration en substrat sur la production de biogaz. La vélocimétrie par images de particules (PIV) et la caméra rapide numérique ont également été utilisées pour déterminer les champs de vitesses de liquide et le mouvement relatif entre les granules de boues et la phase liquide. Le bioréacteur était alimenté par une phase liquide avec une vitesse de liquide constante, la phase solide (granules de boue) étant préalablement introduite dans le bioréacteur avant chaque expérience.

III.1.3.1 Conditions opératoires expérimentales

Toutes les expériences ont été réalisées à une vitesse superficielle de liquide fixée et en utilisant des granules de boues du même type que précédemment (Tableau III. 6). La solution synthétique contenant du glucose comme source de carbone a été préparée dans une bouteille de 17 L pour toutes les expériences. L'alimentation du réacteur en substrat synthétique était assurée par une pompe péristaltique. La température de la solution maintenue en utilisant un bain thermostaté ainsi que le pH ajusté au début de chaque expérience sont précisés dans le tableau ci-dessous.

Conditions opératoires			Caractéristiques de la phase liquide	Caractéristiques de la phase solide	
Température (°C)	pH	Volume de la zone de réaction (mL)	Vitesse superficielle de liquide ($\times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$)	Masse volumique de la phase solide $\rho_s (\text{kg.m}^{-3})$	Fraction volumique de la phase solide ϵ_s
30	$7,0 \pm 0,05$	37,5	1,8	1050	16%

Tableau III. 6. Conditions expérimentales des phases liquide et solide.

III.1.3.2 Procédure expérimentale et méthodes analytiques

La solution de substrat à une certaine concentration DCO a été introduite dans le réacteur. La production de biogaz pour chaque expérience a ensuite été enregistrée une fois par heure pendant deux jours (3586 photos enregistrées à chaque fois pendant 2 minutes par la caméra rapide). Les diamètres et le nombre de bulles de biogaz ont ensuite été déterminés à partir des images enregistrées, le biogaz produit ayant ensuite été analysé par un chromatographe en phase gazeuse. Lorsque toutes ces mesures ont été réalisées, des particules de traceur ont été mélangées dans le réservoir afin de pouvoir mesurer, avec le système PIV, les champs de vitesse instantanés de la phase liquide. Les vitesses de cisaillement exercées sur les granules de boue ont ensuite été calculées à partir de ces champs de vitesse. Le réservoir et le réacteur ont été vidés et nettoyés entre deux expériences successives afin de préserver l'activité méthanogène des granules de boue.

III.1.3.3 Résultats et discussion

Les principaux résultats obtenus à différentes concentrations DCO sont rapportés dans le tableau III. 7.

No.	Concentration DCO (mg.L ⁻¹)	Débit moyen de production de biogaz ($\times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	Durée de la période d'adaptation (min)	Diamètre moyen (mm)	Nombre de bulles enregistrées
1	521	0,07	660	0,53	1051
2	1586	0,12	600	0,57	1422
3	3202	0,26	420	0,61	2597
4	6033	0,33	420	0,63	3001
5	9146	0,76	360	0,67	5722
6	13124	1,33	360	0,70	8864

7	17221	1,57	300	0,71	9578
8	20318	1,61	300	0,71	10280
9	24381	1,60	300	0,71	10013

Tableau III. 7. Résultats obtenus à différentes concentrations DCO.

III.1.3.3.1 Influence de la concentration DCO sur le débit de production de biogaz

Les débits moyens de production de biogaz obtenus après une période d'adaptation à différentes concentrations DCO sont présentés sur la figure. III. 37 qui montre que le débit de biogaz augmente de 0,07 à $1,6 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ lorsque la concentration DCO augmente. On constate que l'évolution du débit de production de biogaz avec la concentration DCO comporte trois étapes successives. La croissance du débit de biogaz est d'abord lente pour une concentration DCO comprise entre 521 et 6033 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$. Cette étape est suivie d'une croissance rapide dans l'intervalle de concentration DCO de 6033 à 17221 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ pour atteindre finalement une croissance asymptotique entre 17221 et 24381 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ correspondant à un débit de production de biogaz constant. La concentration DCO optimale étant obtenue pour concentration DCO voisine de 17000 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ correspondant au débit maximum de production de biogaz d'environ $1,6 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ qui reste pratiquement constant pour des concentrations DCO plus élevées.

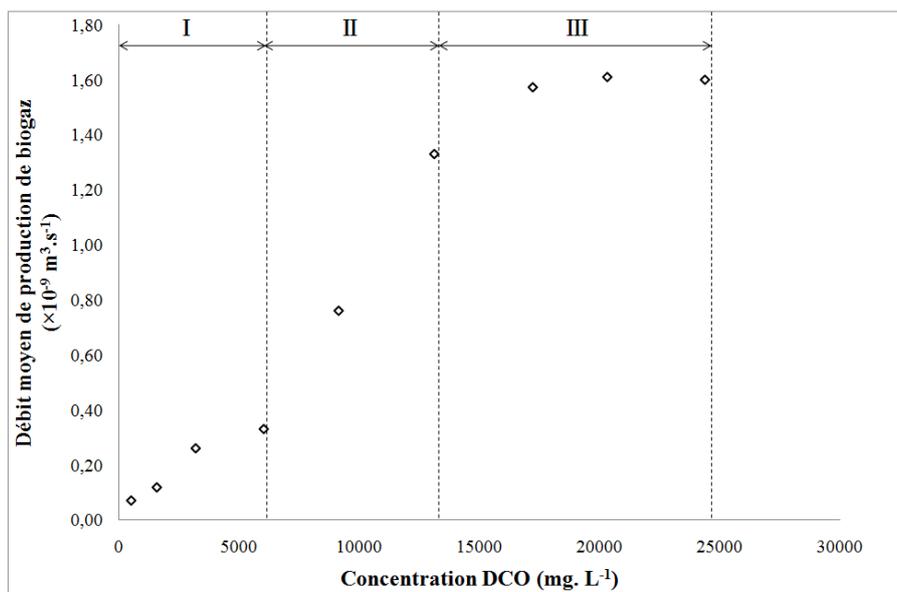


Fig. III. 37. Evolution du débit de production de biogaz en fonction de la concentration DCO.

L'évolution temporelle du débit de production de biogaz (Fig. III. 38) obtenue à différentes concentrations DCO montre que le débit de production de biogaz se stabilise à un certain niveau après une période d'adaptation, celle-ci étant d'autant plus courte que la concentration DCO est élevée. Cette période d'adaptation varie de 660 à 300 min pour une augmentation de la concentration DCO allant de 521 à 24381 mg.L⁻¹. La durée de la période d'adaptation semble toutefois être indépendante de la concentration DCO lorsque l'étape asymptotique de production de biogaz est atteinte (Fig. III. 39).

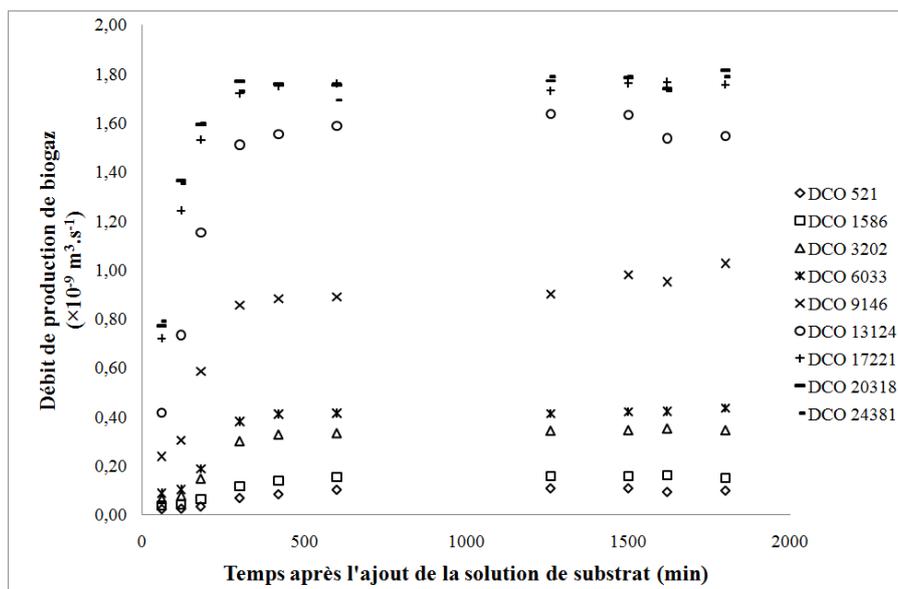


Fig. III. 38. Evolution du débit de production de biogaz en fonction du temps à différentes concentrations DCO.

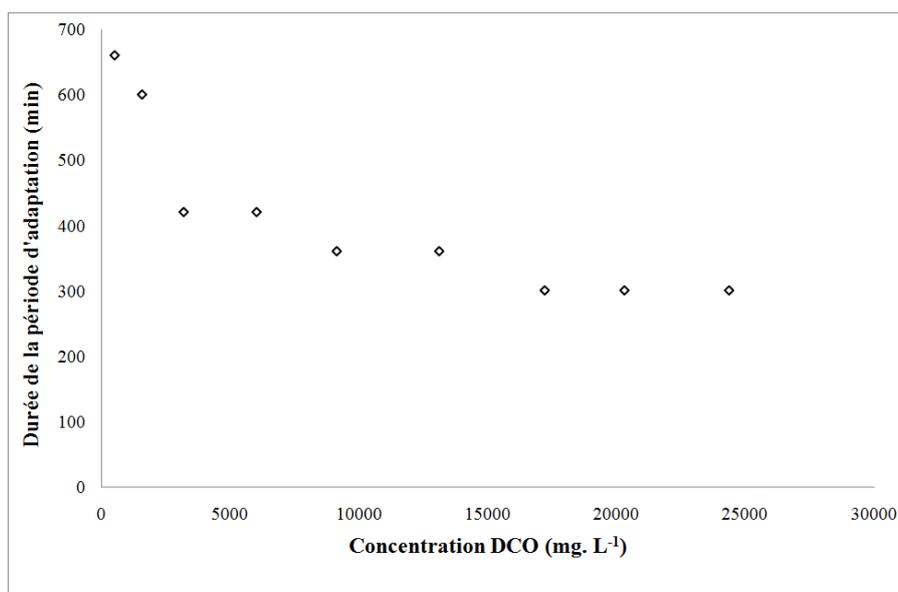


Fig. III. 39. Evolution de la période d'adaptation en fonction de la concentration DCO.

III.1.3.3.2 Interprétation des caractéristiques des bulles produites

Afin d'analyser les caractéristiques des bulles de biogaz obtenues après la période de stabilisation de la production de biogaz, un nombre total de 52528 bulles est enregistrée à

l'aide de la caméra rapide et différentes distributions des diamètres de bulles de biogaz sont également observées aux différentes concentrations DCO utilisées (Fig. III. 40).

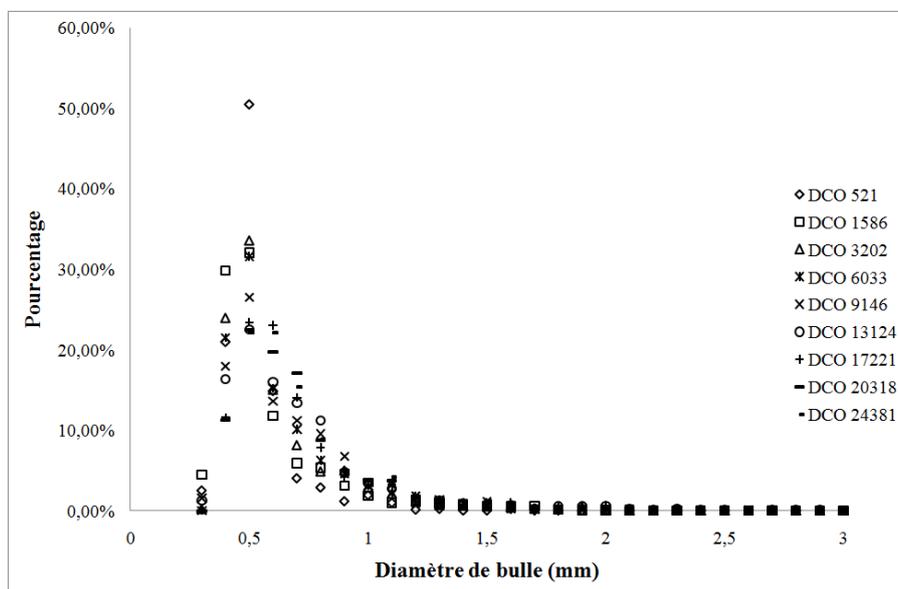


Fig. III. 40. Distributions des diamètres de bulles à différentes concentrations DCO.

Les résultats obtenus montrent que le pic de la distribution en taille de bulle se situe dans l'intervalle 0,4 - 0,5 mm. La distribution des diamètres fluctue lorsque la concentration DCO varie. Le pourcentage des bulles de diamètre compris entre 0,4 et 0,5 mm (classe 1) et celui correspondant à des bulles de diamètre supérieur à 1 mm (classe 2) est représenté sur la figure III. 41. On constate ainsi que le pourcentage des bulles de la classe 1 diminue lorsque la concentration DCO augmente contrairement à celui de la classe 2 qui augmente avec la concentration DCO. Toutefois, le pourcentage de ces deux classes de bulles devient indépendant de la concentration DCO lorsque l'étape asymptotique de production de biogaz est atteinte, soit à partir d'une concentration DCO de 17221 mg.L⁻¹.

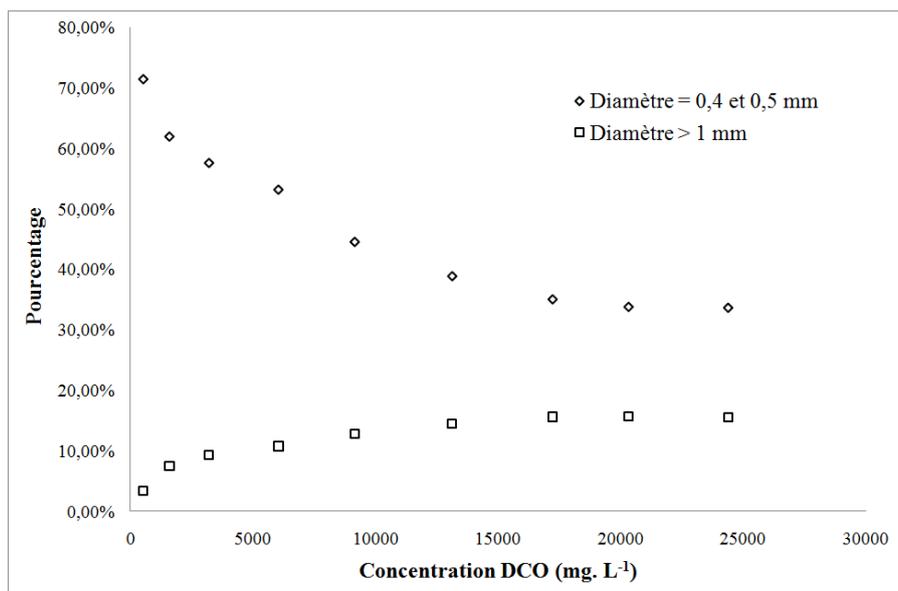


Fig. III. 41. Variation de la distribution des diamètres de bulles à différentes concentrations DCO.

L'ensemble de ces résultats indiquent que la nucléation ainsi que la croissance des bulles sont considérablement restreintes lorsque la concentration DCO est trop faible pour des conditions hydrodynamiques moins favorables. L'évolution du diamètre moyen et du nombre de bulles avec la concentration DCO est représentée sur la figure III. 42. On constate qu'ils augmentent d'abord logiquement avec la concentration DCO puis se stabilisent lorsque l'étape asymptotique de production de biogaz correspondant à un niveau optimal de substrat est atteinte. Ainsi, l'activité de production de biogaz des groupes microbiens dans les granules n'est pas affectée par la concentration de substrat excédentaire.

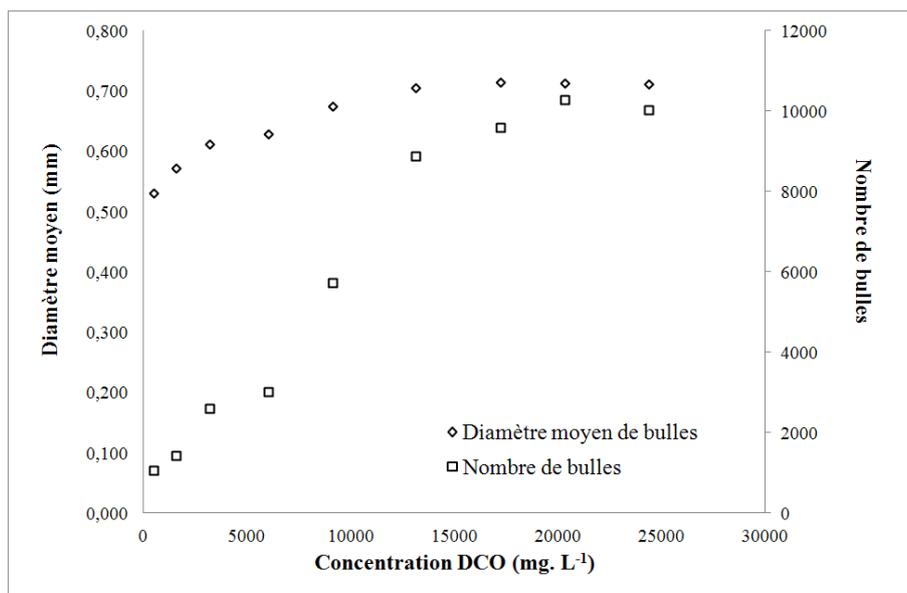


Fig. III. 42. Evolution du diamètre moyen et du nombre de bulles en fonction de la concentration DCO.

Les résultats relatifs à la composition du biogaz analysé par chromatographie sont moyennés (trois reprises pour chaque concentration DCO) et rapportés sur la figure III. 43 qui montre qu'une teneur en méthane optimale de 77% est obtenue pour une concentration DCO de 6033 mg.L⁻¹. Ainsi, La teneur en méthane augmente d'abord de 72,1% à 77,6% avec la concentration DCO puis diminue au-delà de cet optimum pour se stabiliser finalement à 76% pour les concentrations DCO élevées comprises entre 17221 et 24381 mg.L⁻¹.

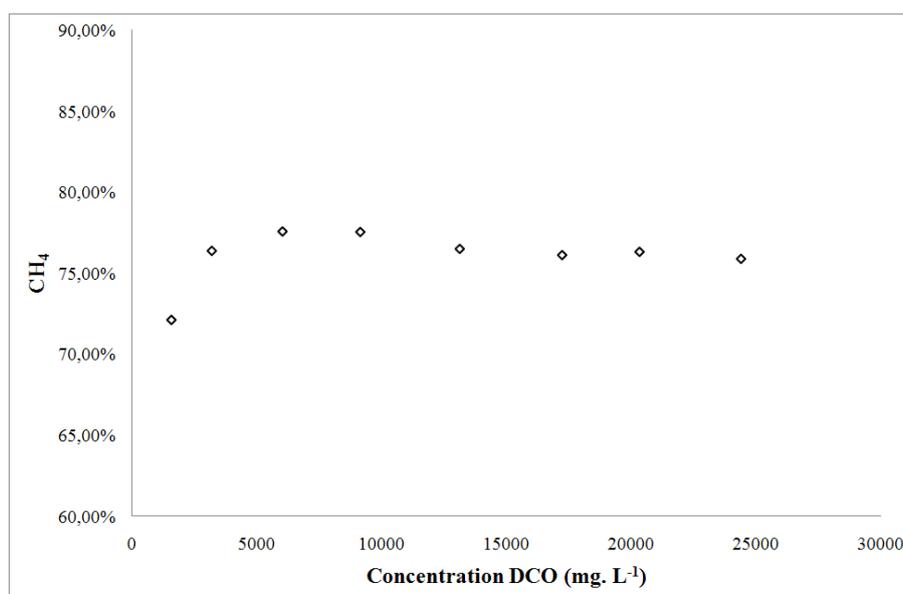


Fig. III. 43. Teneur en méthane du biogaz produit à différentes concentrations DCO.

L'ensemble de ces résultats indiquent ainsi qu'une augmentation de la concentration DCO favorise à augmenter le débit de production de biogaz, raccourcir la durée de la période d'adaptation et améliorer la teneur en méthane du biogaz. Cependant, l'état métabolique et l'activité des microorganismes délicats ne sont plus affectés ou inhibés par une concentration de substrat excédentaire correspondant à une concentration DCO supérieure à 17000 mg.L⁻¹ dans notre cas, lorsque la capacité de production de biogaz optimale est atteinte. Ces caractéristiques valables pour nos conditions de travail peuvent toutefois être différentes selon la source de granules utilisés et les conditions hydrodynamiques choisies. Pour montrer l'effet combiné de la vitesse de liquide et de la concentration DCO, certains résultats obtenus lors de l'étude de l'influence de liquide (§ III 1.2.3) sont repris ici à titre de comparaison dans le tableau III. 8 :

	No.	Vitesse superficielle de liquide ($\times 10^{-3}$ m.s ⁻¹)	Concentration DCO (mg.L ⁻¹)	Débit moyen de production de biogaz ($\times 10^{-9}$ m ³ .s ⁻¹)	Diamètre moyen des bulles (mm)
Expériences précédentes (§ III 1.2.3)	1	0,9	3300	1,4	0,78

(variation de vitesse de liquide)	2	1,8	3300	0,3	0,62
Expériences	3	1,8	17221	1,6	0,71
(variation de concentration DCO)	4	1,8	3202	0,3	0,61

Tableau. III. 8. Comparaison des résultats obtenus dans ces deux expériences.

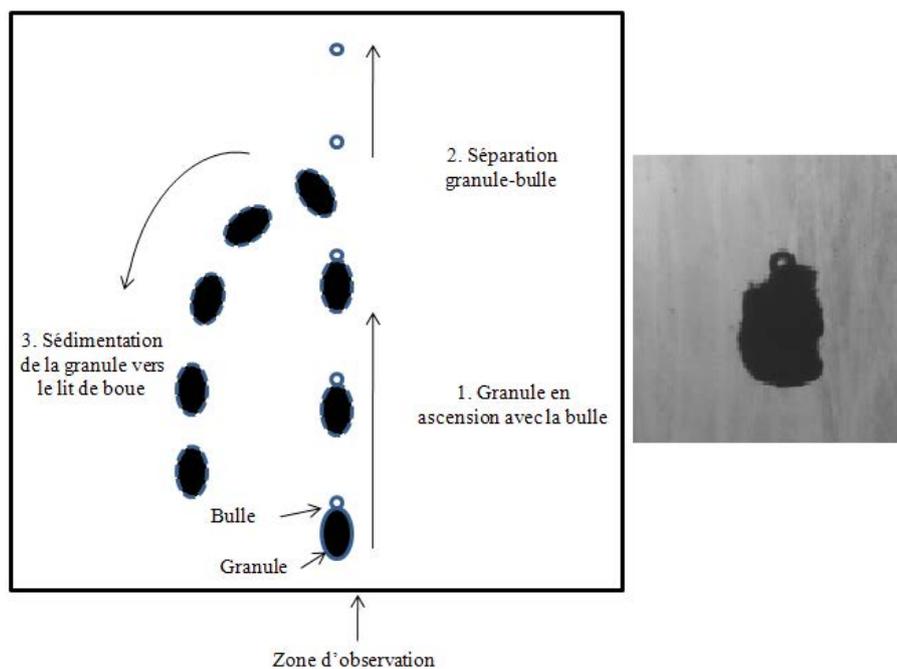
Les caractéristiques correspondant à la production de biogaz obtenu pour ces différentes conditions opératoires (à vitesse de liquide et concentration DCO différentes) ont été analysées. On constate ainsi, que malgré une éventuelle petite différence de biomasse (la masse de granules étant fixée), les débits optimaux de production de biogaz obtenus pour les expériences 1 et 3 sont du même ordre de grandeur ($1,4$ et $1,6 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) correspondant à des activités maximales des microorganismes dans les granules. Cependant, sachant que ces débits de biogaz sont obtenus pour des conditions expérimentales très différentes (vitesse de liquide et concentration DCO), on peut conclure que lorsqu'on travaille dans des conditions hydrodynamiques moins favorables (No. 3 : $u_L = 1,8 \times 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$), la densité des granules est plus importante, ce qui diminue l'efficacité de diffusion du substrat à travers les granules. Dans ces conditions, il est nécessaire d'utiliser une concentration DCO plus élevée (autour de $17\ 000 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) afin de compenser la diminution de la diffusion du substrat dans le granule de boue et nourrir une quantité maximale de bactéries.

Quant au diamètre moyen des bulles, la différence obtenue est certainement liée au détachement prématuré des bulles de biogaz pour la vitesse de liquide la plus importante (No. 3) et à la coalescence des bulles pour la plus faible vitesse (No. 1). Ce comportement est confirmé par les résultats relatifs aux expériences No. 2 et 4 réalisées en utilisant la même vitesse de liquide et une concentration DCO du même ordre de grandeur. En effet, on constate la bonne reproductibilité des valeurs de débit de production de biogaz et du diamètre moyen des bulles dans ces conditions.

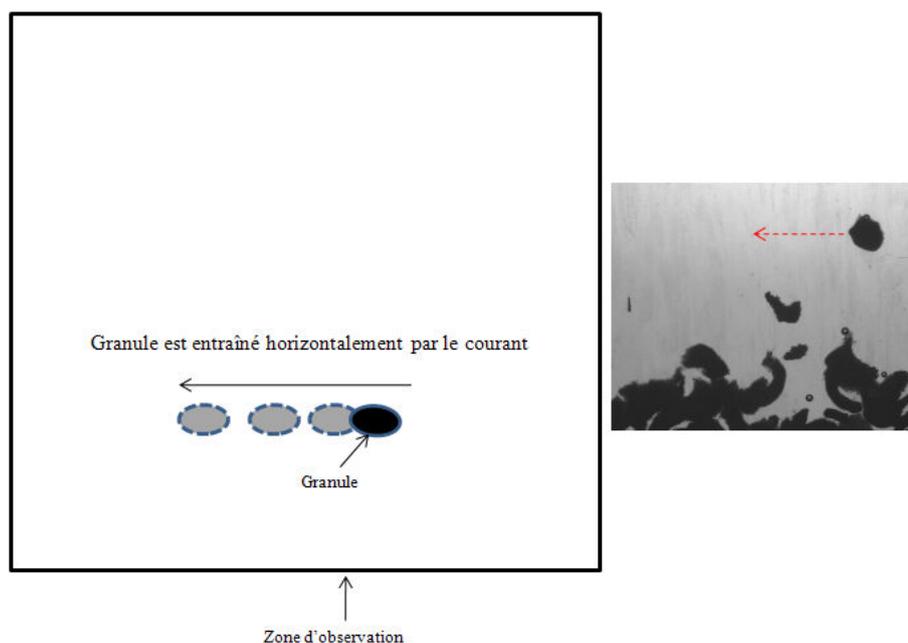
Toutefois, il est important de préciser que l'utilisation d'une condition hydrodynamique moins favorable ($u_L = 1,8 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$) favorise le lessivage des fragments de granules de boue et diminue de ce fait la capacité à produire du biogaz entraînant ainsi un débit de production de biogaz plus faible de l'ordre de $1.6 \times 10^{-9} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$. Par conséquent, on pourrait conclure que la concentration DCO de 3300 mg.L^{-1} utilisée à faible vitesse de liquide (No. 1) n'est pas optimale, le débit de production de biogaz devant être supérieur à $1.4 \times 10^{-9} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$. Cette hypothèse devrait être confirmée par des expériences complémentaires à différentes concentrations DCO pour une vitesse de liquide de $0,9 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$.

III.1.3.3 Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue en maquette chaude

Les mesures de champ de vitesse de la phase liquide en utilisant le système PIV ont permis d'accéder aux vitesses de cisaillement exercées sur les granules de boue. L'utilisation de la caméra rapide a permis de visualiser différents mouvements entre les trois phases dans le réacteur 2D (Fig. III. 44). Deux cas différents ont alors été le plus souvent observés. Dans le premier cas, une bulle de biogaz attachée à un granule de boue monte d'abord avec ce dernier avant de s'en détacher. Dans le second cas, le granule de boue reste en suspension dans la phase liquide et flotte en haut du lit de boue à cause de la croissance lente et progressive de la microbulle à l'intérieur du granule.



(a).



(b).

Fig. III. 44. Deux mouvements différents de granules observés dans les expériences. (a). 1^{er} cas; (b). 2^{ème} cas.

Pour chaque concentration DCO utilisée, les expériences ont été reproduites et les enregistrements de granules de boue en mouvement ont été réalisés dans les deux cas ci-

dessus en choisissant une quarantaine de granules de même taille (grand axe : 2 mm ; petit axe : 1,5 mm).

La vitesse de cisaillement exercée sur un granule de boue à la concentration DCO 17221 mg.L⁻¹ en fonction du temps est donnée pour les deux cas mentionnés ci-dessus à titre d'exemple en vue de montrer l'évolution temporelle (Fig. III. 45). On trouvera les courbes correspondant aux autres granules de boue en annexe 2. Dans le 1^{er} cas correspondant à une bulle attachée au granule de boue, cette dernière monte sur une certaine hauteur, avant le détachement de la bulle, avec une vitesse exceptionnellement élevée correspondant à une vitesse de cisaillement initiale d'environ 70 s⁻¹. Après le détachement de la bulle, le granule de boue décélère progressivement sur une courte distance pour atteindre une vitesse nulle correspondant à une vitesse de cisaillement faible de l'ordre de 7 s⁻¹. Finalement, le granule sédimente vers le lit de boues avec une vitesse relative constante correspondant à une vitesse de cisaillement constante. Toutefois, la sédimentation des granules de boue est souvent affectée par le passage des bulles lorsque le débit de production est élevé, engendrant ainsi une fluctuation de la vitesse de cisaillement. La moyenne temporelle de la vitesse de cisaillement exercée sur les granules est de 33,5 s⁻¹ pour le 1^{er} cas. Dans le second cas, le granule flottant lentement horizontalement, est régulièrement influencée par le passage des bulles, la vitesse de cisaillement varie ainsi de 15 à 40 s⁻¹ avec une valeur moyenne de 29,2 s⁻¹.

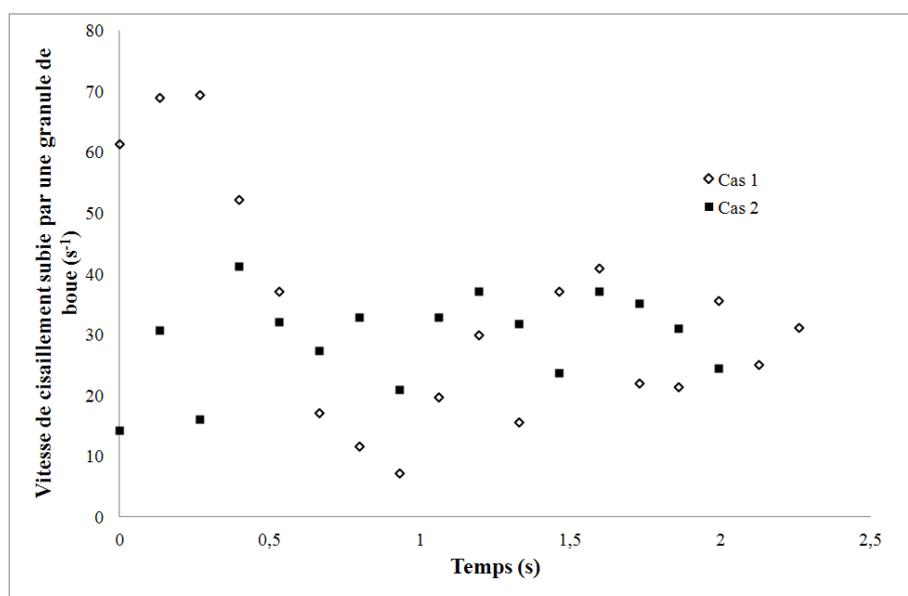


Fig. III. 45. Vitesse de cisaillement exercée sur un granule de boue à concentration DCO 17221 mg.L^{-1} en fonction du temps.

Le calcul de la vitesse de cisaillement moyennée à la fois sur le temps et la quarantaine de granules choisis est basé sur les vitesses de cisaillement temporelles de chaque granule de boue. Les résultats ainsi obtenus sont rapportés dans le tableau III. 9:

Concentration DCO (mg.L^{-1})	Vitesse de cisaillement moyenne exercée sur le granule de boue (s^{-1}) (1 ^{er} cas)	Quantité de granule de boue choisis pour calculer la vitesse de cisaillement dans le 1 ^{er} cas	Vitesse de cisaillement moyenne exercée sur le granule de boue (s^{-1}) (2 ^{ème} cas)	Quantité de granule de boue choisis pour calculer la vitesse de cisaillement dans le 2 ^{ème} cas
521	11,1	20	7,1	20
1586	12,6	20	8,1	20
3202	15,9	20	11,2	20
6033	21,4	20	16,7	20
9146	28,9	20	23,5	20
13124	31,1	20	26,6	20
17221	33,5	20	29,2	20
20318	34,7	20	29,6	20
24381	34,8	20	29,1	20

Tableau III. 9. Vitesse de cisaillement moyenne exercée sur tous les granules de boue dans les deux cas correspondant à la figure III. 44.

La vitesse de cisaillement moyenne exercée sur les granules de boue de chaque expérience est illustrée sur la figure III. 46 qui permet de constater l'existence de trois étapes successives de l'évolution de la vitesse de cisaillement moyenne. On peut par ailleurs constater que ces étapes sont cohérentes avec l'évolution de la production de biogaz, confirmant ainsi, comme précédemment, que la vitesse de cisaillement exercée sur un seul granule de boue est étroitement liée à la production de biogaz.

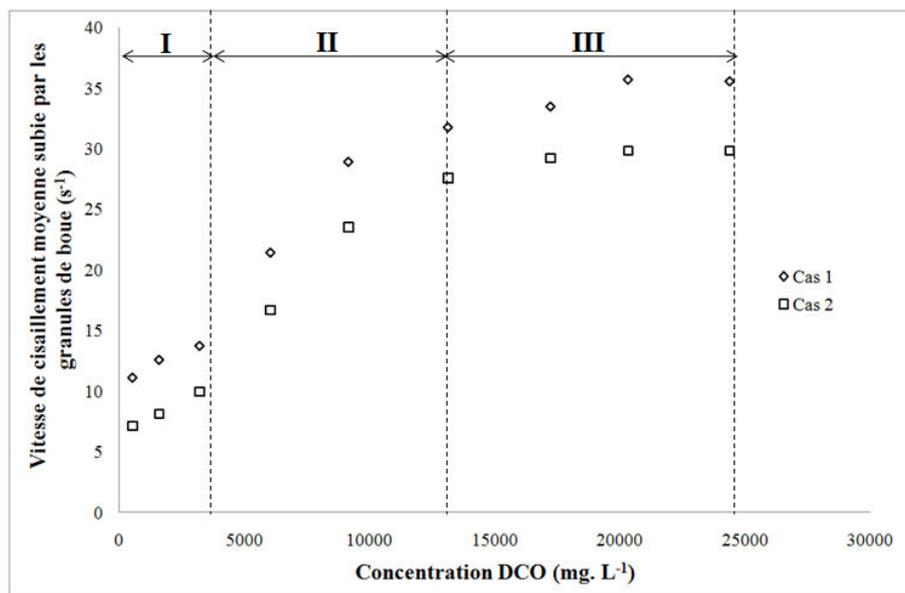


Fig. III. 46. Evolution de la vitesse de cisaillement moyenne exercée sur les granules de boue en fonction de la concentration DCO.

La vitesse de cisaillement moyenne autour de granules de boue est finalement corrélée avec le débit de production de biogaz comme le montre la figure. III. 47. Pour le débit optimal de production de biogaz d'environ $1,6 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, la vitesse de cisaillement maximale exercée sur les granules de boue reste constante de l'ordre de $33,5$ et $29,2 \text{ s}^{-1}$, respectivement pour les deux cas 1 et 2 correspondant à une valeur moyenne pour ces deux cas de l'ordre de $31,5 \text{ s}^{-1}$.

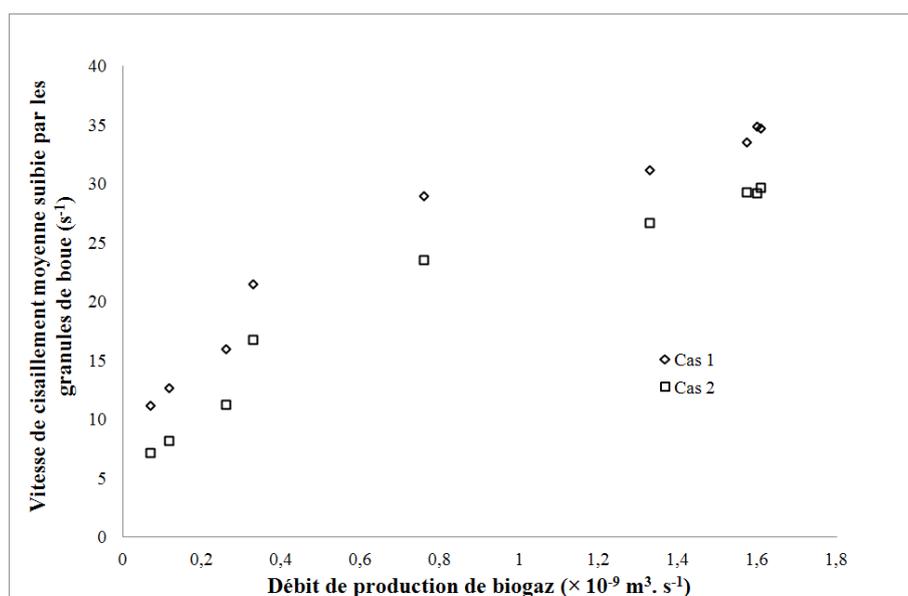


Fig. III. 47. Evolution de la vitesse de cisaillement moyenne exercée sur les granules de boue par rapport au débit de production de biogaz.

Pour l'expérience précédente (§ III 1.2.3), la vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue dans la condition optimale était de $32,4 \text{ s}^{-1}$ avec un débit de production de biogaz de l'ordre de $1,4 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Les résultats montrent clairement que les vitesses de cisaillement optimales exercées sur les granules de boue sont cohérentes confirmant là encore la relation étroite entre le débit de production de biogaz et la vitesse de cisaillement moyenne (Fig. III. 48). Rappelons cependant que dans l'expérience précédente (§ III 1.2.3), le calcul de la vitesse de cisaillement n'a été basé que sur le premier cas à cause de l'apparition très rare du second cas. Ainsi, la vitesse de cisaillement moyenne est un peu surestimée.

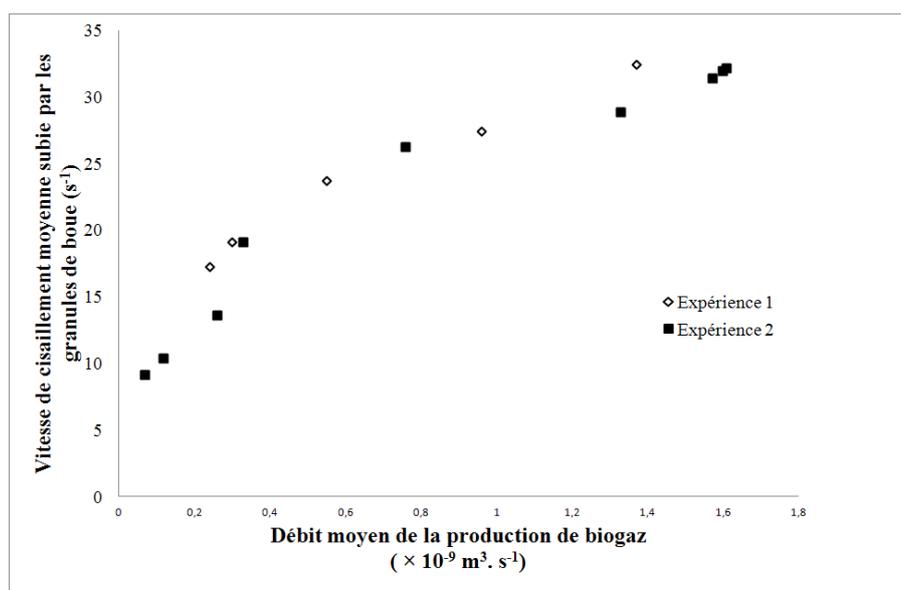


Fig. III. 48. Comparaison de l'évolution de la vitesse de cisaillement moyenne exercée sur les granules de boue par rapport au débit de production de biogaz pour les deux expériences.

III.1.3.4 Conclusion

L'étude de l'effet de la concentration DCO du substrat sur la production de biogaz dans le réacteur anaérobie 2D révèle qu'une augmentation de la concentration DCO est favorable à la capacité de production de biogaz et permet de diminuer la durée de la période d'adaptation tout en améliorant la teneur en méthane du biogaz. Elle montre par ailleurs que l'évolution du débit de biogaz avec la concentration DCO se fait selon trois étapes successives, la production optimale de biogaz étant atteinte à partir d'une concentration en substrat d'environ 17 000 mg.L⁻¹ dans notre cas.

Enfin, les résultats montrent que les valeurs des vitesses de cisaillement exercées sur les granules de boue sont étroitement liées au débit de production de biogaz. En effet, les débits optimaux de production de biogaz de 1,4 et 1,6 × 10⁻⁹ m³.s⁻¹ correspondent à des vitesses de cisaillement exercées sur les granules de boue de 32,4 et 31,5 s⁻¹ respectivement ; ce qui indique une certaine cohérence par le même ordre de grandeur des résultats obtenus.

III.2 ETUDE EXPERIMENTALE A MICROECHELLE

Dans l'étude précédente, les mesures des caractéristiques des bulles et des champs de vitesses n'ont été réalisées, compte tenu de l'opacité du lit de boues, qu'au-dessus de ce dernier. Il était donc difficile d'obtenir une vitesse de cisaillement moyenne autour des granules de boue en se basant sur la totalité des granules dans le réacteur. Pour contourner ce problème, nous avons conçu un dispositif microfluidique transparent permettant de contrôler l'écoulement de la phase liquide, le granule de boue étant maintenu fixe grâce à une grille placée au centre de la conduite. Le but de ce travail était d'examiner l'influence des deux paramètres opératoires étudiés précédemment (vitesse superficielle de liquide et concentration DCO) sur l'efficacité de production de biogaz.

Ce travail a été réalisé en maquette chaude et en maquette froide en utilisant les mêmes cellules microfluidiques. En maquette chaude, nous avons étudié, à différentes conditions opératoires, le comportement dynamique d'un granule de boue dans des conditions anaérobies donc en présence des réactions complexes anaérobies. L'étude en maquette froide a été menée dans le seul but d'estimer les vitesses de cisaillement pour les différentes vitesses de liquide utilisées en maquette chaude.

III.2.1 Influence de la vitesse superficielle de liquide

III.2.1.1 Dispositif expérimental et conditions opératoires

Les expériences ont été réalisées dans deux microréacteurs en polyméthacrylate de méthyle (PMMA) : largeur \times hauteur 4 \times 2 mm (R 4 \times 2) pour le premier et 2 \times 2 mm (R 2 \times 2) pour le

second. Le granule a été fixé par une petite grille située au centre du canal. Le substrat synthétique a été préparé, pour chaque expérience, dans un réservoir de 17 L, permettant d'alimenter les microréacteurs par gravité sans recirculation (Fig. III. 49). La composition du substrat synthétique est la même que celle utilisée dans les expériences à méso échelle (tableau III 3). La solution a d'abord été filtrée à travers une membrane pour éliminer les impuretés et éviter de boucher le canal des microréacteurs. Une pression faible d'azote était maintenue dans le réservoir afin d'éviter toute incorporation d'air dans le système anaérobie. Dans le réservoir d'alimentation, le pH de la solution a été ajusté à $7,0 \pm 0,1$ au début de chaque expérience et la concentration en ions sodium a de même été contrôlée au cours du temps. La température a été maintenue à $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ par un bain thermostaté. Les granules utilisées dans nos expériences ont été sélectionnées par l'Université de Tsinghua pour leur efficacité méthanogène prouvée.

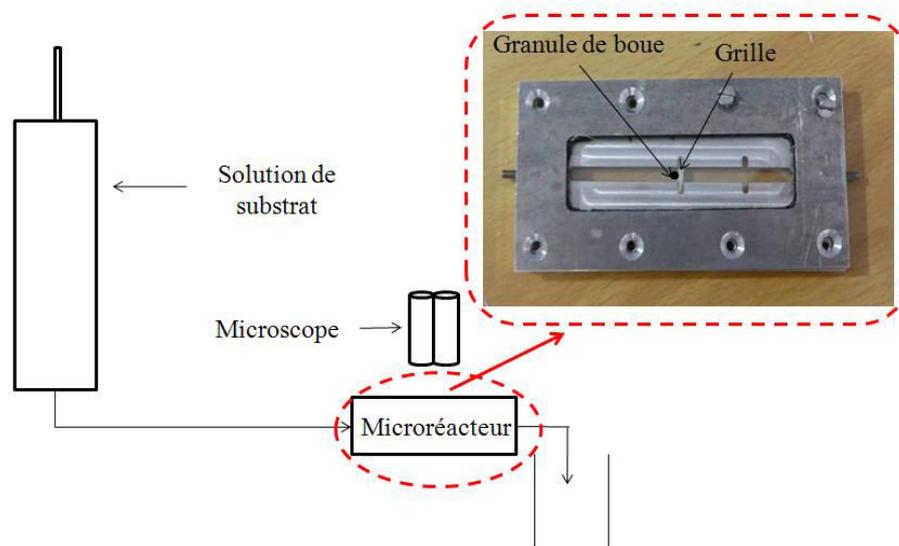


Fig. III. 49. Schéma du montage avec le microréacteur.

III.2.1.2 Procédure expérimentale

Les mesures de champ de vitesse de la phase liquide sont réalisées en utilisant le système micro-PIV et des particules de traceur de $0,88\text{ }\mu\text{m}$ (§. II 2.3). Pour toutes les mesures,

l'écoulement de la phase liquide était contrôlé grâce à un microscope inversé avec un objectif ($\times 5$) et une ouverture numérique de 0,12.

Les prises de vue sont assurées par une caméra à double image numérique à travers le microscope. La durée de l'impulsion du stroboscope est de 0,01 μ s. L'image est ensuite transférée au stockage dans la caméra numérique, de sorte qu'une seconde image peut être enregistrée par la caméra. Après un délai choisi en fonction de l'écoulement, variant généralement de 10 à 300 μ s selon les vitesses de liquide, une seconde impulsion de lumière est utilisée pour enregistrer une autre image. La paire d'images est ensuite enregistrée sur un ordinateur pour analyse quantitative.

Le logiciel FlowMap (DantecDynamics, Danemark) a été utilisé pour analyser ces paires d'images brutes, avec une taille de fenêtre d'interrogation de 32×32 pixels et une fenêtre de recouvrement de 50%. Afin d'éliminer le bruit de fond du granule et les zones en dehors, les images brutes sont masquées par la fonction de masquage. Une corrélation croisée est ensuite réalisée et conduit au champ de vitesse instantanée.

Les granules disponibles ne sont pas opérationnellement similaires, certaines étant relativement vieilles et donc moins actives. Certaines granules ne produiront jamais de biogaz tandis que d'autres en produiront. Les granules 1 et 2 ont été utilisés dans le microréacteur ($R 4 \times 2$), les granules 3 et 4 étant utilisés dans le second réacteur ($R 2 \times 2$).

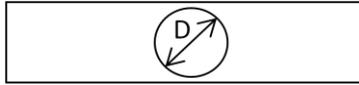
Granules	Grand axe (mm)	Petit axe (mm)	Surface (mm ²)	Diamètre équivalent (mm)	Densité (kg.m ⁻³)
1	1,7	1,45	1,94	1,57	1013
2	1,4	1,32	1,45	1,36	1032
3	1,55	0,96	1,17	1,22	1034

4	1,2	0,92	0,87	1,05	1046
---	-----	------	------	------	------

Tableau. III. 10. Caractéristiques des granules étudiés.

En maquette chaude, les expériences ont été réalisées d'une part à différentes vitesses de liquide pour une concentration DCO fixée et en faisant varier la DCO à vitesse de liquide constante. La microbulle de biogaz obtenue par nucléation croît progressivement et se détache finalement du granule de boue lorsqu'elle atteint une taille significative. Afin de quantifier le débit de production de biogaz, les microréacteurs ont été placés horizontalement sous l'objectif ($\times 4$) d'un second microscope (Motic Groupe, Chine) équipé d'une caméra numérique. L'acquisition des images de granules ainsi que des microbulles de biogaz produit est réalisée à intervalle de temps fixe. La taille des microbulles est déterminée en utilisant un programme d'analyse quantitative d'images (Motic Images Advanced 3.2). La forme de microbulles produites est relativement sphérique du fait de leur petite taille (diamètre $< 0,36$ mm). Le volume des bulles est ensuite évalué en se basant sur une forme de bulle sphérique. L'enregistrement des images de toutes les microbulles de biogaz formées successivement est effectué dès leur détachement pendant 15 à 20 minutes. Le volume de toutes les microbulles enregistrées pendant cet intervalle de temps est utilisé pour déterminer le débit de production de biogaz. Pour vérifier la reproductibilité des débits de production de biogaz, huit échantillons ont été enregistrés successivement pendant 3 jours et pour une vitesse de liquide donnée à DCO fixée (ou pour une concentration DCO donnée à vitesse de liquide fixée) pour chaque granule. Avant chaque expérience, le granule a été soumis, pendant plusieurs jours, à un écoulement de liquide à la vitesse de travail choisie pour que les microorganismes atteignent le régime stable, vérifié par l'obtention d'un débit de production de biogaz constant.

Lorsque le diamètre de bulle est inférieur à la hauteur du microréacteur, une bulle est approximativement sphérique et son volume est calculé comme suit :

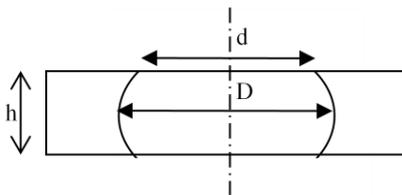


$$V = \frac{\pi D^3}{6} \quad (\text{Eq. III. 5})$$

Avec

- V volume de la bulle, mm^3 ;
- D diamètre extérieur, mm.

Lorsque le diamètre dépasse la hauteur du microréacteur, la bulle adopte une forme de "tambour" et son volume est calculé comme suit :



$$V = \frac{\pi h}{12} (D^2 + Dd + d^2) \quad (\text{Eq. III. 6})$$

Avec

- h hauteur du microréacteur, mm ;
- d diamètre intérieur, mm.

III.2.1.3 Résultats et discussion

III.2.1.3.1 Phénomènes observés

Les microréacteurs ont été successivement inoculés avec les quatre granules intégrales placées au centre de la conduite et le site de production de biogaz a été observé à l'une des extrémités le long du grand axe à proximité des deux parois latérales du microréacteur (Fig. III. 50).

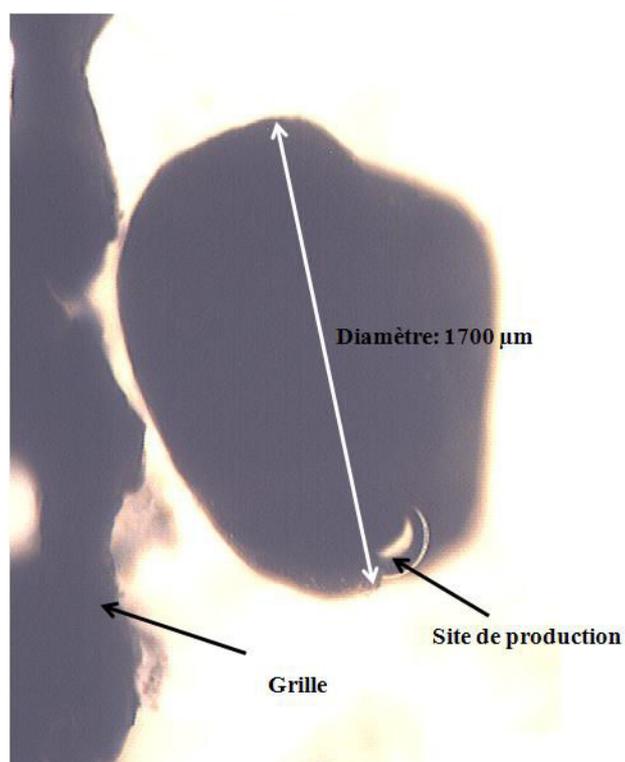
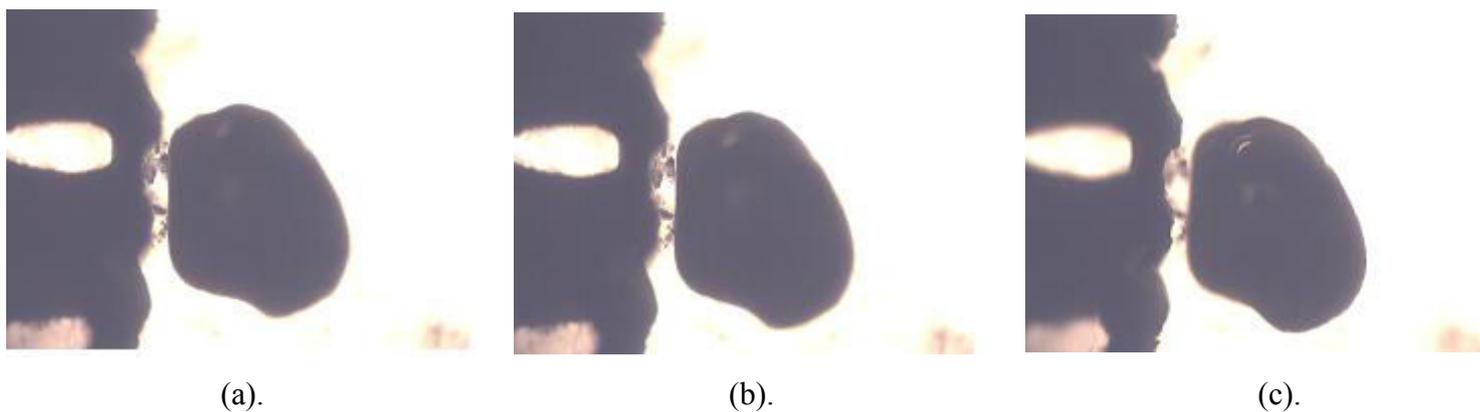


Fig. III. 50. Position du granule et du site de production de biogaz dans le microréacteur.

Parfois, le granule de boue se déplace avec un mouvement linéaire ou rotationnel durant la phase de croissance des bulles (Fig. III. 51 et 52).



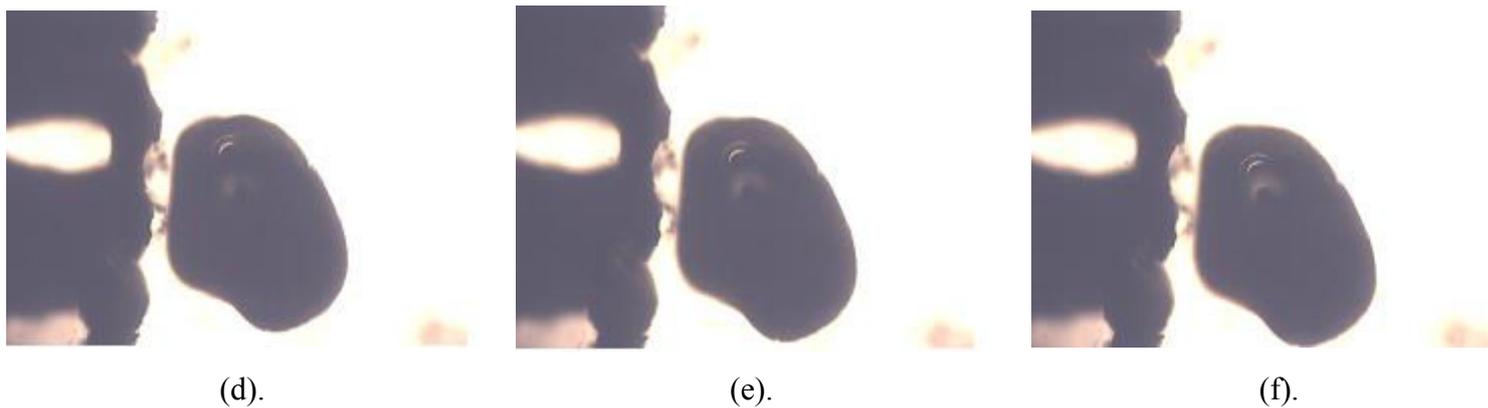


Fig. III. 51. Déplacement linéaire du granule de boue avec un intervalle de temps d'une seconde.

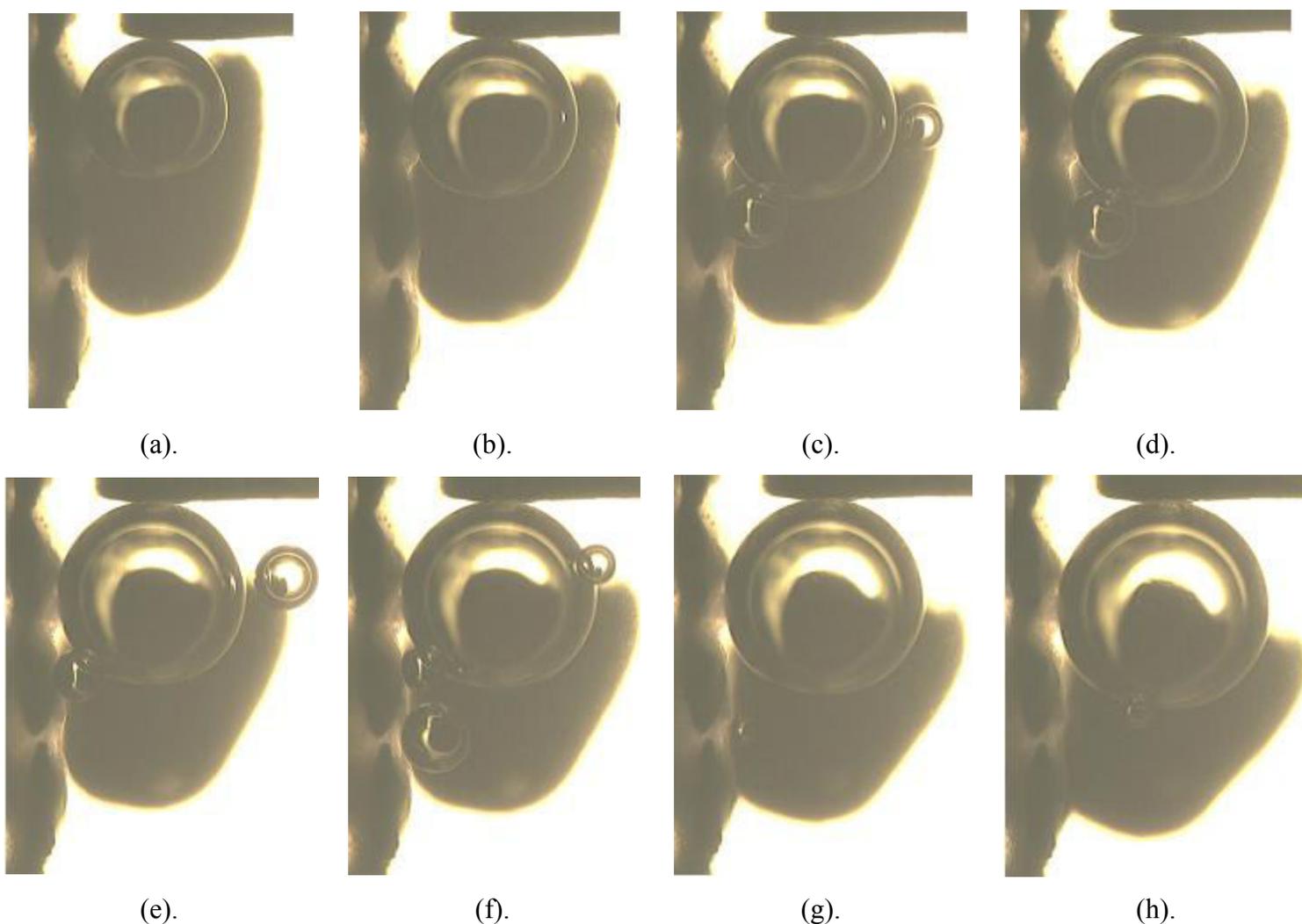


Fig. III. 52. Déplacement du granule de boue avec un intervalle de temps de dix minutes.

Les phénomènes de nucléation et de détachement de bulles sont également observés (Fig. III. 53). La bulle de biogaz se forme dans un premier temps par nucléation puis se développe et

atteint une taille significative avant son détachement du granule. La bulle se détache alors et monte pour se rapprocher de la lamelle supérieure du microréacteur. Souvent, de petites bulles détachées finissent par coalescer au contact de la lamelle supérieure pour former une seule bulle lorsque la vitesse de liquide n'est pas très élevée (Fig. III. 54).

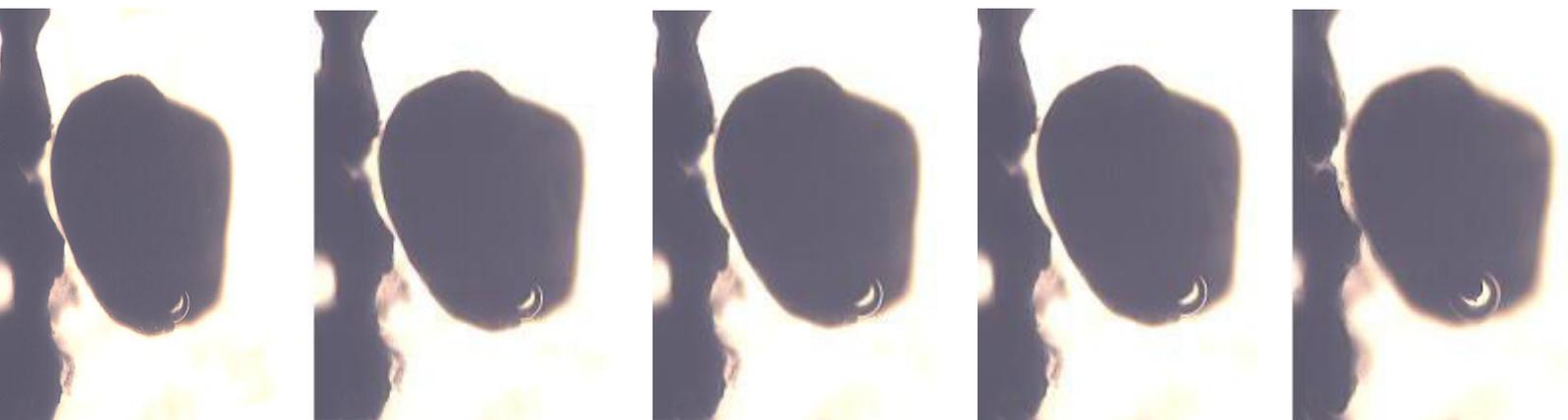


Fig. III. 53. Nucléation et détachement d'une bulle avec un intervalle de temps d'une seconde.



Fig. III. 54. Phénomène de coalescence avec un intervalle de temps de cinq secondes.

III.2.1.3.2 Caractéristiques des bulles et débit de production de biogaz

Les deux microréacteurs étudiés étant de taille différente, les résultats ont été comparés en utilisant le nombre de Reynolds défini comme suit :

$$\text{Re} = \frac{\rho_L \cdot u_L \cdot D_H}{\mu_L} \quad (\text{Eq. III. 7})$$

- D_H diamètre hydraulique du canal rectangulaire, m ;
- u_L vitesse superficielle de liquide, $m.s^{-1}$;
- ρ_L masse volumique de liquide, $kg.m^{-3}$;
- μ_L viscosité dynamique de liquide, Pa.s.

Les résultats sont détaillés dans le tableau III. 11.

Section du canal de réacteur (mm)	Taille de granule de boue_diamètre équivalent (mm)	Vitesse superficielle de liquide ($\times 10^{-3} m.s^{-1}$)	Débit moyen de production de biogaz ($\times 10^{-13} m^3.s^{-1}$)	Débit moyen de production de biogaz avec une correction de masse ($\times 10^{-7} m^3.s^{-1}kg^{-1}$)	Temps entre deux bulles successives (s)	Diamètre moyen des bulles (mm)	Vitesse moyenne de cisaillement exercée sur le granule (s^{-1})	Re	Débit de production /Débit de production en régime statique
4 × 2	1,57	0	2,33	9,72	87	0,339	0	0	1
		1,04	3,5	14,58	67,5	0,356	6,9	1,92	1,5
		2,08	4,17	17,36	61,36	0,363	11,1	3,84	1,79
		3,13	5,5	22,92	43,5	0,356	17,1	5,75	2,36
		4,17	5,83	24,31	30	0,322	28	7,67	2,5
		5,21	5,33	22,22	26,4	0,299	33	9,59	2,29
4 × 2	1,36	0	0,72	4,48	100,2	0,24	0	0	1
		3,13	1,23	7,71	73,4	0,259	9,7	5,75	1,72
		4,58	2,33	14,58	33,8	0,245	15	8,44	3,26
		6,25	3	18,75	21	0,228	26,1	11,51	4,19
		8,33	4	25	15	0,225	39	15,34	5,58
		10,42	3,67	22,92	14,1	0,214	44,3	19,18	5,12
2 × 2	1,22	0	0,55	4,58	111,2	0,228	0	0	1
		4,17	0,97	8,06	80,3	0,247	18,9	5,75	1,76
		6,25	1,67	13,89	37	0,228	30,2	8,62	3,03
		9,17	2,33	19,44	24	0,22	40,9	12,64	4,24
		11,67	3,17	26,39	16	0,213	46,5	16,09	5,76
		14,58	2,83	23,61	15	0,2	53,5	20,11	5,15
2 × 2	1,05	0	0,27	3,33	136,9	0,193	0	0	1
		6,25	0,63	7,92	62,4	0,196	25,2	8,62	2,38
		10,42	1,18	14,79	31	0,191	34	14,37	4,44

12,5	1,5	18,75	22,1	0,185	44,4	17,24	5,63
14,58	1,83	22,92	15	0,176	48,9	20,11	6,88
16,67	1,67	20,83	14,3	0,17	53,3	22,99	6,25

Tableau. III. 11. Résultats principaux pour les quatre granules de boue dans les différentes conditions hydrodynamiques.

Cas du régime statique.

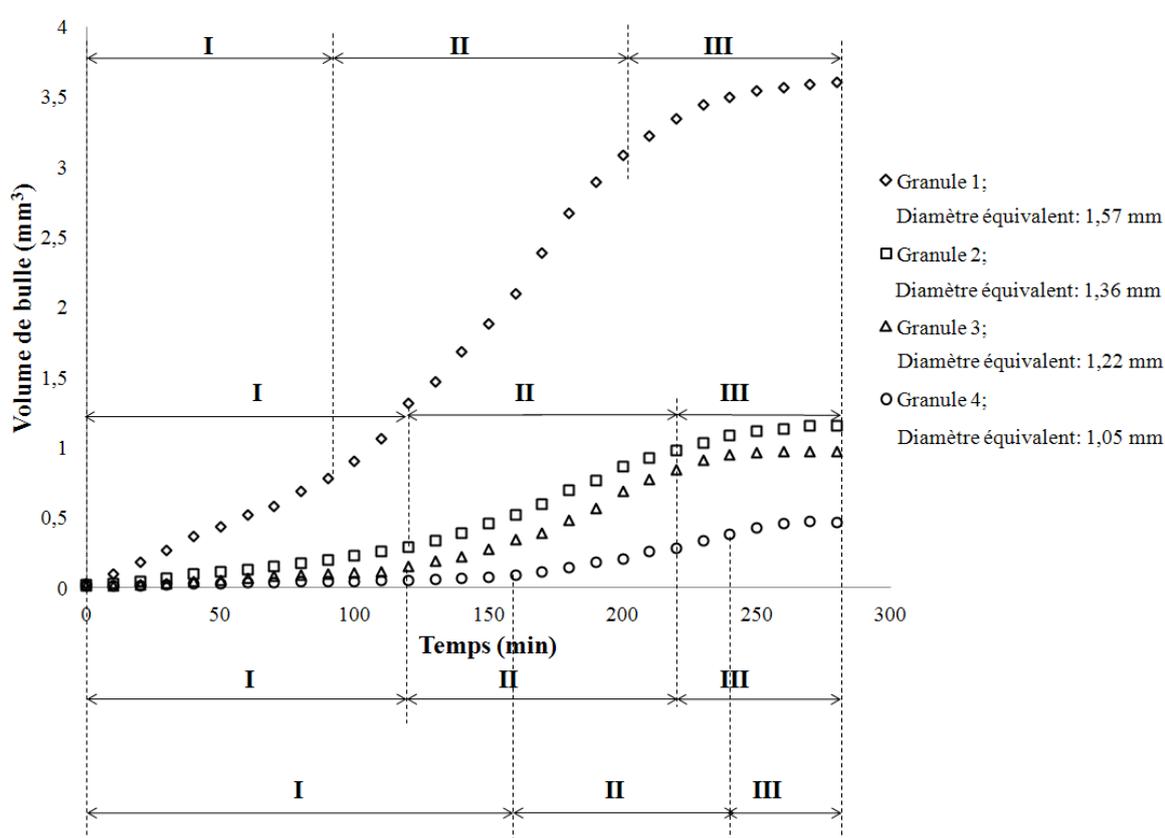


Fig. III. 55. Croissance de la bulle de biogaz pour les quatre granules différents en régime statique (I. Croissance lente ; II. Croissance rapide ; III. Etape asymptotique).

La figure III. 55 montre que la croissance de la bulle de biogaz en régime statique s'effectue en trois étapes successives pour tous les granules étudiés : croissance lente, croissance rapide et étape asymptotique. Sachant que la même solution de substrat est utilisée dans les expériences, la réaction anaérobie démarre directement par acidogénèse sans l'étape

d'hydrolyse ; elle est principalement suivie par méthanogénèse acétoclastique. En régime statique, le transfert de matière ne dépend que de la diffusion moléculaire, et le temps de diffusion des matières organiques dans le granule étant très grand. L'alimentation suffisante du granule ne peut être assurée compte tenu de l'importance de la résistance externe au transfert et de l'appauvrissement progressif du substrat.

L'étape de croissance lente représente principalement l'étape d'acidogénèse dans laquelle les AGV (acides gras volatils) sont fortement accumulés en raison de la forte concentration initiale de glucose d'une part et du fait que la méthanogénèse soit limitée en raison du déficit en acide acétique d'autre part. Au-delà d'une valeur critique de l'accumulation d'AGV, la production de méthane est fortement favorisée et la croissance de la bulle de biogaz devient rapide (étape de croissance rapide). Les matières organiques disponibles sont alors progressivement consommées jusqu'à leur épuisement et le débit d'acidogénèse diminue, entraînant ainsi une baisse du débit de méthanogénèse de sorte que la réaction tende finalement vers l'étape asymptotique.

Les résultats rapportés sur la figure III. 55 montrent que la capacité de production de biogaz dépend essentiellement de la taille des granules de boues. Ceci signifie donc que la quantité de biomasse activée au sein d'un granule est un facteur déterminant. Par ailleurs, en régime batch, avec une densité plus faible correspondant ici comme le premier granule, le transfert de matière est suffisant pour nourrir une bonne partie de la biomasse. Par contre, lorsque la densité est plus élevée (cas du quatrième granule), seule une faible quantité de biomasse peut être activée en raison du transfert de matière moins efficace lors de la diffusion du substrat, ce qui conduit à une différence notable de capacité de production de biogaz, comme l'indique la courbe correspondant au quatrième granule.

La durée de la croissance lente augmente lorsque la taille de granule diminue. Pour la première particule (diamètre équivalent : 1,57 mm ; ρ : 1013 kg.m⁻³), la densité est faible, ce qui assure une alimentation organique plus efficace à l'intérieur du granule. En conséquence, l'étape de l'acidogénèse des couches situées au centre et à la périphérie des bactéries est synchrone, ce qui accélère l'accumulation des AGV et permet d'atteindre plus rapidement la valeur critique pour entrer dans l'étape de croissance rapide. De plus, une densité de granule plus faible semble favorable à l'évacuation du biogaz produit dans le sens inverse. Par contre, lorsque la densité plus élevée, l'étape d'acidogénèse correspondant aux couches internes de la bactérie est inhibée par le transfert de matière inefficace dans le granule, ce qui rend l'étape d'acidogénèse beaucoup plus longue en raison d'une accumulation relativement lente des AGV, provoquant éventuellement la désynchronisation de la réaction anaérobie entre les couches interne et externe des bactéries selon les deux mécanismes suivants:

- bactéries des couches internes sont encore dans l'étape d'accumulation des AGV, tandis que la production de méthane par les bactéries des couches externes est déjà stimulée et la bulle de biogaz entre dans l'étape de croissance rapide suite à une valeur critique d'acidogénèse ;
- production de méthane par les bactéries des couches externes atteint déjà l'étape asymptotique due à l'épuisement des matières organiques disponibles, tandis que la production de biogaz à l'intérieur est encore dans l'étape de croissance rapide.

La désynchronisation due à une densité plus élevée entraîne une durée plus longue de l'étape de la croissance lente (t_1 (90 min) t_2 < (120 min) et t_3 (110 min) < t_4 (160 min)) et une durée plus courte de l'étape de croissance rapide (t_1 (110 min) > t_2 (100 min) et t_3 (110 min) > t_4 (80 min)). Des tendances inverses sont observées pour le deuxième et troisième granule. La taille de le seconde granule (diamètre équivalent : 1,36 mm) est plus grande que celle de la

troisième (diamètre équivalent : 1,22 mm). Cependant, leur densité est similaire (ρ : 1032 et 1034 kg.m⁻³). En régime batch, le transfert de matière est plus efficace à l'intérieur d'un petit granule, le trajet vers les couches internes du granule étant plus court, conduisant à une étape courte de la croissance lente et une étape longue de la croissance rapide.

Cas de la présence d'écoulement de la phase liquide.

En présence d'écoulement de la phase liquide et pour chaque granule étudié, le débit stable de production de biogaz augmente avec la vitesse superficielle de liquide (le nombre de Reynolds) comme le montre la figure III. 56. Le débit de biogaz atteint ensuite un maximum dépendant de la vitesse de liquide avant de décroître. L'augmentation de la vitesse de liquide renforce l'efficacité du transfert de matière externe autour des granules, conduisant à un débit plus élevé de production de biogaz. Cependant, une vitesse de liquide plus élevée augmente le cisaillement provoquant un compactage des granules qui réduit le transfert diffusionnel du substrat au sein du granule et éventuellement l'accès aux micropores. Nous obtenons ainsi deux effets antagonistes en augmentant la vitesse de liquide: avant le nombre optimal de Reynolds, la vitesse de liquide croissante joue un rôle positif pour assurer une alimentation efficace de la biomasse à l'intérieur du granule, favorable à la production de biogaz ; au-delà du nombre optimal de Reynolds, le compactage des granules dû à un cisaillement élevé a un effet dominant, ce qui réduit le débit de production de biogaz.

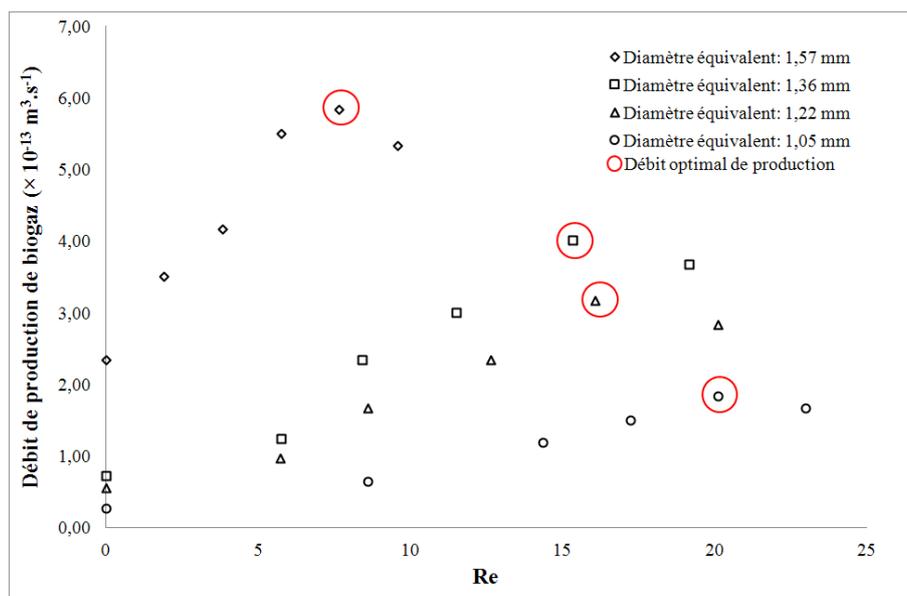


Fig. III. 56. Relation entre le débit de production de biogaz et le nombre de Reynolds.

Compte tenu de ces résultats obtenus pour les quatre granules (Fig. III. 56), on peut conclure que le débit de production de biogaz dépend essentiellement de la taille et la structure du granule. Ainsi, la quantité de biomasse activée disponible dans un granule est un facteur déterminant pour la production de biogaz. Le nombre optimal de Reynolds requis permettant d'obtenir un débit maximal de production de biogaz augmente avec la diminution de la taille des granules. Parmi les quatre granules utilisés, les plus petits granules sont plus denses et par conséquent le transfert du substrat par diffusion est plus faible. Par conséquent, pour atteindre le débit maximum de production de biogaz, un nombre de Reynolds plus élevé est nécessaire pour diminuer la résistance au transfert externe et pouvoir transférer un maximum de matière vers l'intérieur des granules bien que le compactage des granules soit encore plus sévère. Un compromis entre ces deux mécanismes antagonistes aboutit alors à un nombre optimal de Reynolds pour chaque granule utilisé.

Considérons maintenant le débit de production de biogaz rapporté à la masse du granule (Q_g/m_s) ce qui est indiqué sur la figure III. 57. Pour les quatre granules étudiés, cette valeur se

situe entre $22,9$ et $26,4 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \text{ kg}^{-1}$. Généralement, le trajet correspondant à la diffusion du substrat vers le centre d'une grande granule (cas du premier granule; diamètre équivalent : $1,57 \text{ mm}$; $\rho : 1013 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$) est plus long que celui d'un petit granule et correspond de ce fait à de mauvaises conditions nutritionnelles pour les micro-organismes. Par conséquent, le débit de production rapporté à la masse du granule de boue doit être relativement faible. D'autre part, pour les petits granules (cas du quatrième granule; diamètre équivalent : $1,05 \text{ mm}$; $\rho : 1046 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$), la résistance élevée de transfert diffusionnel de matière due à une densité plus élevée devrait également conduire à une valeur de Q_g/m_s relativement faible ($22,9 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \text{ kg}^{-1}$). Ainsi, le débit de production de biogaz rapporté à la masse de granule est relativement faible pour les grandes et petits granules, tandis que pour les granules de taille modérée comme les granules 2 et 3 dont la taille et la densité sont adaptées pour le transfert de matière vers le cœur du granule, Q_g/m_s est plus élevé.

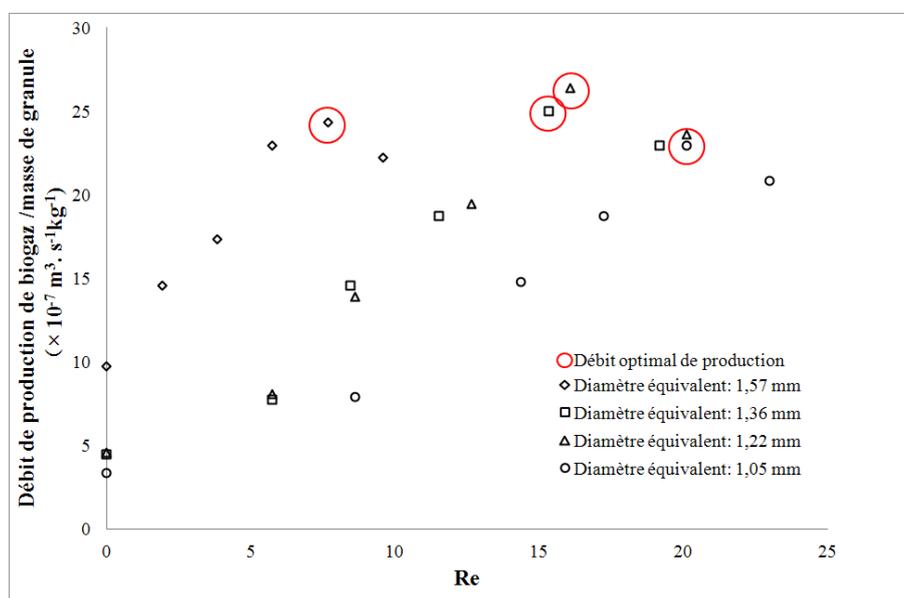


Fig. III. 57. Relation entre le débit de production de biogaz rapporté à la masse du granule et le nombre de Reynolds.

Les granules sont poreux et perméables, la distribution granulométrique des pores devrait être différente d'un granule à l'autre et pourrait avoir un impact significatif sur la cinétique de

migration du substrat, ce qui pourrait expliquer la légère différence entre les débits optimaux Q_g/m_s obtenus pour les différentes granules. Par ailleurs, le débit stationnaire de production de biogaz rapporté à la masse de granules est représenté pour tous les granules étudiés en fonction du temps d'échantillonnage sur la figure III. 58 qui montre une bonne reproductibilité et stabilité des résultats expérimentaux.

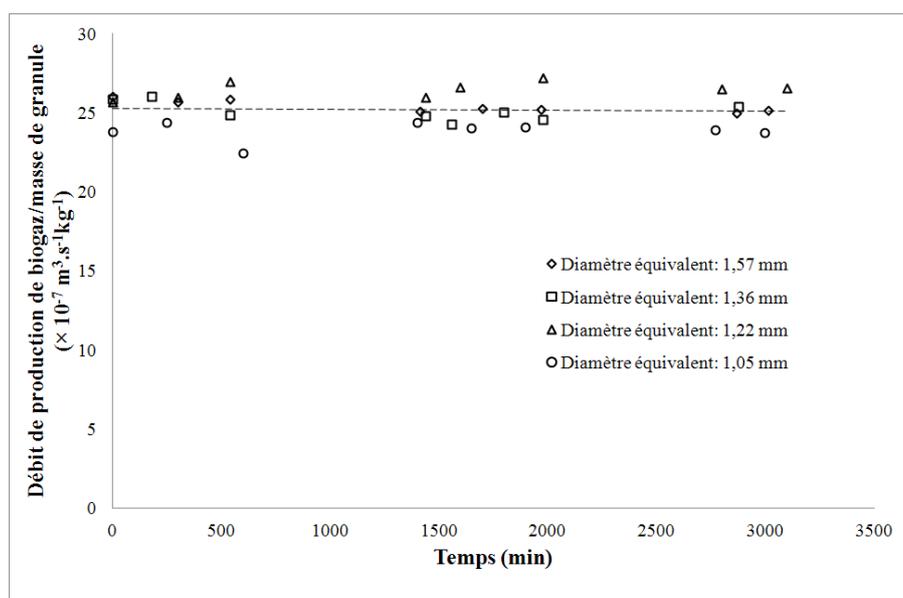


Fig. III. 58. Evolution des débits optimaux de production de biogaz rapporté à la masse pour chaque granule étudié.

La figure III. 59 montre la relation entre le nombre de Reynolds et le débit de production de biogaz normé par le débit de biogaz obtenu en régime batch pour différents granules. Pour le premier granule (diamètre équivalent : 1,57 mm ; ρ : $1013 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$), en régime statique, l'efficacité du transfert de matière en l'absence de convection, est déjà suffisante pour nourrir une quantité importante de bactéries dans le granule grâce à la faible densité. Par conséquent, le débit maximal de production de biogaz est seulement 2,5 fois plus élevé que celui obtenu en régime statique. Avec une densité plus élevée, le transfert de matière par diffusion du substrat est moins efficace, de sorte que seule une faible quantité de bactéries pourrait être activée en régime statique ; ainsi, le transfert du substrat pourra être amélioré en augmentant

le transfert de matière convectif. Pour les deuxième, troisième et quatrième granules, le débit maximal de production de biogaz est respectivement 5,6 ; 5,8 et 6,9 fois plus grand que celui obtenu en régime statique ; ce qui révèle une dépendance directe entre le débit de production de biogaz et la densité des granules.

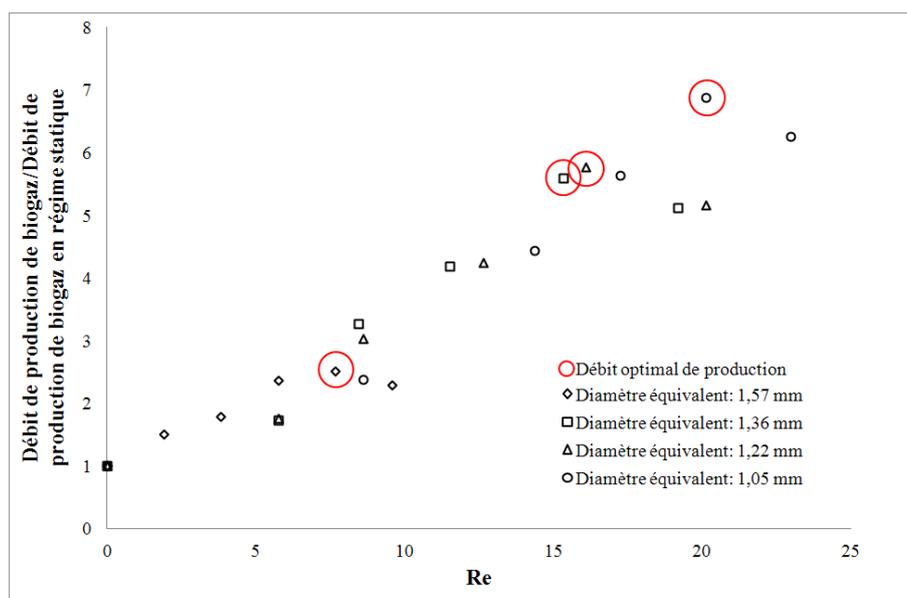
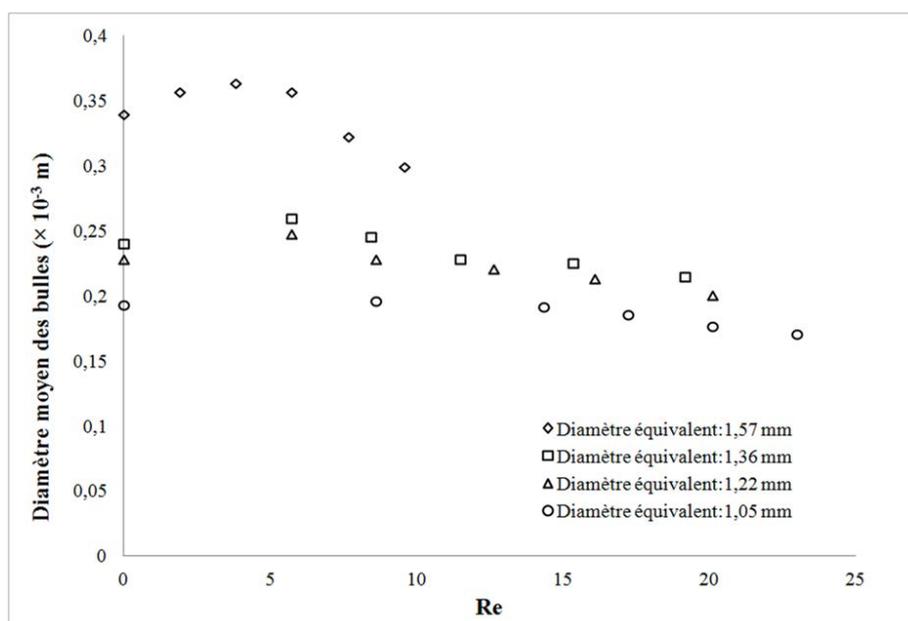
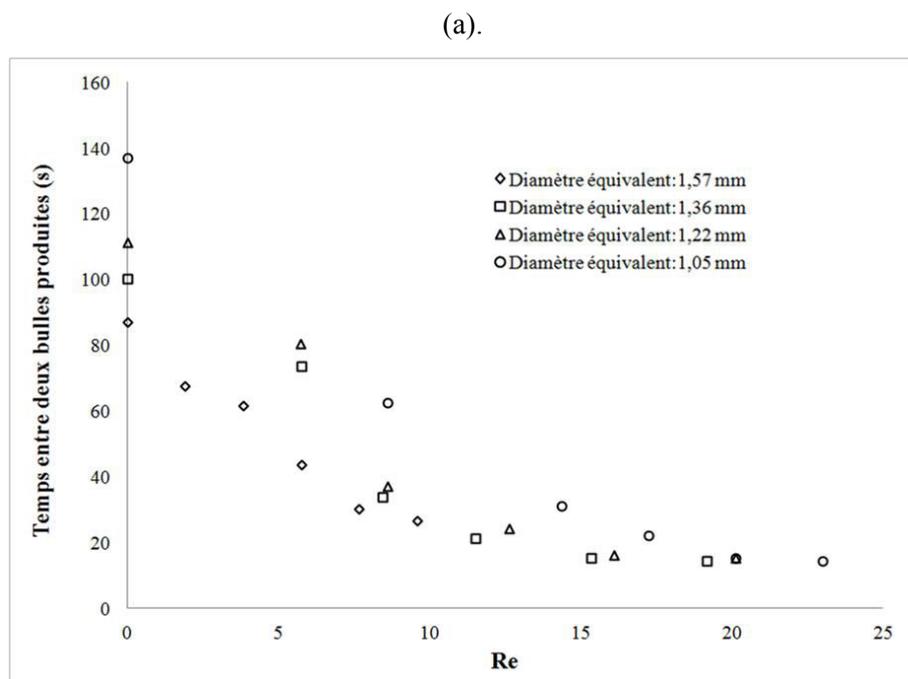


Fig. III. 59. Relation entre le débit de production de biogaz normé par le débit en régime statique et le nombre de Reynolds.

De grandes granules ayant une faible densité pourraient maintenir une capacité satisfaisante de production de biogaz avec des vitesses de liquide relativement faibles. Cela signifie que les installations à échelle industrielle contenant de grandes granules plus poreuses permettent d'économiser plus d'énergie que celles contenant de petits granules. Ainsi, il serait préférable de sélectionner des granules de grande taille et plus poreuses lors du démarrage de ces installations. Cependant, l'augmentation du trajet de diffusion de substrat ainsi que la granulation entre granules pourraient entraîner à terme une substantielle diminution de production de biogaz dans l'installation. Par conséquent, cette situation passive devra être évitée pendant le fonctionnement de l'installation industrielle.

Les diamètres moyens de bulle mesurés ainsi que les temps enregistrés entre deux bulles successives pour tous les granules étudiés dans une certaine fourchette du nombre de Reynolds sont rapportés sur les figures III. 60 (a) et III. 60 (b). L'existence d'un diamètre moyen maximal de bulles a été observée dans tous les cas, indiquant l'existence d'un couplage complexe entre la cinétique de croissance des bulles, le transfert du substrat et les conditions opératoires. Lorsque le nombre de Reynolds est inférieur à la valeur critique, l'effet du cisaillement est relativement faible et la croissance de la bulle dépend surtout de l'efficacité du transfert du substrat dans le granule. Dans ce cas, le diamètre moyen des bulles croît légèrement avec l'augmentation du nombre de Reynolds. Lorsque le nombre de Reynolds continue à augmenter, le diamètre moyen des bulles diminue continuellement en raison du détachement prématuré des bulles de biogaz causé par la vitesse de liquide croissante. Dans ce cas, le transfert de matière n'est plus le facteur déterminant pour la croissance de la bulle. Pour un nombre de Reynolds donné ($Re = 8,5$ par exemple), une quantité plus importante de bactéries due à une taille plus importante, semble favorable à la croissance de la bulle de biogaz, tandis que l'intervalle de temps latent entre deux bulles successives suit la tendance inverse, expliquant ainsi les valeurs du débit de production de biogaz des différents granules.





(b).

Fig. III. 60. Caractéristiques de la production de biogaz dans les différentes conditions hydrodynamiques. (a). Diamètre moyen des bulles; (b). Temps latent entre deux bulles produites.

Pour les quatre granules choisis, les images montrent que la croissance de la bulle a lieu sur un site fixe. Durant l'expérience, deux bulles consécutives apparaissent systématiquement sur le même site du granule. En se basant sur le fait que la bulle observée soit située sur un site fixe, on peut en déduire qu'il existe un microcanal principal de biogaz dans un granule. Ainsi, la distribution des pores dans un granule serait une convergence fractale et progressive des microcanaux omniprésents dans le microcanal principal. Toutefois, outre ces quatre granules de boue, une autre ayant deux sites de production de biogaz fixes à la surface est également observée. Pour un nombre de Reynolds faible, le débit de production de biogaz est relativement faible et seul un site de production est observé. Avec l'augmentation du nombre de Reynolds, lorsque le débit de production est stabilisé, le second site de production apparaît, ce qui permet de déduire que plusieurs microcanaux principaux de circulation du biogaz existent au sein de ce granule, certains des principaux microcanaux étant temporairement bloqués à cause des impuretés présentes dans la solution de substrat et des polymères

extracellulaires sécrétées par le granule de boue. Lorsque la vitesse de liquide atteint une certaine valeur, ces matières sont évacuées de la surface du granule de sorte qu'un second site de production de biogaz puisse se former. La formation du second site peut par ailleurs être due à une augmentation de la pression à l'intérieur du granule permettant d'ouvrir les microcanaux initialement bloqués. (Fig. III. 61).

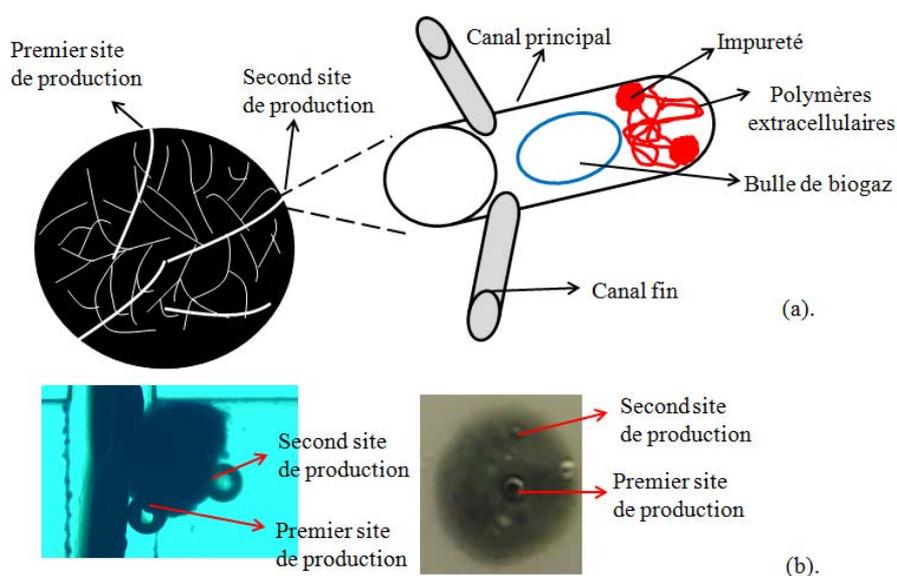


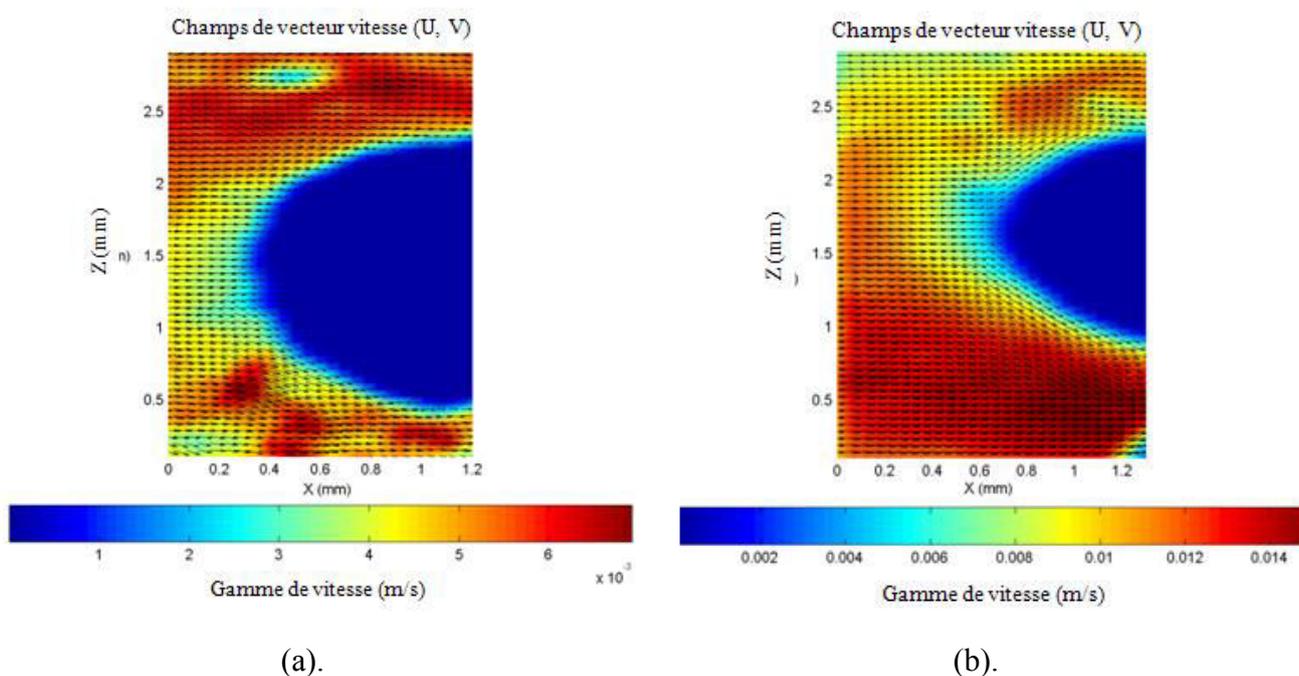
Fig. III. 61. (a). Illustration du modèle de structure en cascade de la distribution des canaux et pores dans un granule avec plusieurs sites de production ; (b). Images obtenues des granules avec deux sites de production.

Ces résultats à micro échelle suggèrent que la diminution de la production de biogaz dans l'installation industrielle est probablement due aux contacts et aux collisions fréquentes entre des granules de boue ainsi qu'à la sécrétion excessive des PEC. Le contact entre des granules de tailles différentes peut conduire à la cohésion de ces granules, tandis que le contact entre de grandes granules pourrait provoquer soit la fission, soit l'attrition des deux granules. Ces mécanismes induisent une modification de la structure interne des granules par blocage ou déformation des microcanaux de circulation de biogaz. Dans ce cas, il est nécessaire de

choisir des conditions hydrodynamiques appropriées afin de réduire ces effets négatifs pour la production de biogaz.

III.2.1.3.3 Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue

Les champs de vitesse de la phase liquide sont mesurés par μ -PIV autour de chacune des quatre granules de boue de diamètre compris entre 1,05 et 1,57 mm. Les champs de vitesse correspondant aux débits optimaux de production de biogaz sont illustrés sur la figure III. 62. Le site de production de biogaz est situé à l'une des extrémités de la surface du granule à proximité de l'une des deux parois latérales du microréacteur où la vitesse de cisaillement exercée sur le granule est la plus élevée.



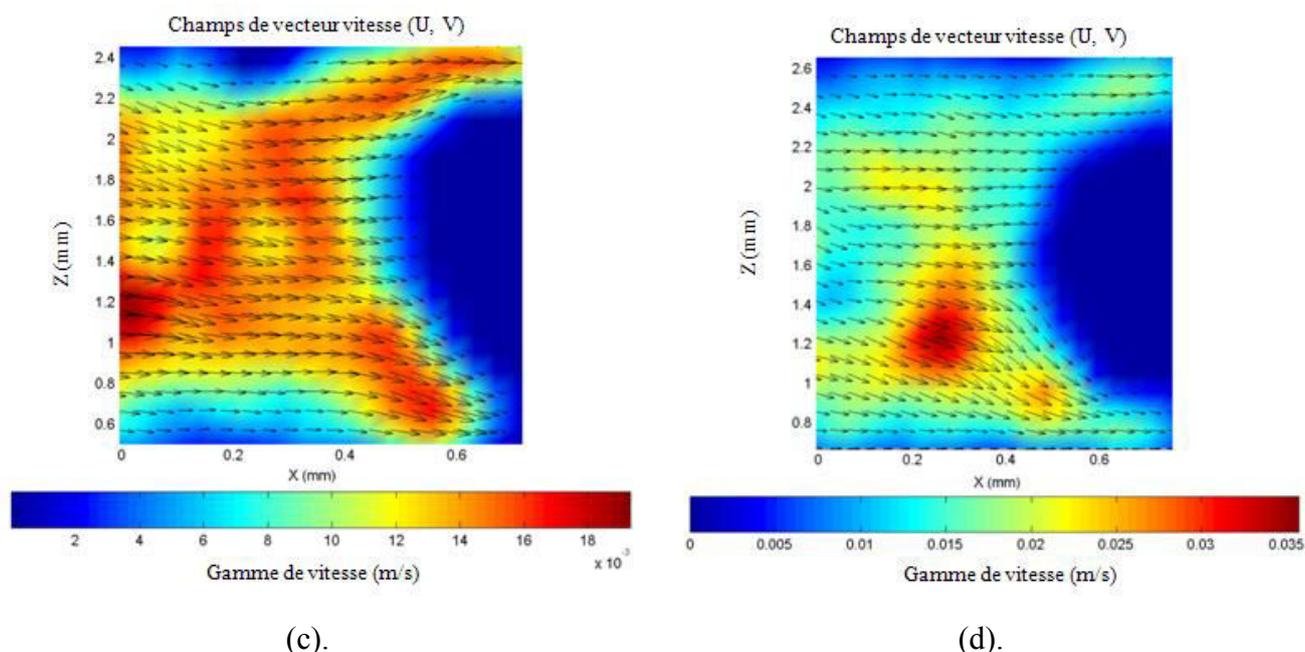
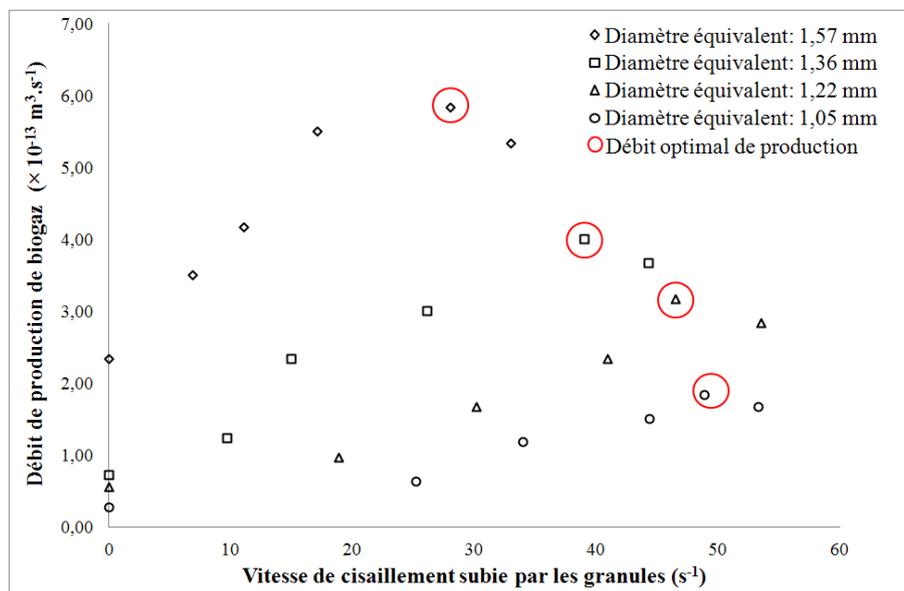


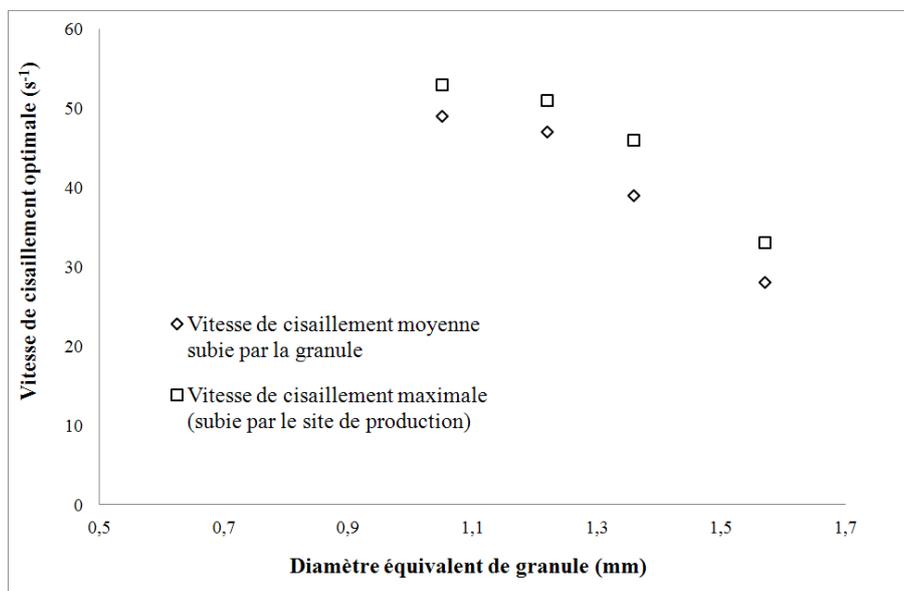
Fig. III. 62. Champs de vitesse de la phase liquide autour des quatre granules dans les conditions hydrodynamiques optimales. (a). 1^{er} granule (diamètre équivalent = 1,57 mm), $u_L = 4,2 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$; (b). 2^{ème} granule (diamètre équivalent = 1,32 mm), $u_L = 8,3 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$; (c). 3^{ème} granule (diamètre équivalent = 1,22 mm), $u_L = 11,7 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$; (d). 4^{ème} granule (diamètre équivalent = 1,05 mm), $u_L = 14,6 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$.

La vitesse de cisaillement exercée directement sur les granules de boue est calculée à partir de ces champs de vitesse afin d'examiner l'éventuelle relation avec le débit de production de biogaz. Les résultats présentés sur la figure III. 63 (a) et (b) montrent que le débit de production de biogaz augmente avec la vitesse de cisaillement et la vitesse de cisaillement optimale correspondant aux débits optimaux de production de biogaz diminue avec le diamètre équivalent de granule. Cela signifie que les installations à échelle industrielle contenant de grands granules permettent d'économiser plus d'énergie que celles contenant de petits granules pour arriver une production de biogaz maximale. Toutefois, cette suggestion est à tempérer en raison de l'important effet de paroi dans les microréacteurs. Il est à noter que cette relation entre le débit de biogaz et la vitesse de cisaillement exercée sur les granules de différentes tailles n'a, à notre connaissance, jamais été mentionnée dans les travaux de la littérature. Ces données pourraient fournir de nouvelles perspectives quant à l'optimisation des

paramètres hydrodynamiques opératoires dans les différents réacteurs triphasiques anaérobies et à la conception de nouveaux réacteurs.



(a).



(b).

Fig. III. 63. (a). Relation entre le débit de production de biogaz et la vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boues ; (b). Relation entre la vitesse de cisaillement optimale et le diamètre équivalent de granule.

III.2.1.4 Conclusion

Le but de cette étude réalisée à microéchelle était de développer une approche permettant d'étudier l'effet de divers paramètres opératoires sur l'efficacité des réactions anaérobies et d'améliorer la compréhension des mécanismes liés à ces effets.

Les résultats obtenus pour tous les granules étudiés ont montré que le débit de production dépendait du nombre de Reynolds de la phase liquide. L'existence d'un débit optimal de production de biogaz a été mise en évidence dans tous les cas. Ce débit optimal dépend de la vitesse de liquide et des caractéristiques des granules de boues (taille et densité). La vitesse de liquide permettant d'atteindre ce débit optimal est d'autant plus faible que la taille du granule est grande et correspond en fait à un transfert optimal de substrat dans le granule. En effet, ce dernier dépend des transferts convectifs et diffusionnels dont les comportements sont antagonistes puisque le premier augmente avec la vitesse de liquide tandis que le second diminue avec ce paramètre à cause du compactage des granules engendré par l'augmentation de la vitesse de cisaillement. Cette dernière qui a aussi un effet sur le détachement prématuré des bulles, peut être directement corrélée au débit de production de biogaz.

III.2.2 Influence de la concentration DCO du substrat

III.2.2.1 Conditions opératoires et procédure expérimentale

Cette étude a été réalisée dans le microréacteur R 2×2 en utilisant les 3^{ème} et 4^{ème} granules de boue de l'expérience précédente et dont les caractéristiques sont indiquées dans le tableau. III.10.

Les expériences ont été effectuées à différentes concentrations DCO, tandis que tous les autres paramètres ont été maintenus constants avec une vitesse superficielle de liquide de $6.25 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ pour toutes les expériences.

Les particules de traceur de $0,88 \mu\text{m}$ de diamètre utilisées pour la détermination des champs de vitesse par micro PIV ont une vitesse aléatoire due au mouvement brownien de l'ordre de $1,3 \mu\text{m.s}^{-1}$ et une vitesse de sédimentation d'environ $0,03 \mu\text{m.s}^{-1}$. Ainsi, l'erreur liée à ces deux effets ne dépassera pas 0,02% et sera de ce fait négligée, la plus faible vitesse superficielle expérimentale utilisée dans le microréacteur étant de $6250 \mu\text{m.s}^{-1}$

III.2.2.2. Résultats et discussion

Pour chaque concentration, le microréacteur a été séquentiellement inoculé avec les deux granules placés en amont de la grille et le site de production de biogaz a été observé à l'une des extrémités le long du grand axe à proximité des deux parois latérales du microréacteur (Fig. III. 64).

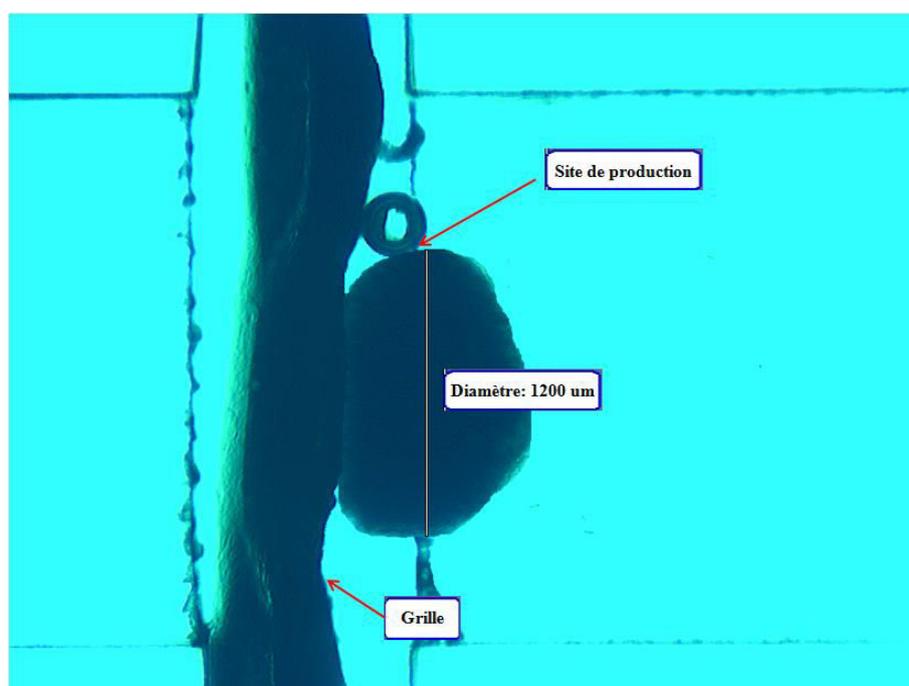


Fig. III. 64. Position du 4^{ème} granule et site de production de biogaz dans le microréacteur.

Les résultats détaillés sont rapportés dans le tableau III. 12.

Granules	DCO (mg.L ⁻¹)	Débit moyen de production de biogaz ($\times 10^{-13}$ m ³ .s ⁻¹)	Temps entre deux bulles successives (s)	Diamètre moyen des bulles (mm)	Vitesse superficielle de liquide ($\times 10^{-3}$ m.s ⁻¹)	Vitesse moyenne de cisaillement exercée sur le granule (s ⁻¹)	Vitesse maximale de cisaillement exercée sur le site de production (s ⁻¹)
3 ^{ème} (Diamètre équivalent: 1,22 mm)	1230	1,08	51,6	0,22	6,25	31,3	36
	3250	1,75	35,4	0,228			
	5040	2,3	28,7	0,233			
	7030	2,67	25,4	0,235			
	10170	2,67	25,5	0,235			
4 ^{ème} (Diamètre équivalent: 1,05 mm)	1230	0,42	85,9	0,189	6,25	25,1	28,6
	3250	0,63	62,4	0,196			
	5040	0,77	54,1	0,2			
	7030	0,77	54,1	0,2			
	10170	0,77	54	0,199			

Tableau. III. 12. Résultats obtenus pour les deux granules de boue à différentes concentrations DCO.

III.2.2.2.1 Caractéristiques des bulles et débit de production de biogaz

Pour les deux granules étudiés, le débit de production de biogaz augmente d'abord avec la concentration DCO puis atteint une limite pour devenir constant au-delà d'une certaine concentration DCO (Fig. III. 65). Ainsi, en-deçà de la concentration limite, l'augmentation de la concentration DCO améliore le transfert de substrat dans le granule via un plus fort gradient de concentration à l'extérieur, conduisant à un débit plus élevé de production de biogaz. Par ailleurs, la comparaison des résultats obtenus avec les deux granules permet de confirmer la conclusion obtenue précédemment quant à la dépendance de la capacité de production de biogaz vis-à-vis de la taille des granules. Là encore, la différence entre les masses de bactéries activées disponibles dans les granules est un facteur déterminant.

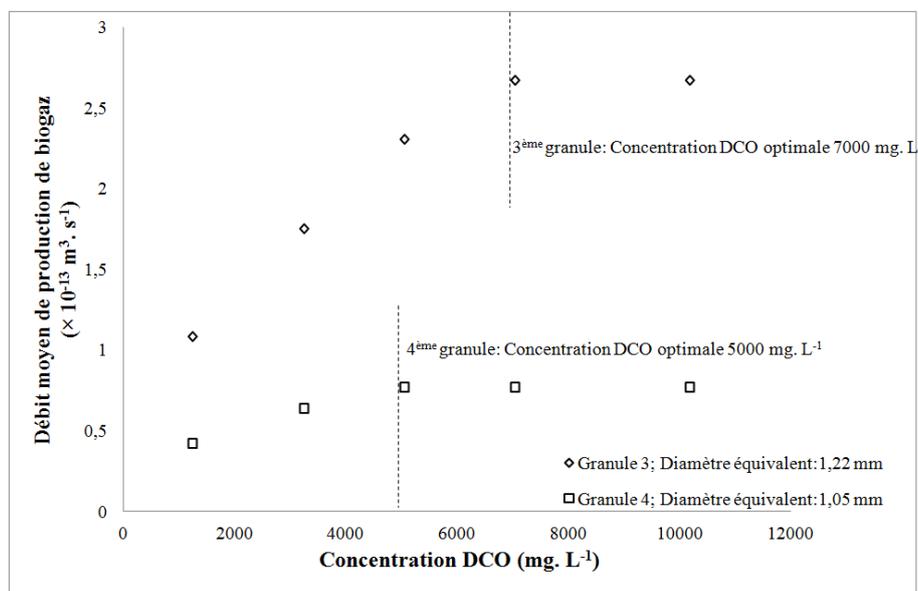
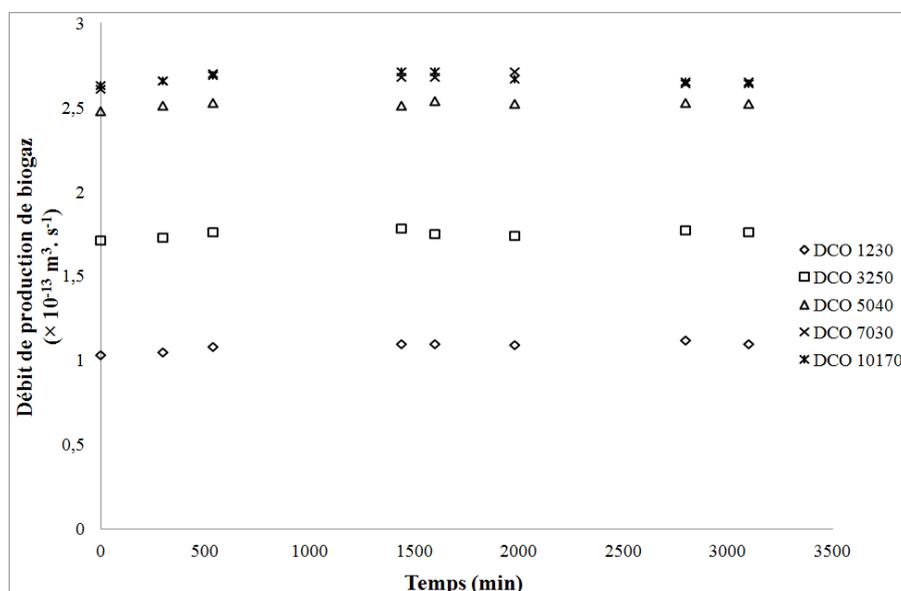


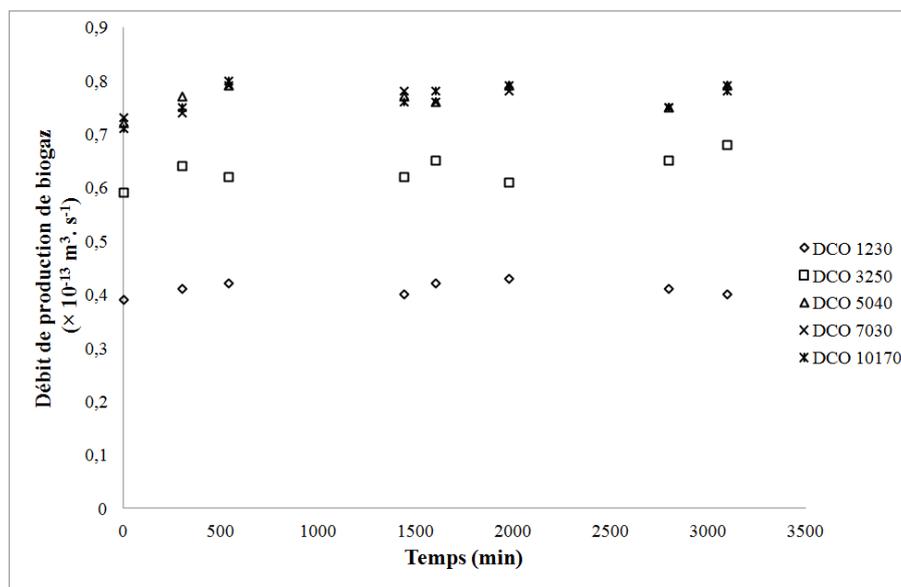
Fig. III. 65. Relation entre le débit moyen de production de biogaz et la concentration DCO pour les deux granules.

On constate que la concentration DCO optimale requise pour le débit maximal de production de biogaz est légèrement plus élevée pour le 3^{ème} granule (7000 mg.L⁻¹), ce qui est principalement dû à une densité granulaire différente. Dans le cas d'un granule plus dense, ce

qui est le cas du 4^{ème} granule, le flux de transfert diffusionnel du substrat à travers le granule ne pourrait pas être amélioré par l'augmentation de la concentration DCO, dès que la concentration DCO optimal est atteinte (5000 mg.L^{-1}). Un approvisionnement organique lent et insuffisant pour la biomasse des couches internes dans le granule rend restreintes les conditions hydrodynamiques. Les résultats révèlent également que l'état métabolique et l'activité des micro-organismes ne sont pas affectés ou inhibés par une concentration de substrat excédentaire avec cette vitesse de liquide puisque le débit optimal de production de biogaz reste pratiquement constant autour de 2,67 et de $0,77 \times 10^{-13} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$, respectivement, pour les deux granules. L'évolution du débit de production de biogaz en fonction du temps d'échantillonnage rapportée sur la figure III. 66 montre que ce débit est stationnaire pour chaque concentration DCO étudiée.



(a).



(b).

Fig. III. 66. Evolution du débit de production de biogaz pour les deux granules étudiés. (a). 3^{ème} granule ; (b). 4^{ème} granule.

Les courbes relatives à l'évolution du diamètre des bulles et du temps entre deux bulles successives en fonction de la concentration DCO (Fig. III. 67), montrent que l'augmentation de la production de biogaz est à la fois due à l'augmentation du diamètre des bulles et la diminution de l'intervalle de temps entre deux bulles consécutives lorsque la concentration DCO croît à vitesse de liquide fixée. Lorsque la concentration DCO augmente et tant qu'elle reste inférieure à sa valeur optimale, le diamètre des bulles augmente et le temps latent entre deux bulles successives diminue, le transfert de substrat étant amélioré par l'augmentation de la concentration DCO. Mais au-delà de la concentration DCO optimale, le diamètre moyen des bulles ainsi que le temps entre deux bulles successives deviennent pratiquement constants, le transfert de substrat étant dès lors limité par la résistance externe, la concentration DCO ne constituant plus le facteur déterminant.

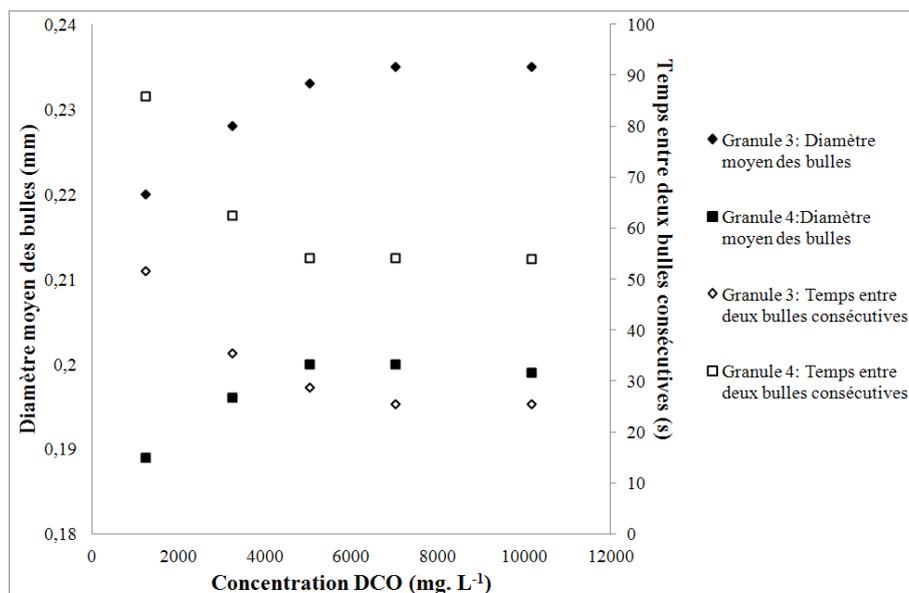


Fig. III. 67. Caractéristiques de la production de biogaz (diamètre moyen des bulles et temps entre deux bulles successives) pour les deux granules étudiés.

III.2.2.2.2 Vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue

Les champs de vitesses de la phase liquide correspondant à la vitesse superficielle utilisée sont rapportés sur la figure suivante pour chaque granule. Le site de production de biogaz est situé à la surface des granules à proximité de la paroi latérale du microréacteur où la vitesse de cisaillement est la plus élevée.

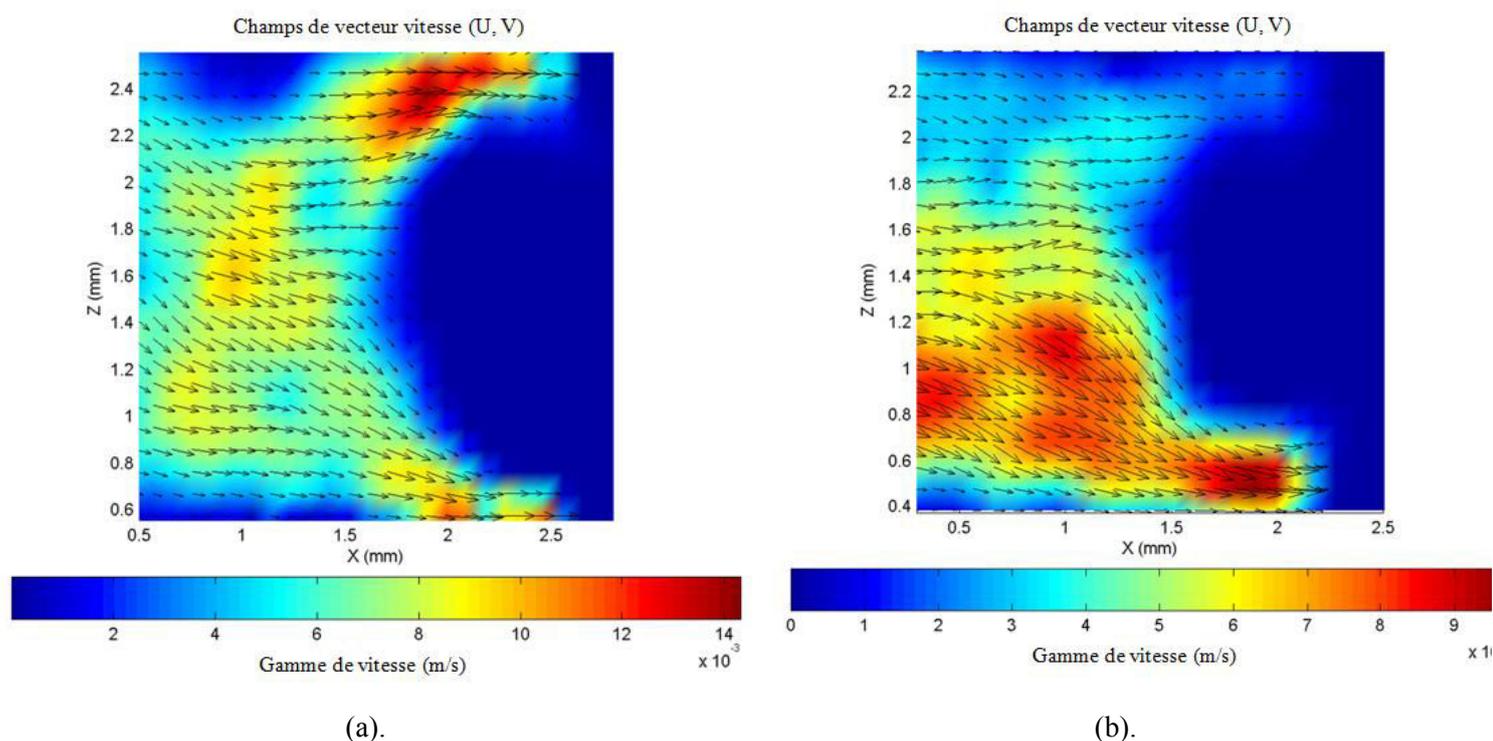


Fig. III. 68. Champs de vitesse de la phase liquide dans le microréacteur pour les deux granules dans les mêmes conditions hydrodynamiques ($u_L = 6,25 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$). (a). 3^{ème} granule ; (b). 4^{ème} granule.

La vitesse de cisaillement exercée directement sur les granules a été calculée à partir des champs de vitesse mesurés ci-dessus. La vitesse de cisaillement moyenne est respectivement 31,3 et 25,1 s^{-1} pour les deux granules 3 et 4.

III.2.2.3 Conclusion

Pour les granules 3 et 4 utilisés dans l'étude à microéchelle, les expériences réalisées à différentes vitesses de liquide et à une concentration DCO fixée de 3300 mg.L^{-1} , ont montré que des débits optimaux de production de biogaz de 3,17 et 1,83 $\times 10^{-13} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ étaient obtenus pour des vitesses superficielles de liquide de 11,67 et 14,58 $\times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ correspondant à des vitesses moyennes de cisaillement exercées sur les granules de boue de 46,5 et 48,9 s^{-1} respectivement. Ainsi, on peut constater que ces vitesses de liquide sont plus élevées que celle choisie ($u_L = 6 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$) en travaillant à différentes concentrations DCO. Dans ce dernier

cas, le transfert externe de substrat est donc plus faible, ce qui explique les débits optimaux de production de biogaz plus faibles obtenus ($2,67$ et $0,77 \times 10^{-13} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$). Ainsi, pour améliorer la capacité de production de biogaz, il est nécessaire d'utiliser une vitesse de liquide adaptée permettant d'améliorer le transfert externe de substrat tout en maintenant une densité de granules modérée afin de faciliter la diffusion du substrat à l'intérieur de granules et l'évacuation des bulles produites en sens inverse.

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Cette thèse a pour but d'initier une étude originale sur la compréhension du procédé de traitement de boues et de valorisation du biogaz à travers une étude hydrodynamique réalisée en maquette chaude et froide aux échelles méso et micro dans des réacteurs bidimensionnels et des dispositifs microfluidiques.

L'étude menée à l'échelle méso dans un bioréacteur anaérobie bidimensionnel a permis, pour la première fois, de mesurer simultanément les caractéristiques des bulles et la production de biogaz pour différentes vitesses de liquide et concentrations DCO. Les résultats obtenus montrent qu'il est possible d'optimiser la production de biogaz en choisissant judicieusement les conditions opératoires telles que la vitesse de liquide et la concentration de substrat permettant d'augmenter l'efficacité des transferts convectif et diffusionnel.

Pour une concentration DCO fixée de 3300 mg.L^{-1} , l'augmentation de la vitesse de liquide d'abord a un effet positif sur la production de biogaz. Cependant, au-delà d'une valeur optimale de la vitesse de liquide de l'ordre de $0,89 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$, correspondant à un débit maximal de biogaz de $1,4 \times 10^{-9} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$, cet effet devient négatif avec une diminution du débit de biogaz. Cet optimum correspond en fait à une résistance au transfert minimale, les comportements des transferts diffusionnels et convectifs étant opposés lorsque la vitesse du liquide croît. Par ailleurs, l'étude de l'effet de la concentration DCO du substrat sur la production de biogaz révèle qu'une augmentation de la concentration DCO est favorable à la capacité de production de biogaz et permet de diminuer la durée d'adaptation tout en améliorant la teneur en méthane du biogaz. Elle montre aussi que l'évolution du débit de biogaz avec la concentration DCO se fait selon trois étapes successives correspondant à une

croissance d'abord lente suivie d'une croissance rapide qui tend finalement vers une asymptote, le débit maximal de production de biogaz de l'ordre de $1,6 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ étant obtenu pour une concentration DCO autour de $17\,000 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. On remarque en comparant les débits optimaux de production de biogaz obtenus tantôt à DCO fixée et vitesse variable ou l'inverse, que les débits optimaux de production de biogaz sont du même ordre de grandeur dans les deux cas. L'étude des vitesses de cisaillement moyennes exercées sur les granules de boue estimées à partir des mesures de champs de vitesses de liquide montre l'existence d'une relation étroite entre la vitesse de cisaillement et le débit de biogaz et permet de constater que des vitesses de cisaillement moyennes du même ordre de grandeur ($32,4$ et $31,5 \text{ s}^{-1}$) sont respectivement obtenues pour les deux débits optimaux de production de biogaz de $1,4$ et $1,6 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ indiqués précédemment, indiquant ainsi une certaine cohérence au niveau des résultats.

Le travail précédent a de même été mené à microéchelle dans deux microréacteurs de taille différente et à écoulement contrôlé pour la phase liquide dans le but d'étudier le comportement dynamique des réactions anaérobies intervenant pour quatre granules de taille différente dans des conditions opératoires (vitesse de liquide et concentrations DCO) différentes. Les résultats obtenus à concentration DCO fixée et vitesse de liquide variable montrent, là encore, une relation directe entre le nombre de Reynolds et le débit de production de biogaz dont la valeur maximale, différente pour les quatre granules de boue, est obtenue à des vitesses optimales différentes dépendant aussi de la taille du granule et par conséquent de sa densité. L'analyse des résultats montre que la valeur de la vitesse de liquide optimale correspondant à un débit maximal de production est liée à la compétition entre les transferts de matière externe et interne. En effet, si le transfert externe de substrat augmente avec la vitesse de liquide, le transfert diffusionnel par contre diminue du fait du compactage du granule occasionné par l'augmentation de la vitesse de cisaillement exercée sur le granule de

boue. Le débit maximal de production de biogaz obtenu en travaillant à différentes concentrations DCO pour une vitesse de liquide fixée et deux granules de taille différente est plus faible que celui correspondant aux ces même granules étudiés précédemment, ce qui semble logique, ce débit étant dans ce cas limité à cause de la plus faible vitesse de liquide utilisée. Par ailleurs, en analysant tous les résultats obtenus à microéchelle, on remarque que l'utilisation de granules de plus grand diamètre favorise la capacité de production de biogaz et permet de travailler à des vitesses de liquide plus faibles.

Pour comparer les valeurs obtenues aux échelles micro et méso, il convient d'analyser l'hydrodynamique et les caractéristiques de l'écoulement à ces deux échelles.

Durant la phase d'adaptation des granules, les granules ne sont d'abord soumis, sachant qu'aucune bulle de biogaz n'est produite les premiers jours, qu'à la seule vitesse de cisaillement, elle-même induite par la vitesse de liquide. Ensuite, lorsque la production de biogaz démarre, la présence du biogaz qui augmente continuellement contribue par un mouvement relatif croissant à l'augmentation de la vitesse de cisaillement moyenne exercée sur les granules de boue qui devient déterminante influençant progressivement la structure et la densité des granules de boue et le transfert de substrat s'améliore du fait de l'augmentation progressive du mouvement convectif engendré par la présence de plus en plus importante des bulles de biogaz (Fig. C. 1). Dans ce cas, un nombre de Reynolds faible est suffisant (Fig. C. 2) pour l'obtention d'un débit de production optimal.

A micro échelle, un seul granule de boue est maintenu immobile et la vitesse de cisaillement exercée sur le granule qui ne provient ici que de l'écoulement de liquide reste stable de sorte qu'un nombre de Reynolds élevé est nécessaire dans ce cas pour assurer un transfert de substrat suffisant. La vitesse de cisaillement optimale conduisant à un débit maximal de

production de biogaz varie de 28 à 49 s^{-1} selon la taille du granule. On remarque ainsi que ces valeurs de vitesse de cisaillement sont cohérentes avec les valeurs optimales obtenues à méso échelle de l'ordre de 31,5 et 32,4 s^{-1} .

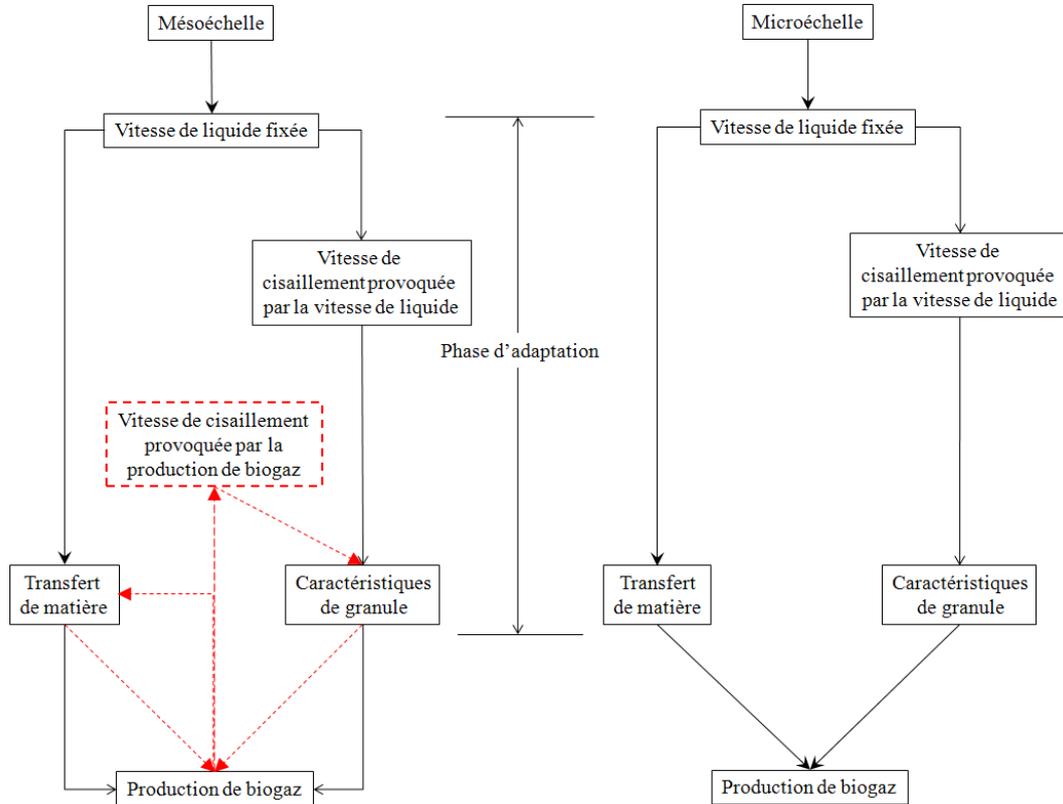


Fig. C. 1. Comparaison des processus entre les différentes échelles. (Ligne discontinue rouge : Circulation).

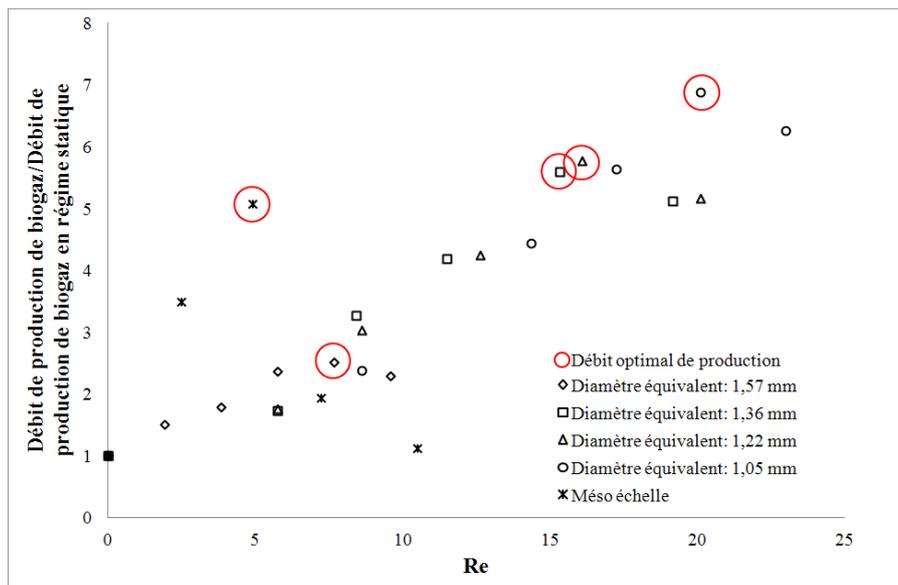


Fig. C. 2. Comparaison du débit de production normalisé en fonction du nombre de Reynolds entre les différentes échelles.

PERSPECTIVES

PERSPECTIVES

Dans ce mémoire, nous avons présenté des résultats expérimentaux relatifs aux échelles micro et méso dans le but de mettre en évidence certains phénomènes et comportements intéressants dans des réacteurs mettant en œuvre des réactions anaérobies destinées à la production de biogaz. Ce travail qui ne constitue qu'une ébauche doit se poursuivre afin d'améliorer la compréhension des phénomènes à différentes échelles. Une étude similaire doit donc être envisagée et complétée à l'échelle macro afin de comparer et éventuellement vérifier les différents comportements observés aux échelles micro et méso. Les expériences seront réalisées, comme précédemment, en maquette chaude mais aussi en maquette froide en présence d'air ou d'un mélange méthane/CO₂ pour éviter le problème d'opacité du réacteur en maquette chaude.

L'étude à l'échelle macro sera menée dans un réacteur pilote à gzosiphon (air-lift) à recirculation externe (Fig. P. 1) dont la géométrie est globalement proche de celle du réacteur IC qui est connu pour être le réacteur anaérobie le plus efficace utilisé dans le monde actuellement. Toutefois, pour accéder plus facilement à certains paramètres hydrodynamiques, la géométrie du réacteur utilisé dans ce travail a été légèrement modifiée par rapport au réacteur industriel IC.

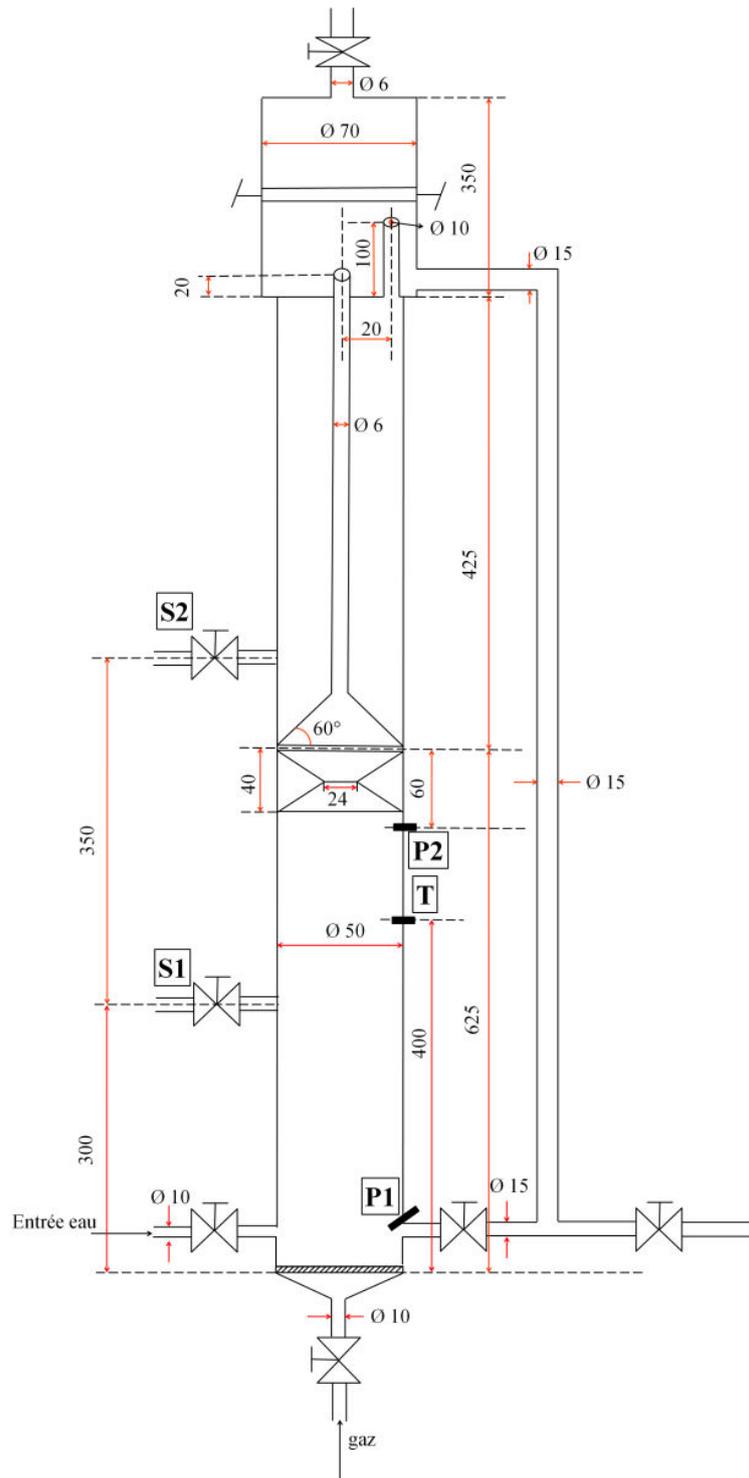


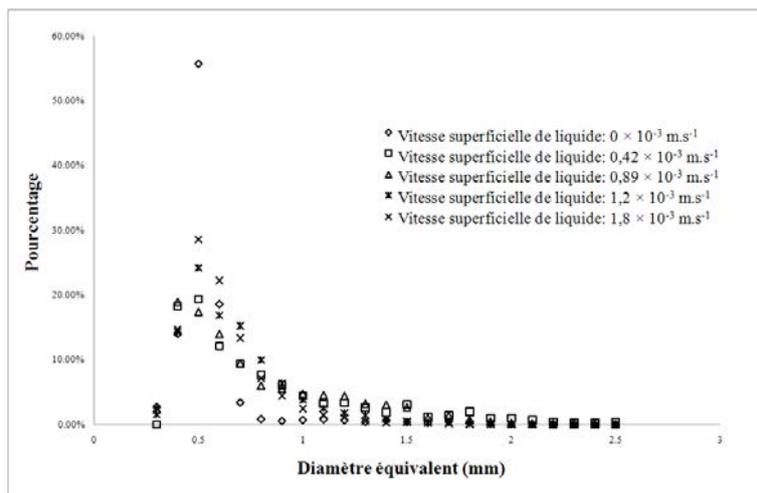
Fig. P. 1. Montage du réacteur IC modifié.

En effet, le réacteur utilisé ici est à recirculation externe et non interne. Le réacteur est fabriqué en plexiglas par l'atelier mécanique du laboratoire LRGP (Laboratoire Réactions et Génie des Procédés). Un distributeur de gaz est placé au fond du réacteur pour alimenter le

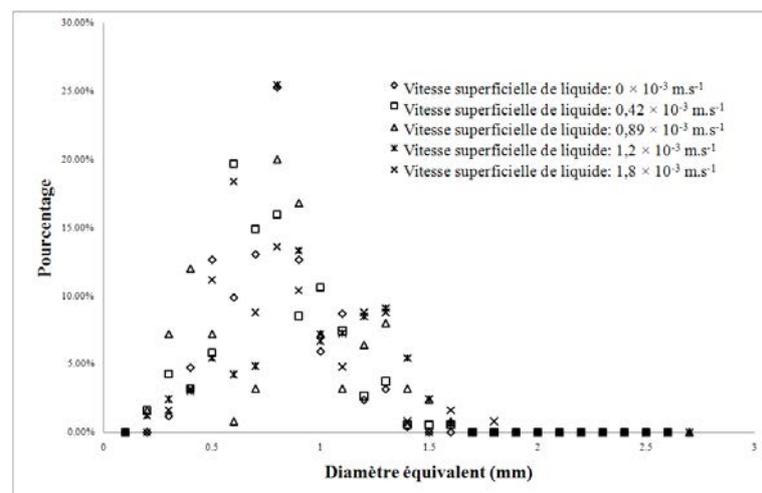
réacteur en air ou en azote etc., afin de simuler la présence de biogaz produit par les boues granulaires.

Les expériences qui seront conduites en maquette froide permettront de mieux comprendre le comportement hydrodynamique du réacteur pilote et d'établir à terme un modèle hydrodynamique entre les vitesses de liquide (recirculation dans la descente et dans le premier étage) et le taux de rétention de gaz présent dans le "riser" et le premier étage.

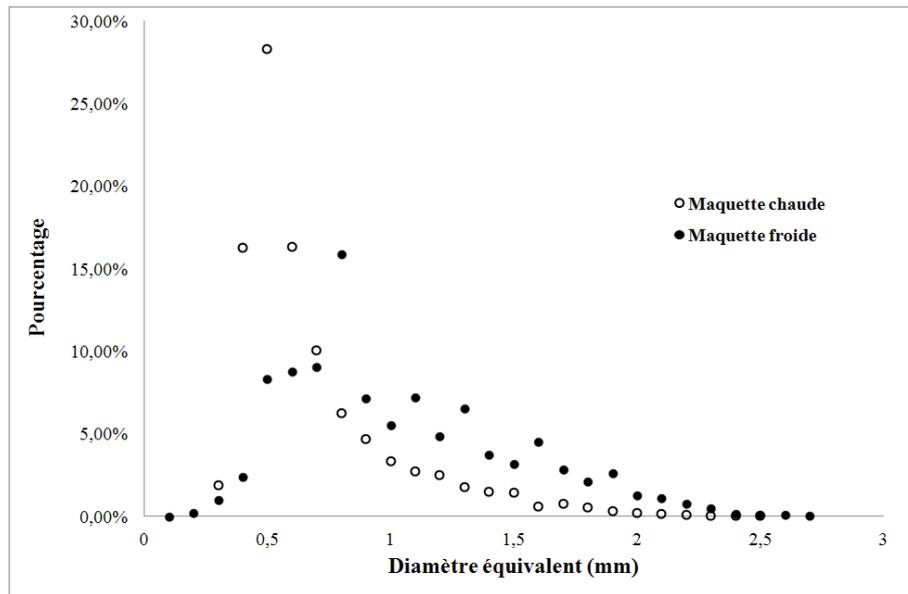
Pour vérifier si les tailles de bulles obtenues avec le distributeur de gaz en maquette froide sont proches de la réalité, donc du même ordre de grandeur que celles rencontrées dans le bioréacteur à l'échelle méso et le réacteur industriel en présence de réaction anaérobie, des mesures de distributions de taille de bulles ont été effectuées. Les vitesses superficielles de gaz et de liquide utilisées sont choisies à partir des données industrielles. Les résultats reportés sur la figure P. 2 montrent que les diamètres de bulles moyens mesurés en maquette froide sont relativement proches de ceux obtenus en maquette chaude.



(a).



(b).



(c).

Fig. P. 2. Distribution de taille de bulles pour différentes vitesses superficielles de liquide. (a). Maquette chaude ; (b). Maquette froide ; (c). Comparaison de la distribution moyenne.

Ainsi, ce distributeur pourra être utilisé en maquette froide. Les vitesses de liquide (recirculation et dans le premier étage) et les taux de rétention de la phase gazeuse devront être mesurés d’abord en diphasique G-L puis en triphasique G-L-S en fonction du débit de gaz afin d’établir si possible un modèle hydrodynamique. Un exemple de champ de vitesse de liquide dans la recirculation et le premier étage est montré sur la figure P. 3.

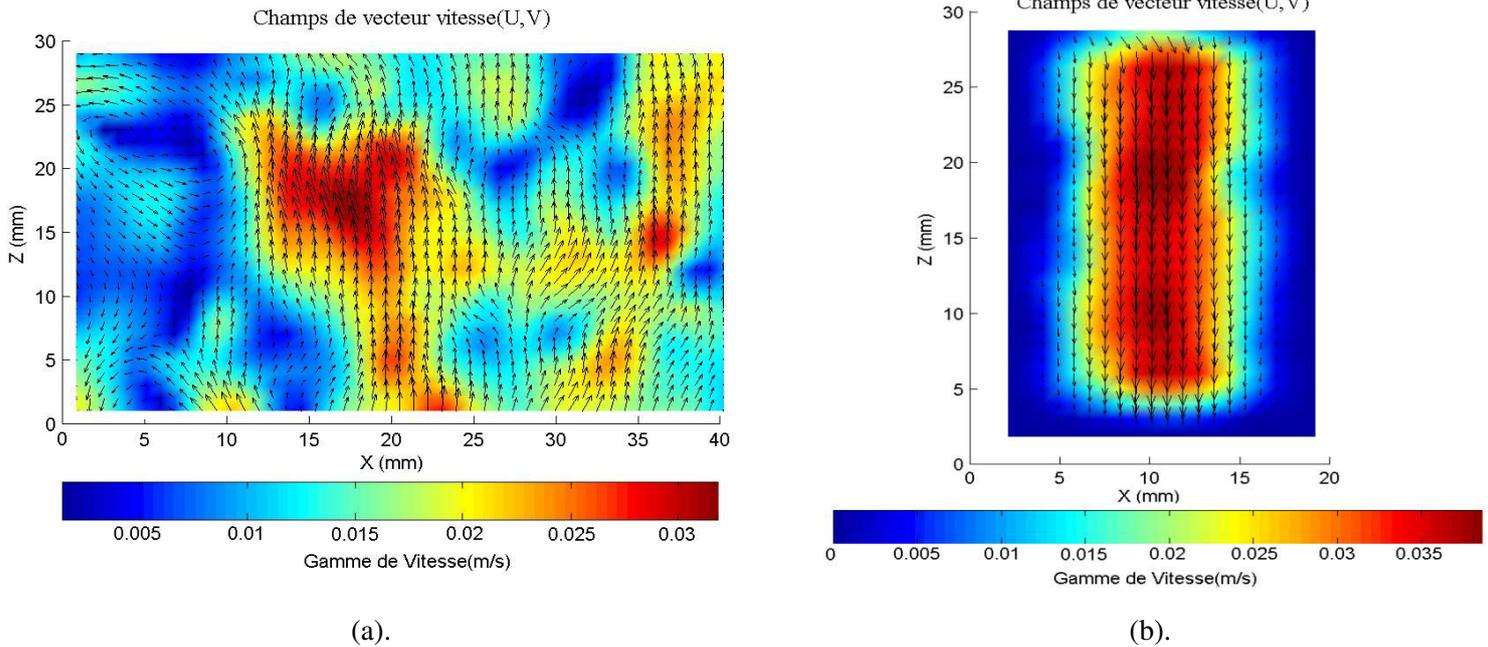


Fig. P.3. Champs de vecteur vitesse. (a). Dans le premier étage ; (b). Dans la Recirculation.

Pour contourner le problème d'opacité du réacteur en maquette chaude avec des granules de boue, des mesures de champs de vitesses doivent également être envisagées en maquette froide afin de vérifier la relation entre le débit de biogaz produit en maquette chaude et la vitesse de cisaillement exercée sur les granules de boue. Ces débits de production de biogaz seront évidemment déterminés en maquette chaude pour différentes vitesses de liquide et concentrations DCO. Enfin, l'influence de la concentration en boues devra être étudiée.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

AEAG. 2001. *La digestion anaérobie des boues urbaines, état des lieux, état de l'art*. Toulouse, Agence de l'Eau Adour Garonne, pp. 36.

Ahn Y.H. 2000. *Physicochemical and microbial aspects of anaerobic granular pellets*. J. Environ. Sci. Health., 9, pp. 1617 - 1635.

Ahn Y.H. 2002. *Physicochemical characterization of UASB sludge with different size distribution*. Environ. Technol., 23, pp. 889 - 897.

Aivasidis A., Wandrey C. 1988. *Recent developments in process and reactor design for anaerobic wastewater treatment*. Water Sci. Technol., 20(1), pp. 211 - 218.

Alphenaar P.A. 1994. *Anaerobic granular sludge: characterization and factors affecting its functioning*. Ph.D. Thesis. Agricultural University Wageningen, Netherlands.

Alves M., Cavaleiro A.J., Ferreira E.C., Amaral A.L., Mota M., da Motta M., Vivier H., Pons M.N. 2000. *Characterization by image analysis of anaerobic sludge under shock conditions*. Water Sci. Technol., 41(12), pp. 207 - 214.

Angenent L.T., Banik G.C., Sung S.W. 2001. *Anaerobic migrating blanket reactor treatment of low-strength wastewater at low temperatures*. Water Environ. Res., 73, pp. 567 - 574.

Arcand Y., Guitot S.R., Desrochers M., Chavarie C. 1994. *Impact of the reactor hydrodynamics and organic loading on the size and activity of anaerobic granules*. Chem. Eng. J., 56, pp. 23 - 35.

Batstone D.J., Keller J. 2001. *Variation of bulk properties of anaerobic granules with wastewater type*. Water Res., 35(7), pp. 1723 - 1729.

Batstone D.J., Keller J., Blackall L.L. 2004. *The influence of substrate kinetics on the microbial community structure in granular anaerobic biomass*. Water Res., 38, pp. 1390 - 1404.

Begovich J.M., Watson J.S. 1978. *An electroconductivity technique for the measurements of axial variation of holdups in three phase fluidized beds*. A.I.Ch.E. Journal, 24(2), pp. 351 - 354.

Bhatti Z.I., Furukawa K., Fujita M. 1995. *Comparative composition and characteristics of methanogenic granular sludges treating industrial wastes under different conditions*. J. Ferment. Bioeng., 79(3), pp. 273 - 280.

Bitton G. 1999. *Wastewater microbiology*. New York: Wiley-Liss.

Bonnier S. 2008. *Etat de la valorisation du biogaz sur site de station d'épuration en France et en Europe*. Synthèses techniques en gestion de l'eau, AgroParisTech.

Boulenger P., Gallouin Y. 2009. *Biological anaerobic treatment of industrial effluents*. Technologies de l'eau, (W3), pp. G1305.1 - G1305.27.

Bujoczeh G., Oleszkiewicz J., Sparling R., Cenkowski S. 2000. *High solid anaerobic digestion of chicken manure*. Journ. Agric. Engng. Res., 71, pp. 51 - 60.

Bu'lock J., Kristiansen B. 1987. *Basic Biotechnology*. Academic Press. Londres.

Chen J., Lun S.Y. 1993. *Study on mechanism of anaerobic sludge granulation in UASB reactors*. Water Sci. Technol., 28(7), pp. 171 - 178.

Chen S.J., Li C.T., Shieh W.K. 1988. *Anaerobic fluidized bed treatment of an industrial wastewater*. J. Water Pollut. Control. Fed., 60(10), pp. 1826 - 1832.

Chou H.H., Huang J.S., Hong W.F. 2004. *Temperature dependency of granule characteristics and kinetic behavior in UASB reactors*. J. Chem. Technol. Biot., 79, pp. 797 - 808.

Coussot P., Grossiord J.L. 2001. *Comprendre la rhéologie de la circulation du sang à la prise du béton*. Edition EDP SCIENCES.

Dafonchio D., Thaveesri J., Verstraete W. 1995. *Contact angle measurement and cell hydrophobicity of granular sludge from upflow anaerobic sludge bed reactors*. Appl. Environ. Microb., 61, pp. 3676 - 3680.

De Zeeuw W.J. 1987. *Granular sludge in UASB reactors*. In: Lettinga G, Zehnder AJB, Grotenhuis JTC, Hulshoff Pol LW. (eds), *Granular anaerobic sludge*. Microbiology and technol., Pudoc, Wageningen, Netherlands, pp. 132 - 45.

Dietrich N., Poncin S., Pheulpin S., Li H.Z. 2008. *Passage of a Bubble Through a Liquid–Liquid Interface*. A.I.Ch.E. Journal, 54(3), pp. 594 - 600.

Dolfing J. 1987. *Microbiological aspects of granular methanogenic sludge*. Ph.D. Thesis. Agricultural University Wageningen, Netherlands.

Driessen W., Habets L.H.A., Vereijken T. 1997. *Novel Anaerobic and Aerobic process to meet strict effluent plant design requirements*. Ferment. 10(4), pp. 148 - 157.

Driessen W., Vereijken T. 2003. *Recent development in biological treatment of brewery effluent*. Proceedings of the Institute and Guild of Brewery Convention, Zambia, pp. 268 - 376.

Driessen W., Yspeert P. 1999. *Anaerobic treatment of low medium and high strength effluent in the agro industry*. Water Sci. Technol., 40(8), pp. 221 - 228.

Dubourguier H.C., Prensier G., Albagnac G. 1987. *Structure and microbial activities of granular anaerobic sludge*. In Lettinga G., Zehnder A.J.B., Grotenhuis J.T.C., Hulshoff Pol L.W. (eds), *Granular anaerobic sludge*. Microbiology and technol., Pudoc, Wageningen, Netherlands, pp. 18 - 33.

Ehlinger F., Escoffier Y., Couderc J., Moletta R. 1994. *Development of an automatic control system for monitoring an anaerobic fluidized bed*. Water Sci. Technol., 29(10/11), pp. 289 - 298.

Fan L. 1989. *Gas-liquid-solid fluidization engineering*. Butterworths Series in Chemical Engineering.

Fang H.H.P., Chui H.K., Li Y.Y. 1995. *Effect of degradation kinetics on the microstructure of anaerobic biogranules*. Water. Sci. Technol., 32(8), pp.165 - 172.

Forster C.F. 1981. *Preliminary studies on the relationship between sewage sludge viscosities and the nature of the surfaces of the component particules*. Biotechnol. Lett., 3(12), pp. 707 - 712.

Frédéric S., Lugardon A. 2007. *Méthanisation des effluents industriels liquides*. Génie des procédés, JB5, pp. J3943.1 - J3943.13.

Fu T.T., Ma Y.G., Funfschilling D., Li H.Z. 2009. *Bubble formation and breakup mechanism in microfluidic flow-focusing device*. Chem. Eng. Sci., 64, pp. 2392 - 2400.

Ghangrekar M.M., Asolekar S.R., Joshi S.G. 2005. *Characteristics of sludge developed under different loading conditions during UASB reactor start-up and granulation*. Water Res., 39, pp. 1123 - 1133.

Gonzalez J.S., Rivera A., Borja R., Sanchez E. 1997. *Influence of organic volumetric loading rate, nutrient balance and alkalinity: COD ratio on anaerobic sludge granulation of a UASB reactor treating sugar cane molasses*. Int. Biodeter. Biodegr., 41, pp. 127 - 131.

Grasius M.G., Iyengar L., Venkobachar C. 1997. *Anaerobic biotechnology for the treatment of wastewaters: a review*. J. Sci. Ind. Res., 56, pp. 385 - 397.

Grotenhuis J.T.C., Smit M., Plugge C.M., Yuansheng X., van Lammeren A.A.M., Stams A.J.M., Zehnder A.J.B. 1991. *Bacteriological composition and structure of granular sludge adapted to different substrates*. Appl. Environ. Microb., 57, pp. 1942 - 1949.

Guiot S.R., Arcand Y., Chavarie C. 1992a. *Advantages of fluidization on granule size and activity development in upflow anaerobic sludge bed reactors*. Water Sci. Technol., 26(3/4), pp. 897 - 906.

Guiot S.R., Pauss A., Costerton J.W. 1992b. *A structured model of the anaerobic granule consortium*. Water Sci. Technol., 25(7), pp. 1 - 10.

Henze M., Harremoes P. 1983. *Anaerobic treatment of wastewater in fixed film reactors - a Literature Review*. Water Sci. Technol., 15, pp. 1 - 101.

Hickey R.F., Wu W.M., Veiga M.C., Jones R. 1991. *Start-up, operation, monitoring and control of high rate anaerobic treatment systems*. Water Sci. Technol., 24(8), pp. 207 - 255.

Hulshoff Pol L.W. 1989. *The phenomenon of granulation of anaerobic sludge*. Ph.D. Thesis. Agricultural University Wageningen, Netherlands.

Hulshoff Pol L.W., Castro Lopes S.I., Lettinga G., Lens P.N.L. 2004. *Anaerobic sludge granulation*. Water Res., 38, pp. 1376 - 1389.

Kalogo Y., Verstraeta W. 2001. *Enhancing the start up of a UASB reactor treating domestic wastewater by adding a water extract of Moringa oleifera seed*. App. Microbiol. Biot., 55(5), pp. 644 - 651.

Kosaric N., Blaszczyk R., Orphan L. 1990. *Factors influencing formation and maintenance of granules in an anaerobic sludge blanket reactors*. Water Sci. Technol., 22, pp. 275 - 282.

Kunii D., Levenspiel O. 1991. *Fluidization Engineering*. Ed. Butterworth-Heinemann. E.U.A., pp. 1 - 82.

Lens P., de Beer D., Cronenberg C., Ottengraf S., Verstraete W. 1995. *The use of microsensors to determine population distributions in UASB aggregates*. Water Sci. Technol., 31(1), pp. 273 - 280.

Lettinga G. 1995. *Anaerobic digestion and wastewater treatment systems*. Anton. Leeuw. Int. J. G., 67(1), pp. 3 - 28.

Lettinga G., Rebac S., Zeeman G. 2001. *Challenge of psychrophilic anaerobic wastewater treatment*. Trends Biotechnol., 19, pp. 363 - 370.

Lew B., Belavski M., Admon S., Tarre S., Green M. 2003. *Temperature effect on UASB reactor operation for domestic wastewater treatment in temperate climate regions*. Water Sci. Technol., 48, pp. 25 - 30.

Li H.Z., Frank X., Funfschilling D., Mouline Y. 2001. *Towards the understanding of bubble interactions and coalescence in non-Newtonian fluids: a cognitive approach*. Chem. Eng. Sci., 56, pp. 6419 - 6425.

Liu Y., Tay J.H. 2002. *The essential role of hydrodynamic shear force in the formation of biofilm and granular sludge*. Water Res., 36(7), pp. 1653 - 1665.

Liu Y., Xu H.L., Show K.Y., Tay J.H. 2002. *Anaerobic granulation technology for wastewater treatment*. World. J. Microb. Biot., 18, pp. 99 - 111.

Liu Y., Xu H.L., Yang S.F., Tay J.H. 2003. *The mechanisms and models for anaerobic granulation in upflow anaerobic sludge blanket reactor*. Water Res., 37, pp. 661 - 673.

Liu Y., Xu H.L., Yang S.F., Tay J.H., Liu Q.S., Qin L., Li Y. 2004. *Cell hydrophobicity is a triggering force of biogranulation*. Enzyme. Microb. Tech., 34, pp. 371 - 379.

Macario A.J., De Macario E.C. 2001. *The molecular chaperone system and other antistress mechanisms in archaea*. Front. Biosci., 1(6), pp. 262 - 283.

MacLeod F.A., Guiot S.R., Costerton J.W. 1990. *Layered structure of bacterial aggregates produced in an upflow anaerobic sludge bed and filter reactor*. Appl. Environ. Microb., 56(6), pp. 1598 - 1607.

Mahoney E.M., Varangu L.K., Cairns W.L., Kosaric N., Murray R. 1987. *The effect of calcium on microbial aggregation during UASB reactor start-up*. Water Sci. Technol., (19), pp. 249 - 260.

McHugh S., O'Reilly C., Mahony T., Colleran E., O'Flaherty V. 2004. *Anaerobic granular sludge bioreactor technology*. Environ. Res., 2, pp. 225 - 245.

Michaud S. 2001. *Etude hydrodynamique et biologique d'un procédé de méthanisation à biofilm: le réacteur à lit turbule inversé*. Ph.D. Thesis. L'Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse.

Midoux N. 1988. *Mécanique et rhéologie des fluides en génie chimique*. Technique et documentation (Lavoisier), 2^{ème} édition.

Moletta R., Torrijos M. 1999. *Traitement des effluents de la filière laitière*. Techniques de l'Ingénieur, pp. F1501.1 - F1501. 21.

Morgan J.W., Evison L.M., Forster C.F. 1991. *Internal architecture of anaerobic sludge granules*. J. Chem. Technol. Biot., 50, pp. 211 - 226.

Muroyama K., Fan L-S. 1985. *Fundamentals of gas-liquid-solid fluidization*. A.I.Ch.E. Journal, 31(1), pp. 1 - 34.

Mutombo T.D. 2004. *Internal circulation reactor: pushing the limits of anaerobic industrial effluents treatment technologies*. Proceedings of the 2004 Water Institute of Southern Africa (WISA) Biennial Conference.

Myska J., Svec J. 1994. *The distributive properties of a fluidized bed with biomass*. Water. Res., 28(7), pp. 1653 - 1658.

Nicolella C., van Loosdrecht M.C.M., Heijnen J.J. 2000. *Wastewater treatment with particulate biofilm reactors. Review article*. J. Biotechnol., 80, pp. 1 - 33.

Noyola A., Mereno G. 1994. *Granulation production from raw waste activated sludge*. Water Sci. Technol., 30(3), pp. 39 - 46.

O'Flaherty V., Lens P.N., de Beer D., Colleran E. 1997. *Effect of feed composition and upflow velocity on aggregate characteristics in anaerobic upflow reactors*. Appl. Microbiol. Biot., 47, pp. 102 - 107.

Paques. 2003. *Referential Manual*. Paques B.V., Balk, Netherlands.

Pereboom J.H.F., Vereijken T.L.F.M. 1994. *Methanogenic granule development in full scale internal circulation reactors*. Water Sci. Technol., 30, pp. 9 - 21.

Pereboom J.H.F. 1997. *Strength characterisation of microbial granules*. Water Sci. Technol., 36, pp. 141 - 148.

Quarmby J., Forster C.F. 1995a. *An examination of the structure of UASB granules*. Water Res., 29(11), pp. 2449 - 2454.

Quarmby J., Forster C.F. 1995b. *The physical characteristics of anaerobic granular sludges in relation to their internal architecture*. Anton. Leeuw. Int. J. G., 67, pp. 103 – 110.

Rajeshwari K.V., Balakrishnan M., Kansal A., Kusum Lata Kishore V.V.N. (2000). *State of the art of anaerobic digestion for industrial wastewater treatment*. Renew. Sust. Energ. Rev., 4, pp. 135 - 156.

Rocheleau S., Greer C.W., Lawrence J.R., Cantin C., Laramee L., Guiot S.R. 1999. *Differentiation of Methanosaeta concilii and Methanosarcina barkeri in Anaerobic Mesophilic Granular Sludge by Fluorescent In situ Hybridization and Confocal Scanning Laser Microscopy*. Appl. Environ. Microb., 65, pp. 2222 - 2229.

Rodriguez R.E., Meraz M., Macarie H., Monroy O. 2001. *Effects of the upflow liquid velocity on the granular sludge of an EGSB reactor*. Proc.9th World Congress on Anaerobic Digestion, Antwerpen, Belgium, Part2, pp. 579 - 581.

Saidi A., Abada B. 2007. *La biométhanisation : une solution pour un développement durable*. Revue des Energies Renouvelables, CER' 07 Oujda, pp. 31 - 35.

Schmidt J.E., Ahring B.K. 1996. *Granular sludge formation in upflow anaerobic sludge blanket (UASB) reactors*. Biotechnol. Bioeng., 36, pp. 109 - 114.

Schwarz A., Hammer J., Mösche M., Jordening H-J., Buchholz K., Reuss M. 1998. *Interactions between reaction engineering and fluid dynamics for an industrial scale fluidized bed reactor for anaerobic wastewater treatment*. Proc. Waste Decision, 98, pp. 24 - 27.

Seghezzi L., Zeeman G., Lier J.B.V., Hamelers H.V.M., Lettinga G. 1998. *A review: the anaerobic treatment of sewage in uasb and egsh reactors*. Bioresour. Technol., 65, pp. 175 - 190.

Singh K.S., Viraraghavan T. 2003. *Impact of temperature on performance, microbiological, and hydrodynamic aspects of UASB reactors treating municipal wastewater*. Water Sci. Technol., 48, pp. 211 - 217.

Stronach S., Rudd T., Lester J. 1986. *The influence of variable organic loading on the start-up of an anaerobic fluidised bed reactor*. Biotechnol. Lett., 8(7), pp. 521 - 524.

Tay J.H., Xu H.L., Teo K.C. 2000. *Molecular mechanism of granulation: I. H⁺ translocation – dehydration theory*. J. Environ. Eng-ASCE., 126, pp. 403 - 410.

Tay J.H., Yan Y.G.I. 1996. *Influence of substrate concentration on microrial selection and granulation during start-up of upflow anaerobic sludge blanket reactors*. Water Environ. Res., 68, pp. 1140 - 1150.

Tchobanoglous G., Burton F.L. 1991. *Wastewater Engineering, Treatment, Diposal and Reuse*. 3rd Edition, McGraw, Inc, USA, pp. 420 - 431.

Teo K.C., Xu H.L., Tay J.H. 2000. *Molecular mechanism of granulation. II: Proton translocating activity*. J. Environ. Eng-ASCE., 126, pp. 411 - 418.

Tou I., Igoud S., Touzi A. 2001. *Production de biométhane à partir des dejections animals*. Rev. Energ. Ren. : Production et valorisation - biomasse, pp. 103 - 108.

Turan M., Ozturk I. 1997. *Comparative evaluation of longitudinal dispersion of liquid in non-biological and anaerobic fixed film reactors*. Environ. Technol., 18 (1), pp. 45 - 53.

Van Loosdrecht M.C.M., Heijnen J.J. 1993. *Biofilm bioreactors for waste-water treatment*. Trends Biotechnol., 11, pp. 117 - 121.

Vanderhaegen B., Ysebaert E., Favere K., Vanwambeke M., Peeters T., Vanderlangenbergh V., Verstraete W. 1992. *Acidogenesis in relation to in reactor granule yield*. Water Sci. Technol., 25(7), pp. 21 - 30.

Vembu K., Tyagi R.D. 1990. *Fluidized bed reactor in wastewater treatment*. Wastewater treatment by immobilized cells. CRC press. Floride, pp. 253 - 265.

Villermaux J. 1992. *Génie de la réaction chimique. Conception et fonctionnement des réacteurs*. Lavoisier Tec & Doc., 2^{ème} édition.

Wauthelet M. 2003. *Traitement anaérobie des boues et valorisation du biogaz*. Séminaire International sur la réutilisation des eaux usées traitées et des sous-produits de l'épuration, Tunis, pp. 24 - 25.

Wu J., Lu Z.Y., Hu J.C., Feng L., Huag J.D., Gu X.S. 2006. *Disruption of Granules by Hydrodynamic Force in internal Circulation Anaerobic Reactor*. Water Sci. Technol., 54(9), pp 9 - 16.

Yu H.Q., Tay J.H., Fang H.H.P. 2001. *The role of calcium in sludge granulation during UASB reactor start-up*. Water Res., 35(4), pp. 1052 - 1060.

Zeikus J.G. 1982. *Microbial intermediary metabolism in anaerobic digestion*. In 1st International symposium on anaerobic digestion, Travemüde, pp. 23 - 35.

Zhou W., Imai T., Ukita M., Sekine M., Higuchi T. 2006. *Triggering forces for anaerobic granulation in UASB reactors*. Process biochem., 41, pp. 36 - 43.

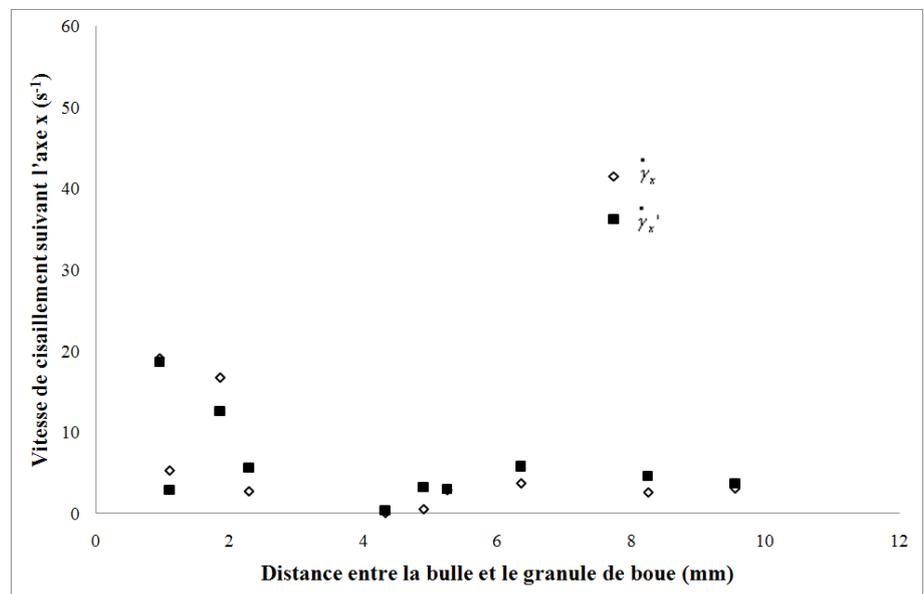
ANNEXES

ANNEXES

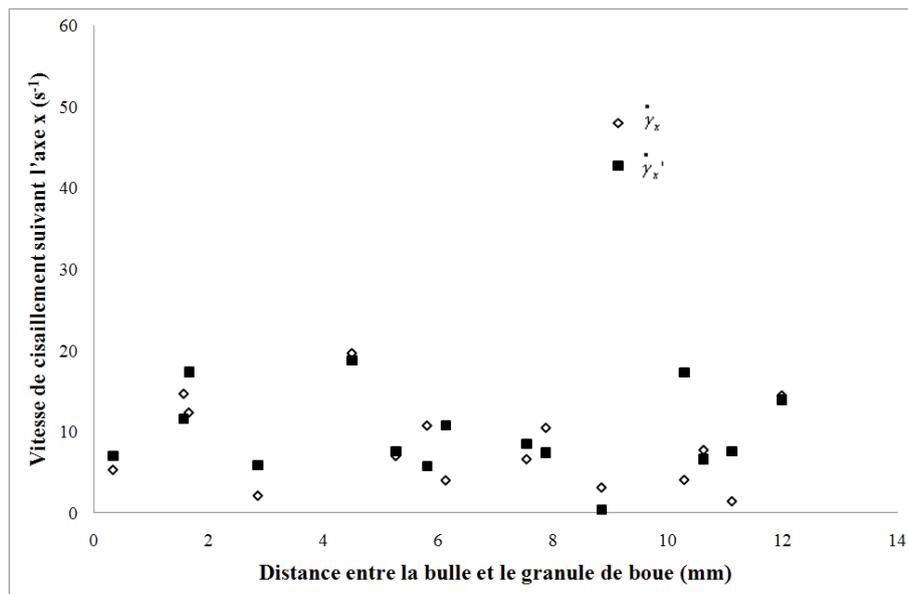
A1. Corrélation entre la vitesse de cisaillement suivant l'axe x et d_2 (d_2/d_1)

Les résultats relatifs à la vitesse de cisaillement suivant l'axe x en fonction de la distance bulle-granule sont reportés sur les figures suivantes. Les données de l'expérience 1 ont volontairement été écartées ici à cause de la faible quantité de granules de boue présents entre deux bulles en ascension. Ces vitesses de cisaillement sont estimées, pour chaque granule, à partir de deux vecteurs vitesse de liquide différents autour du granule afin d'éviter toute erreur possible quant au choix du vecteur vitesse de liquide à proximité de la particule. Ces vitesses de cisaillement suivant l'axe x sont appelées $\dot{\gamma}_x$ et $\dot{\gamma}_x'$.

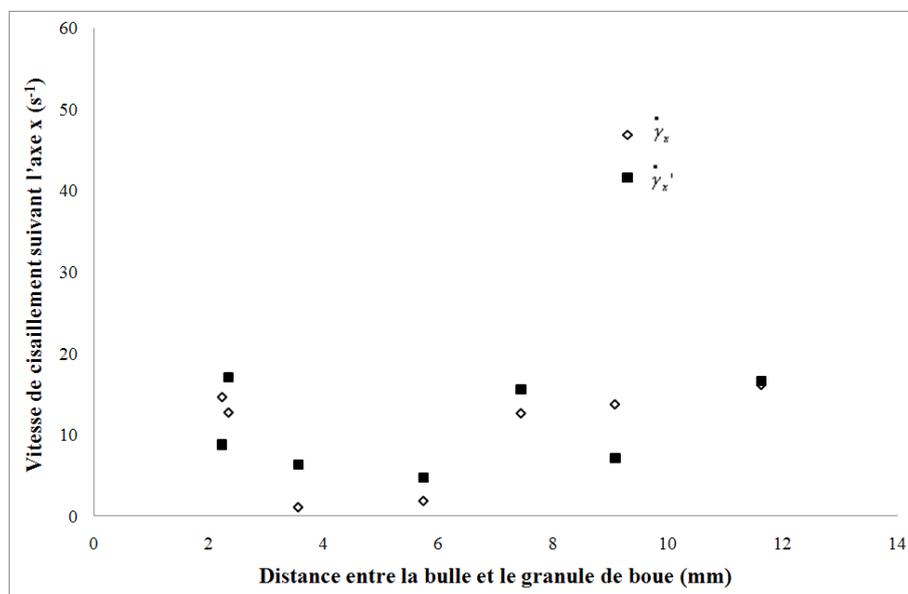
(a). Expérience 2 :
Distance entre deux bulles
 $d_1 = 28,78$ mm.



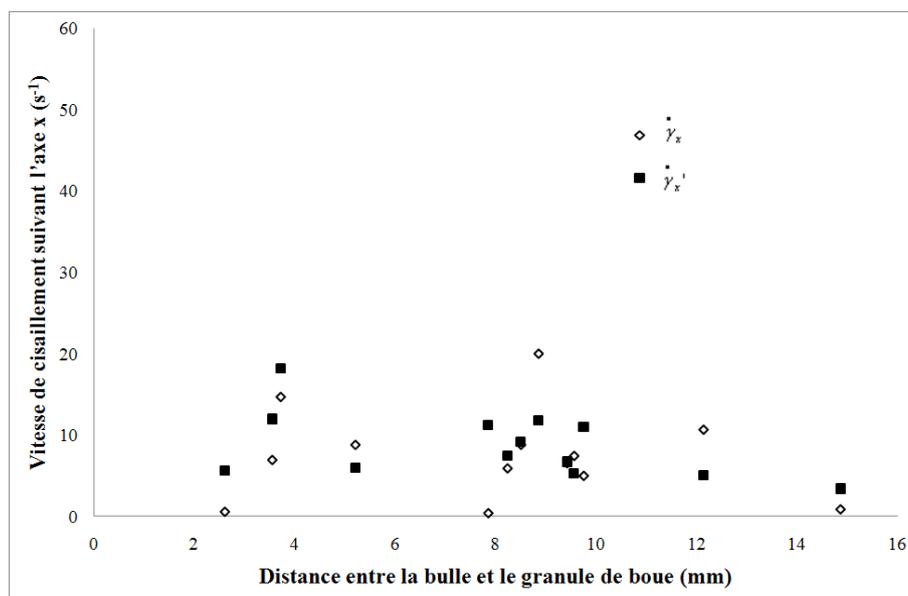
(b). Expérience 3 :
 Distance entre deux bulles
 $d_l = 27,43$ mm



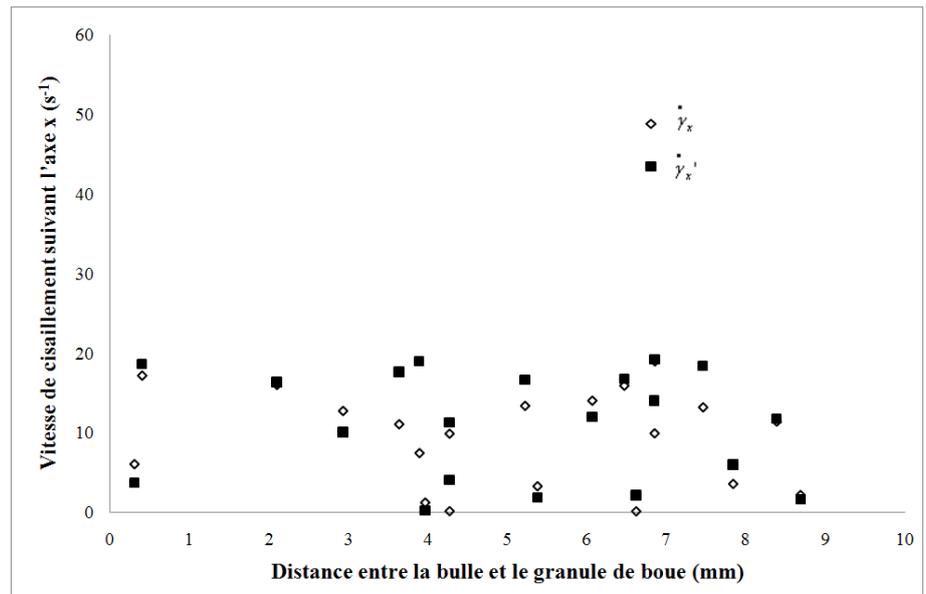
(c). Expérience 4 :
 Distance entre deux bulles
 $d_l = 24,16$ mm



(d). Expérience 5 :
 Distance entre deux bulles
 $d_l = 21,42$ mm



(e). Expérience 6 :
Distance entre deux bulles
 $d_1 = 18,93$ mm



(f). Expérience 7 :
Distance entre deux bulles
 $d_1 = 18,32$ mm

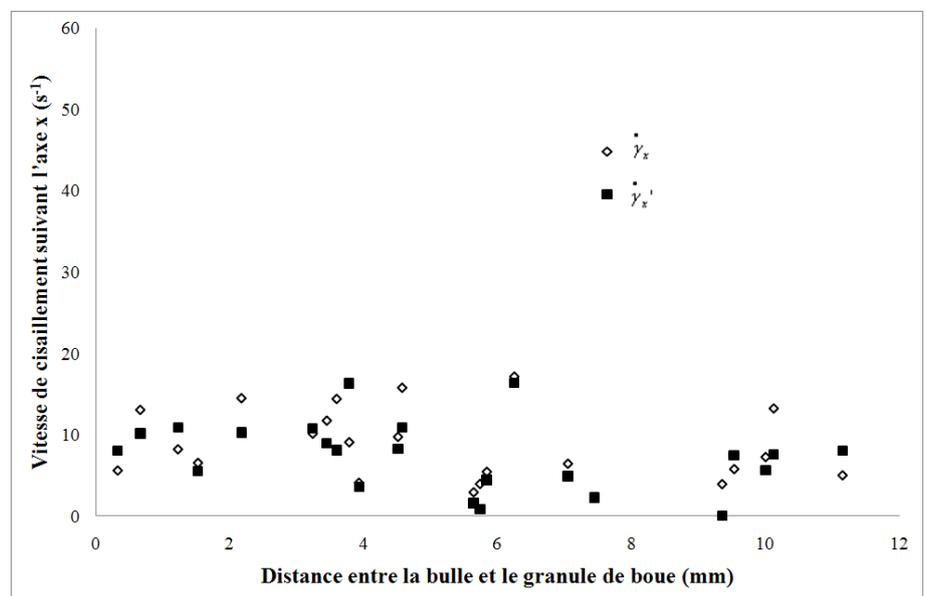


Fig. A. 1. Evolution de la vitesse de cisaillement suivant l'axe x en fonction de distance entre la bulle et le granule de boue d_2 , pour des valeurs de d_1 décroissantes.

Pour déterminer l'influence de cette distances d_2 et de la distance entre deux bulles successives d_1 sur la vitesse de cisaillement exercée localement sur le granule suivant l'axe x , cette dernière a été calculée, afin de minimiser les erreurs, en se basant sur le plus grand des deux vecteurs vitesse de liquide autour de la particule pour comparer les résultats obtenus dans les différentes expériences. La vitesse de cisaillement suivant l'axe x ainsi calculée pour

les différentes expériences est représentée en fonction du rapport des distances d_2/d_1 qui est dans tous les cas inférieur à l'unité (Fig. A. 2)

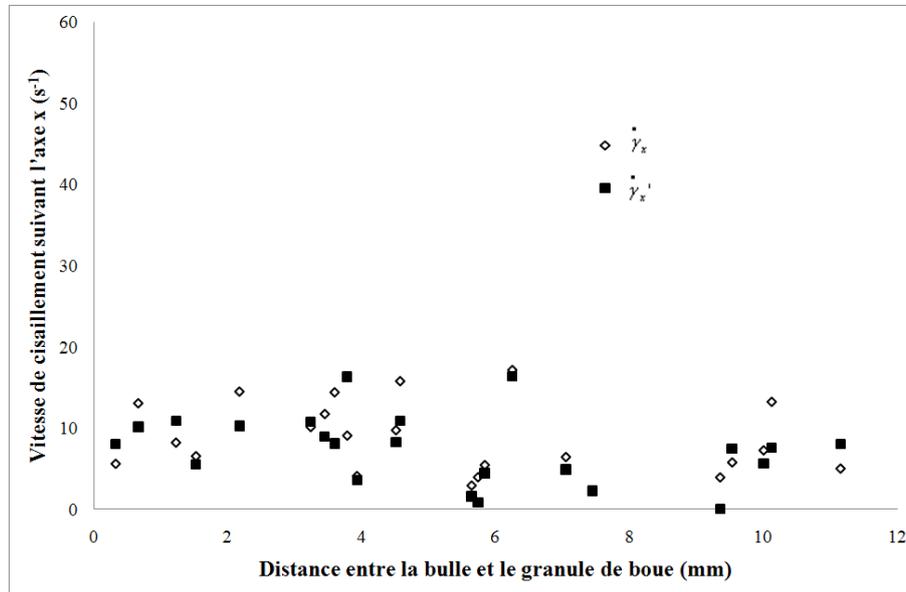


Fig. A. 2. Vitesse de cisaillement suivant l'axe x en fonction de d_2/d_1 pour des valeurs de d_1 différentes.

Afin de connaître globalement les influences du débit de gaz sur la vitesse de cisaillement suivant l'axe x . La vitesse de cisaillement moyenne suivant l'axe x exercée sur l'ensemble des granules de boue situés dans le sillage des bulles est reportée sur la figure suivante (Fig. A. 3) et une tendance stable est obtenue.

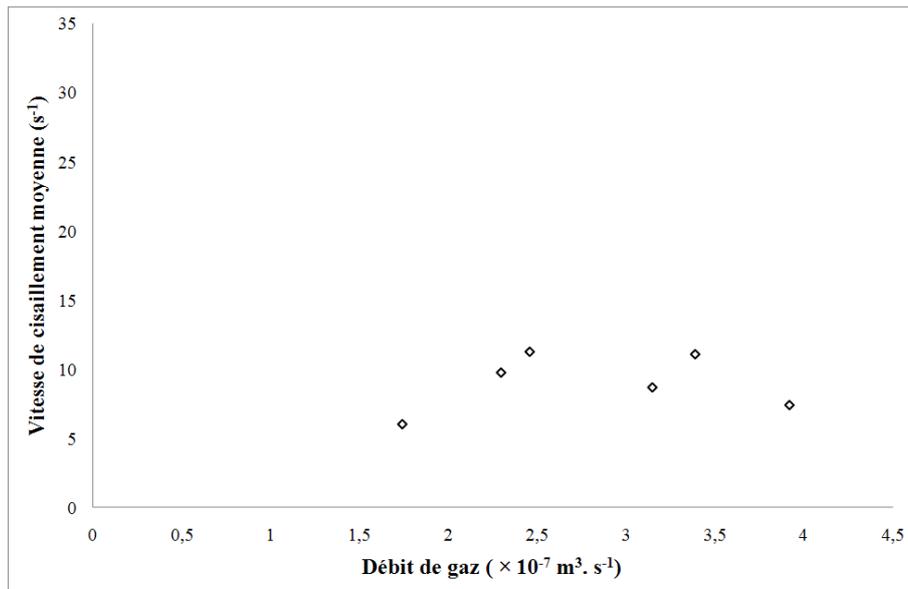
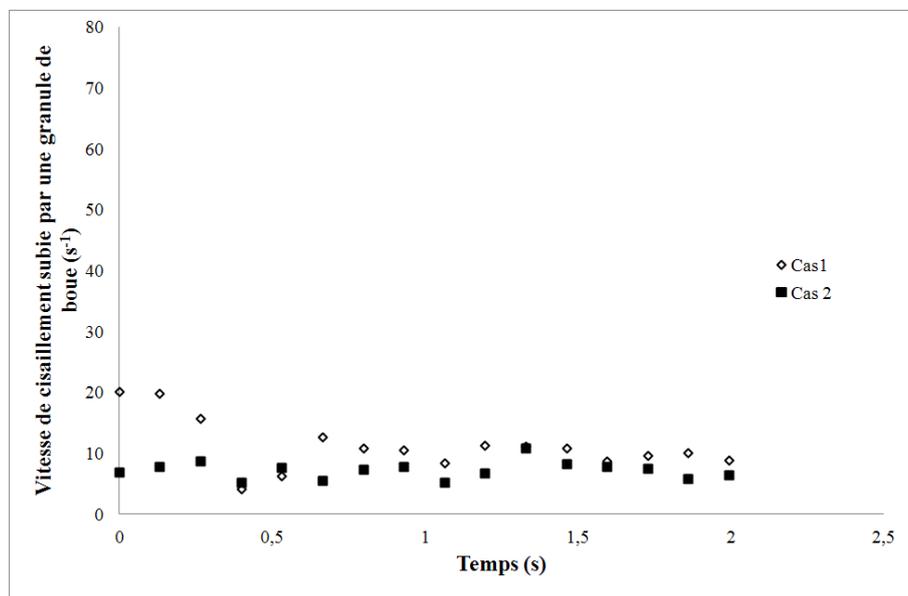
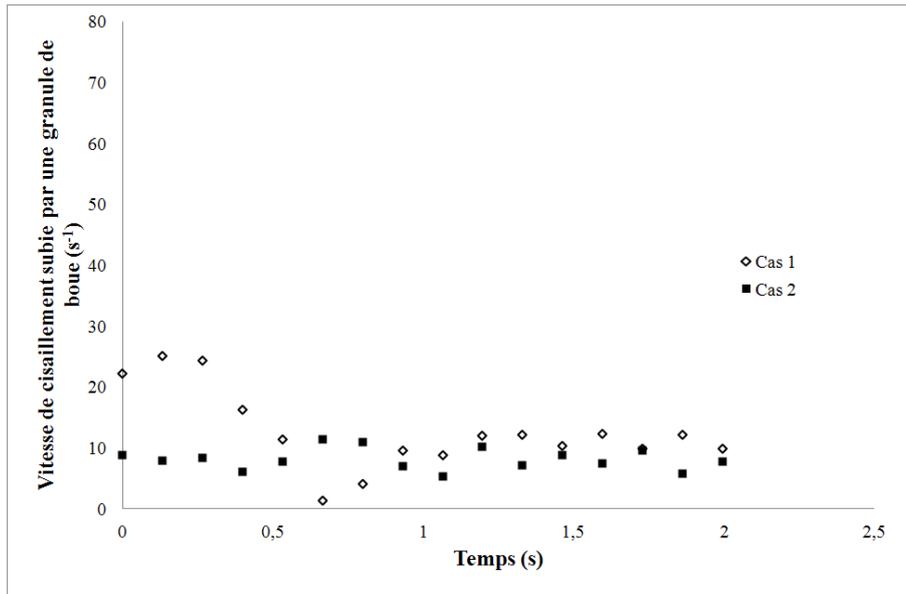


Fig. A. 3. Corrélation entre la vitesse de cisaillement moyenne exercée sur tous les granules situés dans le sillage des bulles suivant l'axe x et le débit de gaz.

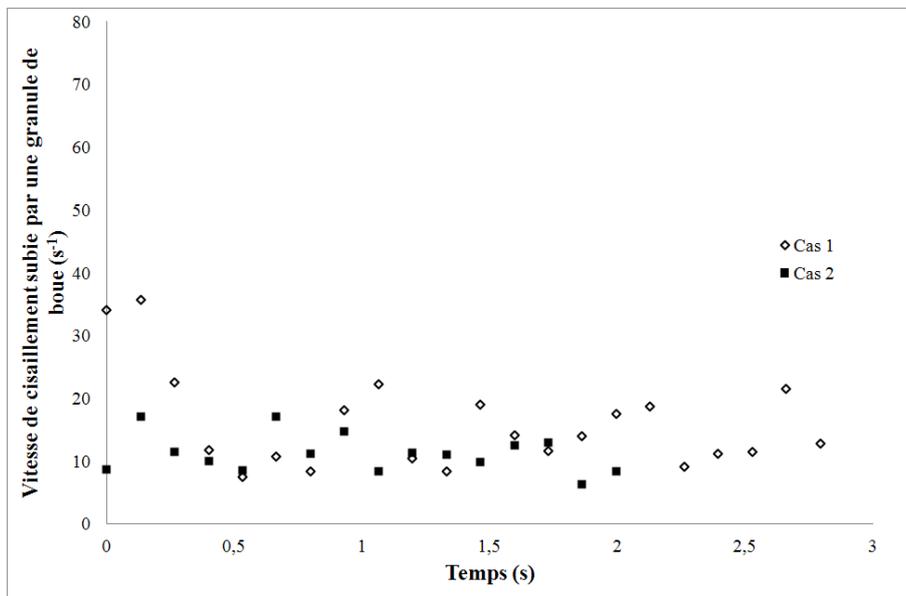
A2. Vitesse de cisaillement exercée sur un granule de boue à différentes concentration DCO en fonction du temps



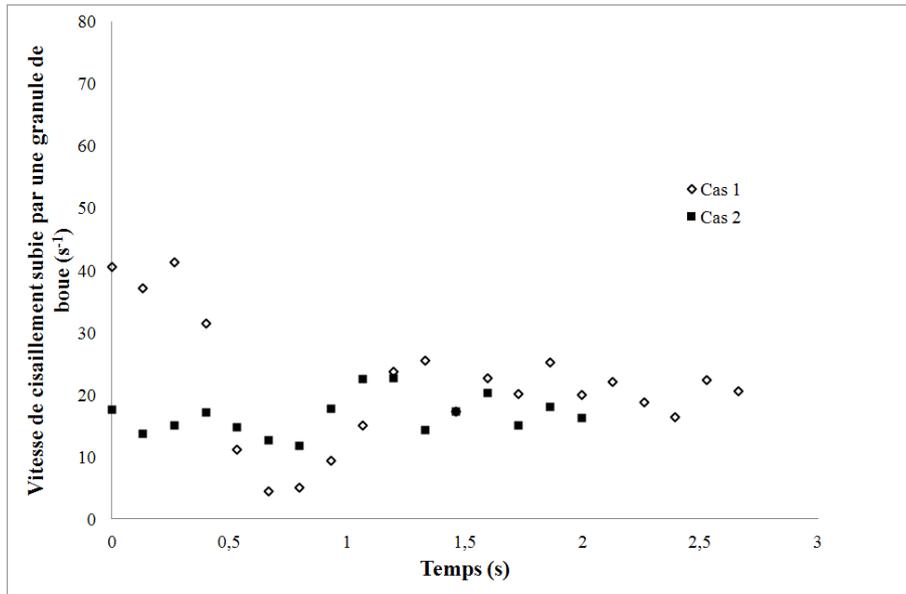
(a). Concentration DCO = 531 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$



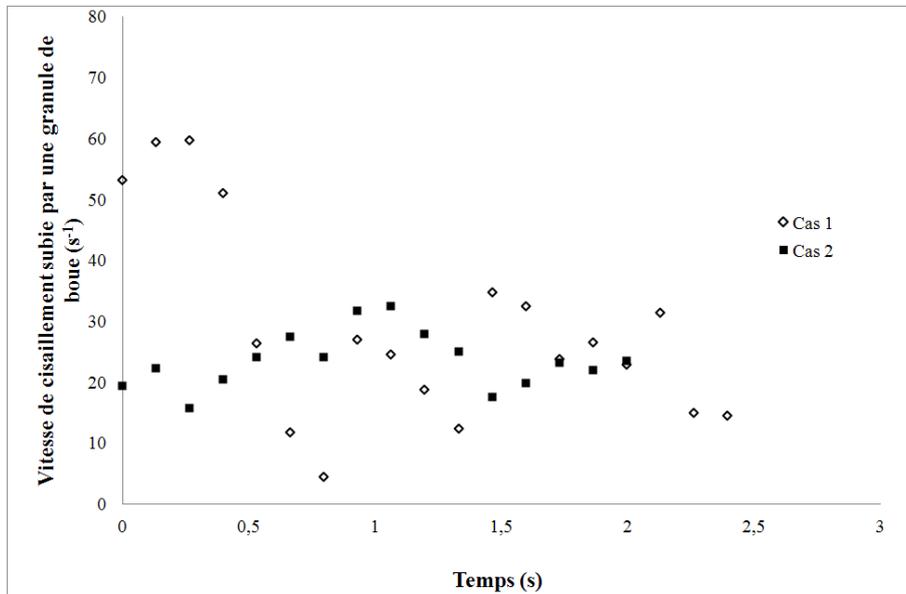
(b). Concentration DCO = 1586 mg.L⁻¹



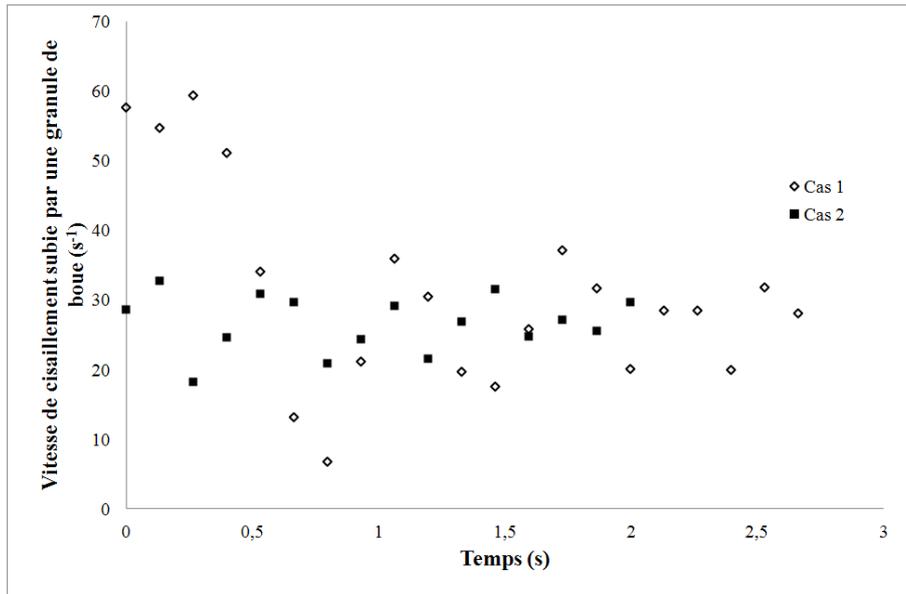
(c). Concentration DCO = 3202 mg.L⁻¹



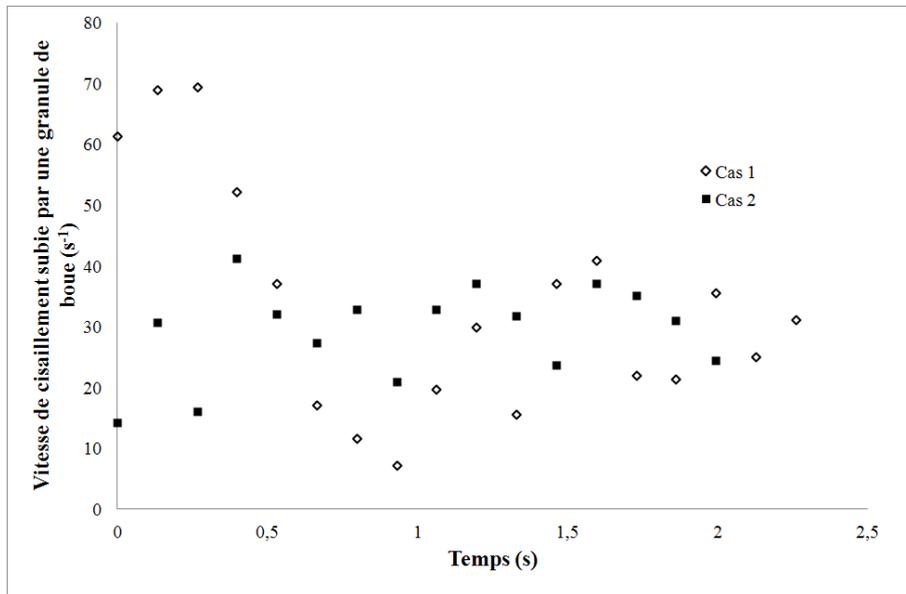
(d). Concentration DCO = 6033 mg.L⁻¹



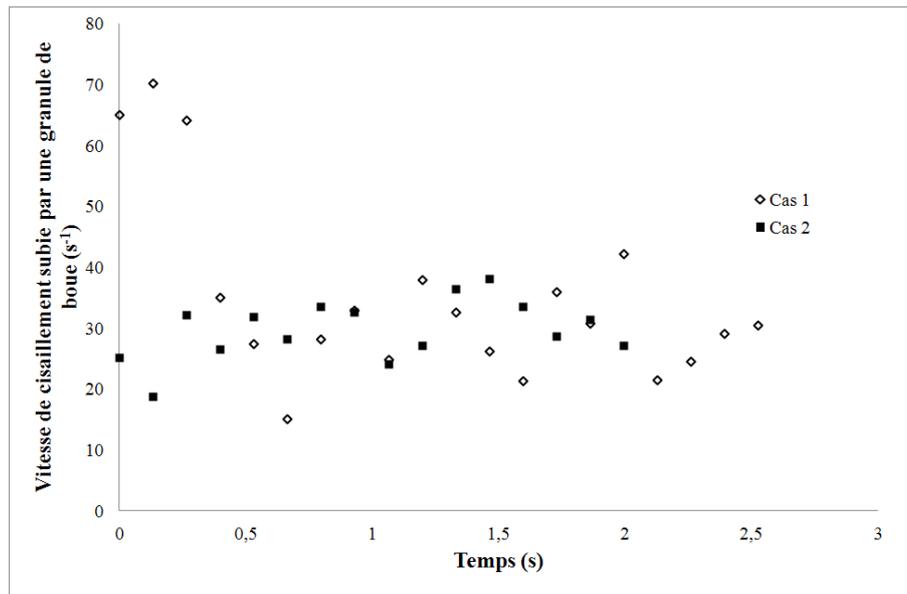
(e). Concentration DCO = 9146 mg.L⁻¹



(f). Concentration DCO = 13124 mg.L⁻¹



(g). Concentration DCO = 17221 mg.L⁻¹



(h). Concentration DCO = 20318 mg.L⁻¹

Fig. A. 4. Vitesse de cisaillement exercée sur un granule de boue à différentes concentrations DCO en fonction du temps.



AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

oOo

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Madame Dominique TOYE, Professeur, Institut de chimie, Liège, Belgique

Monsieur Renaud ESCUDIE, Chargé de Recherche, INRA - LBE, Narbonne

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur ZHANG Jin Bai

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

"Procédé de Traitement Anaérobie des Boues et de Valorisation du Biogaz. "

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Intitulé du doctorat : « **Génie des Procédés et des Produits** »

Fait à Vandoeuvre, le 6 Décembre 2011

Le Président de l'I.N.P.L.,

F. LAURENT



Procédé de traitement anaérobie des boues et de valorisation du biogaz

Résumé

Ce travail vise à développer une approche originale à micro et à méso-échelle pour étudier divers phénomènes et intensifier les performances du réacteur anaérobie multiphasique. A méso-échelle, l'accent est mis sur l'efficacité de la production de biogaz dans un réacteur anaérobie 2D sous différentes conditions hydrodynamiques ainsi qu'à différentes concentrations de substrat. Puis, dans un dispositif microfluidique transparent, une seule granule de différentes tailles a été utilisée sous différentes conditions d'exploitation. Les effets des différentes conditions hydrodynamiques et des concentrations de substrat associés à la taille et la densité des granules de boues sur la production de biogaz ont été étudiés.

Mots clés: réacteur anaérobie, bulle de biogaz, granule de boue, PIV, micro-PIV.

Process of anaerobic treatment of sludge and biogas valorization

Abstract

The present work is focused on developing an original micro to mesoscale approach to investigate various phenomena and then to intensify the performance of such a complex multiphase reactor. At mesoscale, the emphasis is given to the interactions between granular sludge particles as well as the biogas production efficiency in a 2D reactor under various hydrodynamic conditions at different concentrations of substrate. Then, within the microdevices, a single sludge particle of various sizes was used under different operating conditions such as superficial liquid velocity and concentration of substrate. In particular, the effect of different hydrodynamic conditions and concentration of substrate associated with the granular sludge particles' size and density on the biogas production was studied.

Keywords: anaerobic reactor, biogas bubble, granular sludge, PIV, micro-PIV.