



**HAL**  
open science

# Développement d'outils pour l'optimisation des conditions hydrodynamiques en filtration tangentielle

Manuel Dornier

► **To cite this version:**

Manuel Dornier. Développement d'outils pour l'optimisation des conditions hydrodynamiques en filtration tangentielle. Génie des procédés. École Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires, 1994. Français. NNT: . tel-03232561v2

**HAL Id: tel-03232561**

**<https://theses.hal.science/tel-03232561v2>**

Submitted on 21 May 2021

**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.

# THESE

présentée à

**l'Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires**

pour l'obtention du grade de

**DOCTEUR**

**Spécialité Génie des Procédés**

par

**Manuel DORNIER**

Ingénieur I.S.I.M.

## **DEVELOPPEMENT D'OUTILS POUR L'OPTIMISATION DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES EN FILTRATION TANGENTIELLE**

Soutenue le 29 Novembre 1994 devant le Jury composé de :

M <sup>r</sup> P. AIMAR (Directeur de Recherche CNRS)	Examineur
M <sup>me</sup> M. DECLoux (Maître de Conférences)	Examineur
M <sup>r</sup> F. RENE (Chargé de Recherche INRA)	Rapporteur
M <sup>r</sup> G. RIOS (Professeur)	Examineur
M <sup>r</sup> B. TARODO DE LA FUENTE (Professeur)	Rapporteur
M <sup>r</sup> G. TRYSTRAM (Professeur)	Président

Travail réalisé au Département Génie Industriel Alimentaire de l'E.N.S.I.A.

## RESUME

Pour chaque nouvelle application de filtration tangentielle, l'optimisation des conditions hydrodynamiques nécessite une campagne d'essais sur pilote. Dans ce contexte, quelques méthodes, basées sur l'utilisation de modèles de représentation, ont été développées pour établir une zone optimale de fonctionnement fiable à la suite d'un minimum d'essais expérimentaux. Ces outils d'optimisation ont été validés sur des unités pilotes automatisées avec et sans circulation de filtrat lors de la clarification de sirops de sucre roux de canne et de solutions de gomme arabique par micro ou ultrafiltration. L'utilisation de plans d'expériences associés à un traitement de données par régression linéaire a tout d'abord permis d'optimiser les conditions hydrodynamiques à un temps de référence. Pour cela, environ 10 essais expérimentaux suffisent. Après avoir proposé un nouvel algorithme d'apprentissage pour les perceptrons multicouches, les potentialités des réseaux de neurones pour la modélisation dynamique du colmatage membranaire ont été explorées, aussi bien pour des filtrations à conditions constantes que pour des filtrations à conditions variables dans le temps. La capacité de ces modèles non linéaires à représenter les cinétiques de colmatage en intégrant l'effet des conditions opératoires a été démontrée. Ceci nous a notamment permis de proposer une méthode d'optimisation à un temps de référence ne nécessitant que 5 essais pilote. Les résultats obtenus sont prometteurs et ouvrent de nombreuses perspectives en contrôle-commande. Signalons enfin que les résultats, tous obtenus sur des produits industriels, ont permis de mieux appréhender le procédé de filtration tangentielle, en particulier dans le domaine de la microfiltration.

**Mots clefs:** clarification - colmatage - conditions hydrodynamiques - gomme arabique - microfiltration tangentielle - modélisation - optimisation - plan d'expériences - régression linéaire multiple - réseaux de neurones - Simplex - sucre roux de canne - système avec circulation de filtrat - ultrafiltration tangentielle.

## DEVELOPMENT OF OPTIMIZATION TOOLS FOR HYDRODYNAMIC CONDITIONS IN CROSSFLOW FILTRATION

### Abstract

In crossflow filtration, whenever a new application is considered, the optimization of hydrodynamic conditions requires pilot experiments. Tools based on the utilization of descriptive models leading to the best operating conditions after a minimum of experimental trials have been developed. These optimization tools have been tested on automatic pilot plants for clarification of raw cane sugar sirups and arabic gum solutions by micro or ultrafiltration, with or without cocurrent permeate flow. Firstly, hydrodynamic conditions have been optimized at a reference time using experimental designs combined to linear multivariable regression. Only 10 experimental tests were necessary for the optimization. Secondly, neural networks potentials have been prospected for dynamic modeling of filtrations at constant and variable operating conditions. It turned out that these nonlinear models were able to represent membrane fouling kinetics in different hydrodynamic conditions. To optimize the process at a reference time, only 5 pilot trials were needed. Neural networks offer overall promising perspectives in automatic control applied to microfiltration. Finally, pilot experiments, which were all carried out on industrial products, allowed a better understanding of the process.

**Key words:** arabic gum - clarification - cocurrent permeate flow system - crossflow microfiltration - crossflow ultrafiltration - experimental design - fouling - hydrodynamic conditions - linear multivariable regression - modeling - neural networks - optimization - raw cane sugar - Simplex.

*A Valérie.*

*A mes parents.*

*A mes familles franc-comtoise et ardéchoise.*



**Ce travail a fait l'objet :**

**1. du contrat de collaboration n° 7B8158/AEE1515**

**entre**

**l'Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires**

**et**

**ELECTRICITE DE FRANCE**

**Direction des Etudes et Recherches**

**Département Applications de l'Electricité dans l'Industrie**

**Centre des Renardières**

**Route de Sens**

**Ecuelles**

**77250 Moret-sur-Loing**

**2. du contrat d'allocataire de recherche n° 91001**

**MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR**

**ET DE LA RECHERCHE**

**Rectorat de l'Académie de Versailles**

**Division de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche**

**Esplanade Grand Siècle**

**78017 Versailles Cedex**

## REMERCIEMENTS

Au terme de ce travail, je tiens à exprimer ma plus sincère gratitude à Martine DECLoux, Maître de Conférences à l'E.N.S.I.A., qui m'a proposé ce sujet de recherche au sein du département G.I.A. de l'E.N.S.I.A. et qui a supervisé au quotidien ces trois années de thèse. Nos nombreux échanges scientifiques, son soutien toujours présent et sa constante sympathie ont largement contribué au bon déroulement de cette étude. Sa rigueur et son profond sens de l'esprit d'équipe m'ont permis de vivre une expérience particulièrement enrichissante aussi bien sur le plan professionnel que sur le plan humain.

Je remercie Gilles TRYSTRAM, Professeur à l'E.N.S.I.A. pour son précieux encadrement, ses nombreux conseils avisés et sa créativité scientifique qui ont été essentiels à maintes reprises.

Je suis très reconnaissant à André LEBERT, Chargé de Recherche I.N.R.A. initialement à l'E.N.S.I.A. puis à la station de Theix, pour sa grande disponibilité et ses indéniables qualités pédagogiques. En particulier, je tiens à souligner l'importance capitale de sa participation dans l'élaboration du contrat de collaboration avec E.D.F.

Je souhaite également remercier ici Michel BENNASAR, Maître de Conférences à l'Université de Montpellier II, avec qui j'ai eu la chance de travailler durant les deux années précédant cette thèse lors de mon service national en coopération. Par son formidable enthousiasme aussi bien pour la recherche que pour l'enseignement, il a su me conforter dans mon choix d'une carrière dans l'enseignement-recherche. Je ne saurais oublier son dynamisme scientifique et ses nombreux encouragements. Je lui dois toute ma reconnaissance et lui renouvelle à cette occasion ma plus fidèle amitié.

Marie-Hélène LAURENT, Jacques AUDRAN et Sophie BRUNEAU, chercheurs au département Applications de l'Electricité dans l'Industries d'E.D.F., m'ont accordé leur confiance. J'espère avoir su répondre à leurs attentes et souhaite que la collaboration E.D.F. / E.N.S.I.A. se poursuivra dans l'avenir sur ce thème.

Je remercie Blas TARODO DE LA FUENTE, Professeur à l'Université de Montpellier II, et Frédéric RENE, Chargé de Recherche à l'I.N.R.A. de Plaisir-Grignon, pour avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail ainsi que Gilbert RIOS, Professeur à l'Université de Montpellier II, et Pierre AIMAR, Directeur de Recherche C.N.R.S. à l'Université Paul Sabatier de Toulouse, pour avoir participé à l'examen de cette thèse.

Je remercie Bertrand HEYD, Maître de Conférences à l'E.N.S.I.A., pour son importante collaboration notamment lors de l'élaboration de divers outils informatiques et Gérard CUVELIER, Professeur à l'E.N.S.I.A., pour ses très utiles indications en rhéologie.

Je remercie Marc SIONNEAU, Directeur de la Halle Nicolas Appert de l'E.N.S.I.A., pour sa permanente disponibilité, sa polyvalence technique et son efficacité qui ont souvent été capitales pour résoudre d'épineux problèmes pratiques.

Je remercie Gilles GERLOT et Jean-Marie HERRY du Département Prototype de l'I.N.R.A. de Massy, ainsi que Christophe GENESTE, Technicien I.N.R.A. à l'E.N.S.I.A., pour leur collaboration dans les transformations de l'unité pilote et pour avoir su me faire bénéficier de leurs compétences dans ce domaine.

Que l'ensemble des personnes que j'ai eu la joie de côtoyer à l'E.N.S.I.A. soit remercié, en particulier Colette MAILLARD, Michèle COCCOLUTO, Nathalie DASTE, Christine SCHMITT, Robert SAWKA, Pablo GRANDA, Hamid AICHOUNE, Bernard REVUZ, Richard LEWANDOWSKI et André CHARLIER pour leur soutien et leur grande gentillesse.

Je désire également associer à ce travail les étudiants qui ont collaboré épisodiquement à cette recherche à l'occasion de stages divers, en particulier Sandrine BANCHET, Robert PETERMANN, Frédéric PROTHON, Matthias SEIDL, Isabelle GRATIUS, Elisabeth ATLANI et Luzia HOFFMANN. Leur participation a toujours été pour moi très dynamisante. Je leur exprime ici toute mon amitié et mes meilleurs vœux de réussite.

Je terminerai en remerciant, pour leur coup de main de dernière minute, Laurence TATOUD, Stéphanie CARTIER et Jean-Michel TRICHARD qui démarrent leur thèse au sein de l'équipe "filtration tangentielle" de l'E.N.S.I.A. Je leur transmets mes plus chaleureux encouragements et leur souhaite sincèrement un brillant succès.

## PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS

(dans le cadre de la Thèse)

### REVUES A COMITE DE LECTURE

- DORNIER, M., DECLOUX, M., LEBERT, A. et TRYSTRAM, G. 1994.** Use of experimental design to establish optimal crossflow filtration conditions: application to raw cane sugar clarification. *Journal of Food Process Engineering*, **17** (1), 73-92.
- DORNIER, M., PETERMANN, R. et DECLOUX, M. 1995.** Influence of start-up procedure on crossflow microfiltration of raw cane sugar. *Journal of Food Engineering*, **24** (2), 213-224.
- DORNIER, M., DECLOUX, M., TRYSTRAM, G et LEBERT, A. 1994.** Dynamic modeling of crossflow microfiltration using neural networks. *Journal of Membrane Science*, sous presse.
- DORNIER, M., DECLOUX, M., TRYSTRAM, G et LEBERT, A. 1994.** Interest of neural networks for the optimization of the crossflow filtration process. *Food Science and Technology*, sous presse.
- DORNIER, M., HEYD, B. et DANZART, M. 1994.** Learning algorithm without derivative calculation for multilayer perceptrons. Soumis à *Neural Networks* (juillet).

### CONGRES

- DORNIER, M. 1993.** Approche des conditions optimales de filtration tangentielle intégrant la consommation énergétique. *Huitième Colloque Université-Industrie: l'Electricité dans la Chaîne Agro-Alimentaire*, 10 juin, Rennes, p. 71-76.
- DORNIER, M., DECLOUX, M., LEBERT, A. et TRYSTRAM, G. 1993.** Use of experimental design to establish optimal crossflow filtration conditions: application to raw cane sugar clarification. *International Congress on Membrane and Membrane Processes*, 30 août-3 septembre, Heidelberg (Allemagne).
- DORNIER, M., ROCHA, T., TRYSTRAM, G., BARDOT, I., DECLOUX, M. et LEBERT, A. 1993.** Application of neural computation for dynamic modelling of food processes : drying and microfiltration. *Artificial Intelligence for Food and Agriculture Conference*, 26-28 octobre, Nîmes, p. 233-240.
- DECLOUX, M., PETERMANN, R. et DORNIER, M. 1993.** Influence du démarrage en microfiltration tangentielle: application à la clarification de sucre roux de canne. *Journées d'Etude Membranes et Bio-Industries*, 1<sup>er</sup>-2 décembre, Paris.
- DORNIER, M., DECLOUX, M., TRYSTRAM, G. et LEBERT, A. 1994.** Dynamic prediction of flux using neural networks in crossflow microfiltration: application to raw cane sugar clarification. *Third International Conference on Inorganic Membranes*, 10-14 juillet, Worcester (MA, USA), sous presse.
- DECLOUX, M., DORNIER, M., GENESTE, C. PROTHON, F. et TRYSTRAM, G. 1994.** Automatic control of a crossflow microfiltration pilot plant at low transmembrane pressure. *Third International Symposium on Automatic Control of Food and Biological Processes*, 25-26 octobre, Paris, p. 297-304.

# SOMMAIRE

## NOMENCLATURE

INTRODUCTION GENERALE.....	1
----------------------------	---

### - CHAPITRE I -

#### PRESENTATION ET MISE AU POINT DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

<b>I-1 INSTALLATIONS PILOTE ET MEMBRANES.....</b>	<b>5</b>
I-1.1 Installations existantes .....	5
I-1.2 Adaptation sur le pilote ENSIA du système avec circulation de filtrat.....	7
I-1.3 Membranes .....	12
<b>I-2 CHOIX ET DEFINITION DES VARIABLES .....</b>	<b>13</b>
I-2.1 Variables de contrôle .....	13
I-2.2 Critères d'évaluation et variables d'état.....	13
<b>I-3 CONDUITE DES ESSAIS PILOTE.....</b>	<b>15</b>
I-3.1 Mise en route des installations .....	15
I-3.2 Procédure de démarrage .....	16
I-3.3 Mode de conduite et suivi des filtrations.....	17
I-3.4 Nettoyage.....	17
<b>I-4 REPRODUCTIBILITE DES ESSAIS .....</b>	<b>18</b>
<b>I-5 PRODUITS FILTRES .....</b>	<b>18</b>
I-5.1 Méthodes d'analyses .....	18
I-5.2 Principales caractéristiques des produits filtrés .....	21
<b>I-6 CONCLUSION .....</b>	<b>26</b>

### - CHAPITRE II -

#### PLANIFICATION D'EXPERIENCES ET TRAITEMENT DES DONNEES PAR REGRESSION LINEAIRE

<b>II-1 CHOIX DU DOMAINE PARAMETRIQUE A EXPLORER.....</b>	<b>28</b>
II-1.1 Délimitation du domaine disponible .....	28
II-1.2 Délimitation du domaine d'étude.....	30
<b>II-2 PLANS D'EXPERIENCES ROTABLES .....</b>	<b>32</b>
II-2.1 Plan d'expériences central composite .....	33
II-2.2 Plan d'expériences uniforme de Doehlert modifié.....	33
<b>II-3 TRAITEMENT DES DONNEES.....</b>	<b>34</b>
II-3.1 Méthode des surfaces de réponses.....	34
II-3.2 Régression linéaire multiple pas à pas ascendant .....	35

<b>II-4 APPLICATION ET VALIDATION.....</b>	<b>35</b>
II-4.1 Domaines disponibles.....	35
II-4.2 Premier cas : sucre / MEMBRALOX 1,4 $\mu\text{m}$ sans circulation de filtrat.....	36
II-4.3 Second cas : sucre / MEMBRALOX 1,4 $\mu\text{m}$ avec circulation de filtrat .....	44
<b>II-5 CONCLUSION .....</b>	<b>48</b>

**- CHAPITRE III -**

**MODELISATION PAR RESEAUX DE NEURONES**

<b>III-1 LES MODELES CONNECTIONNISTES .....</b>	<b>50</b>
III-1.1 Le perceptron multicouches .....	51
III-1.2 Mise en œuvre .....	53
III-1.3 Techniques d'apprentissage .....	57
<b>III-2 MODELISATION DYNAMIQUE DE LA FILTRATION TANGENTIELLE</b>	<b>68</b>
III-2.1 Filtrations à conditions opératoires constantes au cours du temps.....	68
III-2.2 Filtrations à conditions opératoires variables au cours du temps.....	78
III-2.3 Validation des réseaux avec entrée implicite du temps .....	87
<b>III-3 CONCLUSION.....</b>	<b>93</b>
III-3.1 Filtrations à conditions constantes.....	93
III-3.2 Filtrations à conditions variables.....	94

**- CHAPITRE IV -**

**REFLEXION SUR LES APPORTS  
DES MODELES ELABORES**

<b>IV-1 OPTIMISATION DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES A UN TEMPS DE REFERENCE.....</b>	<b>97</b>
IV-1.1 Présentation de la méthode .....	97
IV-1.2 Application de la méthode .....	99
IV-1.3 Détermination des conditions optimales.....	103
IV-1.4 Bilan.....	104
<b>IV-2 SYNTHESE SUR L'INFLUENCE DES CONDITIONS HYDRODYNAMI- QUES EN REGIME PSEUDO-STATIONNAIRE .....</b>	<b>105</b>
IV-2.1 Effet de la Pression transmembranaire .....	105
IV-2.2 Effet de la Vitesse tangentielle.....	108
IV-2.3 Conclusion .....	109
<b>IV-3 TEST D'UNE METHODE D'OPTIMISATION PAS A PAS.....</b>	<b>109</b>
IV-3.1 Les méthodes d'optimisation pas à pas .....	109
IV-3.2 Exemple d'application.....	111
IV-3.3 Bilan.....	112
<b>IV-4 CONCLUSION.....</b>	<b>113</b>

**- CHAPITRE V -**  
**MISE EN EVIDENCE DE L'IMPORTANCE DU MODE**  
**DE CONDUITE EN MICROFILTRATION**

<b>V-1 INFLUENCE DE LA PROCEDURE DE DEMARRAGE .....</b>	<b>114</b>
V-1.1 Comparaison entre mode de démarrage brusque et lent.....	115
V-1.2 Influence de la vitesse de montée aux consignes.....	116
V-1.3 Effet d'une limitation de la densité de flux de filtrat .....	116
V-1.4 Effet des valeurs de $P_{tm}$ et de $U$ au début de l'essai .....	116
V-1.5 Influence du démarrage sur l'efficacité.....	116
V-1.6 Bilan et comparaison avec l'ultrafiltration .....	117
<b>V-2 REVERSIBILITE DU COLMATAGE .....</b>	<b>118</b>
V-2.1 Microfiltration à haute pression d'une solution de gomme .....	119
V-2.2 Microfiltration à basse pression d'un sirop de sucre .....	119
V-2.3 Bilan et comparaison avec l'ultrafiltration .....	121
<b>V-3 CONCLUSION.....</b>	<b>122</b>
 <b>CONCLUSION GENERALE.....</b>	 <b>123</b>
 <b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	 <b>126</b>
 <b>ANNEXE</b>	

## NOMENCLATURE

SYMBOLE	SIGNIFICATION	UNITES
A	surface membranaire efficace	m <sup>2</sup>
C	coefficient de contraction de veine fluide	s. d.
CD	teneur en cendres	mg/100gMS
COL	coloration	UI (Unité ICUMSA)
C <sub>p</sub>	chaleur spécifique du produit à filtrer	J/(kg.°C)
D	diamètre de conduite	m
D <sub>50</sub>	valeur médiane du diamètre des particules	µm
D <sub>max</sub>	diamètre de la plus grosse particule détectée	µm
D <sub>x</sub>	débit volumique relatif au fluide x	m <sup>3</sup> /h ou m <sup>3</sup> /s
$\bar{E}$	erreur quadratique moyenne	%
E <sub>η</sub>	terme homogène à une énergie de viscosité dynamique	J/mol
J <sub>f</sub>	densité de flux de filtrat	L/(h.m <sup>2</sup> ) ou m <sup>3</sup> /(s.m <sup>2</sup> )
L	longueur de conduite	m
MS	teneur en matière sèche des solutions	gMS/100g
P	pression relative	bar ou Pa
p	pureté	gS/100gMS
P <sub>tm</sub>	pression transmembranaire (moyenne si pas d'indice)	bar ou Pa
R	constante des gaz parfaits : 8,314	J/(mol.K)
R <sup>2</sup>	coefficient de régression (linéaire) ou de détermination (non linéaire)	%
Re	nombre de Reynolds	s. d.
RN <sub>x</sub>	réseau à une couche cachée comportant x neurones dans la couche cachée	—
RN <sub>x</sub> /y	réseau à deux couches cachées comportant x et y neurones respectivement dans la 1 <sup>ère</sup> et la 2 <sup>de</sup> couche cachée	—
R <sub>m</sub>	résistance hydraulique de la membrane propre	m <sup>-1</sup> ou m <sup>2</sup> /m <sup>3</sup>
R <sub>t</sub>	résistance hydraulique totale calculée selon DARCY	m <sup>-1</sup> ou m <sup>2</sup> /m <sup>3</sup>
S	teneur en saccharose	gS/100ml
SP	section de passage	m <sup>2</sup>
t	temps	min ou s
T <sub>COL</sub>	taux de décoloration	%
T <sub>MS</sub>	taux de rétention en matière sèche	%
T <sub>Q</sub>	efficacité (avec Q critère de qualité)	%
t <sub>r</sub>	temps de référence (régime pseudo-stationnaire)	min
T <sub>TU</sub>	taux de clarification	%
TU	turbidité	UNT
U	vitesse tangentielle	m/s
u	vitesse moyenne dans une conduite quelconque	m/s
vps	pourcentage volumique occupé par les particules	%
Y	valeur expérimentale	—
$\hat{Y}$	valeur calculée	—
$\dot{W}$	puissance électrique consommée par unité de surface membranaire	W/m <sup>2</sup>
α <sub>o</sub> , α <sub>s</sub>	pentés de l'évolution de R <sub>t</sub> au cours du temps	m <sup>-1</sup> /min
ε	erreur effectuée par les modèles	—
Δ	écart ou	
	nombre d'itérations (réseaux de neurones)	s. d.
δ	pas d'apprentissage (réseaux de neurones)	s. d.
ΔP	perdes de charge	bar ou Pa



$\Delta P_{tm}$	écart de pression transmembranaire entre l'entrée et la sortie du module	bar ou Pa
$\Delta \theta$	écart à la consigne de température du produit	°C
$\gamma$	coefficient de variation	%
$\eta$	viscosité dynamique de la solution	mPa.s ou Pa.s
$\eta_{\infty}$	viscosité dynamique à $\theta$ infinie	Pa.s
$\Lambda$	conductivité ou nombre d'initialisations aléatoires des poids (réseaux de neurones)	$\mu S/cm$ s.d.
$\lambda$	coefficient de perte de charge par frottement	s.d.
$\mu$	moment (réseaux de neurones)	s.d.
$\theta$	température	°C ou K
$\rho$	masse volumique des solutions	kg/m <sup>3</sup>
$\xi$	coefficient de pertes de charge singulières	s.d.
$\psi$	rugosité relative du tube	s.d.
$\zeta$	rendement énergétique global	s.d.

## INDICES

a	d'alimentation (sortie réchauffeur)
c	de circulation ou valeur de consigne
corr	valeur corrigée
e	en entrée de module de filtration
éch	relatif à l'échangeur de chaleur
f	de filtrat
frott	par frottement
g	dans le tube de grande section
I	à la fin de la phase I de démarrage
II	à la fin de la phase II de démarrage
init	du produit initial avant filtration
m	dans le module de filtration
max	valeur maximale admissible
mes	valeur mesurée
min	valeur minimale admissible
p	dans le tube de petite section
r	du rétentat
rég-mini	valeur minimale réglable
s	en sortie de module de filtration
sing	singulières
t	total(e)
0	à l'instant $t = 0$

**INTRODUCTION  
GENERALE**

Les procédés de séparation membranaire regroupent un vaste ensemble de techniques qui mettent à profit les propriétés de rétention sélective d'une mince barrière appelée membrane. Très diversifiées, ces techniques peuvent être classées suivant la force motrice utilisée pour le transfert de matière à travers la membrane, la nature des phases en amont et en aval de la membrane et enfin le type de membrane mise en œuvre. Les techniques de filtration utilisent spécifiquement un gradient de pression pour effectuer une séparation en phase liquide à travers une membrane poreuse [BRUN 1989, CHERYAN 1986, MAFARD et BELIARD 1993, MULDER 1991, NOVELECT 1993].

Grâce à la grande variété des membranes disponibles, les techniques de filtration peuvent être envisagées pour résoudre de nombreux problèmes de séparation. Au cours de ce travail, nous nous sommes intéressés plus particulièrement à la microfiltration et à l'ultrafiltration qui sont en plein essor dans les industries alimentaires [CHERYAN 1991 et 1992, COHEN-MAUREL 1990, CRULL 1991, SHORT et SKELTON 1991, STRATHMANN 1992]. Ces deux procédés se différencient habituellement par le diamètre moyen des pores de la membrane utilisée ou par la taille des éléments retenus. La microfiltration est ainsi appliquée pour la clarification [BALI 1991, BELLEVILLE 1991, ITOUA-GASSAYE 1990, PERI *et al.* 1988, RENE et MAINGONNAT 1993, WU *et al.* 1990], la pasteurisation ou la stérilisation à froid [GERBAUDO *et al.* 1993, JIOKAP NONO 1992, MALMBERG et HOLM 1988, PIOT *et al.* 1987] ou encore la délipidation [GESAN *et al.* 1991, SUREL 1993] de divers produits liquides. L'ultrafiltration est quant à elle plutôt mise en œuvre pour le fractionnement ou la concentration de macromolécules en solution [ATTIA *et al.* 1988, BENNASAR 1984, MAUBOIS et BRULE 1982, ROSEIRO *et al.* 1993].

La filtration tangentielle se distingue de la filtration frontale classique par une circulation forcée du fluide à filtrer, parallèle à la surface filtrante. La vitesse tangentielle engendre d'importantes contraintes de cisaillement au voisinage de la membrane qui limitent l'accumulation de matière à sa surface. Il est ainsi possible de filtrer de façon continue le produit pendant de longues durées sans avoir à nettoyer la membrane. Cependant, en particulier en microfiltration, la configuration tangentielle est encore peu développée par rapport à la configuration frontale [MIETTON-PEUCHOT 1992]. Le développement industriel du procédé est freiné par des flux de filtrat souvent insuffisants qui compromettent la rentabilité de l'opération. Malgré la circulation tangentielle, le colmatage des membranes, qui s'oppose au transfert de matière à travers le milieu poreux, peut en effet être considérable.

Ce colmatage membranaire est la résultante d'un ensemble de phénomènes de nature très différente qui interviennent simultanément : apport convectif de matière vers la membrane, rétro-diffusion causée par des sur-concentrations locales, entraînement hydrodynamique dû à la circulation tangentielle et interactions électrochimiques entre le produit et le matériau membranaire. Ces phénomènes dépendent fortement de la membrane utilisée (diamètre de pores et nature chimique), des caractéristiques du produit filtré et des conditions opératoires choisies pour mener la filtration

[CHERYAN 1986, FANE 1983, FREUND et RIOS 1992, KESSLER 1988, LOJKINE *et al.* 1992, MULDER 1991, OUSMAN 1992, TARLETON et WAKEMAN 1993, TARODO DE LA FUENTE *et al.* 1989b, VIGNESWARAN et KIAT 1988]. Chacun de ces paramètres conditionne l'intensité du colmatage et influence considérablement les transferts de matière à travers la membrane (solvant et solutés).

Le choix de la membrane et des conditions opératoires qui conduisent aux meilleurs résultats par rapport à l'objectif fixé, est donc une étape indispensable à la rationalisation du procédé au niveau industriel. Dans ce contexte, nous proposons de focaliser notre étude sur l'optimisation des deux principales conditions opératoires : la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ), qui représente la force motrice nécessaire au transfert de matière à travers le milieu poreux et la vitesse tangentielle ( $U$ ), qui détermine les effets de cisaillement à la paroi. Ces deux paramètres seront regroupés par la suite sous le terme "conditions hydrodynamiques".

Dans l'état actuel des connaissances, il est difficile de prévoir a priori les conditions hydrodynamiques optimales pour la filtration d'un nouveau produit sur une membrane donnée. En effet, l'influence de ces conditions sur les résultats varie considérablement selon le couple produit/membrane étudié. Ainsi, pour pratiquement chaque nouveau cas, il est nécessaire d'avoir recours à l'expérience pour optimiser l'opération. Cette étude prospective est généralement effectuée sur une installation pilote qui facilite l'extrapolation des résultats à l'échelle industrielle [BENNASAR et TARODO DE LA FUENTE 1989].

Compte tenu du coût et de la lourdeur de ces essais pilote, il est indispensable de limiter le nombre d'expériences nécessaires à l'optimisation. Pour cela, l'utilisation d'un modèle capable de prédire les résultats de filtration en fonction des conditions hydrodynamiques est le plus souvent envisagée. Ce modèle doit permettre d'établir des prévisions fiables à la suite d'un minimum d'essais pilote.

Comme nous l'avons déjà souligné, les phénomènes qui régissent le colmatage membranaire sont très diversifiés. Il est ainsi particulièrement difficile d'élaborer un modèle basé sur des lois connues, pour représenter l'effet des conditions hydrodynamiques sur les transferts de matière à travers la membrane. De nombreuses synthèses bibliographiques portant sur les modèles de connaissance existants, ont déjà été présentées dans la littérature [BENNASAR 1984, FUTSELAAR *et al.* 1992, GESAN 1993, LIBERGE 1993, PUNIDADAS 1990, TADDEI 1986]. Toutefois, l'application de ces modèles pose un certain nombre de problèmes, en particulier en microfiltration tangentielle. En effet, ils se restreignent la plupart du temps à décrire partiellement les phénomènes mis en jeu et ne permettent donc pas une représentation satisfaisante des résultats. De plus, ces modèles ne rendent pas toujours compte de l'effet de toutes les conditions hydrodynamiques. Enfin, ils font parfois intervenir des paramètres qu'il est difficile de déterminer expérimentalement.

Face à cette problématique, les techniques de modélisation basées sur l'analyse directe des données (modèle de représentation) et non plus sur des hypothèses phénoménologiques (modèle de connaissance) semble être une bonne alternative. Pour être utilisés comme outil d'optimisation, ces modèles "boite noire" bien que non explicatifs sont en effet suffisants. Les modèles de représentation déjà proposés dans le cadre de la filtration tangentielle, présentent néanmoins certaines faiblesses [LIBERGE *et al.* 1994, RENE et DELPLACE 1993]. D'une part, leur mise en œuvre nécessite un nombre important d'essais expérimentaux pour l'identification de leurs paramètres. D'autre part, une fois identifiés, les paramètres de ces modèles ne sont pas toujours simplement corrélés aux conditions hydrodynamiques.

Dans ce contexte, nous proposons de développer au cours de ce travail, de nouvelles méthodologies basées sur l'utilisation de modèles de représentation, mieux adaptées à l'optimisation des conditions hydrodynamiques en filtration tangentielle à débit variable. Notre principal objectif est de proposer des outils qui permettront de faciliter la recherche des conditions hydrodynamiques optimales de filtration pour n'importe quel couple produit/membrane, sans nécessiter un nombre prohibitif d'essais expérimentaux.

Afin de vérifier l'intérêt de ces outils dans une perspective industrielle, les méthodologies proposées ont été appliquées à l'optimisation des conditions hydrodynamiques dans divers cas réels. La filtration tangentielle de deux produits alimentaires sur membrane tubulaire minérale a ainsi été abordée au cours de cette étude. Le premier produit traité est un sirop de sucre roux de canne à 60 gMS/100g, le second une solution de gomme arabique à 20 gMS/100g. Dans les deux cas, le but de l'opération est de clarifier et éventuellement de décolorer partiellement les produits [DECLoux *et al.* 1992, PUNIDADAS *et al.* 1990]. Nous précisons néanmoins que notre propos n'est pas ici de mettre en œuvre la membrane la plus appropriée pour ce type de traitement mais plutôt de mettre préférentiellement l'accent sur les membranes de microfiltration à gros diamètre de pores. En effet, c'est actuellement avec ce type de membrane que les approches courantes d'optimisation rencontrent le plus de difficultés.

Durant ce travail, nous avons également choisi de mettre en œuvre le système de filtration avec circulation de filtrat breveté par la Société  $\alpha$ -LAVAL dans les années 70 [ALFA-LAVAL 1987, ALFA-LAVAL AKTIEBOLAG 1975a et 1975b, PLETT 1989]. Comme nous le préciserons par la suite, cette configuration rend totalement indépendants les effets de la vitesse tangentielle et de la pression transmembranaire et permet de filtrer les produits à faible pression transmembranaire quelle que soit la vitesse tangentielle choisie. Nous verrons que cette caractéristique peut présenter un intérêt dans certains cas de microfiltration.

Dans le but de synthétiser au mieux les divers aspects abordés, nous avons choisi de structurer notre rapport en cinq chapitres distincts en y intégrant les divers aspects bibliographiques.

Dans une première partie, nous reprenons l'ensemble du matériel et des méthodes utilisés pour les essais expérimentaux. Nous y développons notamment, la mise au point des outils pilote et analytiques qui nous ont parus nécessaires pour la réalisation de cette étude. La seconde partie présente un premier type d'approche pour l'optimisation des conditions hydrodynamiques à un temps de référence. Basé sur l'utilisation de plans d'expériences et d'un traitement de données par régression linéaire multiple, ce premier type d'outil d'optimisation est appliqué à la clarification de refontes de sucre roux par microfiltration. Le troisième chapitre présente une étude visant à explorer les potentialités des réseaux de neurones pour la modélisation et éventuellement l'optimisation du procédé de filtration tangentielle. Les modèles connexionnistes y sont mis en œuvre pour représenter l'évolution du colmatage membranaire au cours de filtrations réalisées à conditions hydrodynamiques constantes ou variables dans le temps. Sans chercher à être exhaustif, quelques unes des applications possibles des modèles élaborés sont présentées dans le chapitre suivant. Enfin, nous rassemblons dans le dernier chapitre, quelques remarques visant à mettre en évidence l'importance du mode de conduite en microfiltration tangentielle.

<p><b>- CHAPITRE I -</b></p> <p><b>PRESENTATION ET MISE AU POINT</b></p> <p><b>DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX</b></p>
--

<b>I-1 INSTALLATIONS PILOTE ET MEMBRANES.....</b>	<b>5</b>
I-1.1 Installations existantes.....	5
I-1.1.1 Pilote ENSIA sans circulation de filtrat.....	5
I-1.1.2 Pilote $\alpha$ -LAVAL / EDF avec circulation de filtrat.....	6
I-1.2 Adaptation sur le pilote ENSIA du système avec circulation de filtrat.....	7
I-1.2.1 Mesure de la pression transmembranaire.....	7
I-1.2.2 Régulations .....	9
• Pression transmembranaire.....	10
• Vitesse tangentielle .....	11
• Température moyenne du rétentat dans le module .....	11
• Bilan .....	12
I-1.3 Membranes .....	12
<b>I-2 CHOIX ET DEFINITION DES VARIABLES .....</b>	<b>13</b>
I-2.1 Variables de contrôle.....	13
I-2.2 Critères d'évaluation et variables d'état.....	13
I-2.2.1 Performances .....	13
I-2.2.2 Efficacité .....	14
I-2.2.3 Intensité du colmatage membranaire.....	14
I-2.2.4 Consommation énergétique .....	14
<b>I-3 CONDUITE DES ESSAIS PILOTE.....</b>	<b>15</b>
I-3.1 Mise en route des installations .....	15
I-3.2 Procédure de démarrage.....	16
I-3.2.1 Système sans circulation de filtrat.....	16
• Mode de démarrage brusque.....	16
• Modes de démarrage lents .....	16
I-3.2.2 Systèmes avec circulation de filtrat.....	16
I-3.3 Mode de conduite et suivi des filtrations .....	17
I-3.4 Nettoyage.....	17
<b>I-4 REPRODUCTIBILITE DES ESSAIS .....</b>	<b>18</b>
<b>I-5 PRODUITS FILTRES .....</b>	<b>18</b>
I-5.1 Méthodes d'analyses .....	18
I-5.2 Principales caractéristiques des produits filtrés .....	21
I-5.2.1 Sirops de sucre roux de canne .....	21
• Caractéristiques générales et préparation des sirops.....	21
• Viscosité.....	22
• Sensibilité à la température.....	23
I-5.2.2 Solutions de gomme arabique .....	24
• Caractéristiques générales et préparation des solutions .....	24
• Viscosité.....	24
• Sensibilité à la température.....	25
<b>I-6 CONCLUSION .....</b>	<b>26</b>

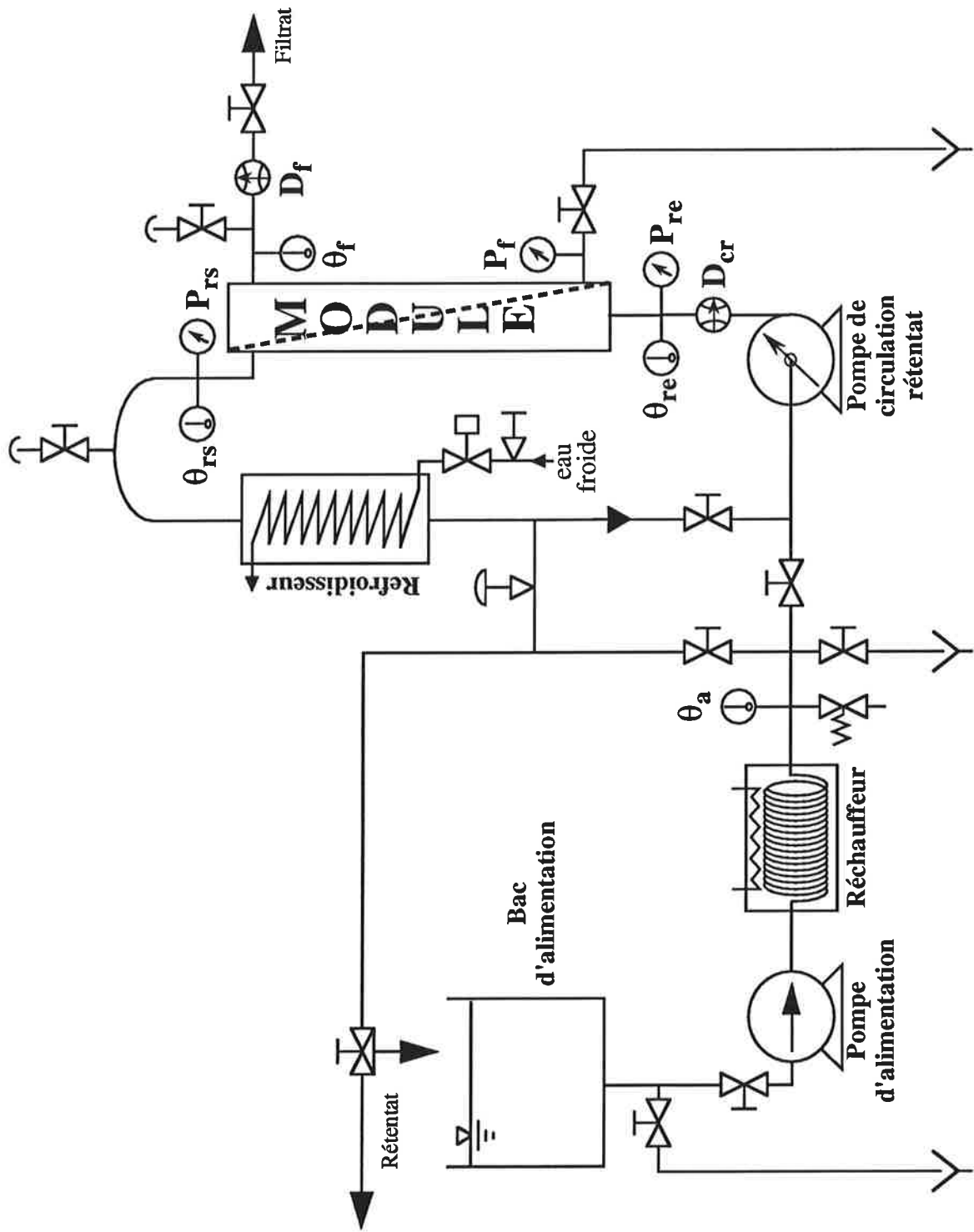


Figure I.1 : représentation schématique de l'installation pilote ENSIA sans circulation de filtrat.



Cette première partie regroupe l'ensemble du matériel et des méthodes utilisés pour les essais expérimentaux en y intégrant les diverses mises au point qui nous ont paru nécessaires pour cette étude.

Après avoir présenté les installations pilote existantes, nous détaillerons plus particulièrement nos choix pour la mise en œuvre du système avec circulation de filtrat sur le pilote ENSIA. Nous définirons ensuite les variables de commande et les variables d'état choisies. La méthodologie expérimentale suivie pour mener les essais de filtration sera alors décrite et la reproductibilité des essais vérifiée. Enfin, les méthodes analytiques et les caractéristiques des produits filtrés seront précisées.

## I-1 INSTALLATIONS PILOTE ET MEMBRANES

### I-1.1 Installations existantes

La légende utilisée pour les schémas descriptifs des installations pilote est donnée en annexe.

#### I-1.1.1 Pilote ENSIA sans circulation de filtrat

L'installation réalisée à l'ENSIA en 1989 est de type batch avec boucle de circulation et recyclage partiel de rétentat [PUNIDADAS 1990]. Une représentation schématique est donnée sur la **Figure I.1**. Le bac d'alimentation d'une capacité maximale de 60 litres est connecté à une pompe volumétrique Moineau (PCM 0.7/I12 0-300 L/h) couplée à un variateur de fréquence LEROY SOMER FMV2 (pompe d'alimentation). Le produit pompé passe dans un serpentin plongé dans un bac rempli d'eau chauffée par un jeu de résistances électriques (9 KW). L'ensemble constitue un premier échangeur de chaleur (réchauffeur) qui permet de porter le produit à la température désirée en évitant tout problème de surchauffe locale. Par un jeu de vannes de sectionnement, il est possible d'alimenter la boucle de circulation ou de fonctionner en préchauffage. La mise en vitesse du rétentat dans la boucle de circulation est assurée par une pompe centrifuge (PIERRE GUERIN C218 0-8 m<sup>3</sup>/h et 4 bar) asservie à un variateur de fréquence AOIP VI30G1. Un deuxième échangeur de chaleur à tubes concentriques est inséré sur cette boucle (refroidisseur). Il permet de limiter les échauffements dus aux frottements et d'affiner la régulation de la température. Son alimentation en eau froide (contre-courant) est contrôlée par une électrovanne tout ou rien couplée à une vanne pointeau manuelle pour le réglage de la capacité d'échange. Le recyclage partiel du rétentat vers le bac d'alimentation passe par une vanne électropneumatique à ouverture variable (MASONEILAN 8013-757). Divers carters de filtration correspondant à différentes membranes sont adaptables sur ce pilote.

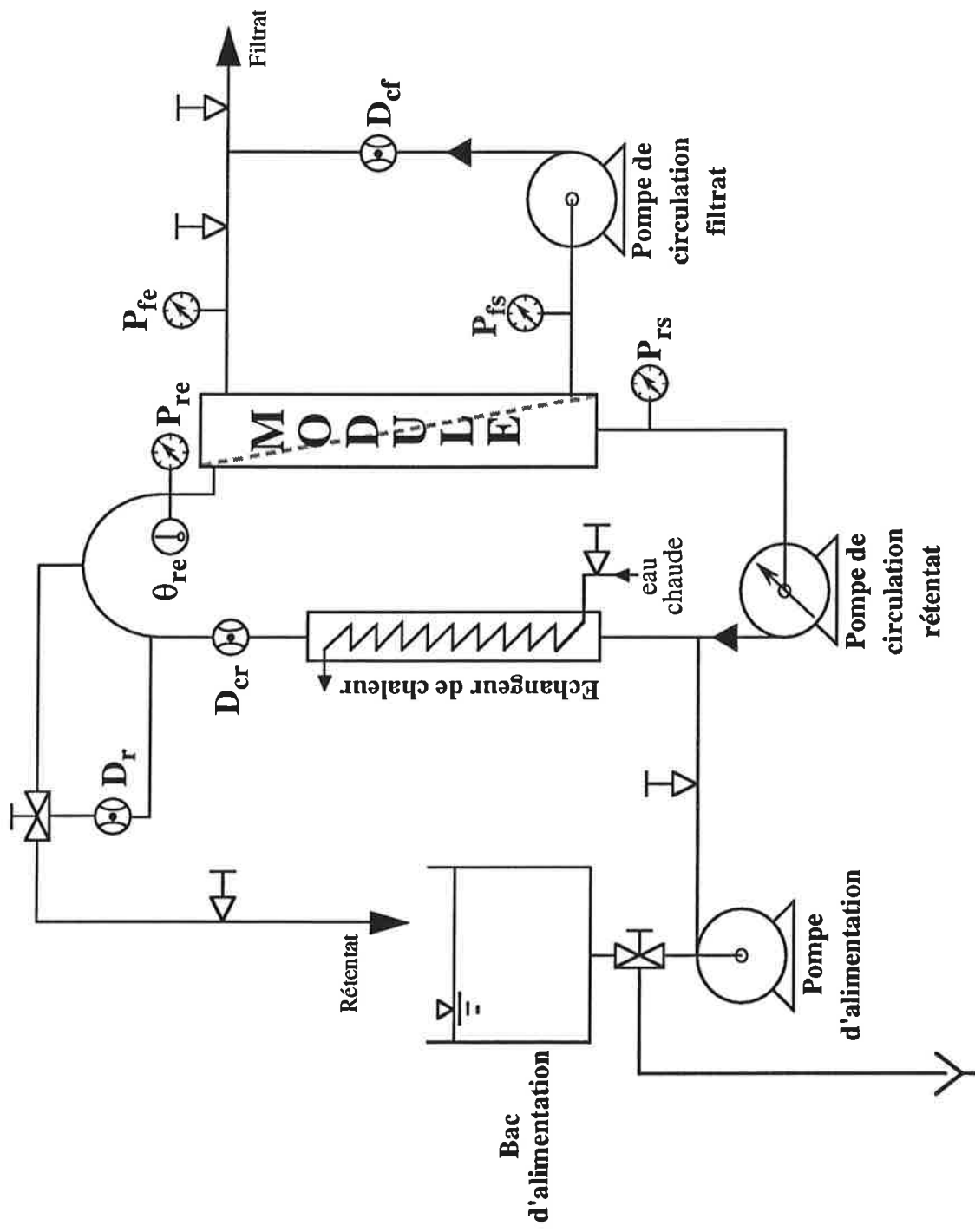


Figure I.2 : représentation schématique de l'installation pilote  $\alpha$ -LAVAL / EDF avec circulation de filtrat.

L'installation est équipée d'une série de capteurs qui permettent d'avoir accès en continu à tous les paramètres. La température est mesurée à divers niveaux par des sondes à résistance de platine (CLAL CLARALUF) étalonnées de 20 à 95 °C à l'aide d'un thermomètre étalon à mercure de précision  $\pm 0,05$  °C. Deux débitmètres électromagnétiques (KROHNE Altoflux1000) avec convertisseurs séparés (KROHNE SC100) mesurent les débits de circulation rétentat et d'extraction de filtrat à 0,2 % près. Les pressions rétentat et filtrat sont mesurées à 0,2 % près à l'aide de trois transmetteurs de pression relative à résistance variable (JPB TA-X-203 étalonnés de 0 à 10 bar). L'étalonnage de tous les capteurs a été régulièrement vérifié. Pour les transmetteurs de pression, un banc d'étalonnage pourvu de manomètres de classe 0,25 (BESANÇON INSTRUMENTS MV150 0-2,5 / 0-4,0 / 0-10,0 bar) a notamment été mis au point à cette occasion.

L'acquisition des données en ligne ainsi que les différentes régulations sont effectuées par l'intermédiaire d'un calculateur industriel (ANALOG DEVICES  $\mu$ MAC5000-4030). L'ensemble est connecté à un micro-ordinateur (IBM PS2) qui assure l'interface avec l'opérateur et la sauvegarde des données (superviseur). Une description détaillée de l'ensemble et le principe des diverses régulations ont été présentés précédemment [PUNIDADAS *et al.* 1991].

#### I-1.1.2 Pilote $\alpha$ -LAVAL / EDF avec circulation de filtrat

Cette seconde installation nous a été prêtée par le Département Application de l'Electricité dans l'Industrie d'EDF (Centre de Recherche des Renardières, 77 MORET SUR LOING). Egalement de type batch à recyclage partiel de rétentat, elle permet la circulation du filtrat. Conçue initialement par la société  $\alpha$ -LAVAL (unité pilote MFS-1) puis modifiée par EDF, elle est représentée schématiquement sur la Figure I.2. D'une capacité maximale de 35 litres, le bac d'alimentation est connecté à une pompe centrifuge à vitesse de rotation constante ( $\alpha$ -LAVAL GM 2A/115). Le débit d'alimentation de la boucle rétentat est ajusté à l'aide d'une vanne manuelle à membrane. La circulation du rétentat dans la boucle est assurée par une pompe centrifuge à vitesse de rotation variable ( $\alpha$ -LAVAL FP 712B avec variateur de fréquence). La boucle de circulation rétentat est munie d'un échangeur de chaleur multitube mono-passe à contre-courant alimenté en eau chaude par un thermorégulateur externe (SOLEV RE60 18 KW). Une pompe centrifuge identique à celle d'alimentation permet la circulation du filtrat. Le débit de circulation filtrat dans la seconde boucle peut être modulé par l'intermédiaire d'une autre vanne manuelle à membrane. Le carter spécifiquement adapté à la circulation du filtrat est conçu pour recevoir uniquement des modules MEMBRALOX 1P19-40.

Les pressions en entrée et en sortie de module côté rétentat et filtrat sont mesurées grâce à 4 manomètres relatifs mécaniques (à cadran). L'incertitude de mesure est estimée à  $\pm 0,1$  bar sur chacun d'entre eux. Les débits de circulation rétentat et filtrat sont mesurés par des rotamètres à cadran (KROHNE). Le débit de recyclage rétentat est estimé par un rotamètre à lecture directe. Ces débitmètres ont été préalablement étalonnés sur de l'eau à 20 °C. Le débit d'extraction de filtrat est

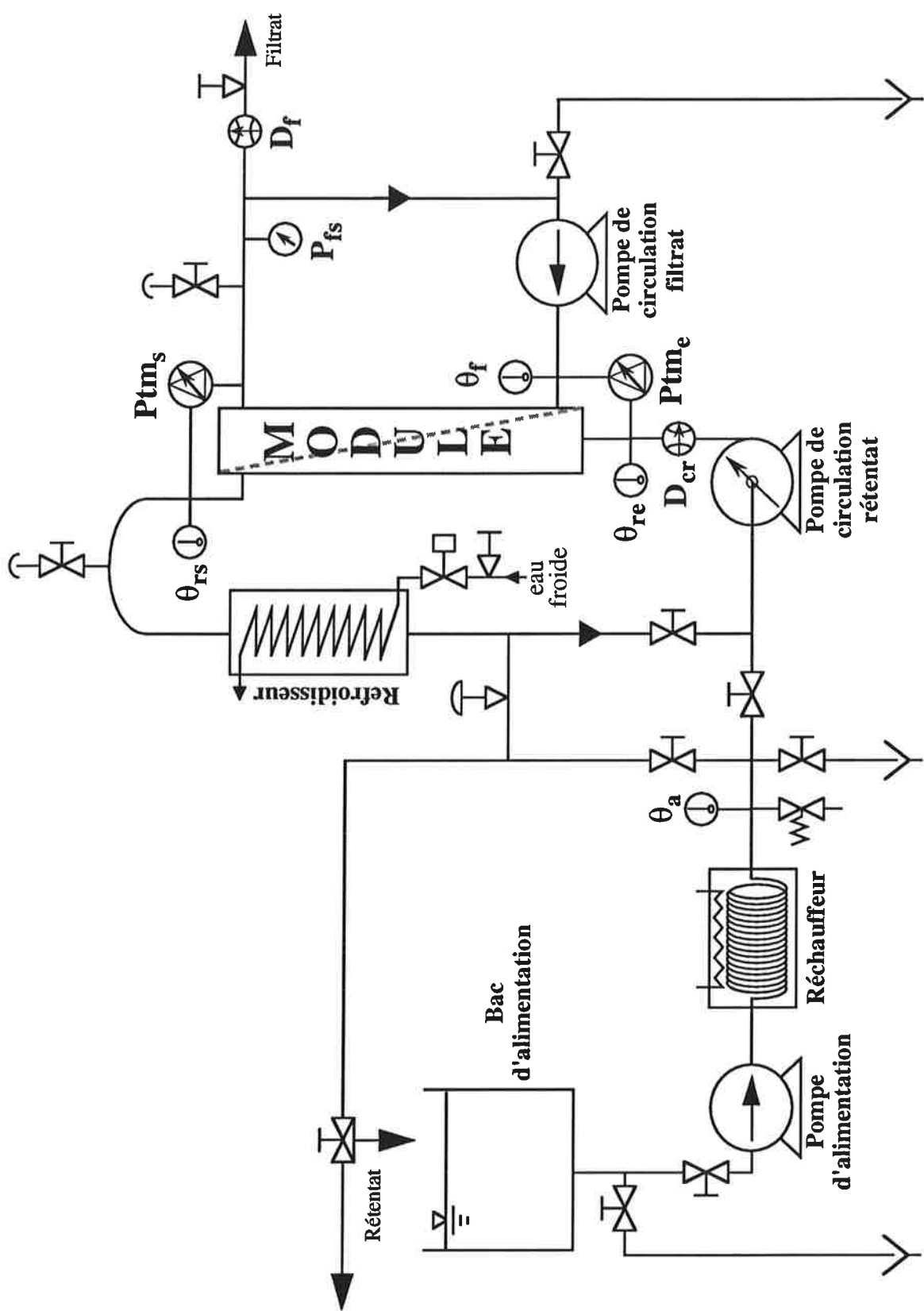


Figure I.3 : représentation schématique de l'installation pilote ENSIA avec circulation de filtrat.

mesuré manuellement. Une sonde de température située sur la boucle de circulation rétentat permet d'estimer la température dans le module. La médiocre précision des capteurs en place et l'étalonnage des rotamètres sur eau ne permettent donc d'apprécier avec exactitude ni les pressions ni les débits.

Toutes les régulations sont ici complètement manuelles. La vitesse tangentielle est contrôlée par la vitesse de rotation de la pompe de circulation rétentat. La manipulation des vannes de recyclage rétentat et/ou d'extraction filtrat permet le réglage de la pression transmembranaire moyenne. Le profil de pression côté filtrat est ajusté à celui côté rétentat par l'intermédiaire de la vanne située sur la boucle de circulation filtrat. D'un maniement assez délicat, cette installation pilote ne permet donc pas une régulation fine des conditions hydrodynamiques. La régulation de la pression transmembranaire (valeur moyenne et profil) pose notamment de nombreuses difficultés lors du démarrage de l'installation. L'utilisation du pilote est donc finalement assez limitée.

### **I-1.2 Adaptation sur le pilote ENSIA du système avec circulation de filtrat**

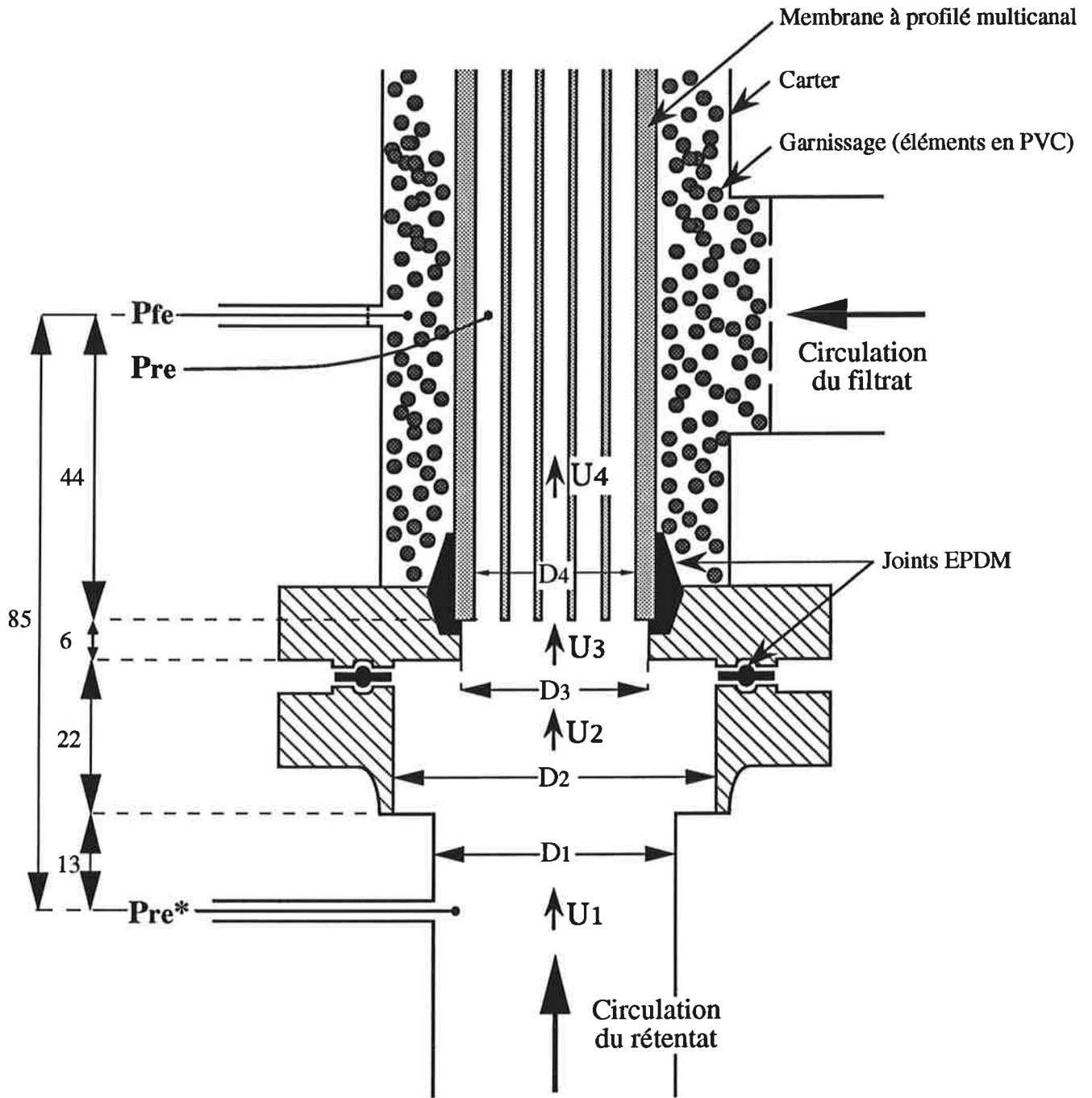
Compte tenu des limites du pilote  $\alpha$ -LAVAL / EDF, la mise au point d'une installation avec circulation de filtrat permettant une meilleure maîtrise des conditions opératoires et une acquisition des données en ligne s'est imposée. En effet, un tel outil s'avère indispensable pour apprécier plus finement le comportement dynamique du colmatage membranaire à faibles pressions transmembranaires et fortes vitesses tangentielles. Dans ce cadre, nous décrivons ci-dessous les modifications effectuées sur l'installation ENSIA existante afin d'y adapter le système avec circulation de filtrat (**Figure I.3**).

Côté rétentat, aucune modification n'a été apportée sur l'ensemble des éléments en place. Dans un souci de modulabilité, la boucle de circulation de filtrat a été conçue totalement démontable. Un carter identique à celui du pilote  $\alpha$ -LAVAL / EDF a été utilisé (membrane MEMBRALOX 1P19-40). Une pompe volumétrique à piston rotatif (MOUVEX S4B 0,3-4 m<sup>3</sup>/h) associée à un variateur de fréquence (TELEMECANIQUE RECTIVAR-4) a été choisie pour assurer la circulation du filtrat dans la boucle. Initialement, le système de contrôle-commande du pilote ENSIA avait été mis au point dans un souci de modulabilité. Ainsi, l'ajout des nouveaux capteurs (pression) et du nouvel actionneur (pompe de circulation filtrat) n'a nécessité que l'installation d'une nouvelle carte d'extension pour entrées analogiques (ANALOG DEVICES  $\mu$ MAC4010).

Après avoir précisé nos choix pour la mesure de la pression transmembranaire, nous décrivons les modes de régulation choisis et les résultats obtenus dans un cas réel.

#### **I-1.2.1 Mesure de la pression transmembranaire**

Pour la pression, le système de mesure déjà mis en place a été complètement remanié. En effet, contrairement au système sans circulation de filtrat, la pression transmembranaire doit être mesurée



$D1 = 34,4$   $D2 = 48,6$   $D3 = 28,0$   $D4 = 17,4$  (diamètre équivalent)  
 Cotes en mm

**Figure I.4 : coupe transversale schématique de l'entrée du module de filtration pour le système avec circulation de filtrat.**

(Pre = pression rétentat entrée réelle, Pre\* = pression rétentat entrée mesurée, Pfe = pression filtrat entrée)

indépendamment en entrée et en sortie de module. De plus, la précision de la mesure doit être élevée pour donner des résultats fiables à faible pression transmembranaire. Compte tenu de ces impératifs, nous avons choisi d'équiper le pilote de deux capteurs de pression différentielle (BAILEY SEREG 8DH) munis de manifold 5 voies. Placés à l'entrée ( $P_{tm_e}$ ) et à la sortie ( $P_{tm_s}$ ) du module, ces capteurs sont étalonnés de 0 à 3 bar à l'aide du banc d'étalonnage décrit précédemment. Dans ces conditions, leur précision de mesure est de 0,008 bar.

Compte tenu du matériau membranaire (céramique) et de la configuration multicanal de la membrane, nous avons dû placer la prise de pression rétentat ( $P_{re}^*$ ) avant l'entrée du module (**Figure I.4**). En sortie le même type de montage a été choisi. Les pressions différentielles mesurées  $P_{tm_e(mes)} = P_{re}^* - P_{fe}$  et  $P_{tm_s(mes)} = P_{rs}^* - P_{fs}$  ne sont donc pas les pressions transmembranaires effectives à l'entrée et à la sortie du module. Une correction est nécessaire afin d'estimer les valeurs réelles de  $P_{tm}$ . Les équations de correction doivent intégrer les pertes de charge singulières et les pertes de charge par frottement aux parois. Ne pouvant pas avoir recours à des mesures expérimentales, ces pertes de charge sont évaluées en utilisant les formules semi-empiriques de la littérature.

Pour un changement brusque de section dans une conduite tubulaire en régime turbulent, les pertes de charge singulières ( $\Delta P_{sing}$ ) sont estimées à l'aide des formules (1) à (4) [COMOLET 1982, MIDOUX 1985].

$$\Delta P_{sing} = \frac{\xi \cdot \rho \cdot u_{(SPp)}^2}{2} \quad (1)$$

Elargissement brusque

$$\xi = \left[1 - \frac{SP_p}{SP_g}\right]^2 \quad (2)$$

Rétrécissement brusque

$$\xi = \left[\frac{1}{C} - 1\right]^2 \quad (3)$$

$$\text{et } C = 0,59 + 0,41 \cdot \left(\frac{SP_p}{SP_g}\right)^3 \quad (4)$$

Les pertes de charge par frottement ( $\Delta P_{frott}$ ) dans une conduite tubulaire linéaire en régime turbulent sont estimées à l'aide des relations (5) et (6) [BOUSSICAUD 1983, OUZIAUX et PERRIER 1978].

$$\Delta P_{frott} = \frac{\lambda \cdot \rho \cdot U^2 \cdot L}{2 \cdot D} \quad (5)$$

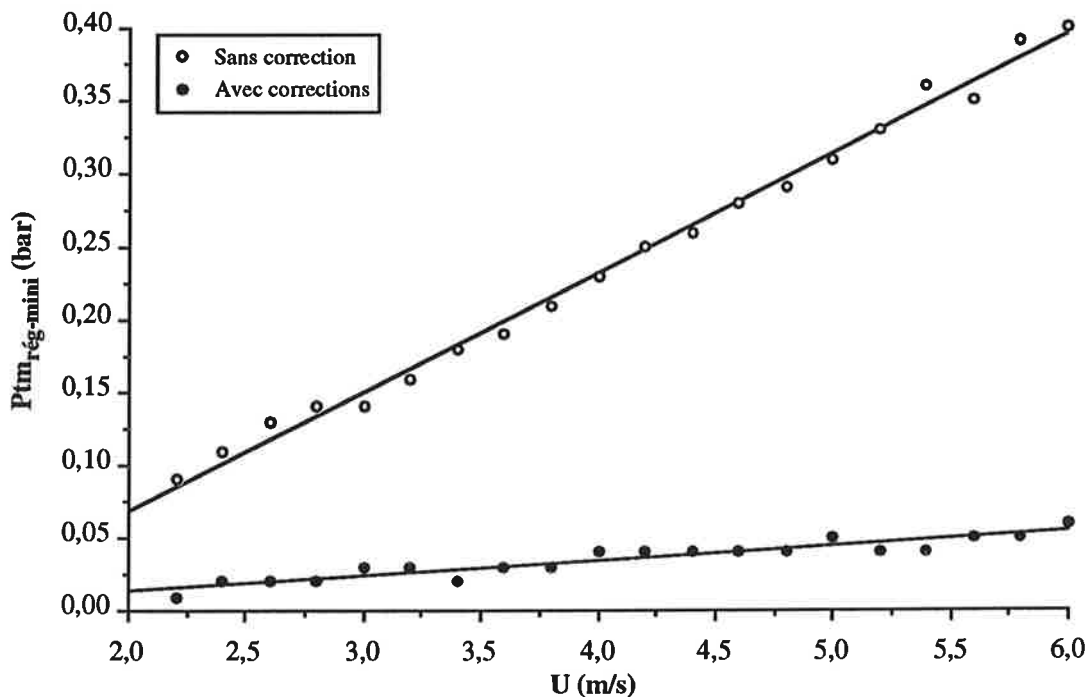
avec

$$\frac{1}{\sqrt{\lambda}} = -2 \cdot \log \left[ \frac{\psi}{(3,7)} + \frac{(2,51)}{Re \cdot \lambda} \right] \quad (\text{COLEBROOK}) \quad (6)$$

Produit	Température (°C)	Equations de correction (avec P <sub>tm</sub> en bar et D <sub>cr</sub> en m <sup>3</sup> /h)	
		Entrée de module	Sortie de module
Sucre roux 60 gMS/100g	80	$P_{tme(corr)} = P_{tme(mes)}$ $- 0,02005$ $- 0,01675.D_{cr}^2$	$P_{tms(corr)} = P_{tms(mes)}$ $+ 0,02005$ $+ 0,00185.D_{cr}^2$
Gomme arabique 20 gMS/100g	70	$P_{tme(corr)} = P_{tme(mes)}$ $- 0,05464$ $- 0,01422.D_{cr}^2$	$P_{tms(corr)} = P_{tms(mes)}$ $+ 0,05464$ $+ 0,00171.D_{cr}^2$

P<sub>tm</sub> = pression transmembranaire, D<sub>cr</sub> = débit de circulation rétentat.  
 (corr): valeur corrigée, (mes): valeur mesurée.

**Tableau I.1 : Equations de correction utilisées pour les mesures de pression transmembranaire à l'aide des capteurs de pression différentielle (pilote ENSIA avec circulation de filtrat).**



**Figure I.5 : évolution de la pression transmembranaire minimale réglable (P<sub>tm\_rég-mini</sub>) en fonction de la vitesse tangentielle (U) avec et sans correction (sucre 60gMS/100 g, 80 °C, pilote ENSIA avec circulation de filtrat).**



En appliquant la loi de conservation de l'énergie mécanique totale (BERNOULLI), les équations de corrections sont établies sous les hypothèses simplificatrices suivantes :

- un seul changement de section brusque d'un diamètre de 35 mm à un diamètre équivalent de 17,4 mm (19 canaux de 4 mm) est considéré. En effet, aucune formule empirique permettant de tenir compte de la géométrie exacte des extrémités du module n'est disponible dans la littérature.
- les pertes de charges par frottement dans les portions de tube en acier inoxydable entre la prise de pression et l'extrémité du module de filtration sont négligées.
- $\psi$  pour l'intérieur des tubes est estimée à  $1,25 \cdot 10^{-3}$  à partir d'une vue en coupe au microscope électronique de la membrane [OUSMAN 1993].

Les équations obtenues pour les deux produits traités (sirop de sucre 60 gMS/100g à 80 °C et solution de gomme arabique 20 gMS/100g à 70 °C) sur module MEMBRALOX 1P19-40 sont portées dans le **Tableau I.1**.

L'erreur moyenne de mesure sur les pressions transmembranaires d'entrée et de sortie peut être estimée expérimentalement. En effet, si les mesures sont exactes, la valeur minimale de  $P_{tm}$  qu'il est possible de régler sans extraction de filtrat ( $P_{tm_{rég-mini}}$ ), doit être très proche de zéro, quel que soit le débit de circulation dans les tubes. Plus  $P_{tm_{rég-mini}}$  est élevée, plus l'erreur de mesure est importante. Avec un sirop de sucre à 60 gMS/100g et à 80 °C (**Figure I.5**), nous constatons que cette erreur est conséquente lorsqu'aucune correction n'est considérée, en particulier aux fortes vitesses (jusqu'à 0,4 bar à 6 m/s). L'utilisation des formules de correction décrites précédemment permet de diminuer considérablement cette erreur. Après corrections, elle devient en effet inférieure à 0,05 bar quelle que soit la vitesse tangentielle utilisée. Afin d'améliorer ces résultats, il serait souhaitable d'affiner davantage les corrections notamment en considérant 19 canaux individualisés plutôt qu'un seul diamètre équivalent.

### I-1.2.2 Régulations

En considérant successivement les différents paramètres opératoires, le mode de régulation choisi est tout d'abord décrit (**Figure I.6**). La validité des régulations est ensuite illustrée dans le cas réel du traitement des solutions de gomme arabique à 20 gMS/100g et 70 °C. L'aptitude du système à réguler les paramètres opératoires a été vérifiée pour 5 couples  $P_{tm}/U$  différents. Notre objectif étant de filtrer le produit dans des conditions opératoires jusque là inexplorables avec le système classique (faible  $P_{tm}$  et forte  $U$ ), le domaine paramétrique choisi est 0,3-1,8 bar pour la pression transmembranaire et 6,5 - 7,5 m/s pour la vitesse tangentielle. Dans tous les cas présentés ici, une montée progressive de  $P_{tm}$  à la consigne est effectuée en 15 min environ. La vitesse tangentielle de consigne est quant à elle réglée dès le départ. Pour chaque essai, l'examen des régulations est réalisé pendant une heure.

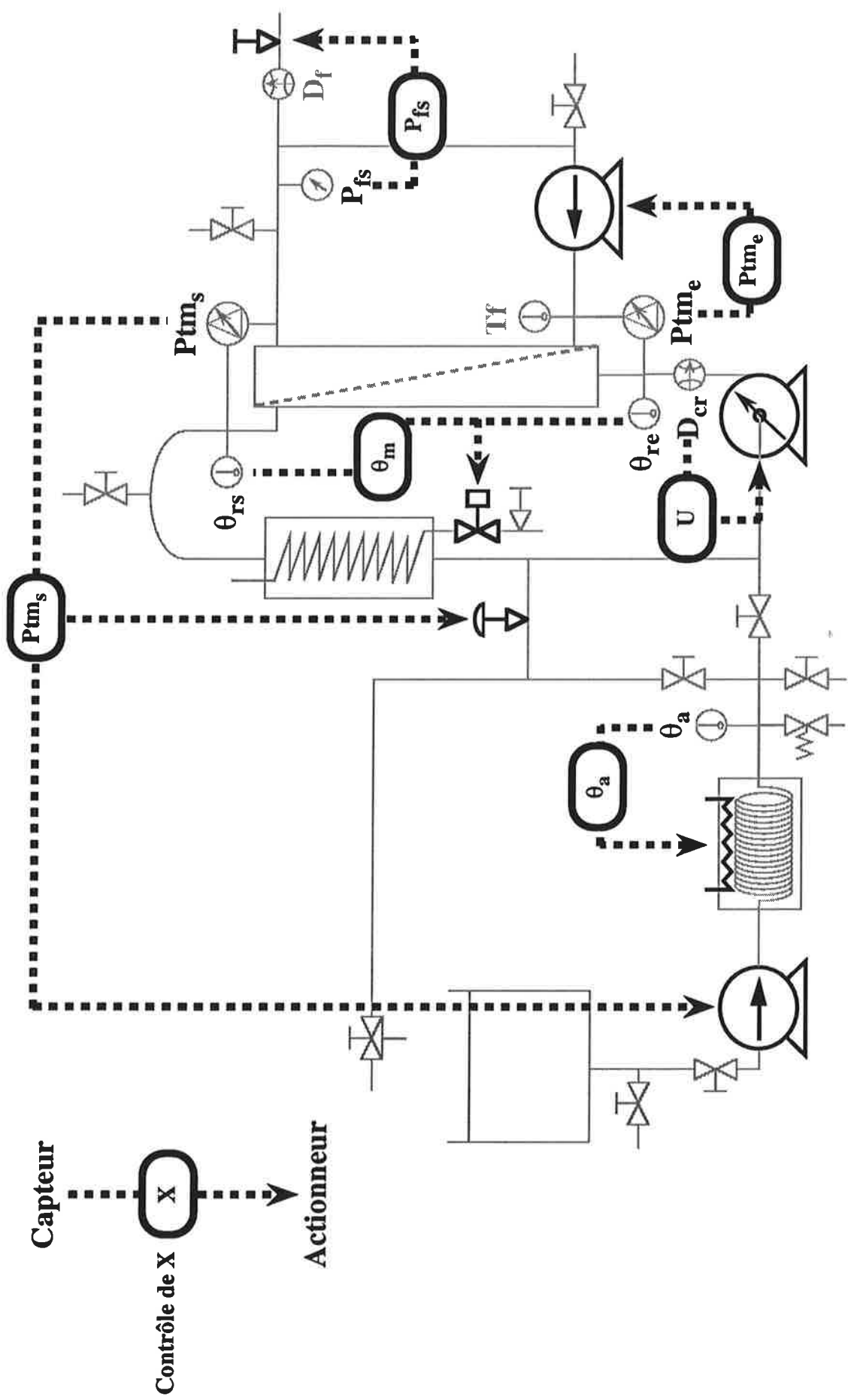


Figure I.6 : représentation schématique des boucles de contrôle-commande sur l'installation pilote ENSIA avec circulation de filtrat.

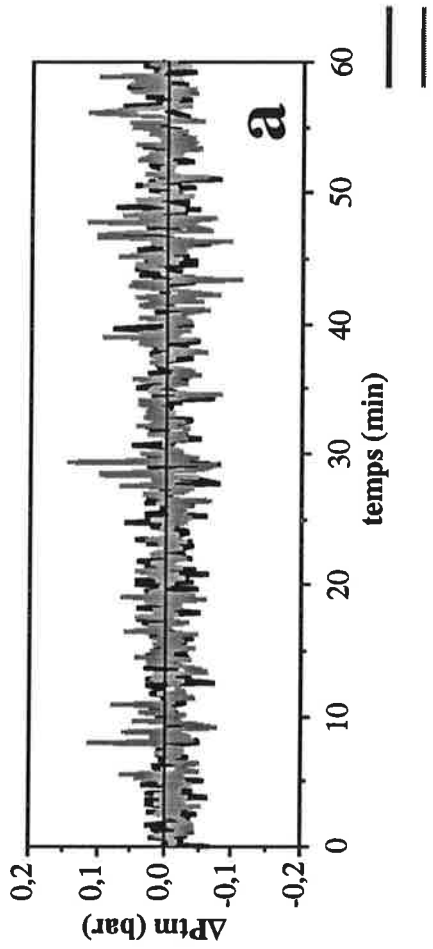
• *Pression transmembranaire*

Lors de l'adaptation du système avec circulation de filtrat, le mode de régulation de la pression transmembranaire, a dû être considérablement modifié. Plusieurs boucles de régulation simultanées ont été définies. Leur principe est le suivant :

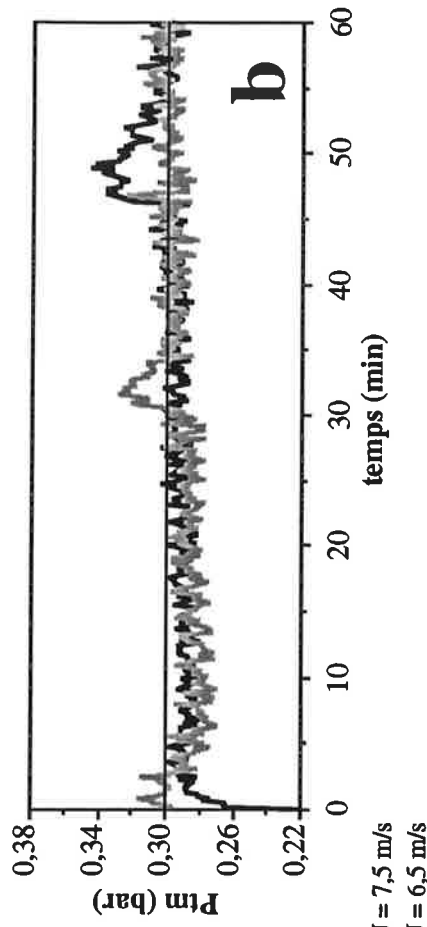
1. La première boucle consiste à réguler la pression transmembranaire en sortie de module ( $P_{RS} - P_{fS} = P_{tmS}$ ) à la pression transmembranaire de consigne. Pour cela, une action sur la pression de sortie rétentat ( $P_{RS}$ ) est réalisée.  $P_{RS}$  dépend de la perte de charge au passage de la vanne de recyclage rétentat. Pour modifier celle-ci, le débit de recyclage rétentat est préférentiellement modifié par commande pas à pas de la pompe d'alimentation. En cas de besoin, une action complémentaire sur la vanne de recyclage rétentat est également prévue.
2. La seconde boucle a pour objet d'égaliser les pertes de charge côté rétentat et filtrat. Il suffit pour cela de maintenir l'égalité des pressions transmembranaires en entrée et en sortie de module ( $P_{tmE} = P_{tmS}$ ). Les pertes de charge côté rétentat étant imposées par  $U$ , la solution consiste à modifier les pertes de charge côté filtrat en commandant la pompe de circulation de filtrat. Le mode d'action choisi est proportionnel à la différence de pressions transmembranaires entre l'entrée et la sortie ( $\Delta P_{tm} = P_{tmE} - P_{tmS}$ ) si  $\Delta P_{tm}$  est supérieure à 0,05 bar et pas à pas sinon.
3. Afin d'éviter tout risque de dégazage ou de cavitation, la pression d'aspiration de la pompe de circulation filtrat doit être suffisante. Pour cela, la pression de sortie filtrat ( $P_{fS}$ ) est maintenue à environ 0,5 bar par action sur la vanne d'extraction de filtrat. Cette action est effectuée manuellement. En effet, d'une part nous n'avons pas trouvé de vanne automatique répondant aux contraintes particulières de débit et de pression rencontrées, d'autre part, le montage de 2 vannes en parallèle n'a pas été retenu en raison de son coût prohibitif.

La qualité des régulations peut être analysée en considérant deux aspects : la différence de pression transmembranaire entre l'entrée et la sortie du module ( $\Delta P_{tm}$ ) et la moyenne des pressions transmembranaires  $P_{tm} = (P_{tmE} + P_{tmS}) / 2$ .

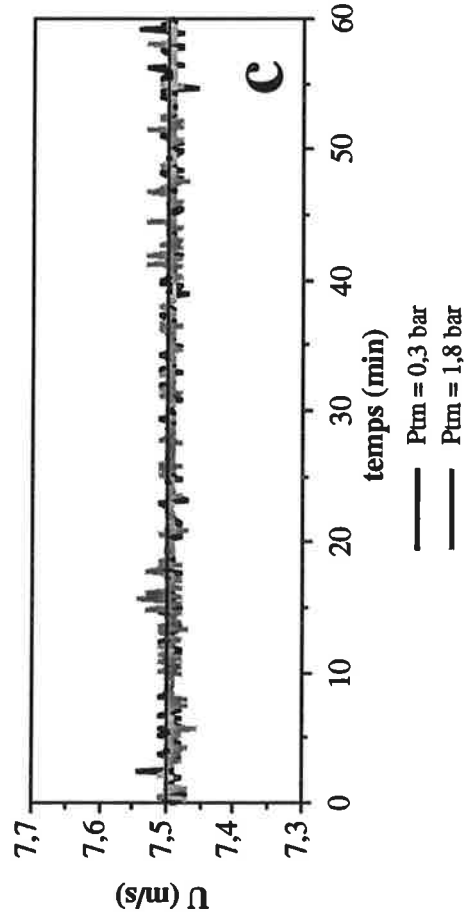
1. Différence de pression transmembranaire entre l'entrée et la sortie du module ( $\Delta P_{tm}$ ) : les divers résultats montrent que la régulation de  $\Delta P_{tm}$  ne dépend ni de  $P_{tm}$ , ni de  $U$ . Quelles que soient les conditions hydrodynamiques fixées,  $\Delta P_{tm}$  est maintenue à zéro  $\pm 0,10$  bar environ. Nous constatons sur la **Figure I.7a** que les oscillations de  $\Delta P_{tm}$  sont uniformément réparties autour de zéro. Ainsi, en moyenne les profils de pression côté rétentat et filtrat sont bien maintenus identiques. Le débit légèrement pulsé de la pompe de circulation filtrat est vraisemblablement la cause des oscillations observées. Il est donc probable que l'utilisation d'une pompe centrifuge à ce niveau permettrait d'améliorer les résultats.



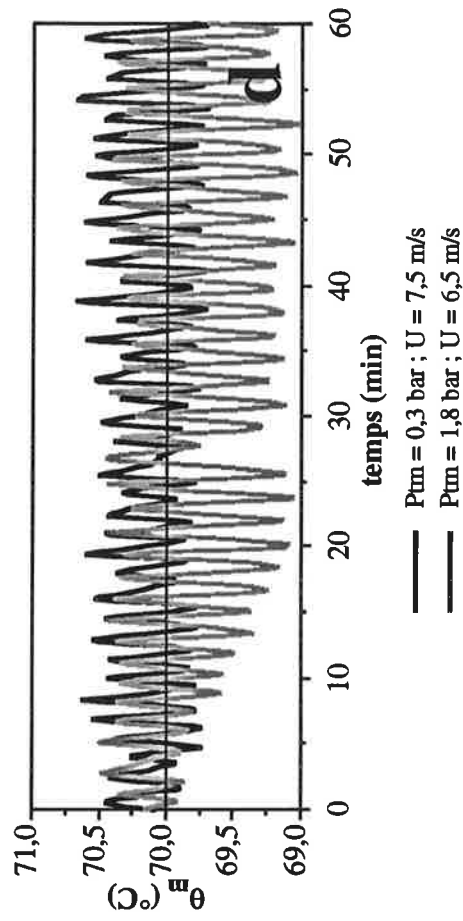
variations de la différence de pression transmembranaire ( $\Delta P_{tm}$ ) à différentes vitesses tangentielles (U) et 70 °C.



variations de la pression transmembranaire moyenne ( $P_{tm}$ ) à différentes vitesses tangentielles (U) et 70 °C.



variations de la vitesse tangentielle (U) à différentes pressions transmembranaires moyennes ( $P_{tm}$ ) et 70 °C.



variations de la température moyenne du module ( $\theta_m$ ) à différentes pressions transmembranaires ( $P_{tm}$ ) et vitesses tangentielles (U).

Figure I.7 : régulation des différents paramètres pendant la filtration d'une solution de gomme à 20 gMS/100g sur le pilote ENSIA avec circulation de filtrat.

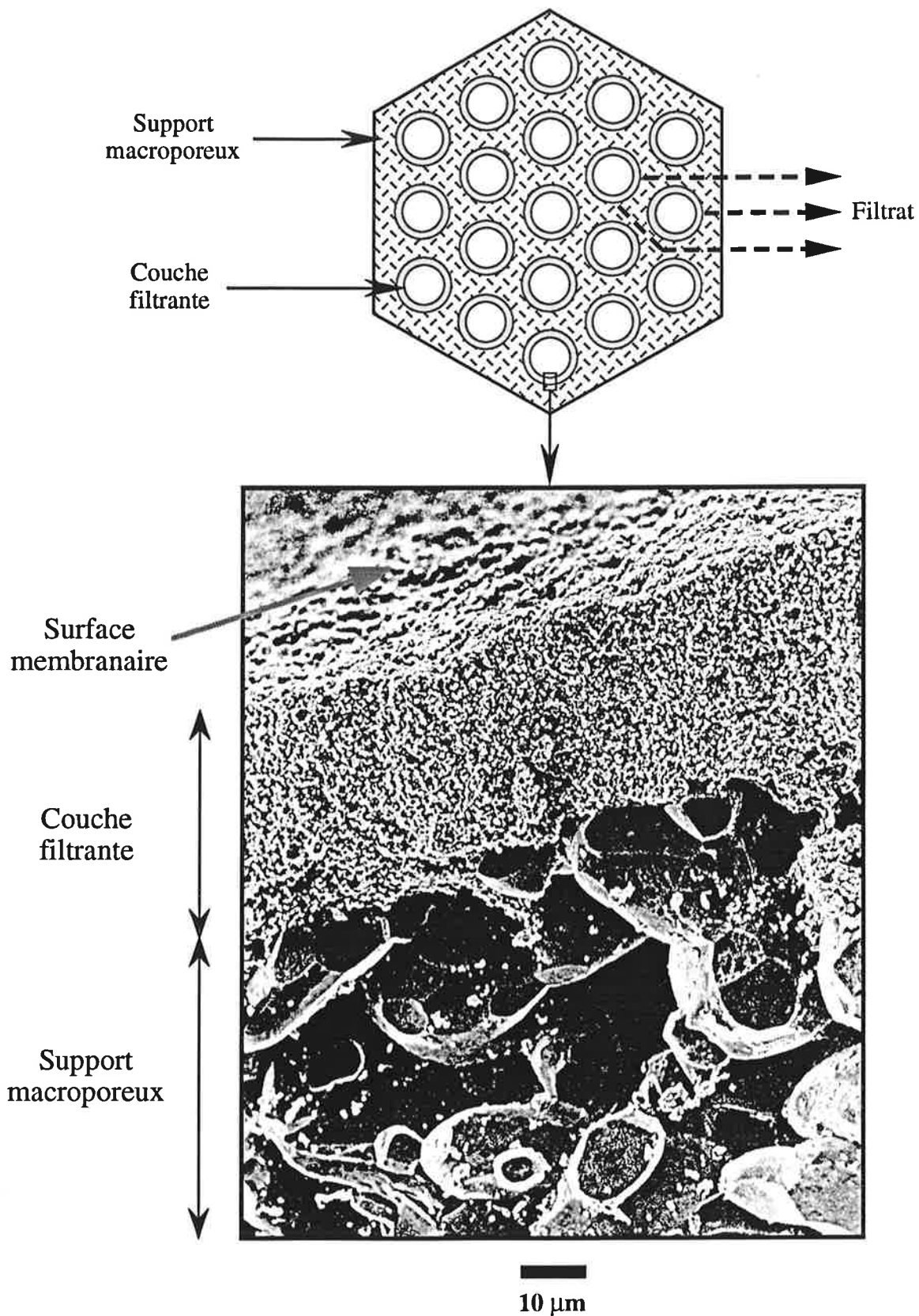
2. Moyenne des pressions transmembranaires en entrée et en sortie ( $P_{tm}$ ) : une variation de  $P_{tm}$  d'environ 6 % autour de la consigne est observée aux plus fortes pressions. Pour les plus faibles pressions cette variation est plus importante sans toutefois compromettre la validité des résultats (environ 13 %). Dans la gamme choisie, la qualité de la régulation de  $P_{tm}$  ne dépend pas significativement de  $U$ . A titre d'illustration, les résultats obtenus aux plus faibles  $P_{tm}$  sont donnés sur la **Figure I.7b**. Pour une vitesse de 6,5 m/s comme pour 7,5 m/s, l'intervalle de variation mesuré est de  $\pm 0,04$  bar autour de la consigne (0,30 bar). Malgré une légère sous-estimation de  $P_{tm}$  durant les 30 premières minutes de filtration, la valeur moyenne des  $P_{tm}$  est très proche de la consigne. Même dans les conditions les plus défavorables (faibles pressions et fortes vitesses), il est donc possible de réguler de façon satisfaisante ce paramètre. Notons que ces résultats sont similaires à ceux obtenus sur le pilote ENSIA sans circulation de filtrat.

#### • *Vitesse tangentielle*

La régulation de la vitesse tangentielle ( $U$ ) est simplement effectuée par action sur le débit de circulation du rétentat en commandant la pompe correspondante. Expérimentalement, la vitesse tangentielle est régulée à  $\pm 0,04$  m/s autour de sa valeur de consigne et ce quelle que soit la pression de travail (**Figure I.7c**). Les variations mesurées sont du même ordre de grandeur que la précision du débitmètre utilisé (environ  $\pm 0,02$  m/s). Ainsi, les oscillations observées ne sont pas différenciables du bruit de mesure. La régulation de ce paramètre est donc aussi fine dans la gamme explorée que sur le pilote sans circulation de filtrat.

#### • *Température moyenne du rétentat dans le module*

La température moyenne du rétentat dans le module ( $\theta_m$ ) est calculée suivant la formule  $\theta_m = (\theta_{re} + \theta_{rs})/2$ . Nous avons ici conservé le mode de régulation de la précédente installation. Une action sur le réchauffeur permet de maintenir à la valeur de consigne la température du fluide d'alimentation ( $\theta_a$ ). Une seconde action simultanée sur le refroidisseur permet de contrecarrer les échauffements par frottement visqueux et d'affiner la régulation. Les résultats obtenus sont illustrés sur la **Figure I.7d**. L'évolution de  $\theta_m$  en cours de filtration est nettement périodique (période d'environ 3 min). Ce comportement est la conséquence du mode d'action tout ou rien des 2 échangeurs de chaleur et de la forte inertie thermique du réchauffeur. Suivant les cas, l'intervalle de variation de  $\theta_m$  autour de la consigne est de 0,5 à 1,0 °C. La régulation de  $\theta_m$  est donc plus délicate par rapport au système sans circulation de filtrat ( $\pm 0,5$  °C dans tous les cas). Le plus grand volume de produit mis en circulation dans l'installation en est vraisemblablement l'explication. Pour améliorer cette régulation, il est envisagé de calorifuger les différents circuits, de disposer d'échangeurs de chaleur à puissance modulable ou encore de monter un échangeur d'appoint sur le circuit filtrat. Pour terminer, remarquons que la régulation de  $\theta_m$  dépend fortement des autres conditions opératoires. En effet, le débit d'alimentation qui conditionne directement  $\theta_m$  varie selon la valeur de  $P_{tm}$ . Enfin,  $U$  agit sur l'intensité des échauffements par frottement visqueux dans les



**Figure I.8 : coupe transversale schématique d'un module de microfiltration MEMBRALOX 1P19-40 et vue au microscope électronique à balayage de la structure membranaire [OUSMAN 1993].**

boucles de circulation rétentat et filtrat.

- *Bilan*

D'après ces résultats, le pilote ENSIA avec circulation de filtrat permet donc de tester le domaine des faibles pressions transmembranaires. Grâce notamment à l'adaptation de capteurs différentiels de pression et à des boucles de régulations simples, cette installation autorise des mesures fiables et un contrôle satisfaisant de la pression transmembranaire ( $\Delta P_{tm} \pm 0,10$  bar et  $P_{tm} \pm 0,04$  bar), de la vitesse tangentielle ( $U \pm 0,05$  m/s) et de la température ( $\theta_m \pm 1$  °C). Testée expérimentalement lors du traitement de solutions de gomme arabique à 20 gMS/100g et 70 °C, la qualité des régulations obtenue est satisfaisante. Ces résultats ont également été confirmés lors de la filtration de sirop de sucre à 60 gMS/100g et 80 °C.

### I-1.3 Membranes

La grande résistance physico-chimique des membranes minérales, leur confère de nombreux avantages par rapport aux membranes organiques. Bien que représentant un investissement plus important, les membranes minérales supportent notamment des cycles de nettoyage aisés à mettre en œuvre (pH extrêmes et température élevée). Leur durée de vie qui est de plusieurs années en utilisation continue, conduit à des coûts d'entretien et de remplacement faibles. Pour cette étude, nous avons donc choisi deux membranes minérales tubulaires.

La première est une membrane de microfiltration en céramique à profilé multicanal commercialisée sous la dénomination MEMBRALOX 1P19-40. Au niveau microscopique, elle se constitue d'un empilement de grains d'alumine ( $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ) soudés entre eux par frittage à haute température [BENNASAR 1984, COT *et al.* 1988, GILLOT et GARCERA 1984]. Leur granulométrie n'est pas homogène (structure asymétrique). Sur le support macroporeux qui assure la tenue mécanique de l'ensemble, repose la couche filtrante active de quelques dizaines de micromètres d'épaisseur (**Figure I.8**). Afin de se placer typiquement dans le domaine de la microfiltration, le diamètre moyen de pores choisi est de 1,4  $\mu\text{m}$ . D'après quelques travaux précédents, cette membrane devrait être particulièrement sensible aux conditions hydrodynamiques de traitement [PUNIDADAS 1990].

La seconde membrane testée correspond au domaine de l'ultrafiltration et sera simplement nommée "membrane d'ultrafiltration" par la suite.

Installation pilote	ENSIA sans circulation de filtrat	ENSIA avec circulation de filtrat	$\alpha$ -LAVAL / EDF
Pression transmembranaire moyenne : P <sub>tm</sub> (bar)	$\frac{P_{re} + P_{rs} - P_f}{2}$	$\frac{P_{tm_e} + P_{tm_s}}{2}$	$\frac{(P_{re} - P_{fe}) + (P_{rs} - P_{fs})}{2}$
Vitesse tangentielle : U (m/s)	$\frac{D_{cr}}{SP}$		

Tableau I.2 : variables de commande choisies et formules de calcul.

Critère d'évaluation	Variable d'état	Unité	Calcul
Performances	Jf	L/(h.m <sup>2</sup> )	$\frac{D_f}{A}$
Efficacité	TQ (avec Q = TU, MS ou COL)	%	$(1 - \frac{Q_f}{Q_{init}}) \times 100$
Intensité du colmatage	Rt	m <sup>-1</sup>	$\frac{P_{tm}}{\eta_f \cdot Jf}$
Consommation énergétique par unité de surface membranaire	$\dot{W}_t = \sum (\dot{W}_{pompes}) + \dot{W}_{éch}$	Pompe d'alimentation	$\dot{W}_a = \frac{D_a \cdot P_{rs}}{\zeta_{a,A}}$
		Pompe de circulation rétentat	$\dot{W}_{cr} = \frac{D_{cr} \Delta P}{\zeta_{cr,A}}$
		Pompe de circulation filtrat	$\dot{W}_{cf} = \frac{D_{cf} \Delta P}{\zeta_{cf,A}}$
		Echangeur de chaleur	$\dot{W}_{éch} = \frac{\rho \cdot Cp \cdot D_a \cdot \Delta \theta}{\zeta_{éch,A}}$

Tableau I.3 : critères d'évaluation, variables d'état choisies et formules de calcul.



## I-2 CHOIX ET DEFINITION DES VARIABLES

### I-2.1 Variables de contrôle

Comme il a déjà été précisé en introduction, nous avons centré notre étude sur l'effet des deux principales conditions hydrodynamiques qui sont la pression transmembranaire et la vitesse tangentielle. Nous rappelons ci-dessous leur définition. Les diverses formules de calcul utilisées sont récapitulées dans le **Tableau I.2**.

Nous désignons par pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) la différence moyenne de pression qui règne de part et d'autre de la membrane entre les compartiments rétentat et filtrat. Cette pression transmembranaire correspond à la force motrice nécessaire au transfert de matière à travers le milieu poreux. Pour le calcul de  $P_{tm}$ , nous considérerons que le débit de filtrat est négligeable par rapport au débit de circulation du rétentat ( $D_f \ll D_{cr}$ ). Ainsi, le profil de pression le long de la membrane côté rétentat est approximé linéaire. De plus, pour le système avec circulation de filtrat, nous supposerons également que le profil de pression le long de la membrane côté filtrat est linéaire.

La vitesse tangentielle ( $U$ ) correspond à la vitesse axiale moyenne du fluide côté rétentat. Elle détermine les effets de cisaillement à la paroi et contribue ainsi à limiter l'accumulation de matière au voisinage de la membrane.

Nous avons choisi de ne pas faire varier la température ( $\theta_m$ ). En effet, dans la grande majorité des cas répertoriés dans la littérature, l'augmentation de la température de filtration améliore considérablement les débits de filtrat [CHERYAN 1986, EVANS et GLOVER 1974, HANSENS *et al.* 1984]. Ce rôle bénéfique résulte principalement d'une diminution de la viscosité du produit. De plus, la température a en général peu d'influence sur la rétention membranaire. Sauf cas particuliers, la filtration a donc intérêt à être réalisée à la température la plus élevée possible. Ainsi, pour chacun des cas traités, nous fixerons la température de filtration à la valeur maximale supportée par le produit à filtrer sans observer de dégradation sensible. Cette température maximale admissible peut être déterminée par des tests simples en laboratoire.

### I-2.2 Critères d'évaluation et variables d'état

Afin de caractériser une opération de filtration tangentielle, quatre grands types de critères d'évaluation sont définis (**Tableau I.3**).

#### I-2.2.1 Performances

Les performances d'une installation caractérisent sa capacité de traitement. Ce premier critère correspond donc à l'aspect quantitatif. Il doit permettre d'estimer la surface membranaire nécessaire

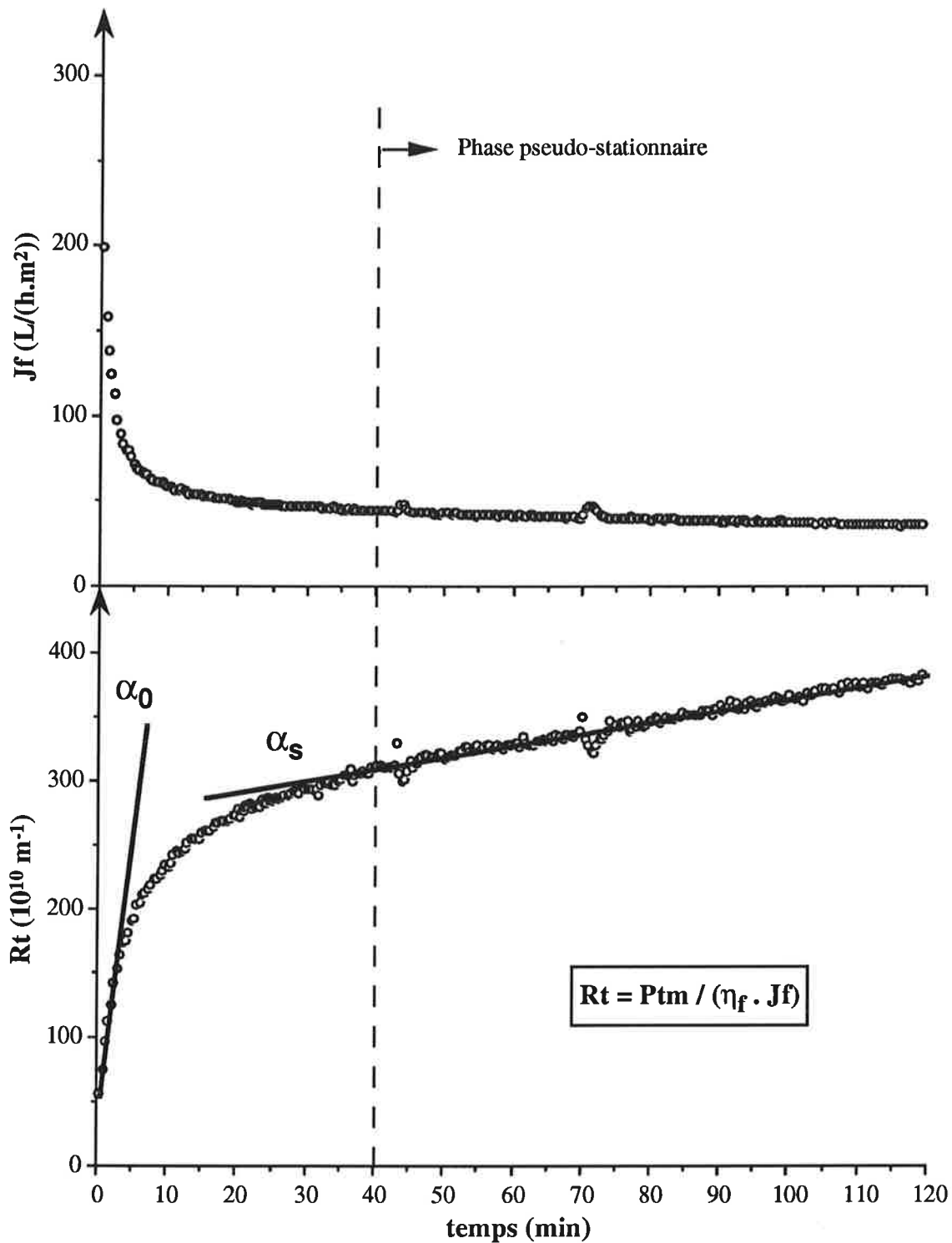


Figure I.9 : définition des pentes  $\alpha_0$  et  $\alpha_s$  sur les courbes d'évolution de la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) en fonction du temps [sucre lot 3 / MEMBRALOX 1,4  $\mu m$ ;  $P_{tm} = 2,25$  bar;  $U = 5,0$  m/s;  $\theta_m = 80$  °C].

pour le traitement d'une quantité de produit donnée en un temps fixé (dimensionnement). Afin de faciliter la comparaison entre des installations de différentes surfaces membranaires, nous avons choisi d'utiliser la densité de flux de filtrat ( $J_f$ ). Lors de la filtration de produits alimentaires, signalons que le critère performances est en général le facteur limitant. En effet, compte tenu de la faible valeur ajoutée de la majorité de ces produits, il est nécessaire d'obtenir des débits de traitement élevés pour atteindre une bonne rentabilité du procédé.

### I-2.2.2 Efficacité

L'efficacité évalue l'effet de la filtration sur la qualité du produit (aspect qualitatif). Elle peut être estimée sous la forme de taux de rétention notés  $T_Q$  avec  $Q$  critère de qualité choisi. Pour les applications particulières traitées ici, la turbidité (TU) permet de définir un taux de clarification ( $T_{TU}$ ), la teneur en matière sèche (MS), un taux de rétention en matière sèche ( $T_{MS}$ ) et, dans certains cas, la coloration (COL), un taux de décoloration ( $T_{COL}$ ).

### I-2.2.3 Intensité du colmatage membranaire

Pour simplifier, nous regrouperons sous le terme colmatage, l'ensemble des phénomènes qui s'opposent aux transferts à travers la membrane et qui sont engendrés par une accumulation de matière à son voisinage. Afin de caractériser globalement le colmatage membranaire, nous utiliserons la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) définie selon la loi de DARCY généralisée [BENNASAR et TARODO DE LA FUENTE 1987, MAUREL 1993]. Cette grandeur permet de quantifier l'intensité du colmatage indépendamment de la pression transmembranaire, de s'affranchir des variations de teneurs en matière sèche entre deux essais et de corriger l'effet des petites variations de pression et de température qui sont occasionnées par les régulations durant une même filtration.

Dans les cas où la viscosité du filtrat évolue au cours du temps (forte rétention en matière sèche par exemple), nous choisissons de calculer une résistance hydraulique totale apparente en prenant comme valeur de viscosité celle du produit initial non-filtré.

Afin de quantifier les vitesses d'évolution du colmatage, nous déterminerons dans certains cas, sur la courbe d'évolution de  $R_t$  au cours du temps, les pentes à l'origine  $\alpha_0$  et les pentes en régime pseudo-stationnaire  $\alpha_s$  (dernière phase de croissance lente de  $R_t$  qui correspond à un état de quasi-équilibre du colmatage membranaire). Ces pentes sont calculées par simples régressions sur les portions linéaires des courbes expérimentales (**Figure I.9**).

### I-2.2.4 Consommation énergétique

Pour une installation donnée, la consommation électrique totale par unité de surface membranaire est

notée  $\dot{W}_f$ . Le rapport  $\dot{W}_f/J_f$  permet d'approcher l'énergie nécessaire à la filtration d'une unité de volume de produit. Pour l'étude d'un couple produit/membrane donné, le débit d'alimentation et la température de travail sont maintenus constants durant nos essais.  $\dot{W}_{éch}$  est ainsi constante. La consommation énergétique totale peut donc être représentée par la seule consommation des pompes à une constante près. Pour les calculs, les rendements énergétiques des pompes ( $\zeta$ ) seront fixés arbitrairement à 1.

### I-3 CONDUITE DES ESSAIS PILOTE

La méthodologie expérimentale choisie pour mener les essais pilote de filtration est précisée ci-dessous. Après une sommaire description de la mise en route des installations, nous définirons les diverses procédures de démarrage. Enfin, le mode de conduite, le suivi des essais et la séquence de nettoyage seront présentés.

#### I-3.1 Mise en route des installations

Dans tous les cas, les procédures de mise en route des diverses installations se constituent schématiquement des étapes suivantes :

1. Préchauffage d'environ 40 litres d'eau à la température désirée.
2. Remplissage et purge de l'air des circuits rétentat puis filtrat.
3. Préparation de 30 litres de produit légèrement surconcentré.
4. Pousse de l'eau avec le produit, vanne d'extraction filtrat fermée, et contrôle de la pousse par mesure de la matière sèche en sortie de circuit.
5. Mise en circulation lente côté rétentat ( $U \approx 1$  m/s), attente de la stabilisation de la température (entre 20 et 40 min) puis lancement de l'enregistrement.
6. Mise sous pression éventuelle de l'installation et réglage de la vitesse tangentielle à la vitesse de consigne ou à une plus faible valeur suivant la procédure de démarrage choisie.
7. Ouverture de la vanne d'extraction filtrat (établissement de la pression transmembranaire) et simultanément remise à zéro du compteur de temps.
8. Lancement de la procédure de démarrage.

Notons que la mise en route avec l'eau et la pousse au produit sont nécessaires. En effet, la forte viscosité des produits utilisés rend impossible la purge complète de l'air contenu dans les circuits par remplissage direct avec les solutions. De plus, le circuit filtrat étant rempli d'eau avant le démarrage, cette procédure permet d'avoir accès au débit de filtrat dès l'ouverture de la vanne d'extraction filtrat. Enfin, dans le cas de la configuration avec circulation de filtrat, il est indispensable que le circuit filtrat soit rempli de fluide avant le démarrage pour assurer l'uniformité

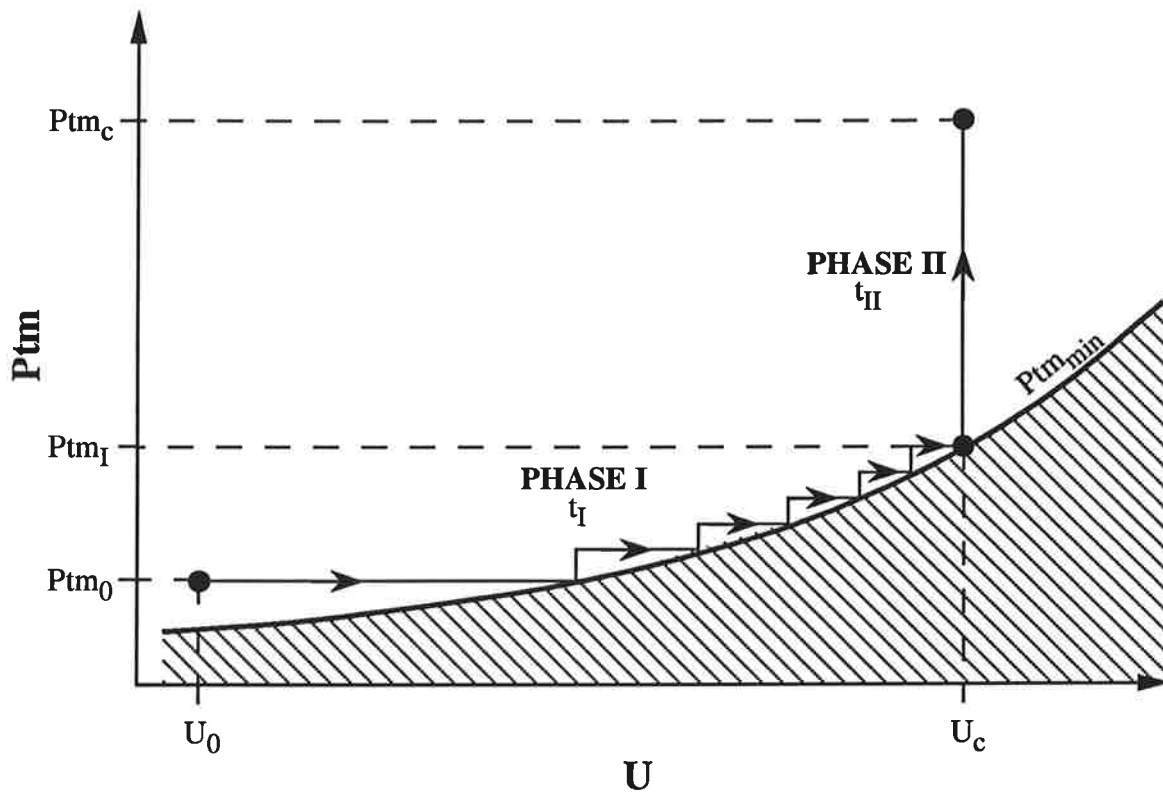


Figure I.10 : représentation schématique de la procédure suivie pour les démarrages lents.

procédure peut conduire à de légères variations de la teneur en matière sèche entre les essais car la pousse au produit entraîne une dilution partielle qu'il est difficile de maîtriser.

### I-3.2 Procédure de démarrage

#### I-3.2.1 Système sans circulation de filtrat

Pour le système sans circulation de filtrat, divers modes de démarrage sont définis. Nous les classons en deux grandes catégories :

- *Mode de démarrage brusque*

La vitesse tangentielle est réglée à sa valeur de consigne et le pilote est mis sous pression avant le début de la filtration. Ainsi, la pression transmembranaire s'établit brusquement et rapidement dès les premières minutes. Ce mode de démarrage est le plus couramment utilisé.

- *Modes de démarrage lents*

Cette seconde catégorie de démarrage est caractérisée par un établissement plus progressif de la pression transmembranaire et de la vitesse tangentielle. Il est préférable d'envisager une augmentation prioritaire de la vitesse tangentielle par rapport à la pression transmembranaire afin d'assurer une contrainte de cisaillement la plus élevée possible à la paroi lors de la montée en pression. Ainsi, un démarrage en deux phases est choisi. Durant la phase I, la vitesse tangentielle est tout d'abord augmentée jusqu'à sa valeur de consigne ( $U_c$ ) et la pression transmembranaire maintenue la plus faible possible. Afin d'assurer la filtration sur la totalité de la surface de la membrane, la pression transmembranaire doit néanmoins être maintenue au-dessus d'une valeur minimale ( $P_{tm_{min}}$ ) qui dépend des pertes de charge dans le module (cf. § II-1.1.1). La vitesse tangentielle de consigne étant atteinte, la pression transmembranaire est alors portée progressivement à sa valeur de consigne ( $P_{tm_c}$ ) durant la phase II. Une représentation schématique de la procédure suivie est donnée sur la **Figure I.10**. Il est possible de moduler la durée de chacune de ces deux phases ( $t_I$  et  $t_{II}$ ) et de changer les valeurs initiales de pression transmembranaire et de vitesse tangentielle ( $P_{tm_0}$  et  $U_0$ ).

#### I-3.2.2 Systèmes avec circulation de filtrat

Pour les systèmes avec circulation de filtrat, le mode de démarrage est, dans tous les cas, choisi lent. La procédure suivie est néanmoins différente de celle décrite ci-dessus puisqu'il n'existe plus de  $P_{tm_{min}}$  dans ce second cas. Vanne d'extraction de filtrat fermée, la vitesse tangentielle est tout d'abord portée très lentement jusqu'à sa valeur de consigne. Durant cette augmentation, les pertes de charge côté filtrat sont ajustées en permanence à celles côté rétentat afin de maintenir  $P_{tm_e} = P_{tm_s}$

ETAPE	Produit		Température (°C)	U (m/s)	Ptm (bar)	Temps de contact (min)
	Dénomination	Caractéristiques   Concentration				
Vide sanitaire (R 0)	Eau courante		50 à 60	3	0	10
PHASE I	P3-ULTRASIL 25 (HENKEL)	Liquide, alcalin-chloré, peu complexant	50	3	0	10 - 20** (MS < 1 g/100g)
					< 1*	20
Rinçage (R I)	Eau courante		50 à 60	3	0	10
PHASE II	Acide nitrique	Liquide	60	3	< 1*	10 - 30** (pH < 8)
					1 % (V/V)	< 1*
Rinçage (R II)	Eau courante		50 à 60	3	0	10
PHASE III	P3-ULTRASIL 10 (HENKEL)	Poudre, alcaline, fortement complexante	80	3	< 1*	10 - 20** (pH > 6)
					1 % (P/V)	< 1*
Rinçage (R III)	Eau courante		50 à 60	3	0	10
			50 à 60 puis 25			

\* : variable suivant la membrane, \*\* : variable suivant l'installation pilote.

**Tableau I.4 : séquence chronologique de nettoyage en place suivie.**

de charge côté filtrat sont ajustées en permanence à celles côté rétentat afin de maintenir  $P_{tm_e} = P_{tm_s}$  proche de zéro. Une fois la vitesse de consigne atteinte, l'installation est mise peu à peu sous pression puis la vanne d'extraction filtrat ouverte graduellement. La pression transmembranaire est alors augmentée progressivement jusqu'à sa valeur de consigne.

### I-3.3 Mode de conduite et suivi des filtrations

Tous les essais de filtration effectués durant ce travail ont été réalisés avec recyclage total (rétentat et filtrat), à température constante et à débit de filtrat variable. Le débit de recyclage de rétentat est maintenu très supérieur au débit de filtrat afin de limiter l'accumulation de matière dans la boucle de circulation (facteur de concentration volumique peu différent de 1). Ainsi, les caractéristiques du produit à filtrer restent proches de celles du produit initial et n'évoluent pas significativement dans le temps. Ce mode de fonctionnement sans concentration est celui qui est le plus couramment utilisé pour l'optimisation des conditions hydrodynamiques. Il permet de limiter considérablement la quantité de produit à mettre en œuvre par essai (20 à 60 litres sur les installations pilote utilisées ici).

Grâce au système de contrôle commande du pilote ENSIA, les indications fournies par tous les capteurs (températures, pressions et débits) sont enregistrées toutes les 2 à 10 secondes suivant les cas. L'évolution du débit de filtrat est donc suivie en ligne. Des prélèvements réguliers de filtrat permettent d'appréhender l'évolution de sa qualité au cours du temps. La fréquence de l'échantillonnage varie de 5 à 30 min. Le volume prélevé est d'environ 50 ml dans le cas de prise d'échantillon standard et d'environ 500 ml lorsqu'une analyse granulométrique est envisagée.

Comme nous l'avons spécifié précédemment pour le pilote  $\alpha$ -LAVAL / EDF, toutes les régulations et les mesures sont effectuées manuellement. Le débit de filtrat est mesuré toutes les 5 minutes environ à l'aide d'une éprouvette et d'un chronomètre.

### I-3.4 Nettoyage

Basée sur une précédente étude [PUNIDADAS 1990], la séquence de nettoyage en place choisie s'articule en trois phases successives. Leur détail est donné dans le **Tableau I.4**. Après un premier rinçage à environ 50 °C (vide sanitaire), la première phase utilise directement un produit alcalin-chloré à forte concentration (pas de débouillage). La présence de chlore (milieu oxydant) permet de faciliter l'hydrolyse de certains polymères organiques fortement colmatants comme par exemple les pectines. Le passage de la solution d'acide permet principalement de reconditionner chimiquement la membrane [BENNASAR 1984]. Grâce à sa capacité passivante vis à vis de l'acier inoxydable, l'acide nitrique ne pose pas de problème de corrosion particulier. De plus il est compatible avec les matériaux membranaires utilisés. La dernière phase met en jeu un produit alcalin fortement complexant. En comparant les résultats obtenus avec et sans cette dernière phase, nous avons constaté une amélioration d'environ 74 % des perméabilités à l'eau lorsque celle-ci est effectuée



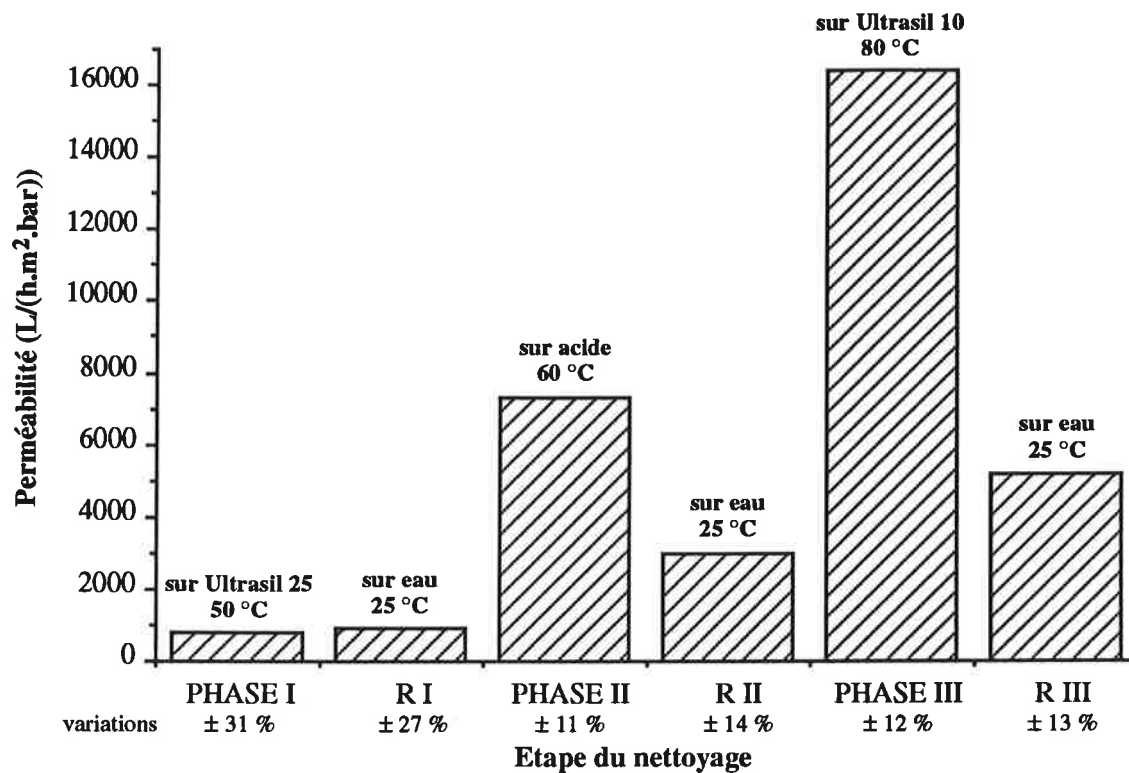


Figure I.11 : évolution de la perméabilité membranaire au cours du nettoyage: valeurs moyennes et variations calculés sur 14 essais (100 à 113) [sucre lot 4 / MEMBRALOX 1,4 µm; U = 3 m/s; P<sub>tm</sub> ≤ 0,5 bar].

ESSAIS	Produit	Installation pilote	P <sub>tm</sub> (bar)	U (m/s)
082 - 083 - 084	Sucre roux 60 gMS/100g, 80 °C	ENSIA sans circulation de filtrat	2,00	5,0
085 - 086 - 087			3,00	
088 - 089 - 090			1,30	
100 - 101			2,25	
142 - 143		ENSIA avec circulation de filtrat	0,50	
157 - 160	Gomme végétale 20 gMS/100g, 70 °C	ENSIA avec circulation de filtrat	1,05	7,0

Tableau I.5 : conditions testées pour les essais de reproductibilité sur la membrane MEMBRALOX 1,4 µm.

à l'eau lorsque celle-ci est effectuée (**Figure I.11**). Bien qu'aucune explication satisfaisante puisse être avancée, la dernière phase semble donc essentielle.

Pour tous les couples produit/membrane testés, cette séquence a permis de retrouver les perméabilités à l'eau des membranes propres. Aussi bien lors du traitement des sirops de sucre que des solutions de gomme arabique, aucune dérive des perméabilités membranaires n'a ainsi été observée dans le temps sur 24 mois environ. Notons que cette procédure de nettoyage gagnerait à être optimisée afin de limiter au mieux les quantités de produits chimiques et d'eau de rinçage ainsi que les temps de contact.

#### **I-4 REPRODUCTIBILITE DES ESSAIS**

La reproductibilité des essais, condition sine qua non à la validité de notre étude, a été testée sur la membrane MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  dans différentes conditions de  $P_{tm}$ , aussi bien avec les sirops de sucre qu'avec les solutions de gomme arabique, avec ou sans circulation de filtrat (**Tableau I.5**). Au niveau des résistances hydrauliques totales, la reproductibilité des courbes est très satisfaisante. Dans tous les cas, la différence moyenne entre les  $R_t$ , estimée sur l'ensemble des courbes, n'excède pas  $5.10^{10} \text{ m}^{-1}$ . Les courbes de résistances obtenues sont toujours pratiquement confondues en régime pseudo-stationnaire. Une différence plus significative est parfois observée durant les premiers instants de la filtration (**Figure I.12**). En ce qui concerne l'efficacité, la bonne reproductibilité des résultats est également vérifiée. En régime pseudo-stationnaire, la différence moyenne entre les courbes de  $T_{TU}$  et  $T_{MS}$  est estimée entre 1 et 3 % suivant les cas. Néanmoins, des différences plus importantes entre les courbes expérimentales en début de filtration peuvent être observées.

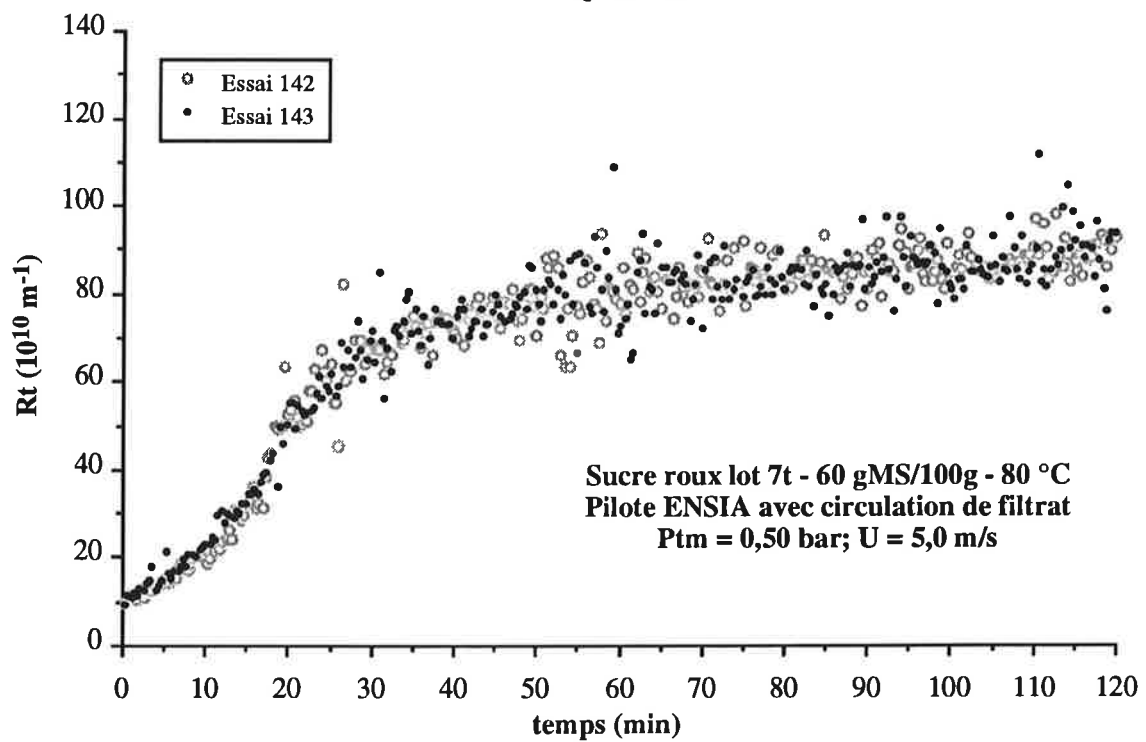
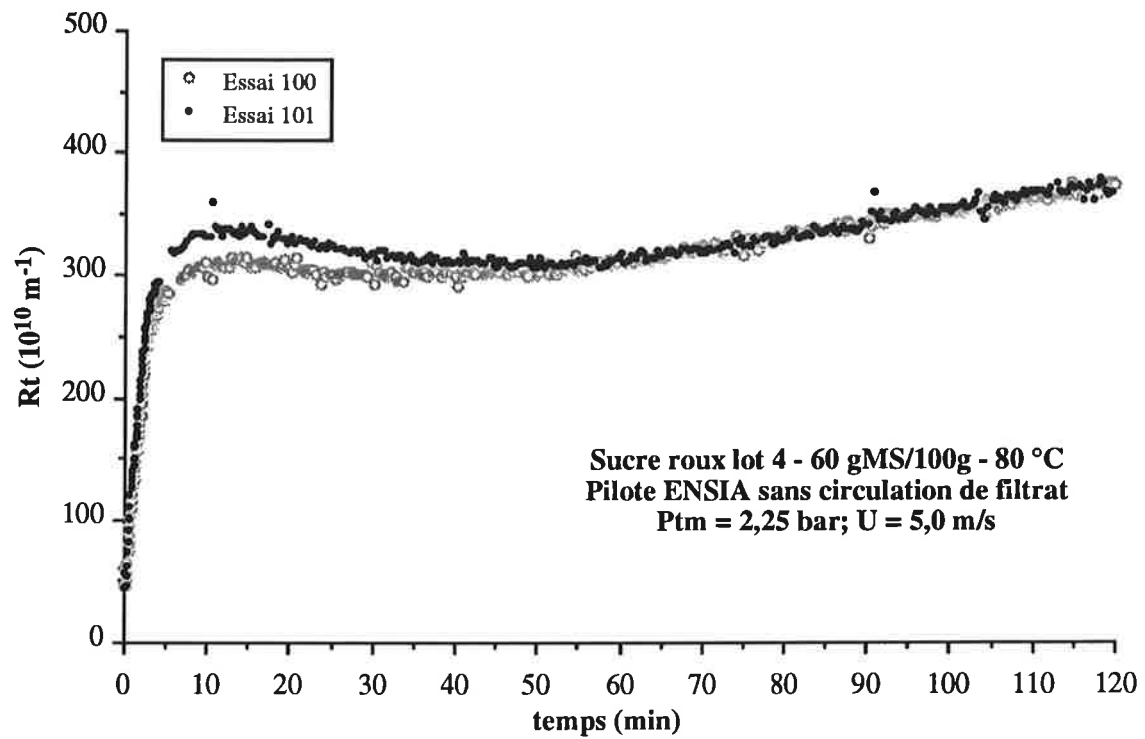
Une étude complémentaire de la membrane d'ultrafiltration a également prouvé la bonne reproductibilité des résultats sur cette seconde membrane, aussi bien pour  $R_t$  que pour  $T_{TU}$  et  $T_{COL}$ .

#### **I-5 PRODUITS FILTRES**

Nous décrivons tout d'abord les méthodes mises en œuvre pour caractériser les produits traités. Les résultats obtenus sont ensuite successivement présentés pour les sirops de sucre roux de canne et les solutions de gomme arabique.

##### **I-5.1 Méthodes d'analyses**

Les méthodes d'analyse choisies sont portées dans le **Tableau I.6**. Nous précisons ci-dessous, les diverses mises au point analytiques effectuées et la spécificité des protocoles utilisés dans le cadre de notre étude.



**Figure I.12 : exemple d'évolution de la résistance hydraulique totale (Rt) au cours de filtrations réalisées dans des conditions identiques [membrane MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$ ].**

VALEUR MESUREE	Notation	Méthode	Matériel	Unité	Erreur de mesure estimée	Analyse effectuée sur	
						Sucre	Gomme
Teneur en matière sèche	MS MSV	Réfractométrie à 20 °C ±0,1 °C	Réfractomètre type Abbe ATAGO 3T, couplée à un thermostat (HAAKE CF3)	g/100g g/100ml	0,05 g/100g	X	X
Turbidité	TU	Néphélométrie norme ISO 7027 : lumière diffusée à 90 °, faisceau monochromatique (860 nm), correction de la lumière transmise	Turbidimètre DR LANGE LTP 4, zone linéaire 0 à 100 UNT	Unité Néphélo- métrique de Turbidité (UNT)	0,5 UNT	X	X
pH			pH-mètre à électrodes combinées et sonde de température HANNA INSTRUMENTS HI/8417	Unité pH	0,05 unité pH	X	X
Viscosité	η		Viscosimètre Searle CONTRAVES RHEOMAT 115, système de mesure à double entrefer MS 0/115, thermostaté à 0,2 °C près	Pa.s	0,1 .10 <sup>-3</sup> Pa.s	X	X
Masse volumique	ρ	Pesée de 100 ml de produit (moyenne sur 3 mesures)		kg/m <sup>3</sup>	2 kg/m <sup>3</sup>	X	X
Coloration	COL	Méthode ICUMSA	Spectrophotomètre CARL-ZEISS PMQIL-M4QIII, spectrophotomètre JASCO V-550	Unité ICUMSA (UI)	20 UI	X	
Teneur en saccharose	S	Polarimétrie après défécation à l'acétate de plomb	Polarimètre SCHMIDT-HAENSCH	g/100ml	0,1 g/100ml	X	
Pureté	P	$P = \frac{S}{MSV} \times 100$		gS/100gMS	0,2 gS/100gMS	X	
Teneur en cendres	CD	Conductimétrie suivant la méthode ICUMSA à 28 gMS/100g	Conductimètre WTW LF196	mg/100gMS	0,5 mg/100gMS	X	
Granulométrie	D <sub>50</sub> D <sub>max</sub> vps	Diffraction LASER après ultrasonication modérée	Granulomètre MALVERN MASTERSIZER X, LASER He/Ne (6328 Å, 2 mW), gamme 0,1 µm - 600 µm, agitation et ultrasonication variables de l'échantillon	µm (D <sub>50</sub> et D <sub>max</sub> ), % volume (vps)	0,1 µm pour D <sub>50</sub> et D <sub>max</sub>	X	

Tableau I.6 : méthodes d'analyse utilisées.

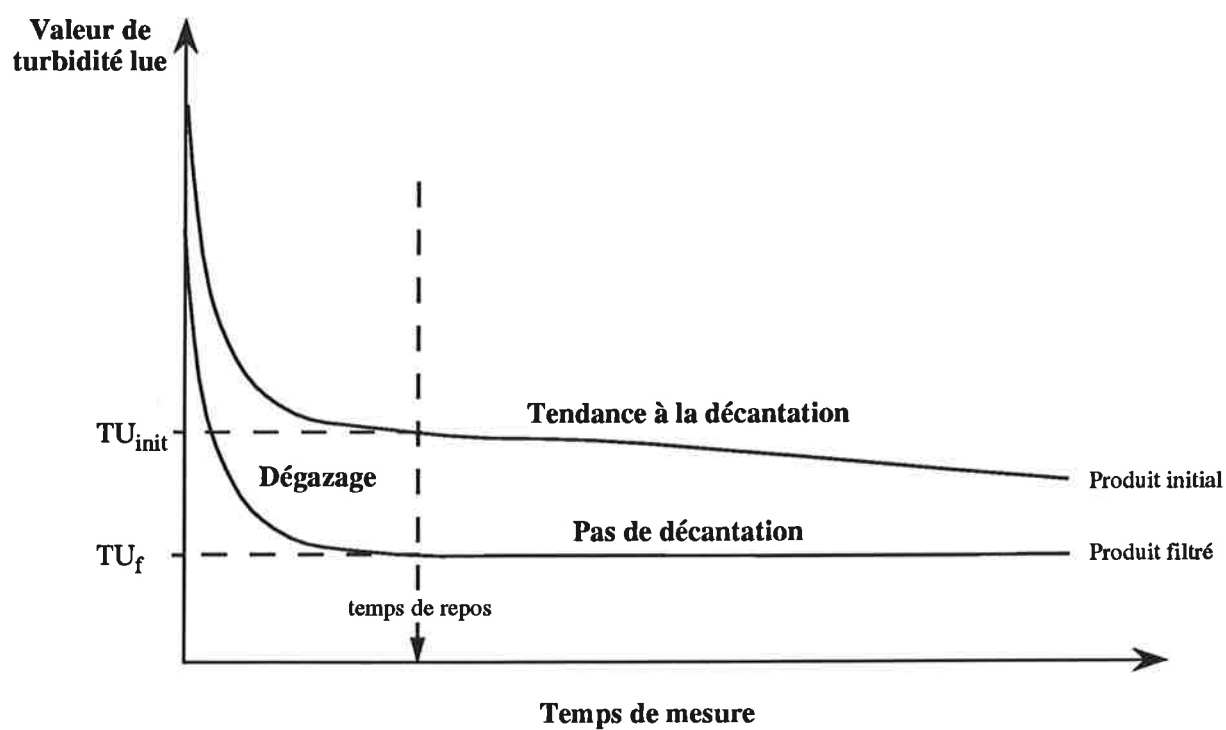


Figure I.13 : détermination du temps de repos à observer avant la mesure de la turbidité (TU).

Pour les mesures de teneur en matière sèche (MS), le réfractomètre a été étalonné sur des solutions de saccharose pur. Les mesures sont donc réalisées en faisant l'hypothèse que l'indice de réfraction global des produits analysés est peu différent de celui du saccharose pur en solution.

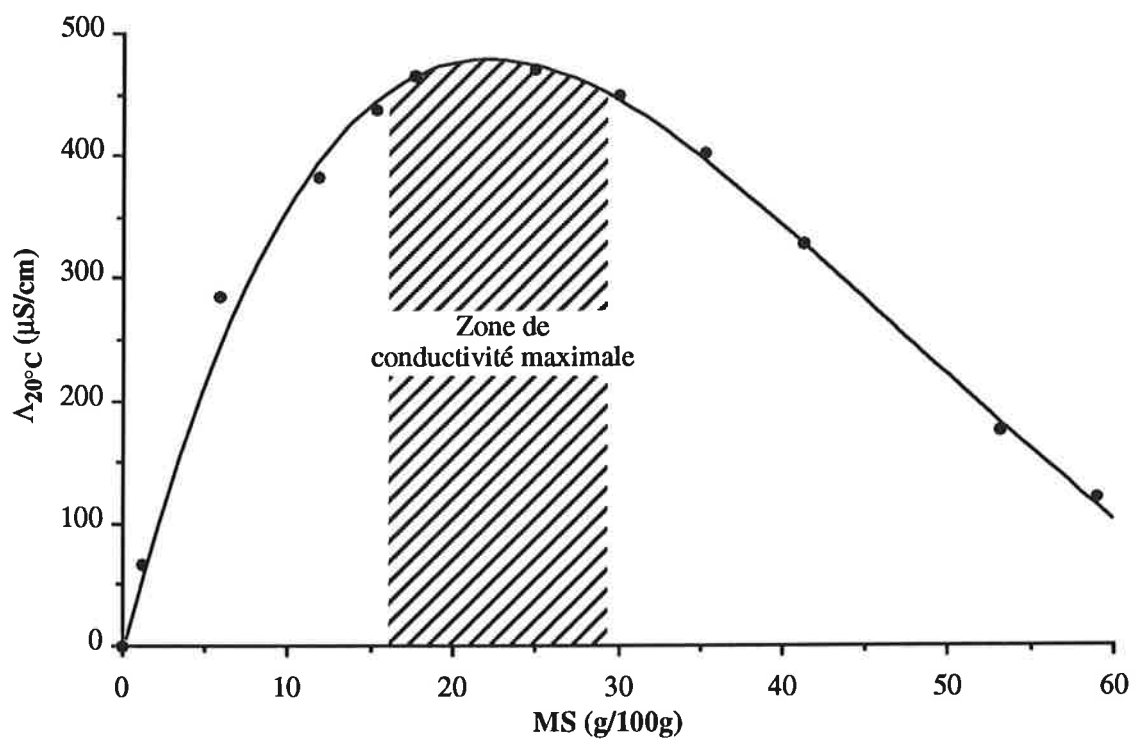
Le turbidimètre utilisé pour la mesure de TU est régulièrement étalonné à l'aide de suspensions de formazine (polymère insoluble  $[C_2H_4N_4]_n$ ). Ces suspensions étalons sont préparées par dilutions d'une suspension mère à 4000 UNT obtenue en faisant réagir pendant 24 h à température ambiante et à l'obscurité, 5 g de sulfate d'hydrazine ( $N_2H_6SO_4$ ) avec 50 g d'hexaméthylènetétramine ( $C_6H_{12}N_4$ ) dans un litre d'eau distillée [CLIFFORD 1992]. Les suspensions étalons diluées (TU  $\leq$  400 UNT) sont instables dans le temps. Elles sont donc préparées extemporanément. Le mode opératoire mis au point pour les mesures de turbidité présente trois spécificités :

- Ces mesures sont effectuées dans l'heure qui suit l'échantillonnage. En effet, nous avons observé une lente augmentation de la turbidité des solutions au cours du temps en particulier pour les solutions de gomme arabique.
- Avant chaque mesure, les solutions sont diluées afin de ramener la lecture dans la zone linéaire du turbidimètre (0-100 UNT). Une fois établie pour le produit initial non-filtré (le plus trouble), la même dilution est effectuée pour l'analyse des filtrats correspondants. Le facteur de dilution choisi est de 5 pour les sirops de sucre et de 4 pour les solutions de gomme arabique.
- Après introduction des échantillons dilués dans l'appareil, il est nécessaire d'observer un court temps de repos pour permettre leur dégazage (disparition des bulles d'air introduites dans les solutions lors de l'homogénéisation). Ce temps de repos ne doit cependant pas être trop long afin de limiter les phénomènes de décantation qui risquent de fausser la mesure. Pour chacun des produits analysés, ce temps de repos est déterminé expérimentalement en suivant l'évolution de la valeur de la turbidité lue au cours du temps (**Figure I.13**). Il est de 3 min pour les sirops de sucre et de 1,5 min pour les solutions de gomme arabique.

En respectant précisément ce protocole, nous avons montré que la turbidité est proportionnelle à la teneur en matière sèche aussi bien pour des sirops de sucre de 42 à 62 gMS/100g (lot 3) que pour des solutions de gomme arabique de 15 à 20 gMS/100g. Contrairement aux résultats présentés par PUNIDADAS [1990], la turbidité est donc dans notre cas directement représentative de la teneur en particules des produits.

La coloration des sirops de sucre est mesurée suivant la méthode ICUMSA (International Commission for Uniform Methods of Sugar Analysis), sans correction de pH. Cette méthode est basée sur la mesure du coefficient d'extinction des sirops à 420 nm [SCHNEIDER 1979]. La coloration s'exprime alors en Unité ICUMSA (UI). Une UI correspond à un millième d'unité d'absorbance à 420 nm par cm et par gMS/ml.

La mesure de la teneur en saccharose est effectuée suivant la méthode IRIS (Institut de Recherche de l'Industrie Sucrière) [IRIS 1988].



**Figure I.14 : évolution de la conductivité à 20 °C d'un sirop de sucre roux ( $\Delta_{20^{\circ}\text{C}}$ ) en fonction de sa teneur en matière sèche (MS) [lot 3].**

La teneur en cendres des sirops est évaluée par conductimétrie suivant la méthode ICUMSA à 28 gMS/100g [DEVILLIERS 1974]. Comme nous l'avons vérifié, cette teneur en matière sèche appartient à la zone de conductivité maximale (**Figure I.14**). A partir de la mesure de la conductivité du sirop ramené à 28 gMS/100g puis correction par la conductivité de l'eau de dilution, la teneur en cendres est estimée suivant la formule (7).

$$CD = k \cdot (\Lambda_{28\text{gMS}/100\text{g}} - 0,35 \cdot \Lambda_{\text{eau}}) \quad (7)$$

avec

$k$  = coefficient de proportionnalité fixé par l'ICUMSA à 0,6 (mg/100gMS).cm/ $\mu$ S,

$\Lambda_{28\text{gMS}/100\text{g}}$ ,  $\Lambda_{\text{eau}}$  = respectivement, conductivités du sirop ramené à 28 gMS/100g et de l'eau de dilution ( $\mu$ S/cm).

Durant l'analyse granulométrique des sirops de sucre, des phénomènes d'agrégation de fines particules ont été mis en évidence. Afin de limiter ceux-ci, l'échantillon subit une ultrasonication modérée et n'est que très faiblement agité durant la mesure. Les résultats apparaissent sous forme de graphes de répartition volumique et de tableaux de valeurs contenant notamment la valeur médiane du diamètre des particules calculée suivant la répartition volumique ( $D_{50}$ ), le diamètre de la plus grosse particule détectée ( $D_{\text{max}}$ ) et le pourcentage volumique occupé par les particules dans la solution (vps).

Diverses tentatives de dosage de la fraction insoluble par filtration ou centrifugation et de la teneur en polyosides par précipitations fractionnées à l'éthanol ont été effectuées. Les résultats se sont avérés très peu reproductibles et ne présentent guère d'intérêt. Ces méthodes de caractérisation n'ont donc pas été retenues. Notons néanmoins qu'une étude plus récente a montré qu'il était possible de doser avec une bonne précision la teneur en polyosides totaux des sirops de sucre roux avant et après filtration. Pour cela, un protocole analytique, spécifique à ce type de produit, a été précisément mis au point à partir de la méthode dite au phénol-sulfurique [GRATIUS 1994].

## I-5.2 Principales caractéristiques des produits filtrés

### I-5.2.1 Sirops de sucre roux de canne

#### • *Caractéristiques générales et préparation des sirops*

Le sucre roux de canne est obtenu à partir du jus de canne épuré, concentré, cristallisé puis essoré. Ce sucre est coloré et a un caractère fortement aromatique. Il contient diverses impuretés qui représentent de 1,5 à 6 % du poids de la matière sèche totale [GRATIUS 1994].



PRODUIT	$\rho$ (Kg/m <sup>3</sup> )	$\eta$ (mPa.s)	pH	TU (UNT)	COL (UI)	CD (mg/100gMS)	P (gS/100gMS)	Caractéristiques granulométriques		
								D <sub>50</sub> (μm)	D <sub>max</sub> (μm)	vps (10 <sup>-3</sup> %)
lot 3 (cassonade)			6,6 [0,1]13	375 [24]15	2836 [417]14	264 [9]9	98,4 [0,6]3	> 107	> 600	> 431
lot 4 (cassonade)			6,4 [0,1]7	374 [4]15	2844 [255]14	265 [—]1	98,5 [0,7]3	69 [8]5	360-600	345 [23]5
lot 5 (cassonade)			6,3 [0,3]3	371 [8]4	2436 [76]3	—	98,7 [—]1	—	—	—
Sirops de sucre roux de canne (60 gMS/100g)	1250*** [10]5	5,2*** [0,1]4	6,4 [0,1]3	453 [18]3	3078 [135]3	250 [—]1	99,3 [—]1	—	—	—
lot 6t (brut tamisé)			6,6 [0,1]3	423 [17]8	3442 [104]6	—	—	—	—	—
lot 7t (brut tamisé)			6,8 [0,2]3	350 [14]10	1636 [33]3	147 [2]3	97,7 [0,9]3	—	—	—
lot 8 (cassonade)			6,4 [0,3]3	312 [8]9	2329 [219]9	245 [1]3	98,9 [0,5]3	> 538	> 600	—
Solutions de gomme arabique (20 gMS/100g)	1049* [7]3	12,9** [0,1]3	4,6 [0,1]3	303 [52]11	—	—	—	—	—	—

\* \*\* \*\*\* : respectivement à 20 °C, 70 °C et 80 °C.

**Tableau I.7 : principales caractéristiques mesurées des produits traités.**

Valeur moyenne

[écart type]nombre d'échantillons

Les lots de sucre utilisés durant cette étude sont obtenus par l'intermédiaire de LA GENERALE SUCRIERE (raffinerie de canne de Marseille) et proviennent des sucreries de canne de La Réunion. Chaque lot représente 500 à 1000 kg de sucre conditionné en sacs de 50 kg. Parmi les six lots de sucre traités, deux grands types de produits se distinguent. Les sucres roux bruts (lots 6 et 7) n'ont subi aucun traitement après réception en raffinerie et correspondent véritablement aux produits qui sortent des sucreries de canne. Par contre, les cassonades (lots 3, 4, 5, 8) sont des sucres bruts traités en raffinerie par dégrillage puis fluidisation partielle à l'air chaud (60 °C) sur tamis vibrant (informations fournies par LA GENERALE SUCRIERE). Cette dernière opération permet d'éliminer une majeure partie des particules légères mélangées aux cristaux de sucre (poussières, fibres végétales, etc...).

Avant chaque essai, 30 litres de sirop de sucre sont préparés par refonte du sucre cristallisé dans de l'eau courante à environ 50 °C. Compte tenu de l'insertion envisagée dans le procédé de raffinage, la teneur en matière choisie est de 60 gMS/100g [DECLoux *et al.* 1992, PUNIDADAS *et al.* 1990]. Après agitation pendant 15 min, les sirops sont laissés au repos pendant environ 30 min. Ce temps de repos permet aux bulles d'air introduites dans le sirop au cours de l'agitation de disparaître (dégazage). Compte tenu de leur forte teneur en fibres, les refontes provenant des lots 6 et 7 (sucres bruts) sont parfois prétamisées sur une grille de 360 µm avant filtration. Dans ce cas, ils sont notés lots 6t et 7t. Les principales caractéristiques des sirops provenant des différents lots de sucre roux sont données dans le **Tableau I.7**.

#### • Viscosité

La viscosité des sirops de sucre dépend principalement de leur teneur en matière sèche et de la température de travail qui peuvent varier entre les essais. La connaissance d'une relation donnant la viscosité du produit en fonction de la température et de la teneur en matière sèche présente un grand intérêt car elle permet de s'affranchir de la mesure systématique de la viscosité des produits filtrés.

Les mesures effectuées sur les solutions de sucre roux (solutions à 59 et 61 gMS/100g à 50, 60, 70, 80 et 90 °C et solutions à 55 et 62 gMS/100g à 80 °C) ont montré que leurs viscosités sont égales aux viscosités de solutions de saccharose pur de même concentration en matière sèche à 0,1 mPa.s près [HOYNAK et BOLLENBACK 1966]. Ces résultats confirment ceux obtenus par PUNIDADAS [1990]. En se basant sur l'équation de FRENKEL [GROMKOVSKII et KHAMMUD 1991], la viscosité d'une solution de saccharose en fonction de la température peut être modélisée par intervalles de température et de teneur en matière sèche sous la forme (8).

$$\eta = \eta_{\infty} \cdot \exp\left(\frac{E_{\eta}}{R \cdot \theta}\right) \quad (8)$$

A partir des valeurs données dans la littérature dans les plages 60-80 °C et 55-60 gMS/100g

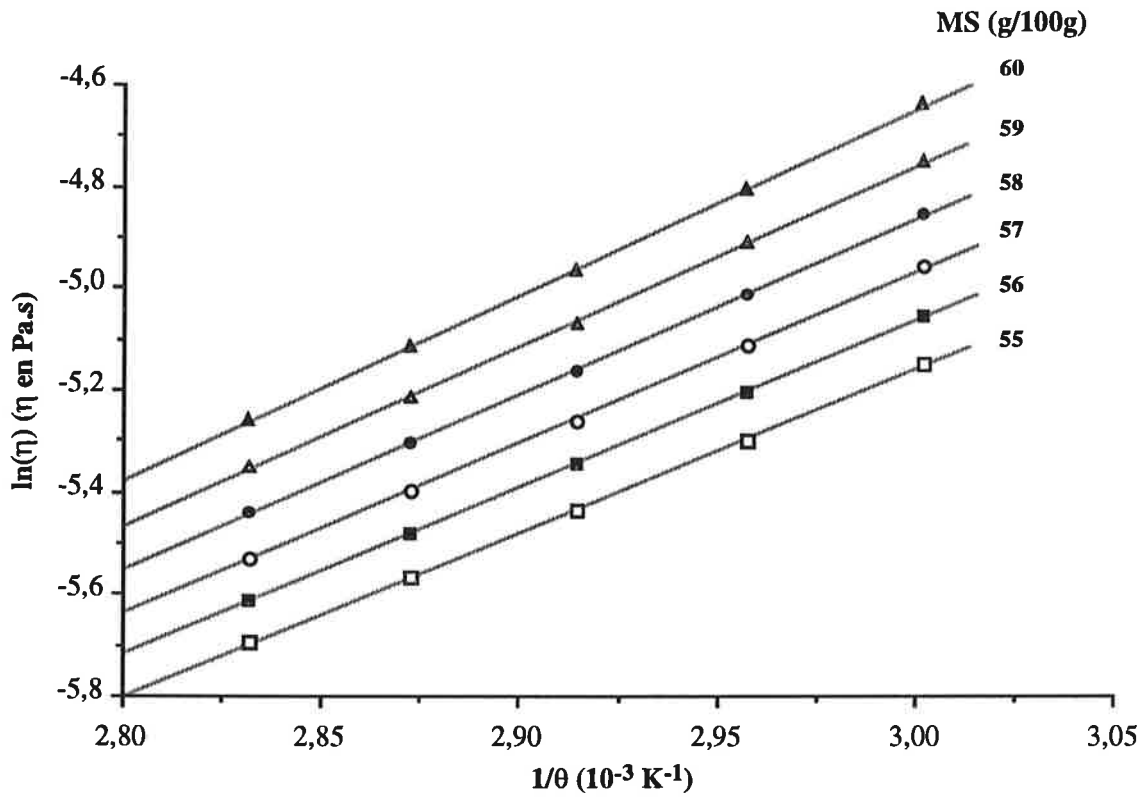


Figure I.15 : évolution de la viscosité dynamique de solutions de saccharose ( $\eta$ ) à différentes teneurs en matière sèche (MS) en fonction de la température [HOYNAK et BOLLENBACK, 1966].

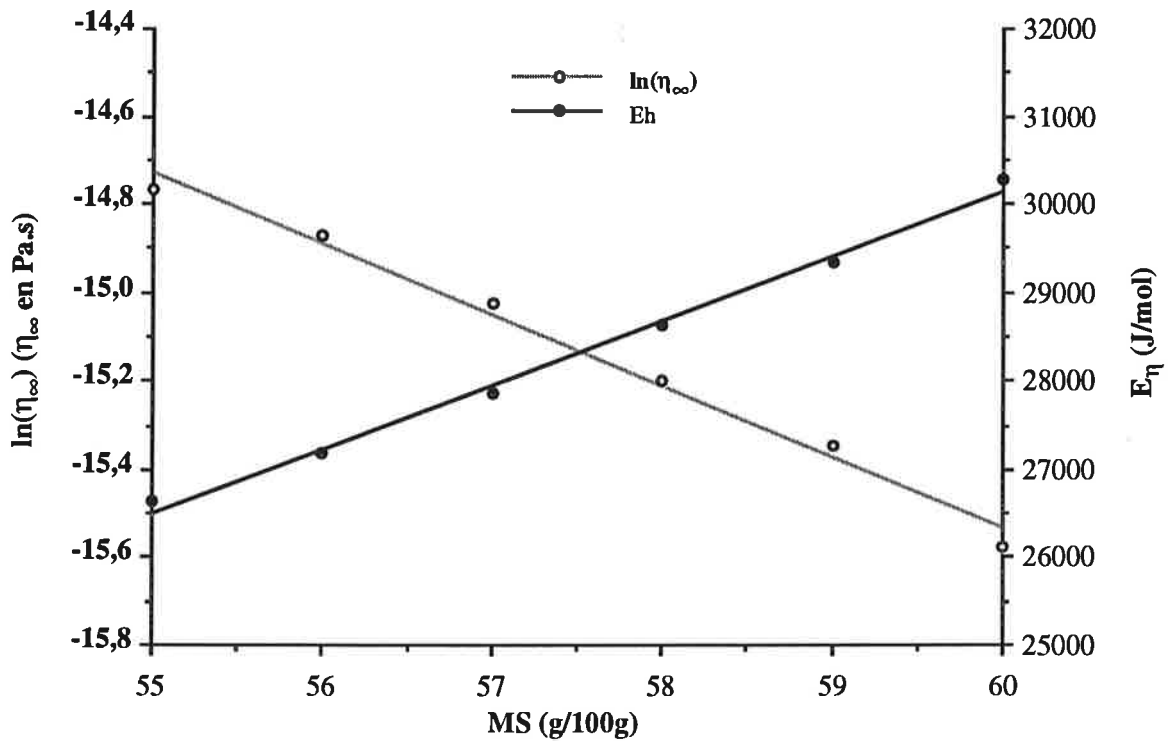


Figure I.16 : évolution de la viscosité à  $\theta$  infinie ( $\eta_{\infty}$ ) et de l'énergie de viscosité ( $E_{\eta}$ ) en fonction de la teneur en matière sèche pour des solutions de saccharose pur [HOYNAK et BOLLENBACK, 1966].

[HOYNAK et BOLLENBACK 1966], les courbes  $\ln(\eta)$  en fonction de  $1/\theta$  sont effectivement des droites (**Figure I.15**). Les évolutions de l'ordonnée à l'origine et de la pente de ces droites en fonction de la teneur en matière sèche des sirops (MS) peuvent être approximées linéairement (**Figure I.16**). Dans les intervalles de température et de teneur en matière sèche considérés, les termes  $\eta_\infty$  et  $E_\eta$  peuvent donc être corrélés à MS suivant les relations (9) et (10).

$$\eta_\infty = k_0 \cdot \exp(k_1 \cdot MS) \quad (9)$$

$$E_\eta = k_0' + k_1' \cdot (MS) \quad (10)$$

avec  $k_0 = 2,931 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$   
 $k_1 = -0,1617 \text{ (gMS/100g)}^{-1}$   
 $k_0' = -13615 \text{ J/mol}$   
 $k_1' = 729,42 \text{ (J/mol)/(gMS/100g)}$ .

Il est ainsi possible, en utilisant ces équations simples de déterminer la viscosité des solutions de sucre roux à partir de leur température et leur teneur en matière sèche, pour des sirops de 55 à 60 gMS/100g de matière sèche à une température comprise entre 60 et 80 °C. Ces équations sont utilisées pour les calculs de Rt.

#### • *Sensibilité à la température*

Comme nous l'avons exposé précédemment, le choix de la température de filtration dépend de la thermosensibilité du produit filtré. Nous avons en effet choisi la température maximale supportée par le produit durant le temps nécessaire à la filtration, sans observer de dégradations sensibles du produit.

Dans le cas des sirops de sucre roux, l'indice principal de thermosensibilité est la coloration. En effet, les fortes températures accélèrent considérablement les réactions de Maillard et de caramélisation [ADRIAN 1993, BEN MESSAOUD 1990, GRATIUS 1994]. D'après les résultats obtenus par PUNIDADAS [1990] aucune augmentation sensible de la couleur d'un sirop à 60 gMS/100g n'a été mise en évidence à la suite d'essais de filtration tangentielle pendant deux heures à 90 °C. Notons que ces essais ont été effectués avec recyclage total. La durée pendant laquelle le produit a été soumis à 90 °C est donc majorée par rapport au temps de séjour qui serait réellement observé durant un traitement industriel classique sans recyclage du filtrat. Toutefois, le procédé de filtration du sirop de sucre roux est destiné à être couplé à une opération de décoloration qui

MS (g/100g)	$\theta$ (°C)	$\eta$ (mPa.s)
20	60	16,7
	65	14,0
	75	11,8
	80	10,7
	70	
19		11,4
18		9,7
16		7,2
15		5,9

**Tableau I.8 : viscosité dynamique des solutions de gommés végétales en fonction de leur teneur en matière sèche (MS) et de la température ( $\theta$ ).**

température pour éviter toute étape de réchauffage ou refroidissement entre ces deux opérations. Compte tenu de ces affirmations, une température de filtration de 80 °C est choisie pour la filtration des sirops de sucre.

### I-5.2.2 Solutions de gomme arabique

#### • *Caractéristiques générales et préparation des solutions*

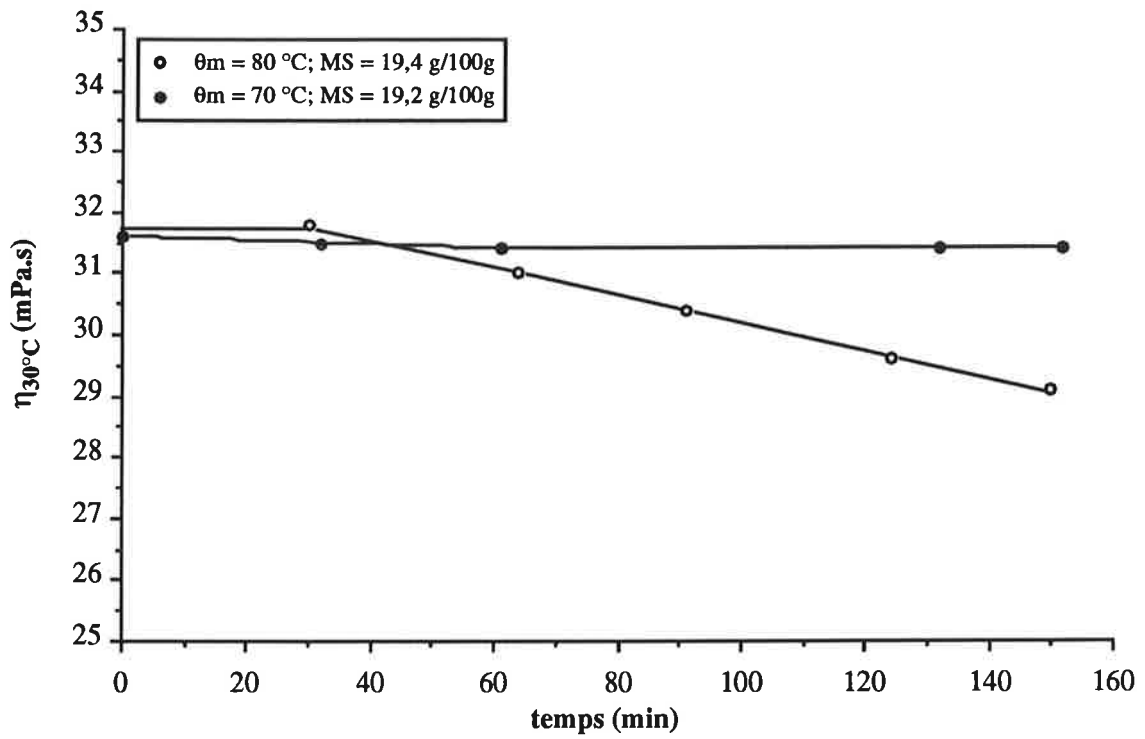
La dénomination gomme arabique désigne un ensemble de sécrétions végétales exsudées par diverses espèces d'acacias comme *Acacia senegal* (Afrique de l'ouest) ou *Acacia arabica* (Inde). Ces sécrétions sont composées de polyosides complexes dont le poids moléculaire varie entre 5 et 2300 KDalton. Le squelette moléculaire de base de ces polyosides est constitué d'une chaîne de Dgalactopyranoses ( $\beta$  1-3) plus ou moins substituée en C6 par des chaînes secondaires plus courtes comportant du L-arabinose, du L-rhamnose et de l'acide glucuronique [GLICKSMAN et SAND 1973]. Se présentant le plus souvent sous forme de sels de calcium, de magnésium ou de potassium, les molécules de gomme arabique sont parfois associées à des acides aminés [IMESON 1992].

Les solutions utilisées pour notre étude sont obtenues par dilution dans de l'eau courante chaude (environ 50 °C) d'une gomme arabique séchée par pulvérisation. Fournie par la société Colloïdes Naturels International (C.N.I., Rouen), cette gomme a subi un tamisage de 50  $\mu$ m avant atomisation. Une teneur en matière sèche de 20 gMS/100g est choisie en concertation avec la société C.N.I. Trente litres de solution sont ainsi préparés pour chaque essai de filtration. Après dissolution complète sous forte agitation (environ 30 min) puis addition d'azide ( $\text{NaN}_3$  à 0,1 ‰), les solutions sont laissées une nuit au repos pour dégazage (phénomène très lent pour ce second type de produit). Leurs caractéristiques moyennes sont portées dans le **Tableau I.7**.

#### • *Viscosité*

Compte tenu de la grande diversité des gommes arabiques, il est impossible de se référer aux données bibliographiques pour estimer la viscosité des solutions. Des mesures expérimentales ont donc été réalisées.

Après avoir vérifié le comportement newtonien des solutions de gomme arabique de 15 à 20 gMS/100g, nous avons mesuré les viscosités dans une gamme de températures adaptée à notre étude (**Tableau I.8**). Pour une teneur en matière sèche de 20 gMS/100g et une température comprise entre 60 et 80 °C, les termes de l'équation (8) sont :



**Figure I.17 : évolution de la viscosité dynamique mesurée à 30 °C ( $\eta_{30^{\circ}\text{C}}$ ) d'une solution de gomme à 20 gMS/100g en fonction du temps de maintien à deux températures ( $\theta_m$ ).**

$$\eta_{\infty} = 0,0101.10^{-3} \text{ Pa.s,}$$

$$E_{\eta} = 20438 \text{ J/mol.}$$

A 70 °C et dans la gamme testée, la viscosité des solutions de gomme arabique est quasiment proportionnelle à la teneur en matière sèche avec :

$$\eta_{70^{\circ}\text{C}} = 1,39.MS - 15,05$$

et  $\eta_{70^{\circ}\text{C}}$  = viscosité dynamique de la solution de gomme arabique à 70 °C (mPa.s).

Dans le cadre de cette étude de faisabilité, la mesure de la viscosité n'a pas été effectuée pour toutes les combinaisons MS/ $\theta$ . Par la suite, nous négligerons donc l'effet des variations de température engendrées par la régulation pour le calcul de  $\eta$  (détermination de Rt). La température de filtration sera prise constante durant toute la durée des essais de filtration (70 °C).

#### • *Sensibilité à la température*

Pour les solutions de gomme arabique, un traitement prolongé à haute température peut provoquer une augmentation de la coloration suivant des mécanismes voisins de ceux décrits précédemment. Cependant, les propriétés rhéologiques du produit sont le critère de qualité primordial. Une température élevée est favorable à l'hydrolyse partielle des chaînes polyosidiques de gomme. Si le phénomène est important, il peut conduire à une détérioration significative de la viscosité du produit.

Afin d'estimer la sensibilité du produit à la température, nous avons donc choisi la viscosité comme indicateur principal. La méthodologie suivie est la suivante : une solution de gomme arabique à environ 20 gMS/100g (500 ml) est soumise à une température constante sous agitation modérée. Des prélèvements réguliers (30 ml) sont effectués à partir du moment où le récipient contenant la solution est plongé dans le bain-marie préalablement porté à la température désirée. La viscosité de chaque échantillon est ensuite mesurée à 30 °C pour des raisons de commodité.

Les résultats obtenus sont portés sur la **Figure I.17**. Pour une température de 80 °C, la viscosité de la solution de gomme chute dès 40 min. Après 150 min, la viscosité a perdu 2,6 mPa.s. Cette diminution de viscosité d'environ 8 % par rapport au produit non chauffé est le signe d'une dégradation significative du produit. Elle s'explique vraisemblablement par les phénomènes d'hydrolyse déjà mentionnés. A 70 °C, aucune diminution sensible de la viscosité du produit n'est par contre détectée durant 150 min. A cette température, il semble donc que l'intégrité des chaînes polyosidiques de gomme ne soit pas significativement altérée par le traitement thermique.



Suite à ces résultats, une température de filtration de 70 °C a été fixée pour la filtration des solutions de gomme arabique. A cette température, quelques mesures spectrophotométriques à 420 nm ont montré que la couleur des solutions de gomme augmente faiblement au cours du temps. Cette observation ne remet néanmoins pas en cause la température choisie.

## **I-6 CONCLUSION**

Les divers aspects présentés dans ce premier chapitre illustrent l'attention que nous avons portée à la validité des mesures et à la maîtrise des conditions d'essais. Ainsi, les unités pilotes mises en œuvre, ont été conçues pour assurer des mesures fiables, une régulation fine et une acquisition en ligne des principaux paramètres opératoires. Nous nous sommes également efforcés de définir le plus rigoureusement possible le mode de conduite choisi pour les essais. Dans ces conditions, nous avons montré qu'il était possible d'obtenir une reproductibilité des résultats très satisfaisante. Pour la caractérisation des produits, nous nous sommes restreints à quelques méthodes d'analyses élémentaires. Elles devraient néanmoins permettre de quantifier globalement l'effet de la filtration sur les solutions traitées.

La fiabilité de nos résultats est vérifiée ce qui permet d'envisager sans risque l'application des divers outils d'optimisation que nous proposerons par la suite.

<p><b>- CHAPITRE II -</b></p> <p><b>PLANIFICATION D'EXPERIENCES</b></p> <p><b>ET TRAITEMENT DES DONNEES</b></p> <p><b>PAR REGRESSION LINEAIRE</b></p>
---

<b>II-1 CHOIX DU DOMAINE PARAMETRIQUE A EXPLORER.....</b>	<b>28</b>
II-1.1 Délimitation du domaine disponible.....	28
II-1.1.1 Contraintes sur Ptm .....	28
II-1.1.2 Contraintes sur U.....	29
II-1.2 Délimitation du domaine d'étude .....	30
II-1.2.1 Méthode classique.....	30
• Construction du plan préliminaire.....	30
• Localisation du plan final .....	30
II-1.2.2 Méthode spécifique.....	31
• Pression transmembranaire.....	31
• Vitesse tangentielle .....	32
<b>II-2 PLANS D'EXPERIENCES ROTABLES .....</b>	<b>32</b>
II-2.1 Plan d'expériences central composite.....	33
II-2.2 Plan d'expériences uniforme de Dœhlerlert modifié.....	33
<b>II-3 TRAITEMENT DES DONNEES.....</b>	<b>34</b>
II-3.1 Méthode des surfaces de réponses.....	34
II-3.2 Régression linéaire multiple pas à pas ascendant.....	35
<b>II-4 APPLICATION ET VALIDATION.....</b>	<b>35</b>
II-4.1 Domaines disponibles.....	35
II-4.2 Premier cas: sucre / MEMBRALOX 1,4 µm sans circulation de filtrat.....	36
II-4.2.1 Domaine d'étude.....	36
• Pression transmembranaire.....	36
• Vitesse tangentielle .....	37
II-4.2.2 Application du plan d'expériences central composite .....	37
• Performances .....	37
• Efficacité .....	41
• Consommation énergétique .....	42
• Détermination de l'optimum.....	43
II-4.3 Second cas: sucre / MEMBRALOX 1,4 µm avec circulation de filtrat.....	44
II-4.3.1 Domaine d'étude.....	44
• Pression transmembranaire.....	44
• Vitesse tangentielle .....	45
II-4.3.2 Application d'un plan d'expériences de Dœhlerlert modifié.....	45
• Performances .....	45
• Efficacité .....	47
• Détermination de l'optimum.....	47
<b>II-5 CONCLUSION .....</b>	<b>48</b>

Pour optimiser les conditions hydrodynamiques (cas de filtrations à débit variable), la démarche la plus couramment suivie consiste à examiner l'influence de la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et de la vitesse tangentielle ( $U$ ) sur les résultats après un certain temps de filtration. Ce temps de référence est choisi pour être représentatif de la phase stationnaire ou pseudo-stationnaire selon qu'il y ait ou non stabilisation des densités de flux de filtrat au cours du temps. Pour l'optimisation, diverses combinaisons  $P_{tm}/U$  sont successivement testées lors d'essais sur pilote. Le choix de ces combinaisons s'effectue en général suivant deux types d'approches :

- Méthode "un facteur à la fois" : cette première méthode est la plus simple à mettre en œuvre. Elle est utilisée dans la plus grande majorité des cas lors de l'optimisation des conditions opératoires en filtration tangentielle. Elle consiste à étudier successivement l'influence des différents paramètres sur les résultats de la filtration. La meilleure pression transmembranaire est tout d'abord recherchée à une vitesse tangentielle moyenne. Cette valeur de  $P_{tm}$  est ensuite fixée pour la recherche de la meilleure vitesse. Un couple  $P_{tm}/U$  optimal est donc ainsi défini. En considérant 4 niveaux de  $P_{tm}$  et de  $U$  (minimum envisageable), le nombre d'essais expérimentaux nécessaires est faible, soit 7. Cependant, à la suite d'une telle démarche, il est fréquent que l'optimum déterminé ne corresponde pas à l'optimum réel [BOX *et al.* 1978]. Les interactions entre  $P_{tm}$  et  $U$  sont négligées ce qui peut conduire à une confusion partielle d'effets.
- Plan d'expériences complet : ce second type d'approche fait l'objet d'études plus conséquentes. Toutes les combinaisons possibles des paramètres opératoires sont testées systématiquement. Bien que plus fiable pour la détermination de l'optimum, l'inconvénient de cette méthode est le nombre élevé d'essais à réaliser. Toujours avec un minimum de 4 niveaux par paramètre, 16 expériences sont nécessaires.

Afin de pallier aux inconvénients de ces méthodes courantes, nous préconisons ici l'utilisation de plans d'expériences rotatables. Très aisés à mettre en œuvre, ce type de plans présente les avantages suivants :

1. Tous les paramètres opératoires sont considérés simultanément. Le système est donc étudié dans sa globalité. Le nombre d'essais pilote nécessaires pour la détermination de l'optimum est donc minimisé et la valeur de cet optimum est sûre (pas de risque de confusion d'effets).
2. Cette approche permet d'accéder, non plus seulement à un point optimal de fonctionnement, mais à une zone optimale ce qui paraît plus réaliste au niveau industriel.
3. Il permet d'intégrer aisément plusieurs critères d'optimisation et ainsi de déterminer une zone optimale qui tient compte à la fois des critères de performances, d'efficacité et éventuellement de consommation énergétique.
4. De part leurs caractéristiques, ces plans sont bien adaptés à des traitements de données simples comme la régression linéaire multiple (minimisation de la variance).
5. Enfin, ce type de plan est particulièrement bien adapté lorsque le nombre de paramètres est

peu élevé ( $P_{tm}$  et  $U$  dans notre cas).

Dans ce contexte, nous avons cherché à définir une méthode basée sur l'utilisation de plans d'expériences rotatables. Après avoir précisé la méthode permettant d'orienter le choix du domaine paramétrique à explorer, le mode de construction des plans d'expériences est abordé. Deux types de traitement des résultats sont ensuite suggérés. Afin de vérifier l'intérêt de cette approche dans une perspective industrielle, cette méthode est enfin appliquée à l'optimisation des conditions opératoires lors de la clarification de refontes de sucre roux par microfiltration.

## II-1 CHOIX DU DOMAINE PARAMETRIQUE A EXPLORER

Le problème fondamental qui se pose pour l'utilisation d'un plan rotatable est le choix du domaine paramétrique à explorer. D'une part, l'effet des paramètres doit être significatif sur le domaine choisi. D'autre part, ce domaine doit cerner de façon suffisamment proche l'optimum pour que le phénomène puisse y être représenté par une fonction polynômiale d'ordre 2 (modèle quadratique issu du traitement des données par régression linéaire multiple). Enfin, l'extrapolation des résultats obtenus sur le domaine paramétrique retenu n'est pas envisageable.

### II-1.1 Délimitation du domaine disponible

Les paramètres  $P_{tm}$  et  $U$  ne peuvent pas a priori prendre n'importe quelles valeurs [PUNIDADAS 1990]. Un certain nombre de contraintes inhérentes à l'opération de filtration tangentielle imposent en effet des limites.

#### II-1.1.1 Contraintes sur $P_{tm}$

Limite supérieure de  $P_{tm}$  : l'installation est conçue pour supporter une pression maximale  $P_{max}$ . Il est donc nécessaire qu'en tout point du pilote, la pression ne dépasse pas cette valeur. En fonctionnement, la pression maximale se situe à l'entrée du carter de filtration côté rétentat. La relation  $P_{re} \leq P_{max}$  doit toujours être respectée. La pression transmembranaire maximale autorisée  $P_{tm_{max}}$  peut alors se calculer à partir des relations (11) et (12) en se plaçant à la condition limite soit  $P_{re} = P_{max}$ .

- pour le système classique :

$$P_{tm_{max}} = P_{max} - \frac{\Delta P}{2} - P_f \quad (11)$$

- pour le système avec circulation de filtrat :

$$P_{tm_{max}} = P_{max} - \Delta P - P_{fs} \quad (12)$$

Limite inférieure de  $P_{tm}$  : afin d'assurer la filtration sur la totalité de la surface membranaire, la pression côté rétentat doit toujours être supérieure à la pression côté filtrat et ce sur toute la longueur du module de filtration. Compte tenu des pertes de charge, la pression minimale observée en fonctionnement côté rétentat se situe à la sortie du module. La relation  $P_{rs} \geq P_f$  doit donc toujours être respectée. Pour le système classique sans circulation de filtrat, la pression transmembranaire minimale autorisée  $P_{tm_{min}}$  peut également se calculer en se plaçant à la condition limite soit  $P_{rs} = P_f$  (13). Pour le système avec circulation de filtrat, cette contrainte n'existe plus.  $P_{tm_{min}}$  n'est définie que par la sensibilité des capteurs de pression utilisés (14).

- pour le système classique :

$$P_{tm_{min}} = \frac{\Delta P}{2} \quad (13)$$

- pour le système avec circulation de filtrat :

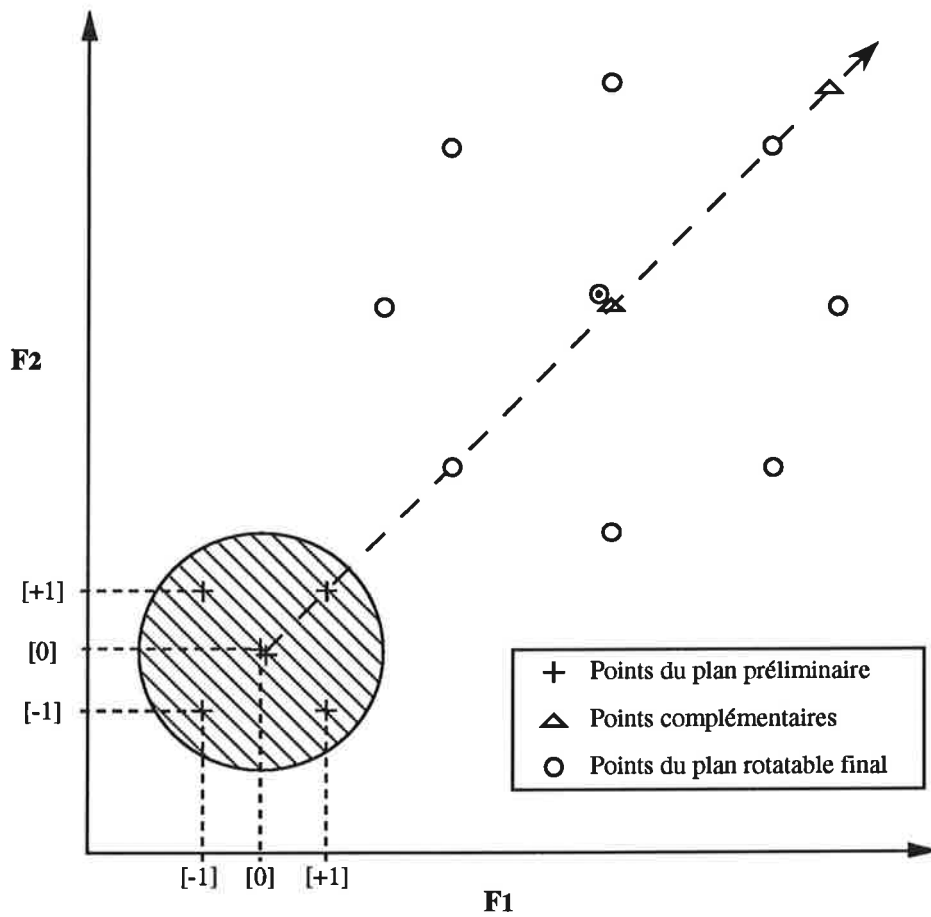
$$P_{tm_{min}} \approx 0 \quad (14)$$

Les pertes de charge le long du module de filtration ( $\Delta P$ ) sont fonction des caractéristiques géométriques du module de filtration, des caractéristiques rhéologiques du fluide traité (viscosité et masse volumique) et de la vitesse de circulation tangentielle  $U$ . Pour chaque couple produit/membrane et à température constante, les pertes de charge dans le module côté rétentat en fonction de  $U$  sont mesurées expérimentalement ou estimées à partir des formules classiques de mécanique des fluides [BOUSSICAUD 1983, OUZIAUX et PERRIER 1978].

### II-1.1.2 Contraintes sur U

Afin de garantir des contraintes de cisaillement suffisantes au voisinage de la membrane, la vitesse tangentielle est généralement choisie pour assurer un régime d'écoulement turbulent dans les tubes. Cette condition définit donc une vitesse tangentielle minimale  $U_{min}$  qui dépend du couple produit/membrane étudié.

Au dessus d'une certaine valeur de vitesse tangentielle  $U_{max}$ , il devient hasardeux d'envisager l'application du procédé au niveau industriel. Cette limite est notamment imposée par le dimensionnement des pompes et accessoires nécessaires pour atteindre de fortes vitesses sur une



**Figure II.1 : représentation graphique de la méthodologie classique de localisation d'un plan d'expériences rotatable à deux paramètres F1 et F2 [BOX *et al.* 1978].**

installation à grande échelle. La limite généralement admise par les équipementiers est comprise entre 6 et 8 m/s. Notons que, pour le traitement de certains produits fragiles (suspensions cellulaires par exemple), cette valeur peut être considérablement abaissée.

En intégrant l'ensemble de ces contraintes, il est alors possible de définir un domaine disponible pression-vitesse pour chaque couple produit/membrane et pour une température de traitement donnée. Le plan d'expériences devra donc y être inclus.

## II-1.2 Délimitation du domaine d'étude

Après avoir délimité le domaine disponible, il est nécessaire de cerner un domaine d'étude qui y soit inclus et sur lequel sera appliqué le plan d'expériences. Afin d'orienter le plan final vers la zone de l'optimum, il est souhaitable de faire appel aux données bibliographiques ou d'avoir recours à une étude préliminaire pour choisir les gammes de pression et de vitesse à explorer. Dans ce cadre, nous décrivons tout d'abord la méthodologie classiquement suivie pour ces essais préliminaires. Nous proposons ensuite une méthodologie spécifiquement applicable au cas précis de la filtration tangentielle.

### II-1.2.1 Méthode classique

Cette méthode consiste à effectuer la série d'essais préliminaires suivant un plan d'expériences factoriel centré [BOX *et al.* 1978]. Représentée graphiquement sur la **Figure II.1**, elle se décompose en deux étapes :

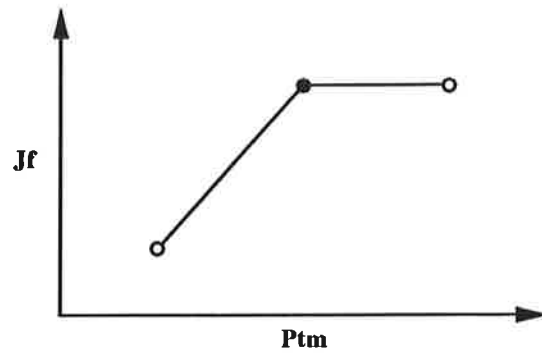
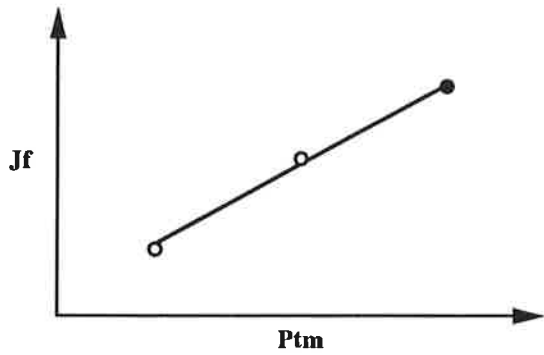
#### • *Construction du plan préliminaire*

Chaque paramètre est testé à trois niveaux codés -1 (niveau minimum), 0 (niveau intermédiaire) et +1 (niveau maximum). Le plan préliminaire se constitue des combinaisons [P<sub>tm</sub>,U] suivantes : [+1,+1], [+1,-1], [-1,+1], [-1,-1] et [0,0]. Le choix des valeurs correspondant aux niveaux -1 et +1 reste à l'appréciation de l'opérateur. Le point central (coordonnées codées [0,0]) est répété deux fois.

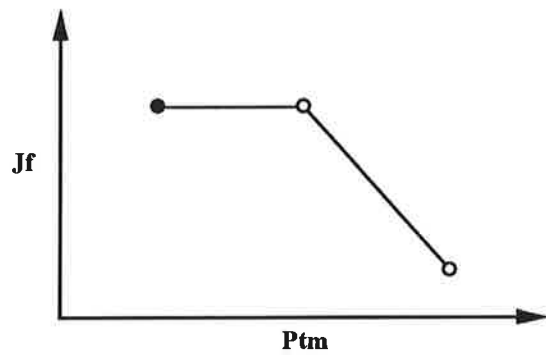
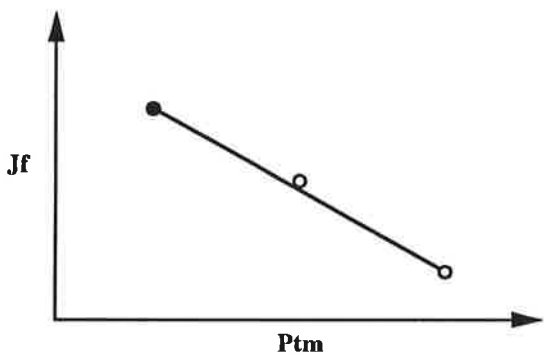
#### • *Localisation du plan final*

Soit Y le critère d'optimisation considéré, deux cas de figure peuvent se présenter. Si la valeur moyenne de Y obtenue au point central est supérieure à toutes celles obtenues pour les autres essais, l'optimum est inclus dans le domaine. Le point central du plan préliminaire sera choisi comme centre du plan d'expériences final. Sinon, les résultats sont traités par régression linéaire du premier ordre. Un plan de réponse d'équation  $Y = a_0 + a_1.F_1 + a_2.F_2$  est ainsi déterminé avec F<sub>1</sub> et F<sub>2</sub> les deux facteurs étudiés (dans notre cas les paramètres U et P<sub>tm</sub>). Ceci permet de définir un axe de

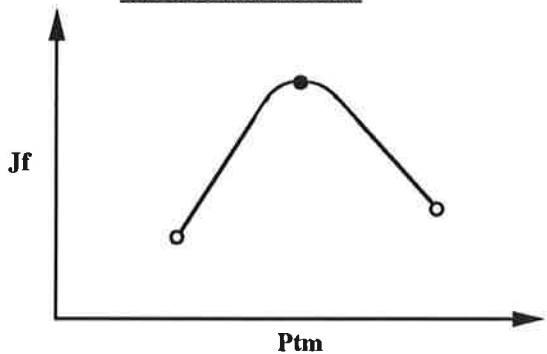
**Cas I : Jf a tendance à croître avec P<sub>tm</sub>**



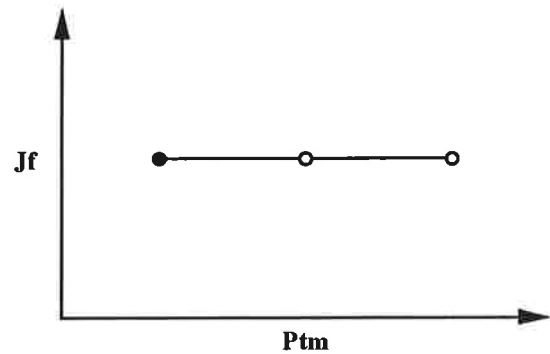
**Cas II : Jf a tendance à décroître avec P<sub>tm</sub>**



**Cas III : Jf présente un maximum en fonction de P<sub>tm</sub>**



**Cas IV : Jf ne dépend pas significativement de P<sub>tm</sub>**



● Essai dont la pression est choisie comme pression centrale du plan composite final.

**Figure II.2 : représentation schématique des différents cas possibles d'évolution de la densité de flux de filtrat (Jf) en fonction de la pression transmembranaire (P<sub>tm</sub>) obtenus lors des essais préliminaires (méthode spécifique).**



recherche qui correspond à la droite passant par le point  $[0,0]$  et de même direction que le plan de réponse. Pour préciser la position du centre du plan d'expériences rotatable sur cette droite, il est nécessaire d'effectuer deux essais complémentaires situés sur la même droite. Disposant alors de trois points sur la dite droite, il est possible d'y localiser approximativement une position optimale. Il reste alors à choisir les bornes du domaine paramétrique centré sur cette position. Ce choix est laissé à l'appréciation de l'opérateur en fonction de l'effet de chacun des paramètres sur  $Y$ .

Cette méthode d'investigation est rigoureuse et permet, dans la plupart des cas, de se rapprocher de façon satisfaisante de l'optimum. Néanmoins, la série d'essais préliminaires représente 6 à 8 expériences ce qui limite l'intérêt d'une telle approche. Pour ces raisons, nous proposons une méthode simplifiée, spécifique à la filtration tangentielle qui, tout en restreignant le nombre d'essais préliminaires, permet de faciliter la localisation du plan final.

### II-1.2.2 Méthode spécifique

Cette seconde méthode, beaucoup moins complexe que la précédente, est basée sur l'analyse des connaissances acquises en filtration tangentielle. Elle permet de cerner très simplement, à la suite de quelques essais judicieusement choisis, les principales tendances de l'effet des paramètres. Chacun des paramètres  $y$  est considéré successivement :

- *Pression transmembranaire*

Le domaine de  $P_{tm}$  est le plus délicat à choisir. L'influence de  $P_{tm}$  sur les performances et l'efficacité est en effet très variable en fonction du couple produit/membrane étudié [BELFORT 1984, CHERYAN 1986, COLMAN et MURTON 1991, FLINN 1970]. Le seul indice à disposition est la gamme de pression sur laquelle il faut plutôt s'orienter. Pour l'ultrafiltration, les pressions de travail nécessaires sont en effet plus élevées que pour la microfiltration. A l'heure actuelle, les gammes généralement annoncées sont de 1 à 10 bar pour l'ultrafiltration et de 0,1 à 3 bar pour la microfiltration. Rappelons que la configuration de l'installation utilisée (avec ou sans circulation de filtrat) doit être également considérée à ce niveau. La pression correspondant au centre du plan d'expériences, ne peut donc être déterminée qu'à la suite d'essais préliminaires. Nous proposons d'effectuer 3 essais à une vitesse tangentielle moyenne. Les pressions choisies pour ces trois essais peuvent être par exemple 1, 3 et 5 bar pour l'étude d'une membrane d'ultrafiltration et 1, 2 et 3 bar pour une membrane de microfiltration sans circulation de filtrat. En considérant les performances de la filtration (densité de flux de filtrat) comme le critère d'optimisation principal, la pression choisie pour le centre du plan d'expériences final est celle qui permet d'atteindre les meilleures performances. Si deux des pressions testées conduisent à des performances équivalentes, la plus faible est retenue. Les différents cas possibles sont schématisés sur la **Figure II.2**. Si un fort effet négatif sur l'efficacité est simultanément observé, il est évident qu'il faut opter pour un compromis.

La pression du centre du plan étant ainsi précisée, il reste encore à choisir l'étendue du domaine de pression à explorer. Ce choix reste à l'appréciation de l'opérateur, aucune règle précise ne pouvant être énoncée ici. Il est néanmoins possible de faire quelques remarques. Si, d'après les essais préliminaires, la pression a un faible effet sur les performances, il est préférable de choisir un domaine de pression assez large. Au contraire, si l'effet pression sur les performances est fort, un domaine plus restreint est suffisant. Enfin, si la pression a beaucoup d'influence sur l'efficacité de l'opération, il est indispensable d'en tenir compte.

- *Vitesse tangentielle*

L'augmentation de la vitesse tangentielle a le plus souvent un effet positif sur les performances [CHERYAN 1986, FANE 1983, GADDIS 1992]. Il est donc, de ce point de vue, intéressant de choisir un domaine englobant les vitesses élevées. La borne supérieure du domaine choisi est donc prise systématiquement égale à  $U_{max}$  définie précédemment. Le choix de la borne inférieure du domaine de vitesse est plus délicat. En effet, selon le couple produit/membrane utilisé, l'influence de  $U$  sur l'efficacité est variable et difficile à prévoir. On note néanmoins que, dans la majorité des cas, l'efficacité de l'opération est meilleure aux faibles vitesses tangentielles. Il existe donc un compromis à trouver entre performances et efficacité. Bien qu'aucune règle générale ne puisse là encore être formulée, nous proposons, à la suite d'un quatrième essai effectué à la pression optimale précédemment déterminée et à la vitesse maximale  $U_{max}$  quelques suggestions : si  $U$  a une forte influence sur les performances, le domaine de vitesse finalement choisi sera peu étendu (côté fortes vitesses). Si à plus forte vitesse l'efficacité de l'opération est fortement diminuée, il est intéressant que le domaine englobe également les faibles vitesses. Dans le but d'économiser au maximum le nombre d'essais à venir, nous préconisons dans la mesure du possible, de choisir la vitesse à laquelle ont été effectués les essais pression comme vitesse centrale ou comme limite de vitesse inférieure du domaine à explorer.

Ainsi, cette méthode simplifiée devrait permettre, dans la plupart des cas de filtration tangentielle, de se rapprocher de la zone optimale de fonctionnement et d'orienter de façon satisfaisante la localisation du plan d'expériences final. Il est également possible, si un choix judicieux des essais préliminaires est effectué, d'utiliser une partie de ces essais pour le plan d'expériences final d'où une économie appréciable du nombre total d'essais pilote à réaliser.

## II-2 PLANS D'EXPERIENCES ROTABLES

Une fois le domaine à explorer fixé, le plan d'expériences final est construit en tenant compte des contraintes précédemment exposées et des résultats préliminaires obtenus. Dans ce cadre, nous suggérons l'utilisation de deux types de plans d'expériences rotatables. Ces plans d'expériences répondent en effet à diverses caractéristiques qui leur confèrent des propriétés optimales au niveau

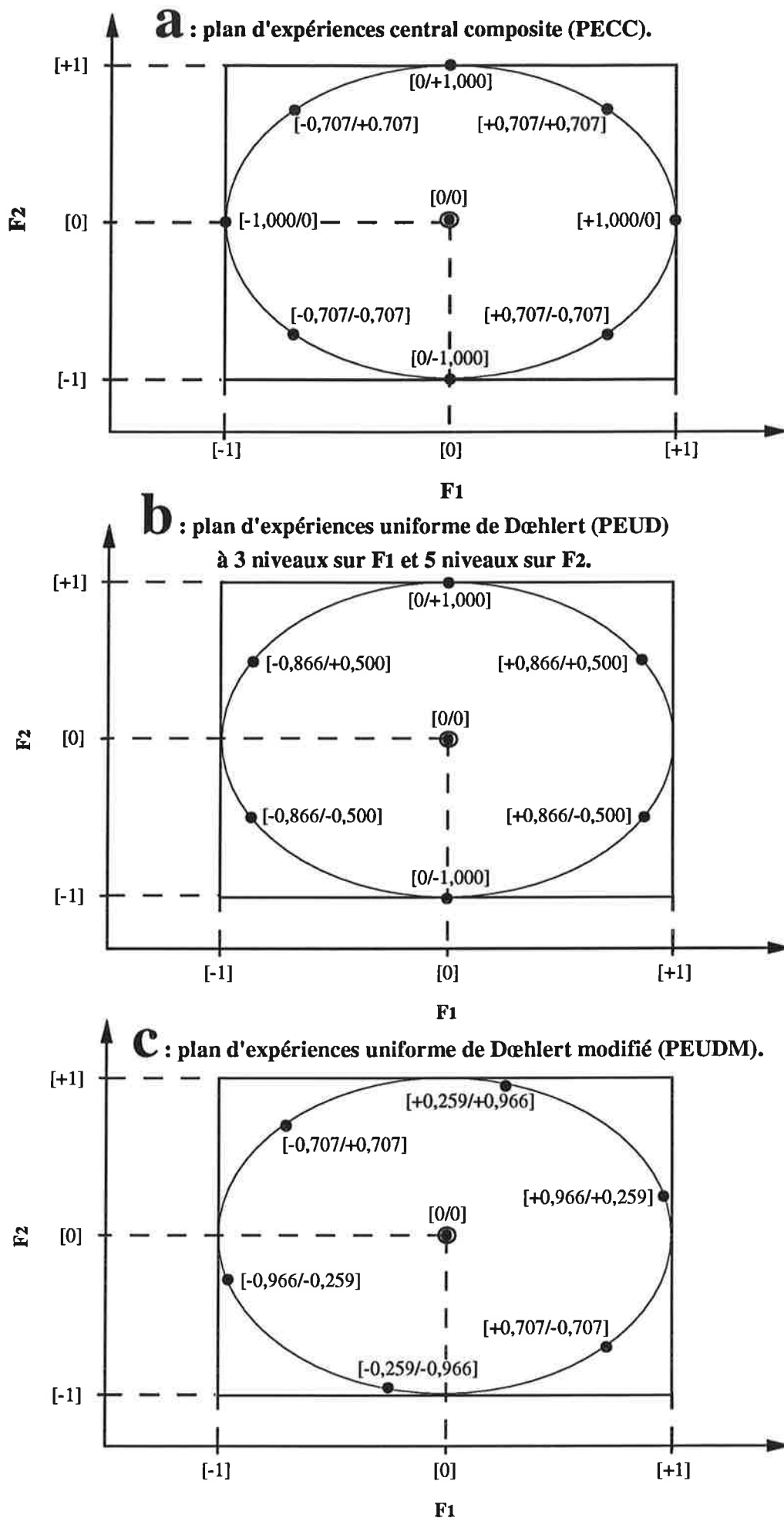


Figure II.3 : représentation schématique des plans d'expériences rotatables à deux facteurs (F1 et F2) choisis.

statistique [BOX et HUNTER 1957]. Ils assurent notamment une symétrie axiale dans l'espace des paramètres et présentent une majorité des points en périphérie du domaine paramétrique (minimisation de la variance).

### II-2.1 Plan d'expériences central composite

Ce premier plan d'expériences rotatable correspond à l'optimalité statistique idéale. Il est qualifié de d-optimal et il est utilisé dans un grand nombre de domaines [BASSAL 1993, GARROTE *et al.* 1994, MULLEN et ENNIS 1979, PADILLA-ZAKOUR et McLELLAN 1993, THEMELIN 1994].

Les règles de construction d'un plan d'expériences central composite (PECC) sont très simples. Il est possible de représenter schématiquement ce plan d'expériences en prenant le cas de deux facteurs (**Figure II.3a**). Dans l'espace paramétrique à explorer (niveau inférieur codé [-1], niveau intermédiaire codé [0] et niveau supérieur codé [+1]), un point sur le schéma représente un essai. Les coordonnées du point sont les valeurs données aux paramètres lors de l'essai correspondant. Le point central est répété deux fois afin d'intégrer la reproductibilité des essais dans les modèles. Certains utilisateurs procèdent à un plus grand nombre de répétitions du point central mais le gain statistique est peu important et ne justifie pas toujours cette démarche. Trois classes de points sont définies : les points centraux (2 essais), les points de tangence du cercle inclus dans le domaine paramétrique exploré dits points du parallélotope étoilé (4 essais) et les points intermédiaires dits point de l'hypercube (4 essais). Pour deux facteurs, ce plan d'expériences nécessite donc 10 essais pilote.

### II-2.2 Plan d'expériences uniforme de Dœhlert modifié

Pour deux facteurs, un plan uniforme de Dœhlert (PEUD) se constitue de 6 points répartis uniformément sur le cercle tangent au domaine paramétrique. Ces points sont situés en périphérie de domaine et forment un hexagone [DŒHLERT 1970]. La même remarque que précédemment peut être faite pour le point central. Représenté schématiquement sur la **Figure II.3b**, ce plan d'expériences présente bien les critères de rotatabilité requis. Sa valeur statistique est moins satisfaisante que celle du PECC. Il n'est pas d-optimal. L'utilisation d'un PEUD peut néanmoins présenter un intérêt lorsque le nombre d'essais expérimentaux à réaliser doit être limité [COLLIGNAN et RAOULT WACK 1992 et 1994, DUMENIL *et al.* 1988] comme en filtration tangentielle. En effet, seules 8 expériences sont nécessaires. Ainsi, un PEUD permet de réduire le nombre d'expériences à effectuer tout en assurant une validité statistique correcte.

Avec ce type de plan d'expériences, nous constatons que le nombre de niveaux testés par facteur n'est pas identique : un des facteurs est testé à 3 niveaux et l'autre à 5. L'information est donc

privilegiée sur un des facteurs au détriment de l'autre ce qui ne nous semble pas satisfaisant. Nous proposons donc de modifier la configuration du PEUD en faisant subir une rotation de  $+\pi/4$  à l'ensemble (**Figure II.3c**). Grâce à cette transformation, chacun des facteurs est testé à 5 niveaux et le plan conserve bien ses caractéristiques géométriques globales. Ce nouveau plan d'expériences sera repéré par la suite sous l'intitulé plan d'expériences de Dœhlert modifié (PEUDM).

### II-3 TRAITEMENT DES DONNEES

En considérant à la fois les performances et l'efficacité, nous proposons de traiter les résultats obtenus à la suite des plans d'expériences, par deux techniques de régression linéaire multiple.

#### II-3.1 Méthode des surfaces de réponses

La méthode des surfaces de réponses (MSR) est celle qui est la plus couramment utilisée à la suite de tels plans d'expériences [BOX *et al.* 1978, CAROL *et al.* 1980, GIOVANNI 1983, GUZMAN-MALDONADO *et al.* 1993, HENIKA 1972 et 1982]. Elle consiste à modéliser les résultats sous la forme de fonctions polynômiales du second degré des facteurs (ajustement d'un modèle quadratique). Dans notre cas, ces polynômes s'écrivent sous la forme suivante :

$$Y = f(\text{Ptm}, U) + \varepsilon = \hat{Y} + \varepsilon = a_0 + a_1.\text{Ptm} + a_2.U + b_1.\text{Ptm}^2 + b_2.U^2 + c.\text{Ptm}.U + \varepsilon \quad (15)$$

avec  $Y$  = critère d'optimisation considéré,  
 $\hat{Y}$  = critère d'optimisation modélisé,  
 $\varepsilon$  = erreur effectuée par le modèle.

Ces fonctions peuvent être représentées graphiquement dans un espace à trois dimensions sous forme de surfaces d'où l'appellation de la méthode. Les surfaces obtenues font partie de la famille des quadriques (paraboloïdes elliptiques, paraboloïdes hyperboliques ou formes dégénérées comme par exemple paraboles emboîtées).

La signification des termes des polynômes n'est pas considérée dans ce premier type d'approche. L'adéquation du modèle à la réalité des résultats est estimée à la fois par visualisation directe et par un calcul d'erreur. Afin d'estimer l'erreur de prédiction, nous choisissons d'utiliser le coefficient de régression  $R^2$ .

Pour le traitement des données par MSR, le logiciel utilisé est SYSTAT 5.1 [WILKINSON *et al.* 1992] installé sur MACINTOSH IIvx (mémoire vive portée à 20 Mo).

Etape	Produit	Installation
Etude préliminaire PECC	Sucre roux lot 3 (cassonade)	Pilote ENSIA sans circulation de filtrat
PECC	Sucre roux lot 4 (cassonade)	Pilote ENSIA sans circulation de filtrat
Etude préliminaire PEUDM	Sucre roux lot 6t (sucre brut)	Pilote EDF avec circulation de filtrat
PEUDM	Sucre roux lot 7t (sucre brut)	Pilote ENSIA avec circulation de filtrat

PECC: plan d'expériences central composite,  
PEUDM: plan d'expériences uniforme de Dœhlert modifié.

Tableau II.1 : produits et installations mis en œuvre lors de la validation des méthodologies basées sur les plans d'expériences.

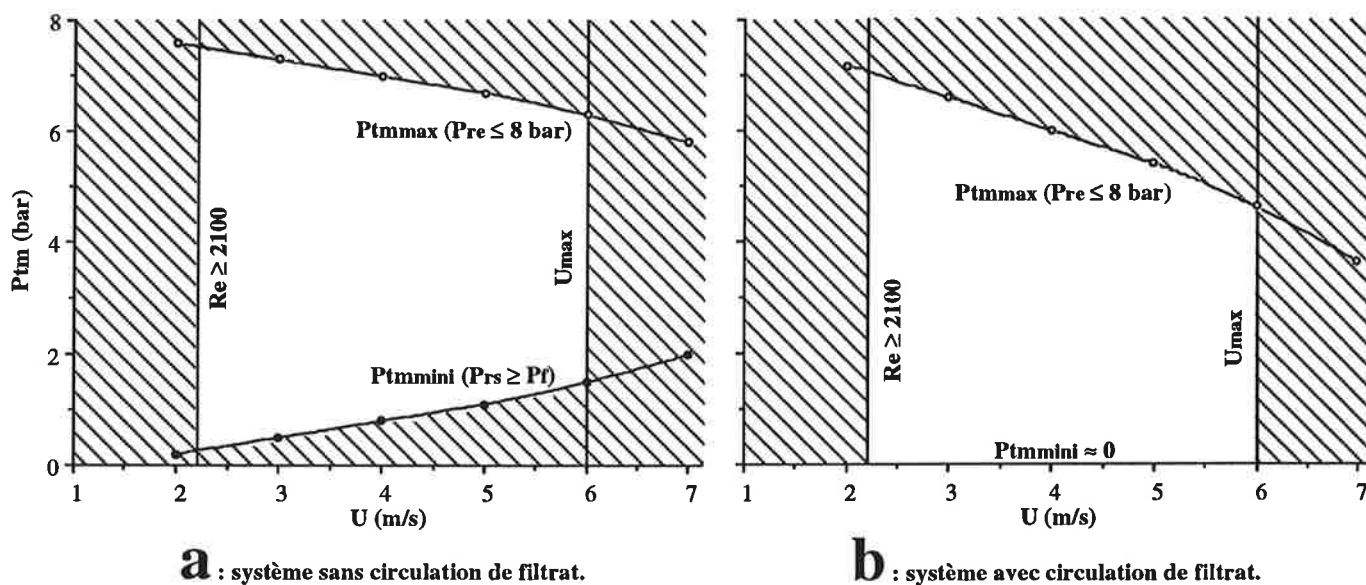


Figure II.4 : domaines disponibles de pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et de vitesse tangentielle ( $U$ ) avec un sirop de sucre roux à 60 gMS/100g à 80 °C et la membrane MEMBRALOX 1P19-40.

### II-3.2 Régression linéaire multiple pas à pas ascendant

La régression linéaire multiple pas à pas ascendant (RLMPPA) consiste aussi à modéliser les résultats sous forme de fonctions polynômiales des facteurs. Cependant, à la différence de la précédente, elle s'intéresse à la signification de chacun des termes du polynôme [GUNST et MASON 1980]. Le principe de la méthode est le suivant : les termes du modèle quadratique vu ci-dessus sont introduits un à un dans l'équation de régression. Si l'introduction du terme améliore le coefficient de régression de façon notable et que la signification du coefficient de ce terme est bonne, il est conservé. Sinon, il n'est pas pris en compte. Ainsi, la méthode progresse terme par terme c'est à dire pas à pas et augmente progressivement le nombre de termes c'est à dire procède de façon ascendante.

Cette méthode présente l'avantage de simplifier considérablement les équations par rapport à la précédente car seuls les termes influents sont conservés. Grâce à cette simplification, il est parfois possible de mieux cerner l'influence réelle des facteurs sur les réponses.

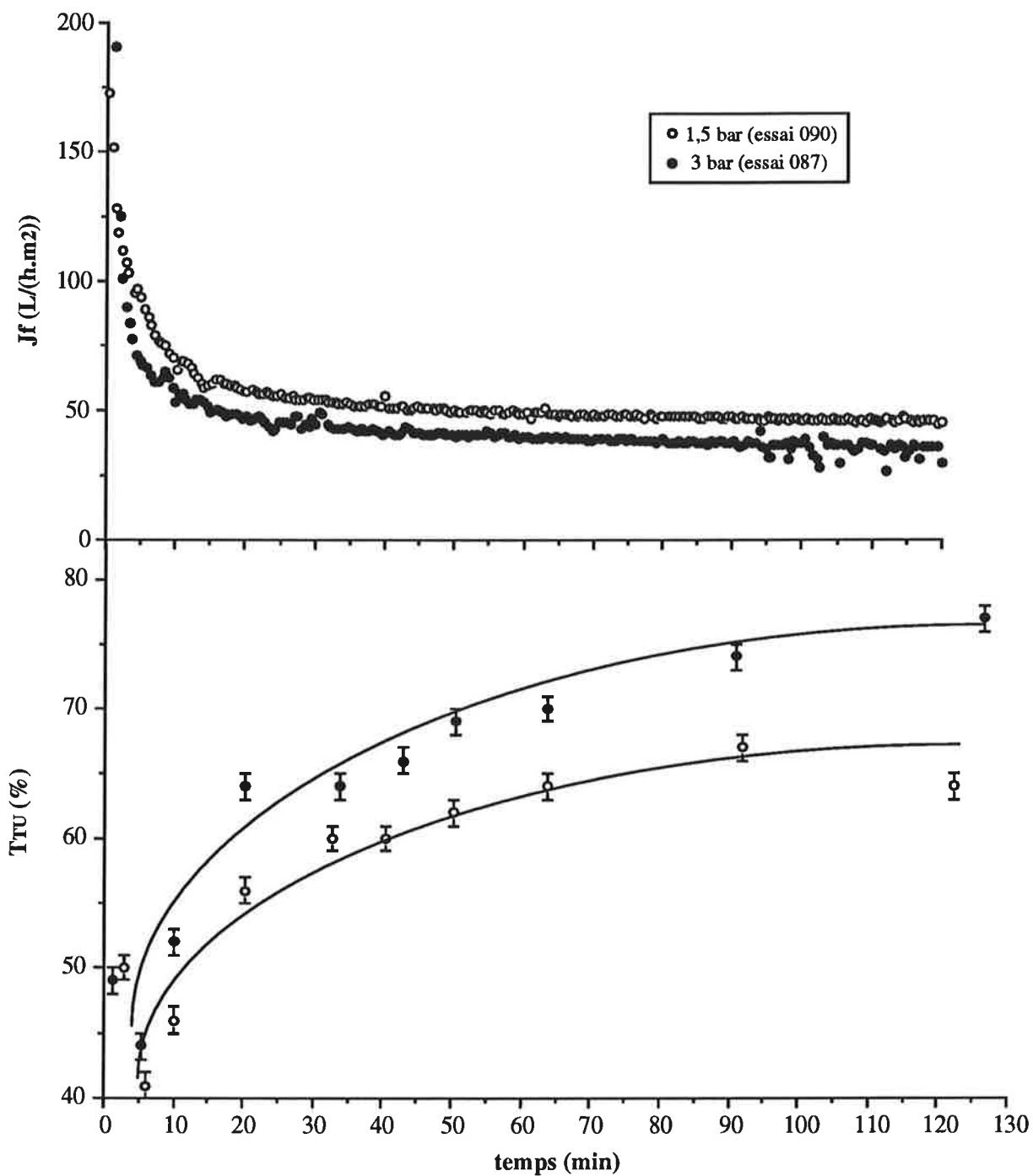
Pour le traitement des données par RLMPPA, le logiciel utilisé est GENSTAT 5 [ASTIER *et al.* 1982] installé sur IBM/PC-80.

## II-4 APPLICATION ET VALIDATION

La méthodologie décrite ci-dessus est reprise point par point et appliquée à l'optimisation des conditions de filtration de refontes de sucre roux à 60 gMS/100g et 80 °C sur la membrane MEMBRALOX de diamètre moyen de pores 1,4  $\mu\text{m}$ . L'approche PECC est appliquée dans le cas du système sans circulation de filtrat et l'approche PEUDM dans le cas du système avec circulation de filtrat. Les différents lots de sucre et installations pilote utilisés pour cette validation sont donnés dans le **Tableau II.1**.

### II-4.1 Domaines disponibles

Suivant la démarche exposée précédemment, les domaines pression-vitesse disponibles sont déterminés pour les deux configurations envisagées. Ces domaines sont représentés sur la **Figure II.4** pour les systèmes sans et avec circulation de filtrat. Pour le couple produit/membrane étudié à 80 °C, nous constatons que la vitesse tangentielle minimale pour être en régime d'écoulement turbulent ( $U_{\min}$ ) est assez élevée soit 2,2 m/s. La vitesse maximale ( $U_{\max}$ ) est ici choisie à 6 m/s bien que le Reynolds ne soit dans ce cas que de 5780. Pour le système sans circulation de filtrat, la pression transmembranaire minimale ( $P_{\text{tm}_{\min}}$ ) à  $U_{\max}$  est de 1,5 bar ce qui limite considérablement la gamme exploitable de pression aux fortes vitesses.



**Figure II.5 : évolution de la densité de flux de filtrat ( $J_f$ ) et du taux de clarification (TTU) au cours du temps pour le système sans circulation de filtrat [sucre (lot 3) / MEMBRALOX 1,4  $\mu$ m; 5 m/s; 80°C].**



## II-4.2 Premier cas : sucre / MEMBRALOX 1,4 $\mu\text{m}$ sans circulation de filtrat

### II-4.2.1 Domaine d'étude

Pour chacun des essais présentés, la procédure de démarrage suivie est brusque.

#### • *Pression transmembranaire*

Conformément à la méthode, trois essais sont effectués à différentes  $P_{tm}$  et à la vitesse moyenne de 5 m/s. La plus faible  $P_{tm}$  testée est prise égale à 1,5 bar, valeur minimale autorisée par les contraintes de fonctionnement de l'installation à  $U_{max} = 6$  m/s. La membrane utilisée étant une membrane de microfiltration, la pression maximale testée est choisie égale à 3 bar. La pression intermédiaire est donc prise égale à la moyenne de ces deux pressions soit 2,25 bar.

- Performances : l'évolution des densités de flux de filtrat ( $J_f$ ) en fonction du temps aux deux  $P_{tm}$  extrêmes testées sont représentées sur la **Figure II.5**. Une allure classique est obtenue avec, durant les premières minutes de filtration une diminution rapide de la densité de flux de filtrat puis un ralentissement de cette diminution qui devient progressivement linéaire (phase pseudo-stationnaire). Plus  $P_{tm}$  est élevée, plus la densité de flux de filtrat initiale est forte et plus sa chute au cours du temps est importante. Nous constatons que les densités de flux de filtrat ne sont toujours pas stabilisées après deux heures de filtration. Un temps de référence en phase pseudo-stationnaire est donc choisi à 120 min. Il permet de faciliter la comparaison des différents essais. Dans la gamme de  $P_{tm}$  étudiée, l'effet de  $P_{tm}$  sur les performances de l'opération est singulière. En effet, la densité de flux de filtrat à 120 min est une fonction décroissante de  $P_{tm}$  (45 L/(h.m<sup>2</sup>) à 1,5 bar et 35 L/(h.m<sup>2</sup>) à 3 bar).
- Efficacité : les taux de clarification ( $T_{TU}$ ) évoluent au cours du temps de façon inverse aux densité de flux, avec une première phase d'augmentation rapide puis une seconde phase d'augmentation linéaire beaucoup plus faible (**Figure II.5**). Un léger effet positif de  $P_{tm}$  est mis en évidence sur l'efficacité de l'opération à 120 min. Cependant, compte tenu des erreurs expérimentales sur les mesures de  $T_{TU}$  ( $\pm 0,5$  %), la validité de cette affirmation est délicate. Les taux de décoloration  $T_{COL}$  à 120 min, augmentent très légèrement au cours du temps et sont très peu affectés par la  $P_{tm}$  dans la gamme testée. Pour les trois essais, ils sont voisins de 15 %.

Suite à ces résultats, le domaine de pression à explorer à l'aide du plan d'expériences central composite doit englober les faibles valeurs de  $P_{tm}$  et doit être suffisamment étendu. Ce plan devrait donc être centré sur 1,5 bar. Cela est néanmoins impossible car cette valeur est située sur la limite du domaine disponible. Par ailleurs, l'influence de  $P_{tm}$  étant faible sur l'efficacité, ce second critère est négligé dans le choix du domaine de  $P_{tm}$  à explorer.

Essai	P <sub>tm</sub> (bar)	U (m/s)	MS (g/100 g)	Jf <sub>120</sub> (L/(h.m <sup>2</sup> ))	Jf <sub>150L/m<sup>2</sup></sub> (L/(h.m <sup>2</sup> ))	Rt <sub>120</sub> (10 <sup>10</sup> .m <sup>-1</sup> )	Rt <sub>150L/m<sup>2</sup></sub> (10 <sup>10</sup> .m <sup>-1</sup> )	α <sub>0</sub> (10 <sup>10</sup> .m <sup>-1</sup> .min <sup>-1</sup> )	α <sub>s</sub> (10 <sup>10</sup> .m <sup>-1</sup> .min <sup>-1</sup> )	T <sub>TU120</sub> (%)	T <sub>TU150L/m<sup>2</sup></sub> (%)	T <sub>COL120</sub> (%)	D <sub>50</sub> (μm)	D <sub>max</sub> (μm)	vps (10 <sup>-3</sup> %)
107	1,50	5,0	57,7	61	70	204	178	33	0,45	77	72	13	0,33	1,07	3,0
099	1,72	4,3	57,7	42	46	343	310	102	0,88	76	72	17	---	---	---
109	1,72	5,7	57,8	72	90	197	157	27	0,56	78	71	7	0,30	0,81	2,2
102	2,25	4,0	57,8	39	40	510	481	221	1,00	73	73	9	---	---	---
101	2,25	5,0	57,9	48	56	380	327	122	1,07	74	72	10	---	---	---
100	2,25	5,0	57,9	49	57	378	323	103	1,03	76	72	7	---	---	---
103	2,25	6,0	57,8	65	90	285	208	62	1,15	76	71	15	0,33	0,93	3,2
105	2,75*	4,2*	57,8	37	37	640	625	237	1,28	76	76	11	---	---	---
104	2,78	5,7	57,9	56	69	402	327	112	1,21	76	73	15	0,28	0,86	2,8
110	3,00	5,0	57,8	46	52	537	475	205	1,55	75	73	9	0,31	0,82	3,0

\* : au lieu de 2,78 bar et 4,3 m/s.

\*\* : résultats non-satisfaisants.

**Tableau II.2 : principaux résultats issus du plan d'expériences central composite [sucre (lot 4) / MEMBRALOX 1,4 μm sans circulation de filtrat, 80 °C].**

- *Vitesse tangentielle*

L'essai complémentaire est réalisé à la pression transmembranaire de 1,5 bar et à  $U_{\max}$ , soit 6 m/s. En passant de 5 à 6 m/s la densité de flux de filtrat à 120 min passe de 45 à 65 L/(h.m<sup>2</sup>). La vitesse tangentielle a donc un effet nettement positif sur la densité de flux de filtrat (+ 44 % en passant de 5 à 6 m/s). Par contre, aucun effet significatif n'est noté sur  $T_{TU}$  et  $T_{COL}$ . Seul le critère performances peut donc être pris en compte dans le choix du domaine de vitesse tangentielle à explorer. Ainsi, le domaine de vitesse balayé par le plan d'expériences central composite final doit être peu étendu et situé du côté des fortes vitesses.

Le domaine  $P_{tm}/U$  finalement sélectionné dans ce premier cas est :

pour  $P_{tm}$  : niveau bas [-1] 1,50 bar / centre [0] 2,25 bar / niveau haut [+1] 3,00 bar,  
pour  $U$  : niveau bas [-1] 4,0 m/s / centre [0] 5,0 m/s / niveau haut [+1] 6,0 m/s.

#### II-4.2.2 Application du plan d'expériences central composite

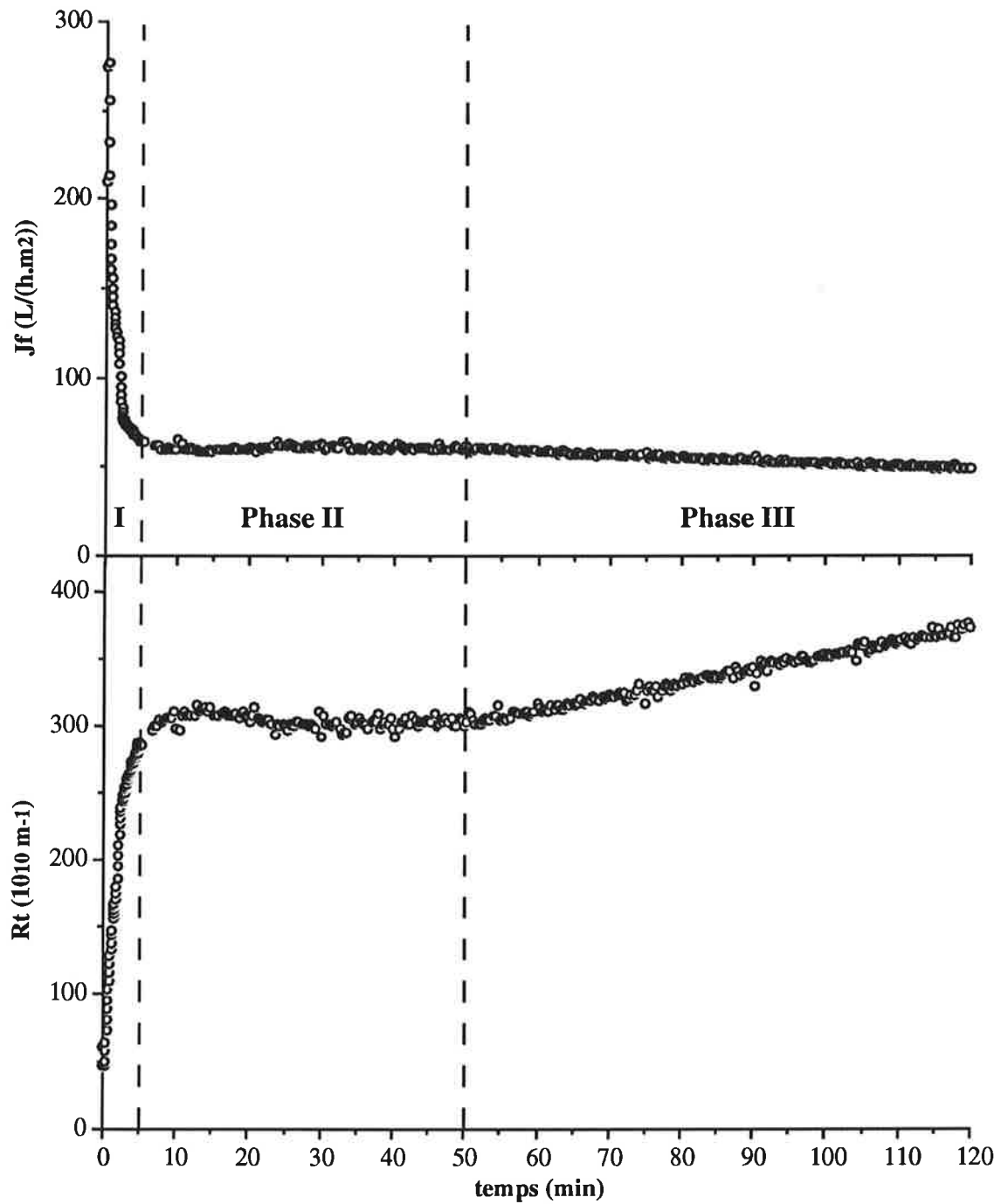
Suite à une rupture de stock sur le lot de sucre roux 3 (utilisé pour l'étude préliminaire), le lot 4 est utilisé dans cette seconde partie de l'expérimentation. La composition des deux lots étant proche (cf. **Tableau I.7**), l'effet produit ne devrait pas perturber de façon trop importante les résultats. Les deux séries d'essais doivent néanmoins être comparées avec prudence.

Sur le domaine d'étude finalement retenu, une seconde série de filtrations est donc effectuée suivant un PECC en respectant une procédure de démarrage brusque comme pour les essais préliminaires. Les résultats obtenus après 120 min de traitement ou après la filtration de 150 litres de produit par m<sup>2</sup> de membrane (150 L/m<sup>2</sup>) sont successivement présentés puis discutés. Le **Tableau II.2** récapitule l'ensemble.

- *Performances*

En complément des densités de flux de filtrat, nous considérerons également les autres critères caractéristiques du colmatage membranaire définis précédemment ( $R_t$ ,  $\alpha_0$ ,  $\alpha_s$ ).

Contrairement aux essais préliminaires, la densité de flux n'est plus strictement décroissante durant la filtration (**Figure II.6**). En effet, après la première chute rapide (phase I), nous observons un ralentissement de la diminution de la densité de flux de filtrat, puis une augmentation et une stabilisation (phase II). Enfin, la densité de flux de filtrat se remet à décroître très lentement à partir d'environ 50 min de filtration ce qui correspond à la phase pseudo-stationnaire (phase III). Ce phénomène est encore plus visible lorsque l'évolution de la résistance hydraulique totale définie selon DARCY ( $R_t$ ) est portée en fonction du temps (**Figure II.6**). Suite à ce résultat surprenant, nous avons vérifié qu'il ne s'agissait pas d'un artefact de mesure. Ainsi, ni une dérive de la réponse



**Figure II.6 : évolution de la densité de flux de filtrat ( $J_f$ ) et de la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) au cours du temps [sucre (lot 4) / MEMBRALOX 1,4  $\mu m$  sans circulation de filtrat; 2,25 bar; 5 m/s; 80 °C; essai 100].**

des capteurs, ni une concentration par évaporation, ni une concentration par échantillonnage n'en sont la cause. Il est donc bien question d'un phénomène réel essentiellement dû au produit constituant le lot 4 puisqu'il n'a pas été observé sur le lot 3. D'après les analyses, la seule différence mise en évidence entre ces deux lots est la répartition granulométrique des particules insolubles qu'ils contiennent. Le lot 4 présente un seul pic de population aux alentours de 100  $\mu\text{m}$ . Le lot 3 contient par contre une population plus dispersée avec, en particulier, des particules de taille plus importante (**Figure II.7**). Notons que des résultats du même type ont déjà été signalés par quelques auteurs [CHERYAN 1986, RENE et DELPLACE 1993].

La résistance minimale mesurée en début de filtration est constante pour tous les essais quelles que soient les pressions transmembranaires et les vitesses tangentielles choisies. La valeur moyenne obtenue sur les dix essais du plan d'expériences est de  $45.10^{10} \text{ m}^{-1}$  (écart type =  $3.10^{10} \text{ m}^{-1}$ ). Cette valeur est environ 5 fois plus élevée que la résistance de la membrane sur eau ( $R_m$ ) déterminée en fin de nettoyage ( $9.10^{10} \text{ m}^{-1}$ ). En observant les toutes premières secondes des enregistrements (**Figure II.8**), nous constatons que  $R_t$  diminue légèrement avant d'augmenter à nouveau. Cette évolution singulière peut s'expliquer par l'inertie du débitmètre filtrat qui passe en un temps très court de 0 à 40-60 L/h.

Comme nous pouvons le constater sur la **Figure II.9a**, les meilleures densités de flux de filtrat à 120 min sont observées à faible pression transmembranaire et forte vitesse tangentielle. Cette tendance confirme les résultats obtenus lors des essais préliminaires. Inversement pour les résistances hydrauliques totales  $R_t$  à 120 min, les plus fortes valeurs sont obtenues à forte pression et faible vitesse (**Figure II.9b**). Les pentes au démarrage  $\alpha_0$  et en régime pseudo-stationnaire  $\alpha_s$  sont d'autant plus fortes que la pression est élevée et la vitesse faible. Ces constatations sont aussi valables pour  $J_f$  et  $R_t$  à 150 L/m<sup>2</sup>.

Les résultats du traitement des données par la méthode des surfaces de réponse (MSR) sont présentés dans le **Tableau II.3**. Le modèle quadratique permet de bien décrire les variations des différents résultats en fonction de  $P_{tm}$  et de  $U$ . En effet, les coefficients de régression ( $R^2$ ) obtenus à la suite des régressions linéaires sont tous supérieurs à 0,95 ce qui prouve la bonne adéquation de ce modèle aux résultats expérimentaux.

Les principaux résultats issus du traitement des données par régression linéaire multiple pas à pas ascendant (RLMPPA) sont portés dans le **Tableau II.4**. Les équations prédictives obtenues sont, comme nous l'espérons, notablement simplifiées. Ainsi de nombreux termes du modèle quadratique complet sont supprimés sans pour autant impliquer de diminution significative des coefficients de régression. De plus, les coefficients des équations simplifiées sont déterminés avec une meilleure précision (test de Student). Sur les densités de flux de filtrat, la  $P_{tm}$  n'apparaît plus que dans le terme  $P_{tm}^2$  et dans le terme interactif ( $P_{tm}.U$ ). Sur les résistances hydrauliques totales

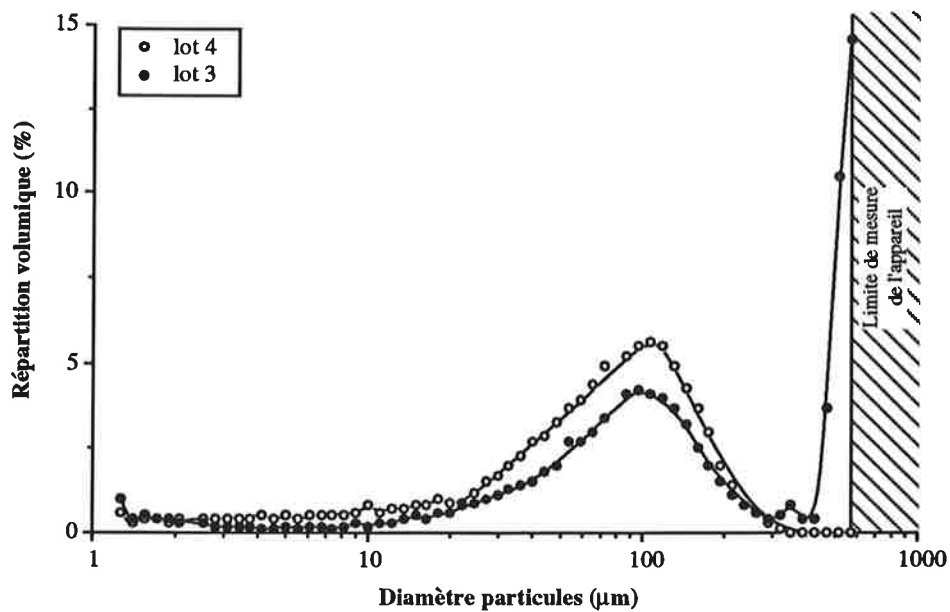


Figure II.7 : comparaison des profils granulométriques de deux lots de sucre roux.

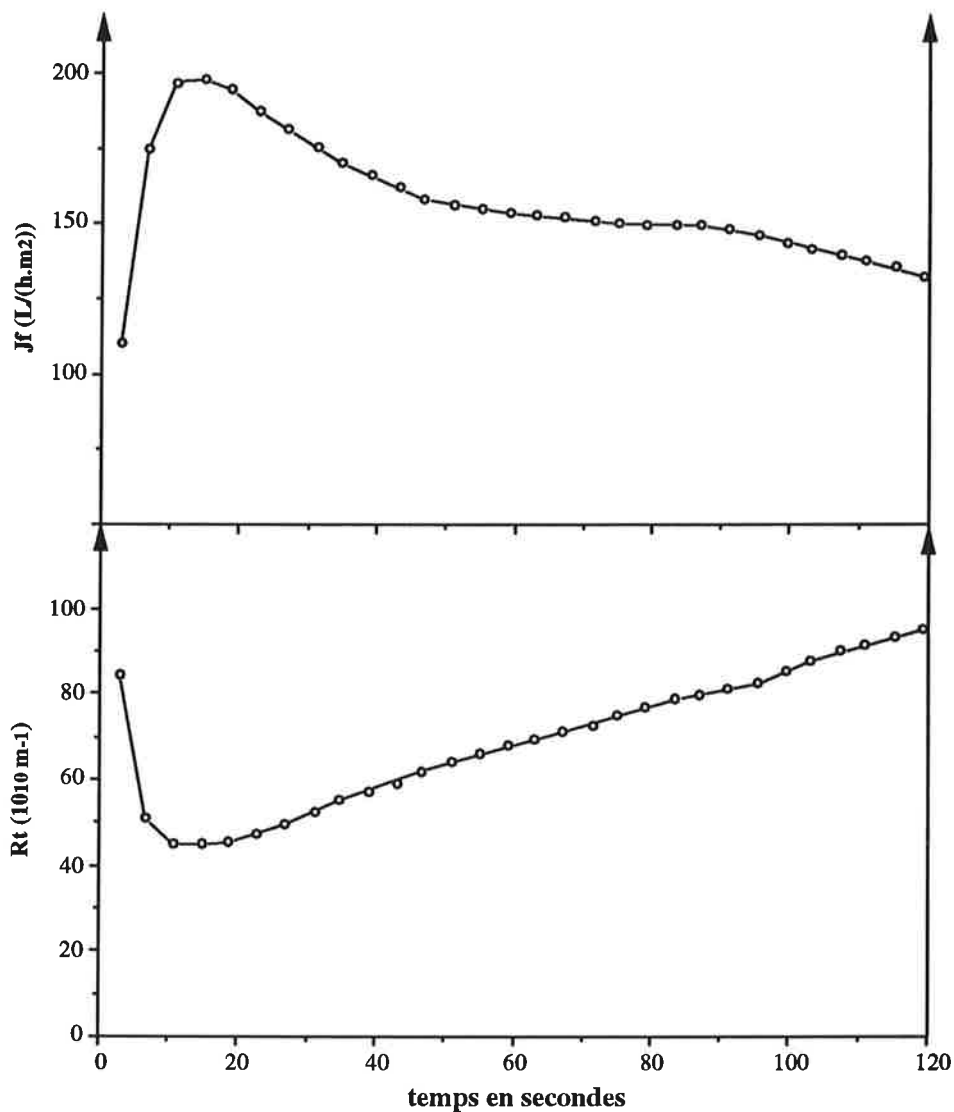
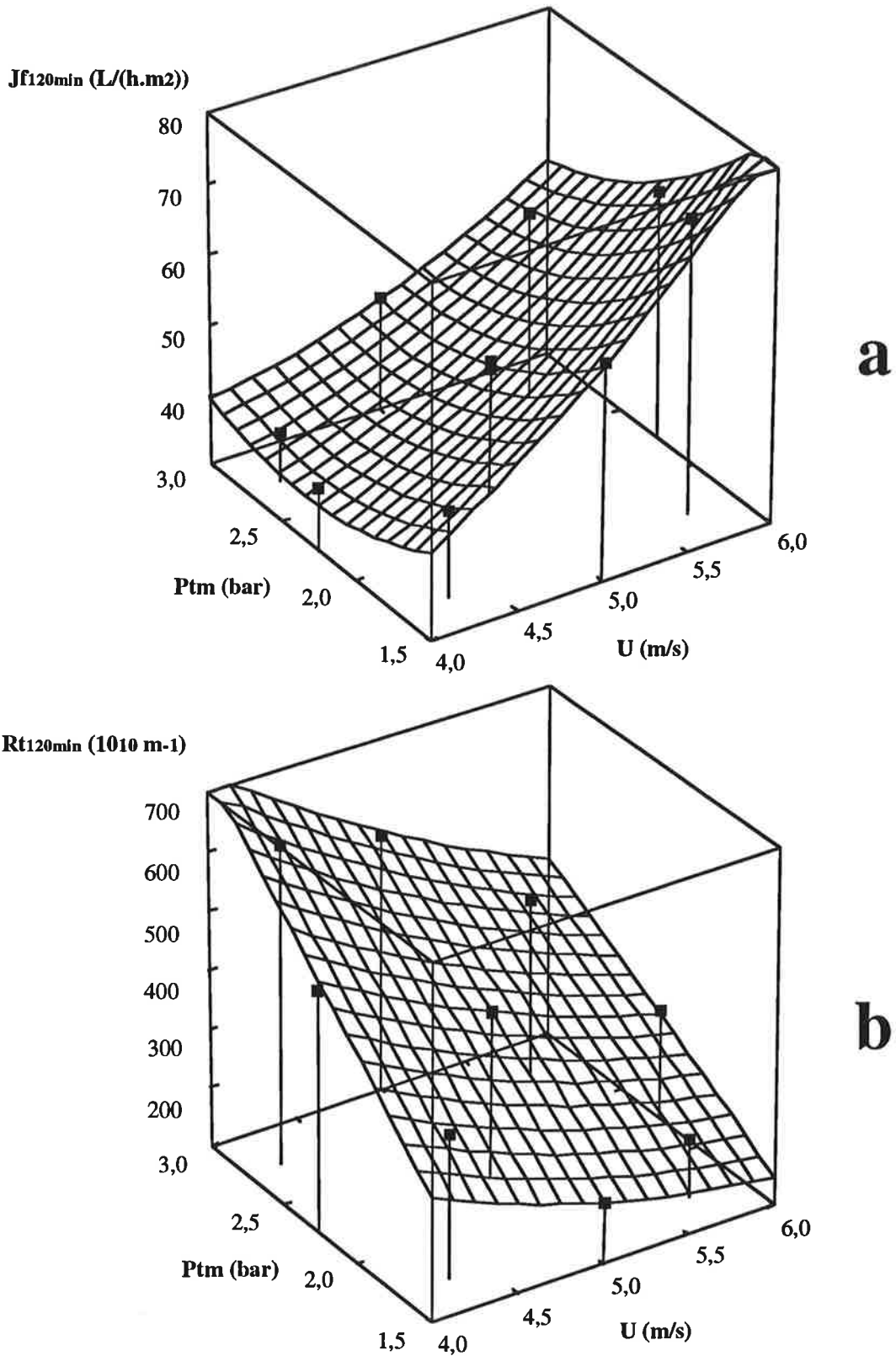


Figure II.8 : évolution de la densité de flux de filtrat ( $J_f$ ) et de la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) au cours des premières secondes de la filtration [sucre (lot 4) / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de filtrat; 1,5 bar; 5 m/s; 80 °; essai 107].



**Figure II.9 : influence de la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et de la vitesse tangentielle ( $U$ ) sur la densité de flux de filtrat [a] et la résistance hydraulique totale [b] à 120 min ( $J_{f120min}$  et  $R_{t120min}$ ) [sucre (lot 4) / MEMBRALOX 1,4  $\mu$ m sans circulation de filtrat; 80 °C].**

Y (Unités)	Coefficients du polynôme						Coefficient de régression R <sup>2</sup>
	Constante (a <sub>0</sub> )	P <sub>tm</sub> (a <sub>1</sub> )	U (a <sub>2</sub> )	P <sub>tm</sub> <sup>2</sup> (b <sub>1</sub> )	U <sup>2</sup> (b <sub>2</sub> )	P <sub>tm</sub> .U (c)	
J <sub>f</sub> 120min (L.h <sup>-1</sup> .m <sup>-2</sup> )	21,45	-7,29	3,39	8,19	2,94	-7,87	0,984
J150L/m <sup>2</sup> (L.h <sup>-1</sup> .m <sup>-2</sup> )	69,49	3,29	-26,82	6,08	7,23 *	-8,69 *	0,995
R <sub>t</sub> 120min (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	435,28	534,92 *	-242,33	-7,05	24,37	-55,32 *	0,996
R <sub>t</sub> 150L/m <sup>2</sup> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	406,18	577,89 *	-240,62	16,81	29,38	-88,78 *	0,994
α <sub>o</sub> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> .min <sup>-1</sup> )	468,34	243,26	-226,24	0,37	21,44	-27,49	0,986
α <sub>s</sub> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> .min <sup>-1</sup> )	0,92	0,43	-0,38	-0,13	-0,001	0,16	0,913
T <sub>TU</sub> 150L/m <sup>2</sup> (%)	78,72	1,36	-2,87	1,54	0,46	-1,31	0,800
Ẇ <sub>a</sub> (W.m <sup>-2</sup> )	16,43	22,09	-7,27	2,62	0,76	-2,65	0,998
Ẇ <sub>c</sub> (W.m <sup>-2</sup> )	-1212,40	232,14	312,72	-87,55	11,16	30,17	0,996
Ẇ <sub>t</sub> (W.m <sup>-2</sup> )	-1184,36	255,24	300,17	-84,71	12,54	27,12	0,996
Ẇ <sub>t</sub> /J <sub>f</sub> (kWh.m <sup>-3</sup> )	-16,69	7,45	7,60	-4,91	-1,29	3,68	0,986

Modèle quadratique utilisé :  $Y = a_0 + a_1.P_{tm} + a_2.U + b_1.P_{tm}^2 + b_2.U^2 + c.P_{tm}.U + \epsilon$  avec P<sub>tm</sub> en bar et U en m/s.

\*\*, \* : coefficient significatif à P < 1 %, P < 5 % respectivement (test de Student).

**Tableau II.3 : analyses des principaux résultats issus du PECC par la méthodologie des surfaces de réponses [sucre (lot 4) / MEMBRALOX 1,4 μm sans circulation de filtrat, 80°C].**

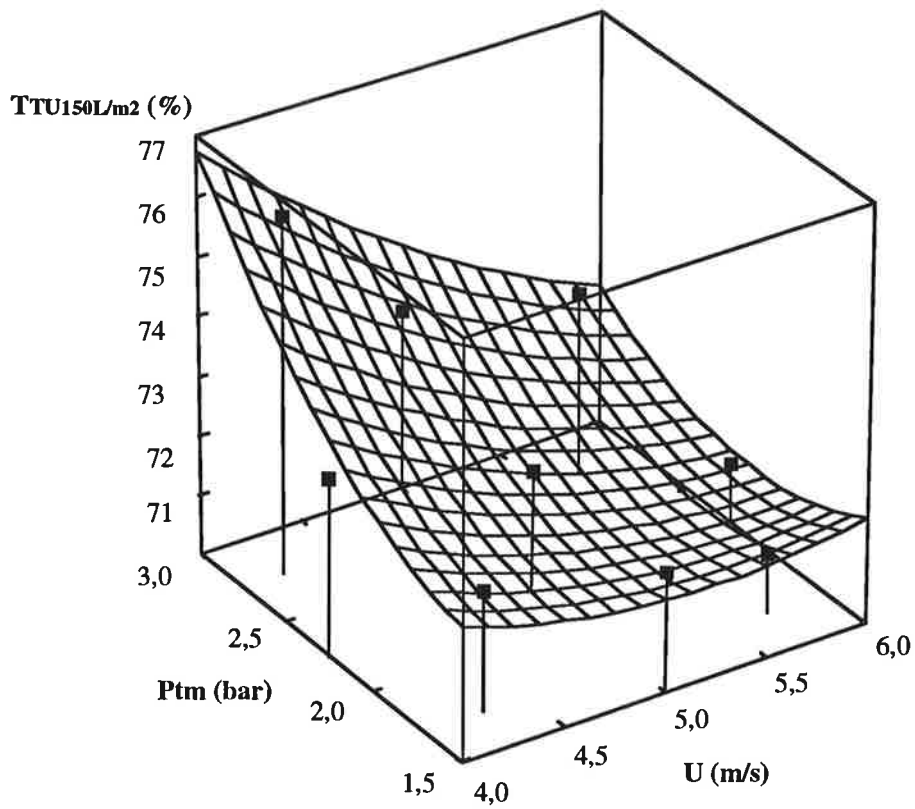


Y (Unités)	Coefficients du polynôme						Coefficient de régression R <sup>2</sup>
	Constante (a <sub>0</sub> )	P <sub>tm</sub> (a <sub>1</sub> )	U (a <sub>2</sub> )	P <sub>tm</sub> <sup>2</sup> (b <sub>1</sub> )	U <sup>2</sup> (b <sub>2</sub> )	P <sub>tm</sub> .U (c)	
<b>Jf<sub>120min</sub></b> (L.h <sup>-1</sup> .m <sup>-2</sup> )	21,67 **	—	—	7,28 *	3,43 **	-8,50 **	0,983
<b>Rt<sub>120min</sub></b> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	-124,90 **	503,16 **	—	—	—	-55,14 **	0,991
<b>α<sub>o</sub></b> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> .min <sup>-1</sup> )	-121,49 **	272,85 **	—	—	—	-32,94 **	0,973
<b>α<sub>s</sub></b> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> .min <sup>-1</sup> )	-0,37	0,62 **	—	—	—	—	0,886
<b>T<sub>TU150L/m2</sub></b> (%)	73,56 **	—	—	1,02 **	—	-0,58 *	0,767

Modèle quadratique utilisé :  $Y = a_0 + a_1.P_{tm} + a_2.U + b_1.P_{tm}^2 + b_2.U^2 + c.P_{tm}.U + \epsilon$  avec P<sub>tm</sub> en bar et U en m/s.

\*\* , \* : coefficient significatif à P < 1 %, P < 5 % respectivement (test de Student).

**Tableau II.4 : analyse des principaux résultats issus du PECC par régression linéaire multiple pas à pas [sucre lot 4 / MEMBRALOX 1,4 μm sans circulation de filtrat, 80°C].**



**Figure II.10 : influence de la pression transmembranaire (P<sub>tm</sub>) et de la vitesse tangentielle (U) sur le taux de clarification à 150 L/m<sup>2</sup> (TTU<sub>150L/m2</sub>) [sucre (lot 4) / MEMBRALOX 1,4 μm sans circulation de filtrat; 80 °C].**

Rt, les équations sont par contre très simplifiées. En effet, Rt n'est plus fonction que de  $P_{tm}^1$  et du produit  $P_{tm} \cdot U$ . La vitesse n'intervient que dans le terme interactif. Sur les pentes  $\alpha_0$ , les mêmes constatations que sur les résistances peuvent être faites. Enfin, les pentes  $\alpha_s$  ne dépendent significativement plus que de la pression.

#### • *Efficacité*

Comme nous l'avons vu précédemment, le principal critère retenu comme indice d'efficacité est le taux de clarification  $T_{TU}$  qui caractérise la diminution de turbidité. Les taux de décoloration  $T_{COL}$ , les caractéristiques granulométriques et les autres mesures physico-chimiques sont considérées en complément.

Les variations de  $T_{TU}$  en fonction du temps ou du volume filtré sont dans tous les cas assez faibles. De 62-68 % ( $TU_f = 120-140$  UNT) en début d'opération, les taux de clarification passent à 75-78 % ( $TU_f = 85-100$  UNT) après 120 min de filtration. Compte tenu de l'erreur de mesure par rapport à ces faibles variations, les résultats obtenus sont à considérer avec réserve. Aucun effet significatif de  $P_{tm}$  ou de  $U$ , n'est mis en évidence sur  $T_{TU}$  à 120 min qui demeure quasiment constant à 76 %. Par contre en considérant  $T_{TU}$  à  $150 \text{ L/m}^2$ , une nette tendance apparaît (**Figure II.10**). Les meilleurs effets clarificateur sont observés à forte pression et faible vitesse (76 % à 1,72 bar et 4,3 m/s). Ainsi, il est confirmé que les effets de  $P_{tm}$  et  $U$  sur les performances et l'efficacité sont antagonistes.

Le coefficient de régression obtenu suite au traitement par MSR est satisfaisant (0,895) malgré la médiocre précision des mesures (**Tableau II.3**). Enfin, l'équation simplifiée obtenue suite au traitement par RLMPPA ne présente plus que les termes  $P_{tm}^2$  et  $P_{tm} \cdot U$  (**Tableau II.4**). Les  $T_{TU}$  à 120 min obtenus sont du même ordre de grandeur que ceux obtenus sur le lot 3 ainsi que ceux annoncés par PUNIDADAS [1990] lors d'essais sur un produit comparable filtré dans des conditions similaires.

L'évolution des taux de décoloration en fonction du temps de filtration (ou du volume filtré) n'est pas significative. De plus, dans les conditions opératoires testées, aucune influence notable de  $P_{tm}$  ou de  $U$  sur  $T_{COL}$  n'est mise en évidence.  $T_{COL}$  est compris entre 7 et 11 % ( $COL_f = 2520$  à  $2630$  UI). Les colorations obtenues, plus faibles que celles mesurées par PUNIDADAS [1990], s'expliquent certainement par la différence de protocole analytique utilisé (avec ou sans préfiltration sur membrane  $0,45 \mu\text{m}$ ). La rétention des composés responsables de la coloration des sirops de sucre roux s'explique vraisemblablement par des phénomènes d'adsorption. Compte tenu de leurs poids moléculaires [GRATIUS 1994], la rétention stérique de tels composés est en effet peu probable sur une membrane de diamètre moyen de pores aussi élevé.

En ce qui concerne la teneur en matière sèche, le pH et les cendres, aucune différence significative

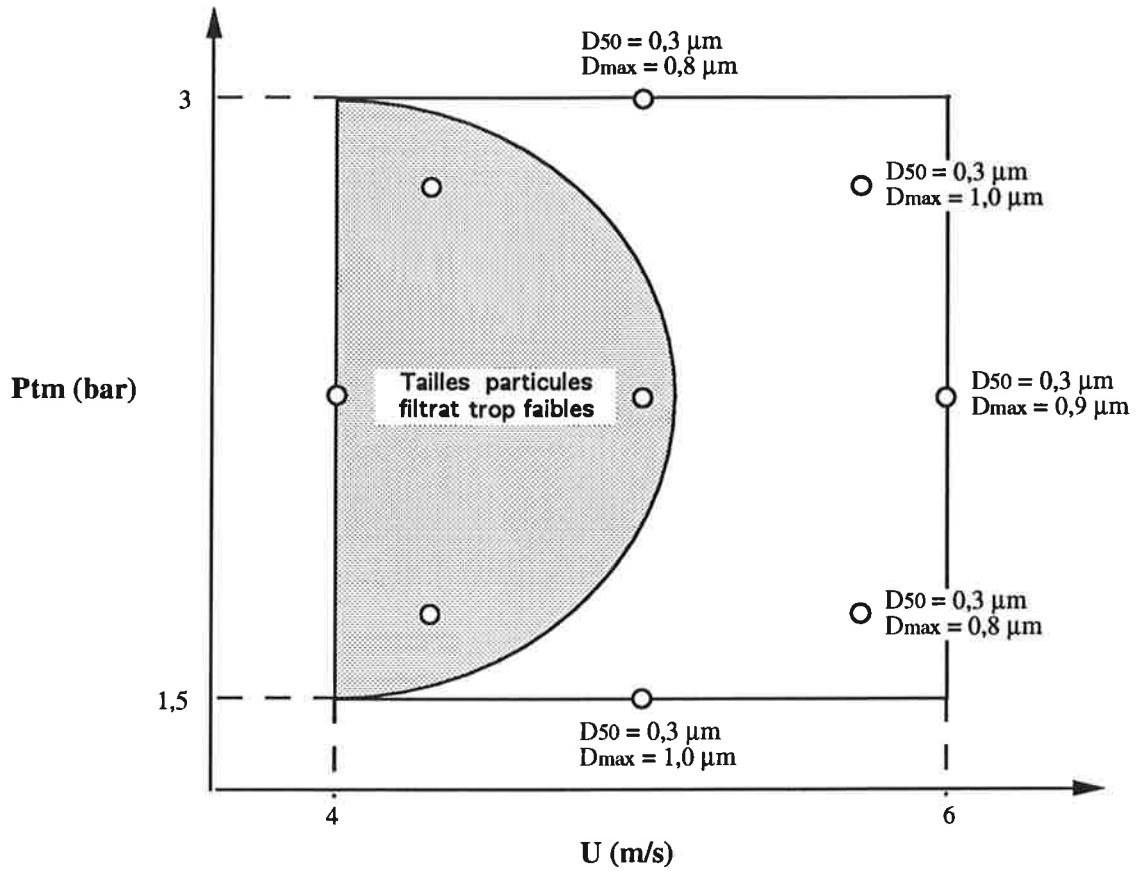


Figure II.11 : représentation du diamètre médian ( $D_{50}$ ) et du plus gros diamètre ( $D_{max}$ ) des particules en suspension dans les filtrats en fonction de la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et de la vitesse tangentielle ( $U$ ) [sucre (lot 4) / MEMBRALOX 1,4  $\mu m$  sans circulation de filtrat, 80°C].

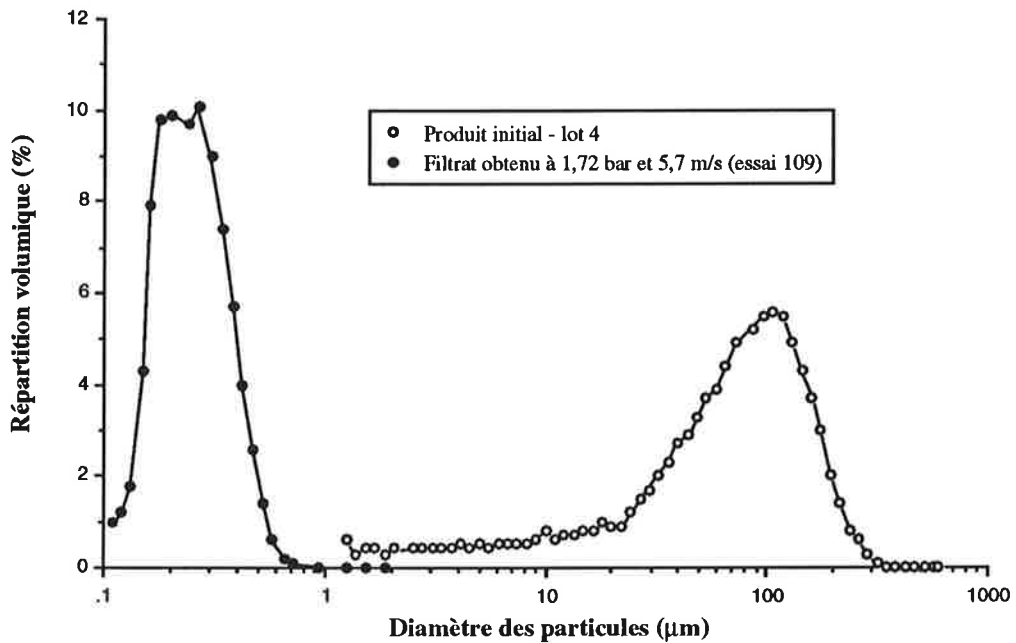


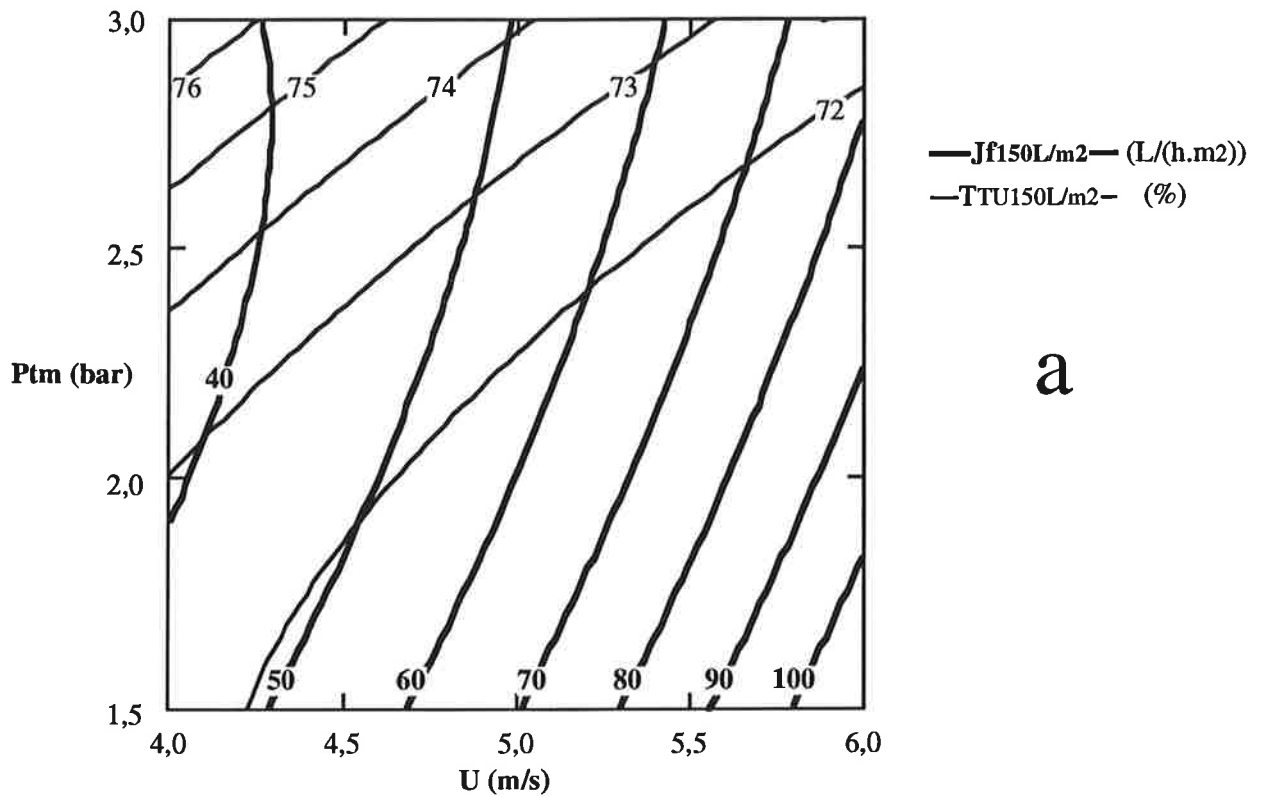
Figure II.12 : comparaison des profils granulométriques d'un sirop de sucre roux avant et après filtration sur MEMBRALOX 1,4  $\mu m$ .

n'est mise en évidence entre le sirop brut et les différents filtrats obtenus et cela quels que soient le temps de filtration, le volume filtré, la pression ou la vitesse choisis. Les taux de clarification obtenus par l'intermédiaire de la mesure des turbidités indiquent qu'une certaine quantité de matière est retenue par la membrane lors de la filtration du produit brut. Cependant, la matière sèche du sirop étant constituée en grande majorité de saccharose (pureté  $\geq 98\%$ ) qui n'est pas retenu, les différences de teneur matière sèche des sirops avant et après filtration sont trop faibles pour être mises en évidence par réfractométrie.

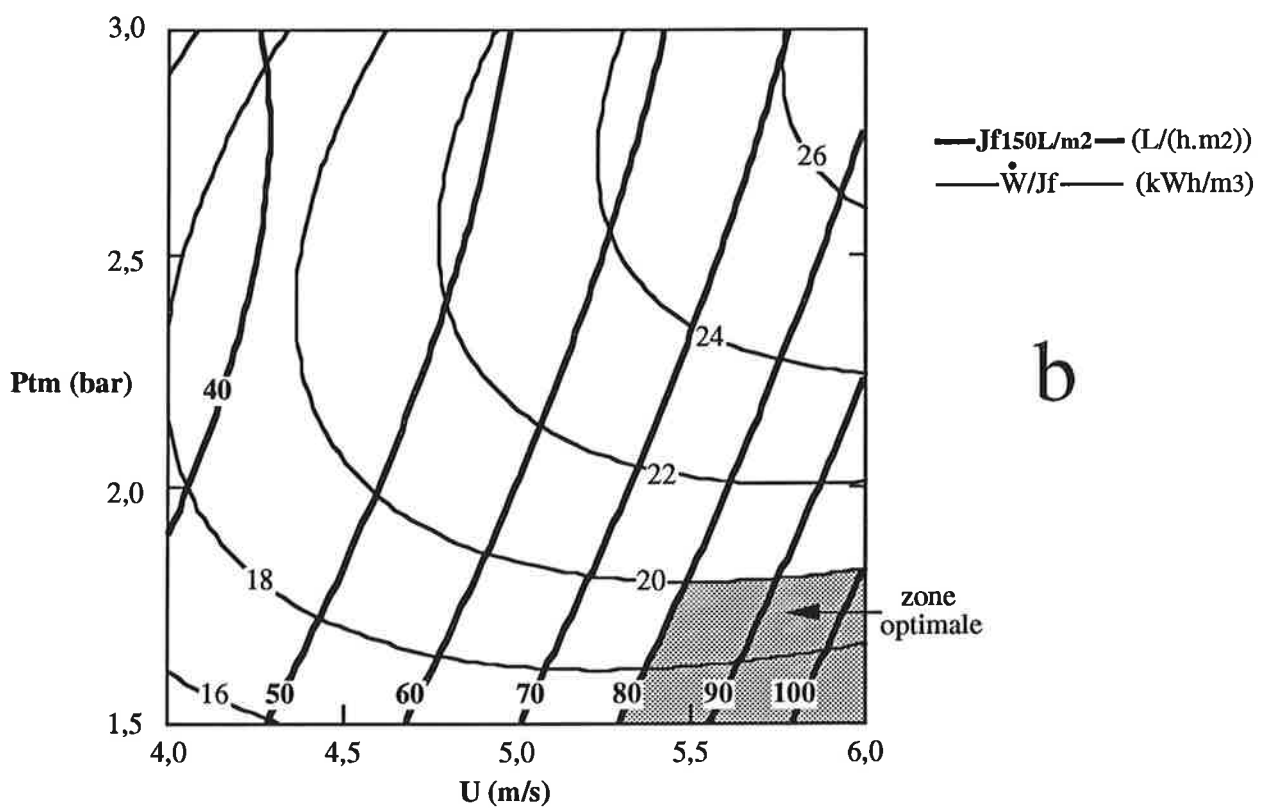
Les analyses granulométriques effectuées sur les différents filtrats ne sont pas toujours exploitables. En effet, pour certains essais du plan d'expériences, les tailles de particules en suspension dans les filtrats sont trop faibles pour être mesurées par l'appareil. Nous constatons sur la **Figure II.11** que ces trop faibles tailles correspondent à des filtrats obtenus à faibles vitesses tangentielles. Pour les essais effectués à forte U, les caractéristiques granulométriques des filtrats prélevés à 30, 60 et 120 min n'évoluent pas significativement. Pour les vitesses tangentielles élevées, la granulométrie des filtrats ne semble dépendre ni de  $P_{tm}$  ni de U sur le domaine exploitable. Les valeurs moyennes des diamètres obtenus sont  $0,3\ \mu\text{m}$  et  $0,9\ \mu\text{m}$  respectivement pour  $D_{50}$  et  $D_{max}$ . Ces faibles valeurs montrent que les mesures sont à la limite des possibilités du granulomètre à diffraction LASER. Leur fiabilité est donc à considérer avec prudence. Il serait vraisemblablement plus satisfaisant de changer de technique en passant par exemple à la diffusion quasi-élastique ou à la microscopie électronique à balayage mieux adaptées aux mesures submicroniques. Dans un but comparatif, les courbes de répartition granulométrique du produit non-traité et d'un produit filtré sont représentées sur la **Figure II.12**. La teneur volumique en particules du produit (vps) passe de  $0,3\%$  à  $0,003\%$  environ après filtration. D'après ces résultats, les filtrats contiennent donc en volume 100 fois moins de particules en suspension que le sucre roux de départ. La rétention vue sous cet angle est donc extrêmement importante et ne reflète guère les résultats obtenus à partir des mesures de turbidité ( $T_{TU} \approx 76\%$ ).

#### • Consommation énergétique

La consommation énergétique de la pompe d'alimentation ( $\dot{W}_a$ ) est d'autant plus importante que  $P_{tm}$  est élevée et U faible. Elle varie de 19 à  $50\ \text{W/m}^2$  et représente seulement 1 à 7 % de la consommation totale des pompes. La consommation énergétique de la pompe de circulation rétentat ( $\dot{W}_c$ ) est quasiment proportionnelle à la vitesse tangentielle. Elle est comprise entre 557 et  $1395\ \text{W/m}^2$  dans les conditions testées. L'énergie totale consommée par unité de volume de filtrat produit ( $\dot{W}_t/J_f$ ) est plus importante aux fortes  $P_{tm}$  et U. Elle est comprise entre 16 et  $26\ \text{kWh/m}^3$ . Nous restreindrons ici au traitement des données par MSR. Comme il est possible de la constater dans le **Tableau II.3**, le modèle quadratique représente de façon très satisfaisante aussi bien  $\dot{W}_a$ ,  $\dot{W}_c$ ,  $\dot{W}_t$  que  $\dot{W}_t/J_f$ .



a



b

Figure II.13 : visualisation de la zone optimale de fonctionnement en considérant simultanément les performances ( $J_f$ 150L/m<sup>2</sup>), l'efficacité (TTU150L/m<sup>2</sup>) et la consommation énergétique ( $\dot{W}/J_f$ ) dans le domaine testé de pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et de vitesse tangentielle ( $U$ ) [sucre (lot 4) / MEMBRALOX 1,4  $\mu$ m sans circulation de filtrat, 80 °C].

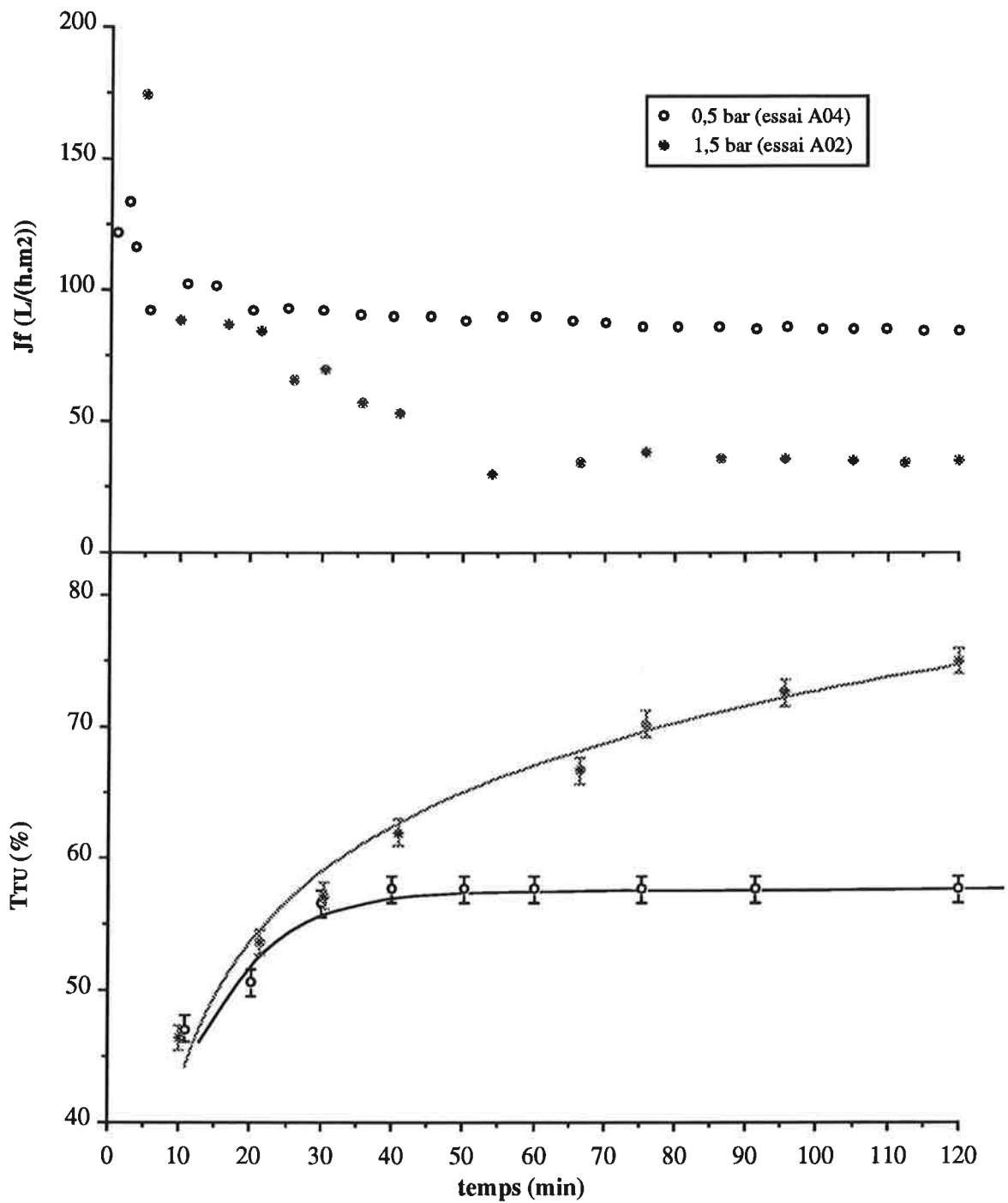
- *Détermination de l'optimum*

D'après une étude économique réalisée en 1991 [ROUSSEAU et BERRECHID 1991], le procédé de microfiltration tangentielle utilisé comme procédé de clarification des sirops de sucre roux ne serait envisageable industriellement que si la densité de flux de filtrat est au moins égale à 80 L/(h.m<sup>2</sup>) (limite de rentabilité du système). Comme il a déjà été souligné, un des avantages de l'approche utilisée est la possibilité de visualiser simultanément les zones maximales de performances et d'efficacité. Dans notre cas, par simple projection sur le plan déterminé par les deux paramètres étudiés, il est très facile de représenter sur le même graphique les courbes de niveaux correspondant à la fois à la densité de flux et au taux de clarification. La **Figure II.13a** reprend cette représentation pour  $J_f$  et  $T_{TU}$  à 150 L/m<sup>2</sup>. Nous constatons aisément sur cette figure que, dans notre cas précis, il ne peut y avoir de compromis entre performances et efficacité. Néanmoins, un fort gain de densité de flux ne s'accompagne pas d'une diminution très importante du taux de clarification. Il est donc possible de privilégier le critère performances sans pénaliser trop fortement le critère efficacité. En considérant simultanément performances et énergie totale dépensée par unité de filtrat produit, la zone optimale pour le couple produit/membrane étudié est finalement visualisée en grisé sur la **Figure II.13b**. Dans cette zone, il est possible de prévoir des densités de flux supérieures à 80 L/(h.m<sup>2</sup>), des taux de clarification de 71 %, des taux de décoloration de 7 à 11 % avec une énergie volumique consommée inférieure à 20 kWh/m<sup>3</sup>.

La définition d'un critère unique intégrant à la fois performances, efficacité et consommation énergétique serait a priori plus satisfaisant pour l'optimisation de l'ensemble. Les méthodes proposées pour cela sont néanmoins délicates à mettre en œuvre car elles nécessitent de définir des pondérations pour chaque critère considéré [LIANG et FLOROS 1991]. La difficulté est alors de fixer les valeurs des pondérations qui doivent intégrer les impératifs industriels de l'opération.

Le colmatage membranaire, source de diminution de la densité de flux et d'augmentation de la résistance hydraulique totale, est d'autant plus important que la pression est élevée et la vitesse faible. Ce comportement peut être expliqué par un colmatage de type externe compressible : l'élévation de la pression conduirait à une augmentation de la résistance spécifique du dépôt formé à la suite de l'accumulation des particules insolubles en surface de membrane alors que l'augmentation de la vitesse tangentielle diminuerait son épaisseur d'équilibre. Cette hypothèse est confirmée par les résultats obtenus sur les taux de clarification et la granulométrie : le dépôt externe une fois mis en place (phase pseudo-stationnaire) jouerait lui-même le rôle d'élément filtrant. Plus sa résistance spécifique est grande et son épaisseur importante i.e. plus  $P_{tm}$  est élevée et  $U$  est faible, meilleures sont ses capacités de rétention.

Suite à nos résultats, il est vraisemblable qu'en diminuant encore la pression transmembranaire, il soit possible d'atteindre sans difficulté de très bonnes performances. Le domaine de pression autorisé par le système normal (sans circulation de filtrat) ne permet malheureusement pas de



**Figure II.14 : évolution de la densité de flux de filtrat ( $J_f$ ) et du taux de clarification ( $TTU$ ) au cours du temps pour le système avec circulation de filtrat [sucre (lot 6t) / MEMBRALOX 1,4  $\mu m$ , pilote alfa-LAVAL/EDF; 6 m/s; 80 °C].**



travailler à plus faible  $P_{tm}$ . Il est ainsi indispensable de passer au système avec circulation de filtrat.

### II-4.3 Second cas : sucre / MEMBRALOX 1,4 $\mu\text{m}$ avec circulation de filtrat

Les différents résultats présentés correspondent à des essais effectués en démarrage lent.

#### II-4.3.1 Domaine d'étude

- *Pression transmembranaire*

Mettant à profit les résultats obtenus sans circulation de filtrat, la méthode suivie pour les essais préliminaires est un peu modifiée par rapport à la méthode spécifique de base. Ainsi, les trois essais sont effectués à 0,5 bar, 1,0 bar et 1,5 bar et à la vitesse tangentielle maximale  $U_{max}$ , soit 6 m/s. Rappelons que ces essais préliminaires sont réalisés sur l'installation pilote  $\alpha$ -LAVAL / EDF qui ne permet qu'une médiocre précision sur les mesures et des régulations manuelles. Les résultats sont donc à considérer avec circonspection.

L'évolution des densités de flux de filtrat au cours des filtrations correspond à celle précédemment décrite. Quelques exemples en sont donnés sur la **Figure II.14**. Les mêmes remarques peuvent être faites sur l'allure des courbes en fonction du temps. Ici encore, les densités de flux de filtrat à 120 min sont d'autant plus élevées que  $P_{tm}$  est faible. L'influence de  $P_{tm}$  est toutefois plus marquée que dans le cas précédent : une diminution de  $P_{tm}$  de 1 bar s'accompagne d'une augmentation d'environ 140 % des densités de flux à 120 min (35 L/(h.m<sup>2</sup>) à 1,5 bar et 85 L/(h.m<sup>2</sup>) à 0,5 bar).

Quelques exemples d'évolution des taux de clarification sont également portés sur la **Figure II.14**. L'effet clarificateur augmente progressivement avec le temps de filtration et atteint des valeurs d'autant plus élevées que la pression est forte. Une nette différence est observée entre les  $T_{TU}$  à 120 min des essais réalisés à 1,5 et 1,0 bar (tous deux proches de 75 %) et celui de l'essai à 0,5 bar (seulement 58 %). Les taux de décoloration mesurés à 120 min ne varient pas significativement avec la pression transmembranaire. Ils sont compris entre 7 et 11 %.

Le choix du domaine de pression à explorer est ici plus délicat. En effet, la  $P_{tm}$  a un effet nettement antagoniste sur les performances et l'efficacité de l'opération (taux de clarification). Dans le cadre de l'application envisagée, le facteur limitant au niveau industriel étant la densité de flux de filtrat, le critère performances est privilégié au détriment du critère efficacité. Compte tenu de la forte influence de  $P_{tm}$  sur  $J_f$ , le domaine paramétrique à tester doit être peu étendu à partir de la pression la plus faible possible. En considérant la précision des capteurs (environ  $8 \cdot 10^{-3}$  bar), le niveau bas de pression est choisi à 0,2 bar.

<b>Essai</b>	<b>P<sub>tm</sub></b> (bar)	<b>U</b> (m/s)	<b>MS</b> (g/100 g)	<b>J<sub>f120min</sub></b> (L/(h.m <sup>2</sup> ))	<b>R<sub>t120min</sub></b> (10 <sup>10</sup> .m <sup>-1</sup> )	<b>T<sub>TU120min</sub></b> (%)
<b>164</b>	<b>0,21</b>	<b>4,74</b>	58,7	42	39	66
<b>144</b>	<b>0,29</b>	<b>5,71</b>	59,5	50	40	66
<b>163</b>	<b>0,42</b>	<b>4,03</b>	58,6	30	105	64
<b>142</b>	<b>0,50</b>	<b>5,00</b>	59,1	41	90	66
<b>143</b>	<b>0,50</b>	<b>5,00</b>	59,0	41	91	64
<b>145</b>	<b>0,58</b>	<b>5,97</b>	59,7	52	78	68
<b>162</b>	<b>0,71</b>	<b>4,29</b>	58,0	33	173	64
<b>161</b>	<b>0,79</b>	<b>5,26</b>	58,6	50	122	66

**Tableau II.5 : principaux résultats issus du plan d'expériences uniforme de Døhlert modifié [sucre (lot 7t) / MEMBRALOX 1,4 µm avec circulation de filtrat, 80 °C].**

- *Vitesse tangentielle*

L'étude de l'influence de  $U$  sur les performances et l'efficacité est menée à la meilleure pression (0,5 bar) déterminée précédemment. Un essai supplémentaire à 4 m/s est alors effectué (essais pression réalisés à  $U_{\max}$ ).

En passant de 6 à 4 m/s (à 0,5 bar), la densité de flux de filtrat mesurée à 120 min est divisée par plus de 3. Les taux de clarification semblent être légèrement améliorés à la plus faible vitesse contrairement aux taux de décoloration qui sont peu modifiés dans la gamme testée. Comme précédemment, un domaine de vitesse peu étendue du côté des fortes  $U$  est donc choisi.

Le domaine  $P_{tm}/U$  finalement sélectionné dans ce second cas est :

pour  $P_{tm}$  : niveau bas [-1] 0,2 bar / centre [0] 0,5 bar / niveau haut [+1] 0,8 bar,  
pour  $U$  : niveau bas [-1] 4,0 m/s / centre [0] 5,0 m/s / niveau haut [+1] 6,0 m/s.

#### II-4.3.2 Application d'un plan d'expériences de Dœhlert modifié

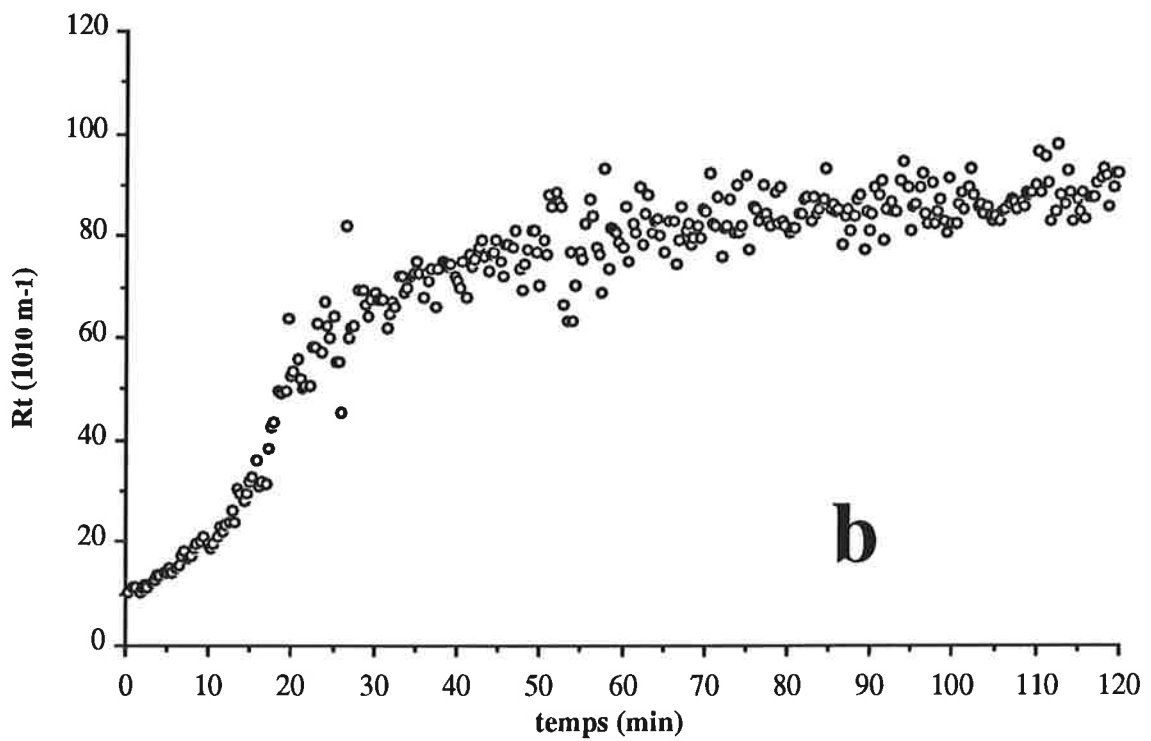
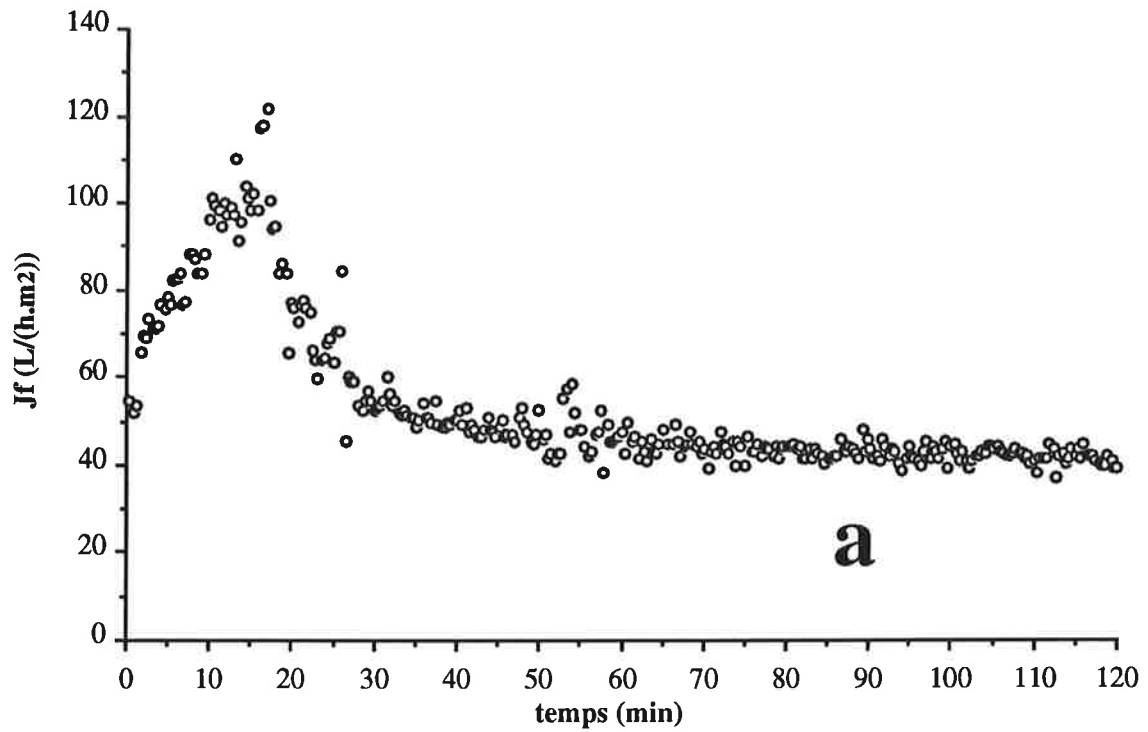
Pour la même raison que précédemment, le lot 7t a dû être traité lors de la réalisation du PEUDM à la place du lot 6t qui a été utilisé pour l'étude préliminaire. Bien que leurs caractéristiques soient assez différentes (cf. **Tableau I.7**), ces deux lots correspondent tous deux à des sucres bruts non-prétraités en usine (ce qui n'est pas le cas pour les lots de cassonade).

Sur le domaine d'étude retenu à la suite des essais préliminaires, 8 filtrations sont effectuées suivant un PEUDM (démarrage lent) sur le pilote ENSIA avec circulation de filtrat. Pour cette validation, nous avons restreint nos observations à l'examen des principaux résultats après 120 min de filtration (**Tableau II.5**).

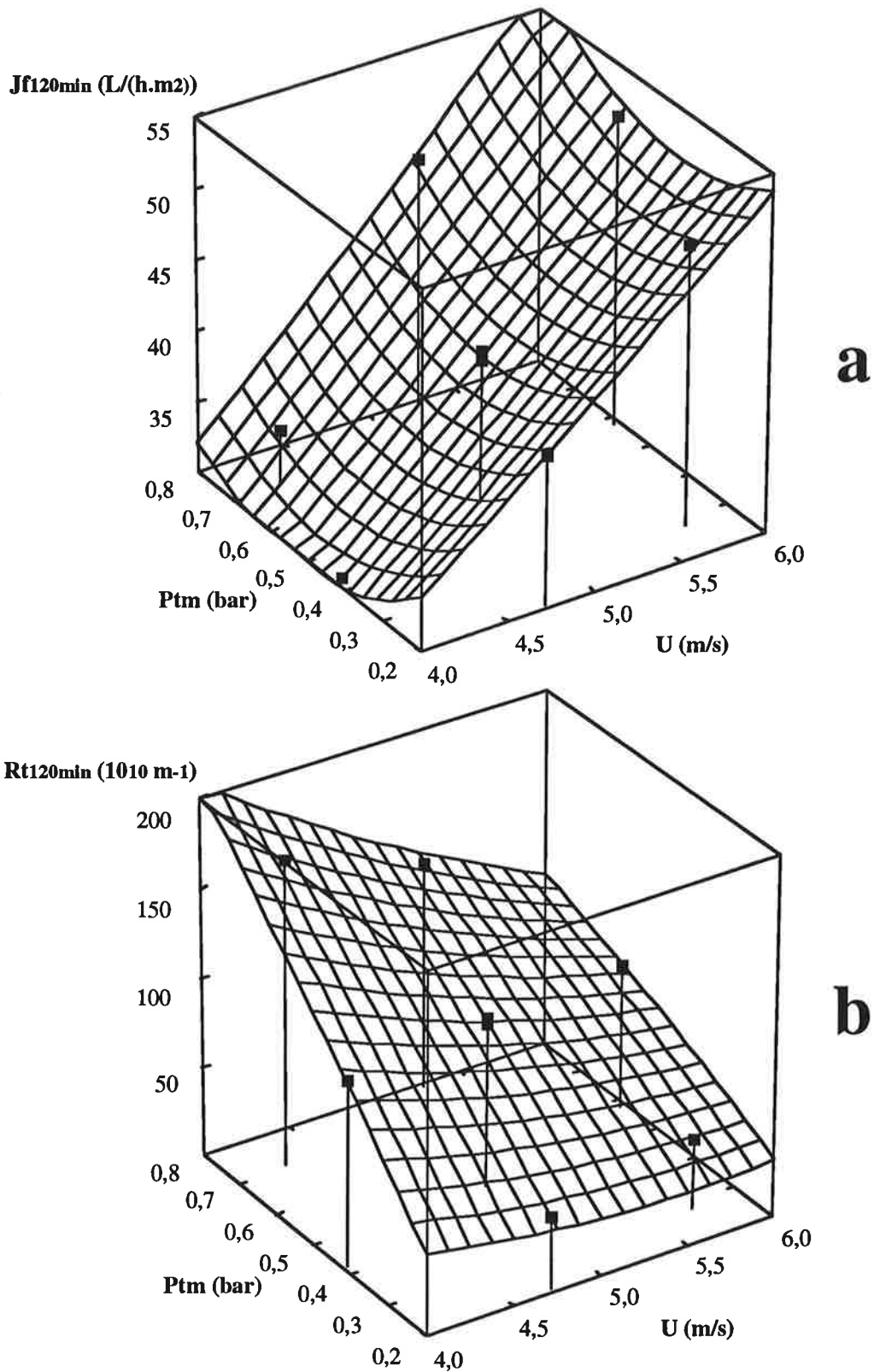
- *Performances*

L'évolution des densités de flux en fonction du temps de filtration est caractéristique des procédures de démarrage lent. L'augmentation progressive de  $P_{tm}$  durant les premières minutes s'accompagne d'un pic de densité de flux suivi d'une diminution plus ou moins marquée suivant les conditions opératoires (**Figures II.15a**). En examinant l'évolution de la résistance hydraulique correspondante, nous constatons que les courbes sont strictement croissantes et que la phase pseudo-stationnaire est atteinte après environ 30 min de filtration (**Figures II.15b**). La résistance mesurée en début de filtration est toujours égale à environ  $10 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$  (écart type =  $2 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ). Cette valeur est très proche de la résistance de la membrane propre ( $R_m = 9 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ).

Les meilleures densités de flux sont obtenues pour les plus fortes vitesses et les plus fortes pressions testées (**Figure II.16a**). L'effet de  $P_{tm}$  sur les densités de flux de filtrat est donc



**Figure II.15 : évolution de la densité de flux de filtrat ( $J_f$ ) et de la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) au cours du temps [sucre (lot 7t) / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$ ; pilote ENSIA avec circulation de filtrat; 0,5 bar; 5 m/s; 80 °C; essai 142].**



**Figure II.16 : influence de la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et de la vitesse tangentielle ( $U$ ) sur la densité de flux de filtrat [a] et la résistance hydraulique totale [b] à 120 min ( $J_{f120min}$  et  $R_{t120min}$ ) [sucre (lot 7t) / MEMBRALOX  $1,4 \mu m$  avec circulation de filtrat;  $80 \text{ }^\circ C$ ].**

Traitement des données	Y (Unités)	Coefficients du polynôme						Coefficient de régression R <sup>2</sup>
		Constante (a <sub>0</sub> )	P <sub>tm</sub> (a <sub>1</sub> )	U (a <sub>2</sub> )	P <sub>tm</sub> <sup>2</sup> (b <sub>1</sub> )	U <sup>2</sup> (b <sub>2</sub> )	P <sub>tm</sub> .U (c)	
MSR	J120min (L.h <sup>-1</sup> .m <sup>-2</sup> )	23,76	-45,59	-2,33	19,78	1,40	4,69	0,998
	Rt120min (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	111,13	627,79 *	-58,22	-40,10	6,70	-79,68	0,994
RLMPPA	J120min (L.h <sup>-1</sup> .m <sup>-2</sup> )	17,61 *	-43,96 *	—	18,95	1,17 **	4,53	0,998
	Rt120min (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	-14,79	569,91 **	—	-63,46	—	-63,49 **	0,990

Modèle quadratique utilisé :  $Y = a_0 + a_1.P_{tm} + a_2.U + b_1.P_{tm}^2 + b_2.U^2 + c.P_{tm}.U + \varepsilon$  avec P<sub>tm</sub> en bar et U en m/s.  
 \*\*, \* : coefficient significatif à P < 1 %, P < 5 % respectivement (test de Student).

**Tableau II.6 : analyses des principaux résultats issus du PEUDM [sucre (lot 7t) / MEMBRALOX 1,4 µm avec circulation de filtrat; 80 °C].**

inversé par rapport au cas précédent. Cependant, l'influence de la pression transmembranaire sur  $J_f$  à 120 min est peu marquée dans le domaine paramétrique testé. L'effet de la vitesse tangentielle  $y$  est prépondérant. Les résistances hydrauliques totales mesurées à 120 min augmentent lorsque la pression s'élève et que la vitesse tangentielle diminue (**Figure II.16b**). Contrairement à  $J_f$ , nous remarquons que l'allure de la surface de réponse est similaire au cas I. L'influence de la vitesse tangentielle sur  $R_t$  est d'autant plus marquée que  $P_{tm}$  est élevée.

Le traitement des données par MSR conduit à des résultats très satisfaisants aussi bien pour  $J_f$  que pour  $R_t$  à 120 min. Contrairement au cas précédent, l'utilisation de la RLMPPA ne simplifie pas significativement les équations des modèles (**Tableau II.6**).

D'après ces résultats, il apparaît que l'optimum de  $P_{tm}$  n'est pas inclus dans le domaine exploré. La gamme de pressions testée (0,2 - 0,8 bar) est donc trop restreinte. Il aurait été préférable d'étendre le domaine paramétrique à des  $P_{tm}$  plus élevées. Les différences entre les résultats obtenus lors de l'étude préliminaire et ceux obtenus lors du PEUDM expliquent ce mauvais choix. Ces différences entre les deux séries d'essais ont vraisemblablement plusieurs origines. D'une part, le pilote utilisé pour les essais préliminaires, n'a pas permis la mesure fine des débits et pressions (rotamètres et manomètres peu précis). Il est donc possible que d'importantes erreurs de mesures aient été commises sur cette installation. D'autre part, les sirops ayant subi une dilution différente sur les deux pilotes lors de la pousse à l'eau (remplissage), la teneur en matière sèche des produits traités durant l'étude préliminaire est plus faible (environ 55 gMS/100g au lieu de 59 gMS/100g pour le PEUDM). Enfin, les deux lots de sucre utilisés présentent des caractéristiques assez éloignées notamment en ce qui concerne la turbidité et la coloration.

#### • *Efficacité*

Compte tenu de la reproductibilité des mesures, les taux de clarification à 120 min ne semblent pas significativement affectés par les conditions opératoires dans la gamme testée. Ils sont en moyenne de 66 % ( $TU_f$  proches de 120 UNT). Cette valeur est équivalente à celles obtenues lors des essais préliminaires à des  $P_{tm}$  et  $U$  comparables. Les taux de décoloration à 120 min ne varient pas non plus en fonction de la pression ou de la vitesse. Dans tous les cas, ils sont inférieurs à 7 % ( $COL_f \leq 1520$  UI). Notons que ces valeurs sont sensiblement plus faibles que celles obtenues lors de l'étude préliminaire.

#### • *Détermination de l'optimum*

La consommation énergétique de l'installation est difficile à estimer dans le cas du système avec circulation de filtrat. En effet, le pilote ENSIA ne comporte pas de débitmètre sur la boucle de circulation de filtrat. Nous choisissons donc de ne pas en tenir compte pour l'optimisation.

Dans ces conditions et compte tenu des faibles variations de l'efficacité, l'optimisation est plus simple que dans le cas précédent. En effet, seules les densités de flux de filtrat peuvent être considérées. Dans la gamme testée, l'optimum correspond donc à des pressions transmembranaires proches de 0,8 bar et à des vitesses tangentielles proches de 6,0 m/s. Dans cette zone pression-vitesse, des densités de flux de filtrat de l'ordre de 60 L/(h.m<sup>2</sup>), des taux de clarification de 66 % et des taux de décoloration inférieurs à 7 % peuvent être prévus lors du traitement de ce type de produit. Comme nous l'avons souligné précédemment, les résultats peuvent être certainement améliorés en augmentant davantage la pression transmembranaire.

Enfin, le produit utilisé lors de cette validation méthodologique (lot 7t) est plus colmatant que les sirops issus de cassonade (lots 3 et 4). En considérant les résultats obtenus lors du traitement des sirops de cassonade sans circulation de filtrat (PECC), il est vraisemblable que le système avec circulation de filtrat permettrait d'atteindre des densités de flux performantes au niveau industriel avec cet autre type de produit. Cette affirmation gagnerait à être vérifiée expérimentalement.

## II-5 CONCLUSION

L'utilisation de plans d'expériences rotatables associés à des techniques de régression linéaire multiple s'avère bien adaptée à l'optimisation des conditions hydrodynamiques en filtration tangentielle. Validée dans deux cas différents, cette approche a permis d'estimer avec une marge de sécurité satisfaisante les conditions optimales de traitement. Parmi les deux variantes de plans d'expériences proposées, le PEUDM offre l'avantage de nécessiter deux essais de moins que le PECC ce qui compense sa moins bonne valeur statistique. Nous avons également montré qu'un traitement des données par régression linéaire multiple pas à pas ascendante permet de simplifier considérablement les équations des modèles.

Comparée aux procédures d'investigation expérimentales plus couramment mises en œuvre lors de telles études de faisabilité, ce type d'approche minimise le nombre d'essais pilote nécessaires en garantissant une optimisation fiable (de 10 à 14 essais pour l'approche PECC et de 8 à 12 essais pour l'approche PEUDM). De plus, ces méthodes permettent aisément d'intégrer en simultanée les divers critères d'optimisation de la filtration tangentielle (performances, efficacité et éventuellement consommation énergétique). Il est cependant nécessaire d'apporter beaucoup d'attention au choix du domaine paramétrique à explorer. Une méthode simple spécifique à la filtration tangentielle a été proposée afin de faciliter ce choix.

Pour s'assurer de l'intérêt de cette méthode, il serait néanmoins intéressant d'appréhender la robustesse de ce type d'approche sur des installations industrielles moins instrumentées que les pilotes utilisés pour cette étude. Il pourrait être envisagé par exemple, de bruiteur artificiellement les résultats expérimentaux et d'examiner l'effet de ce bruitage sur la validité de la zone optimale de fonctionnement.



L'outil proposé dans cette première partie présente néanmoins certaines limites :

- Les modèles ne permettent de prévoir les résultats qu'à un temps de référence (ou éventuellement à un volume filtré de référence). Lorsque le colmatage membranaire, qui conditionne aussi bien les performances que l'efficacité, se stabilise après un certain temps de filtration, une telle représentation est suffisante. Par contre, lorsque le colmatage membranaire ne parvient pas à un véritable état d'équilibre (état de semi-équilibre dit état pseudo-stationnaire), ces modèles ne sont pas parfaitement satisfaisants. Ce second type de comportement est souvent rencontré en microfiltration tangentielle. Dans ce cas, le modèle utilisé devrait être capable d'intégrer la variation des résultats dans le temps pour, par exemple, permettre d'optimiser la durée maximale de fonctionnement entre deux nettoyages.
- Cette approche ne peut être appliquée qu'à des essais effectués suivant des procédures expérimentales rigoureusement identiques. Il serait notamment hasardeux de comparer à l'aide de ces modèles des essais n'ayant pas subi la même histoire pression-vitesse (procédures de démarrage différentes par exemple). Cette méthode n'est donc pas adaptée pour l'étude de filtrations réalisées à conditions variables dans le temps.
- Enfin, de tels modèles ne sont pas adaptés pour simuler l'influence d'une variation de conditions opératoires ou pour définir une stratégie de commande.

L'élaboration de modèles capables de représenter le comportement dynamique du colmatage membranaire au cours du temps apparaît donc indispensable pour permettre une meilleure optimisation du procédé de filtration tangentielle.

<p><b>- CHAPITRE III -</b>  <b>MODELISATION PAR</b>  <b>RESEAUX DE NEURONES</b></p>
---

**III-1 LES MODELES CONNECTIONNISTES .....50**

III-1.1 Le perceptron multicouches.....	51
III-1.1.1 Le neurone .....	51
• Calcul de la stimulation totale.....	51
• Calcul de l'activation .....	51
III-1.1.2 Organisation en réseau.....	52
III-1.1.3 Principe d'utilisation.....	52
III-1.2 Mise en œuvre.....	53
III-1.2.1 Choix de la structure du réseau.....	53
• Couches d'entrée et de sortie .....	53
• Couches cachées.....	54
III-1.2.2 Choix des bases de données.....	55
III-1.2.3 Choix des paramètres de calcul.....	56
• Nombre d'itérations.....	56
• Valeurs initiales des poids .....	56
• Paramètres spécifiques à l'algorithme d'apprentissage utilisé.....	57
III-1.2.4 Choix des critères de validité d'un réseau .....	57
III-1.3 Techniques d'apprentissage .....	57
III-1.3.1 Algorithme de rétropropagation du gradient de l'erreur.....	58
III-1.3.2 Développement d'un algorithme d'apprentissage sans calcul de dérivées....	60
• Principe de base.....	60
• Implémentation .....	62
III-1.3.3 Comparaison avec la rétropropagation .....	63
• Bases de données traitées .....	63
• Performances des algorithmes .....	64
• Problème de minima locaux .....	65
• Facilité d'utilisation .....	66
III-1.3.4 Bilan .....	67

**III-2 MODELISATION DYNAMIQUE DE LA FILTRATION TANGENTIELLE 68**

III-2.1 Filtrations à conditions opératoires constantes au cours du temps.....	68
III-2.1.1 Recherche d'une structure de réseau adaptée.....	69
• Définition des entrées et sorties.....	69
• Choix de la structure cachée .....	69
• Validation du modèle.....	72
III-2.1.2 Influence de la répartition des bases de données.....	74
• Cinq essais en apprentissage .....	74
• Diminution de la quantité de données en apprentissage .....	75
• Augmentation de la quantité de données en apprentissage.....	78
III-2.2 Filtrations à conditions opératoires variables au cours du temps.....	78
III-2.2.1 Variation de P <sub>tm</sub> /U au démarrage.....	79
• Base de données .....	79
• Vérification de la nécessité d'un apprentissage en conditions variables .....	80
• Apprentissage en conditions variables.....	80
• Bilan.....	82

III-2.2.2 Echelon P <sub>tm</sub> /U en cours de filtration.....	83
• Base de données.....	83
• Gomme/MEMBRALOX, sans circulation de filtrat, 70 °C, démarrage brusque .....	84
• Sucre/MEMBRALOX, avec circulation de filtrat, 80 °C, démarrage lent ....	84
• Sucre/membrane ultrafiltration, sans circulation de filtrat, 80 °C, démarrage brusque .....	87
III-2.3 Validation des réseaux avec entrée implicite du temps .....	87
III-2.3.1 Mise en œuvre .....	88
III-2.3.2 Résultats.....	88
<b>III-3 CONCLUSION .....</b>	<b>93</b>
III-3.1 Filtrations à conditions constantes.....	93
III-3.2 Filtrations à conditions variables .....	94
III-3.2.1 Réseaux avec entrée explicite du temps.....	94
III-3.2.2 Réseaux avec entrée implicite du temps.....	95

Le comportement dynamique du colmatage ainsi que les effets des conditions hydrodynamiques sur celui-ci ne sont pas linéaires. Dans la plupart des cas, les modèles de représentation dynamiques classiques sont donc difficilement utilisables [VAN BOXTEL 1991]. Face à cette problématique, l'utilisation des modèles connexionnistes ou réseaux de neurones se présente comme une des alternatives envisageables. En effet, compte tenu de leurs caractéristiques, ces modèles de représentation devraient permettre d'intégrer les non-linéarités des phénomènes mis en jeu lors du colmatage membranaire [BILLINGS *et al.* 1992].

Après une sommaire description de ce type de modèles et quelques mises au point méthodologiques, nous proposons un nouvel algorithme d'apprentissage pour les perceptrons multicouches. Enfin, nous présentons une première approche visant à vérifier l'intérêt des réseaux de neurones pour la modélisation et éventuellement l'optimisation du procédé de filtration tangentielle.

### III-1 LES MODELES CONNECTIONNISTES

Issus de premières études réalisées dans les années 40 [HEBB 1949, McCULLOCH et PITTS 1943], les réseaux de neurones désignent un vaste ensemble de modèles de représentation (boîte noire) qui sont regroupés sous le terme de modèles connexionnistes. La conception initiale de ces modèles s'inspire de l'organisation cellulaire du cerveau. Ils sont ainsi constitués d'un certain nombre d'unités de calcul élémentaires, représentant les neurones, qui échangent des informations par l'intermédiaire de connexions, représentant les dendrites et synapses. Le neuromimétisme de ces modèles justifie leur classification dans les méthodes dites d'intelligence artificielle. Loin de simuler le fonctionnement du cerveau humain, les réseaux neuronaux permettent néanmoins de modéliser quasiment n'importe quel phénomène même s'il comporte plusieurs non-linéarités.

Parmi les nombreux types de réseaux neuronaux développés jusqu'à présent [ANTSAKLIS 1990, BISHOP 1994, BOCHEREAU 1991, BOURRET *et al.* 1991, CARREL-BILLIARD 1992, KOHONEN 1988, LIPPMANN 1987, MASSON 1992, WIDROW et LEHR 1990], le perceptron multicouches qui dérive des travaux de ROSENBLATT [1958], correspond à l'heure actuelle, au plus grand nombre d'applications (classification, diagnostique, traitement de signal, approximation de fonction, compression de données, reconnaissance de formes, etc...). Dans le domaine de la modélisation dynamique et du contrôle de procédés, le perceptron multicouches a déjà été utilisé avec succès en fermentation [ACUNA *et al.* 1993, LINKO et ZHU 1992, OISHI *et al.* 1992, ZALDIVAR *et al.* 1992], en séchage [HUANG et MUJUMDAR 1993, ROCHA MIER 1993] et divers autres procédés [BHAT *et al.* 1990, DIRION *et al.* 1993, GRONDIN *et al.* 1993, LIAO et CHEN 1994]. Ce type de réseau semble bien adapté à notre cas précis et nous nous restreindrons donc à l'étude de celui-ci.

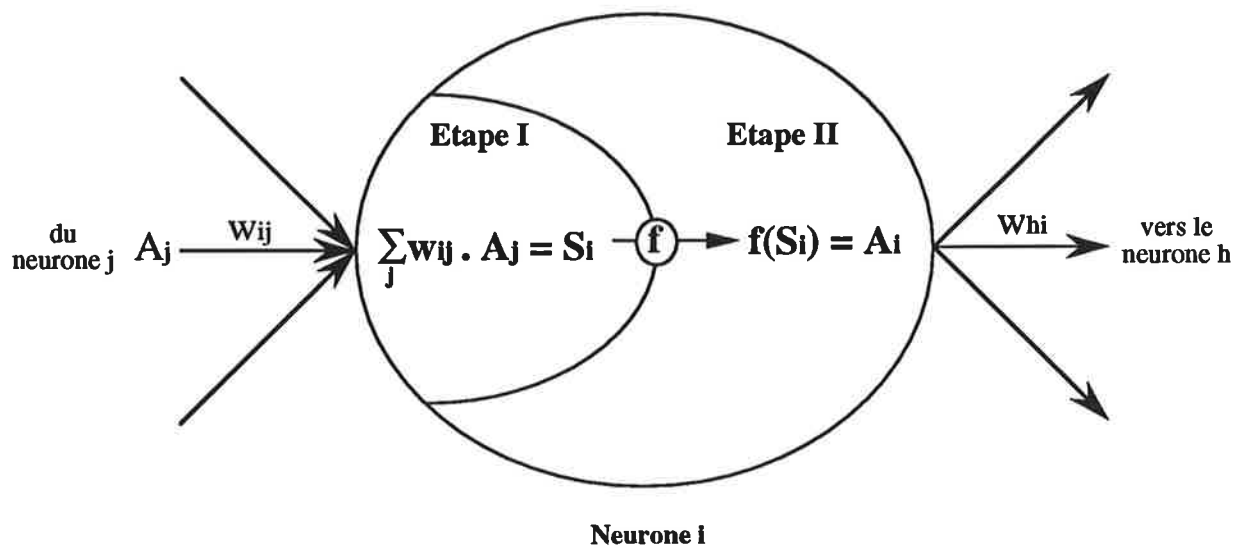


Figure III.1 : schéma du principe de calcul d'un neurone.

Après une description de principe du perceptron multicouches, nous aborderons la méthodologie de sa mise en œuvre.

### III-1.1 Le perceptron multicouches

#### III-1.1.1 Le neurone

Le neurone représente l'unité de calcul fondamentale dont l'association constitue le réseau neuronal. Schématisé sur la **Figure III.1**, son principe de calcul se décompose en deux étapes successives :

- *Calcul de la stimulation totale*

Les activations ( $A_j$ ) provenant des cellules précédentes sont multipliées individuellement par un coefficient propre. Ces coefficients sont appelés coefficients synaptiques ou poids (notés  $w$  comme weight). Leurs valeurs déterminent l'influence de chacune des cellules précédentes sur la cellule en question. Soit  $w_{ij}$  le coefficient synaptique caractéristique de la connection entre le neurone  $i$  (récepteur) et le neurone  $j$  (émetteur) : si  $w_{ij}$  est positif, le neurone  $j$  a un effet excitatif sur le neurone  $i$ ; si  $w_{ij}$  est négatif, le neurone  $j$  a un effet inhibiteur sur le neurone  $i$ ; si  $w_{ij}$  est nul, le neurone  $j$  n'a pas d'effet sur le neurone  $i$ . La somme de toutes les activations pondérées est ensuite calculée pour donner la stimulation totale du neurone  $i$ , soit  $S_i$  (16).

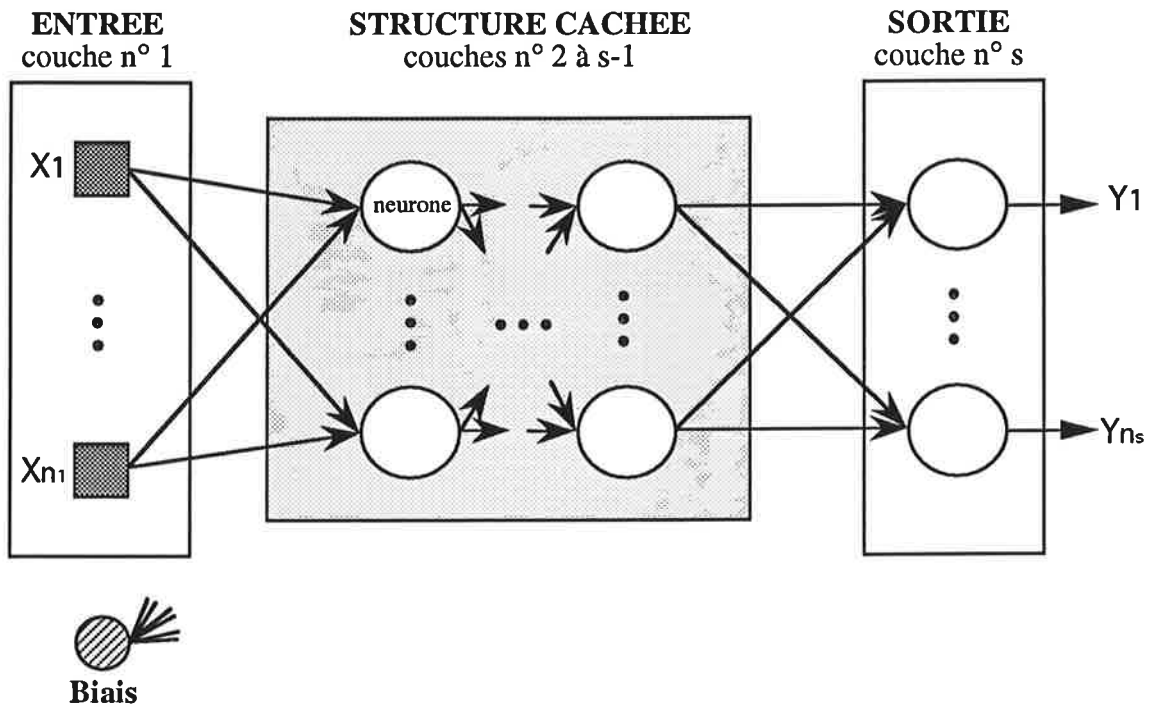
$$S_i = \sum_j w_{ij} \cdot A_j \quad (16)$$

- *Calcul de l'activation*

A partir de la stimulation totale du neurone  $i$  ( $S_i$ ) et par l'intermédiaire d'une fonction d'activation  $f$ , le neurone calcule alors sa propre activation  $A_i$ , telle que  $A_i = f(S_i)$ . La fonction d'activation  $f$  peut être assimilée à une fonction de transfert et conditionne les performances du modèle. Parmi les nombreuses variantes possibles, les fonctions d'activation les plus couramment mises en œuvre sont non-linéaires strictement croissantes et bornées. Notons que certains auteurs préconisent également des fonctions d'activation non-monotones [BERSINI 1993].

Pour notre étude, un automate continu à fonction d'activation sigmoïde est utilisé (17). Cette fonction a été choisie car elle est continûment dérivable, condition sine qua non à l'utilisation ultérieure de l'algorithme de rétropropagation du gradient de l'erreur. De plus, l'expression de  $dA_i/dS_i$  présente l'avantage d'être très simple par rapport à  $A_i$  (18).

$$A_i = f(S_i) = \frac{1}{1 + e^{-S_i}} \quad (17)$$



**Figure III.2 : représentation schématique de l'organisation d'un perceptron multicouches.**

$$\frac{dA_i}{dS_i} = A_i \cdot (1 - A_i) \quad (18)$$

Afin de permettre au réseau de représenter notamment des phénomènes de type seuil, des neurones dont l'activation est constamment maintenue maximale (égale à 1 dans notre cas) sont systématiquement définis. Ces neurones particuliers sont dits neurones de polarisation ou biais. Dans tous les cas exposés par la suite, un biais sera relié à chacun des neurones des couches cachées et de la couche de sortie.

### III-1.1.2 Organisation en réseau

Un perceptron multicouches est un ensemble de neurones organisés en couches successives présentant entre elles des connections orientées non-récurrentes, qui mettent en relation des paramètres d'entrée avec des paramètres de sortie (**Figure III.2**). Dans le cas de la modélisation d'un phénomène, les paramètres de sortie correspondent aux réponses que l'on cherche à modéliser et les paramètres d'entrée correspondent aux paramètres susceptibles d'influencer les réponses.

La structure d'un perceptron est donc définie par :

- sa couche d'entrée : nature et nombre des paramètres d'entrée,
- sa couche de sortie : nature et nombre des paramètres de sortie,
- l'organisation de ses couches intermédiaires (ou couches cachées), soit le nombre de couches cachées et le nombre de neurones dans chaque couche cachée.

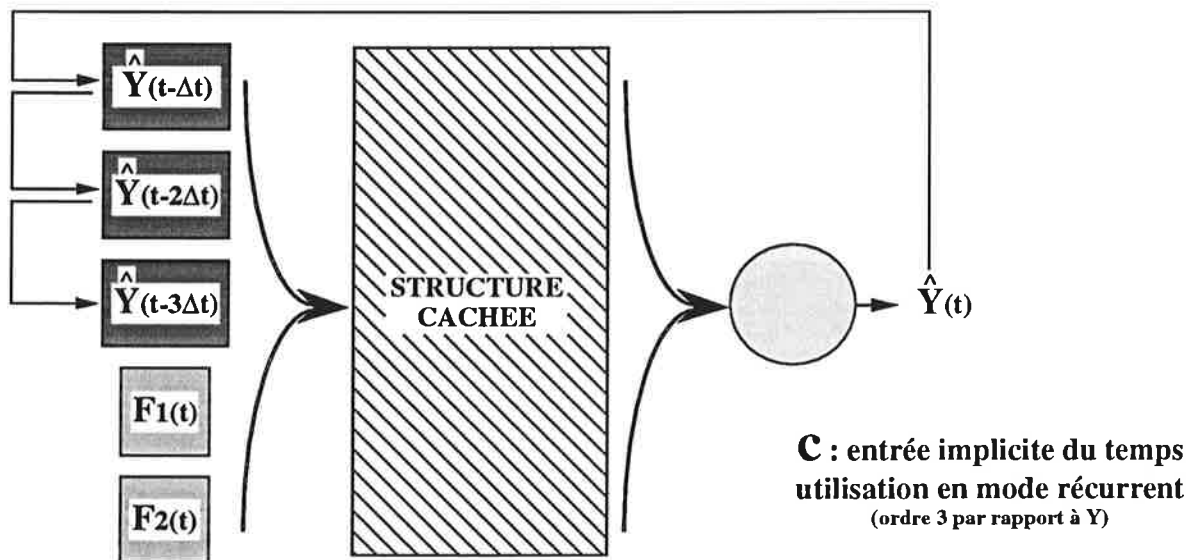
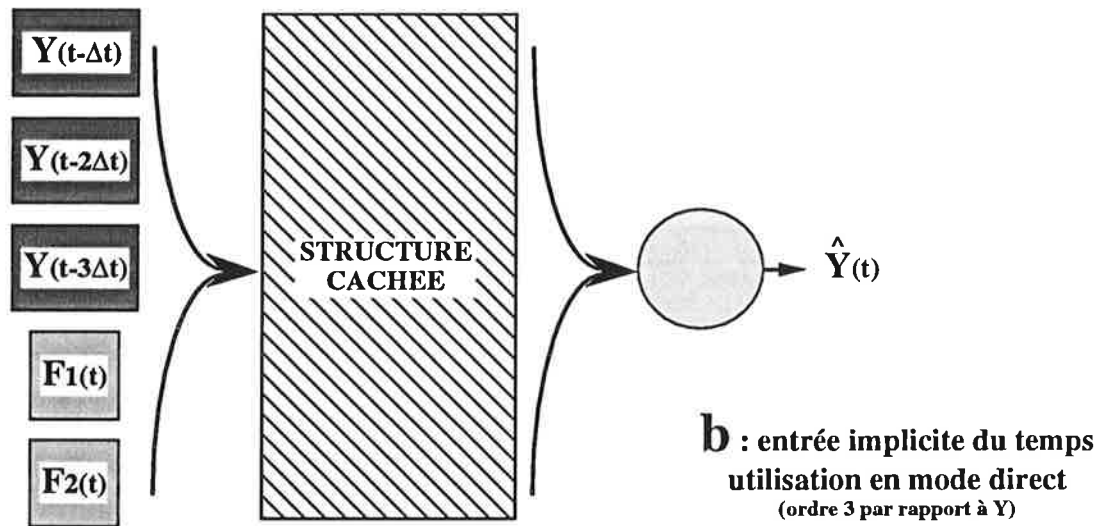
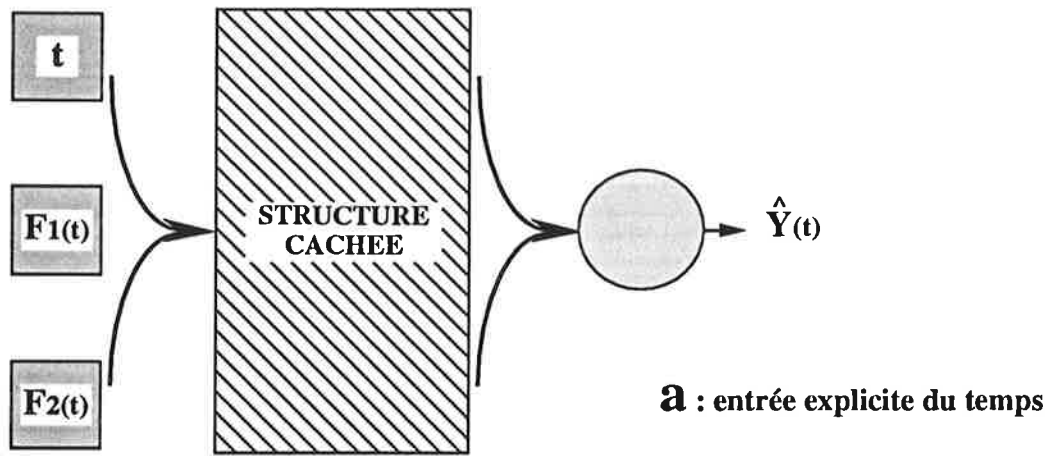
### III-1.1.3 Principe d'utilisation

Après avoir défini la structure du perceptron multicouches, il convient de déterminer la combinaison des coefficients synaptiques qui permet au modèle ainsi constitué de représenter au mieux l'effet des entrées sur les sorties. Il s'agit donc d'identifier les poids de toutes les connections du réseau neuronal qui sont en fait les paramètres du modèle.

Lorsque les réseaux de neurones sont utilisés pour faire de la modélisation (approximation de fonction), l'identification des poids du réseau fait intervenir obligatoirement deux phases successives [BISHOP 1994, BOCHEREAU 1991].

A partir d'une première série de données (constituée de n jeux d'entrées et de sorties expérimentales) constituant la base d'apprentissage, la première phase consiste à identifier les poids par une technique dite d'apprentissage. Différents algorithmes peuvent être utilisés lors de cette première étape. Le plus couramment utilisé est l'algorithme dit de rétropropagation du gradient de l'erreur dont le principe sera exposé plus loin.





**Figure III.3** : représentation schématique des différentes possibilités pour introduire le temps dans un réseau de neurones.

(exemple à 2 facteurs F1 et F2)

$Y$  = réponse expérimentale

$\hat{Y}$  = réponse calculée

Une deuxième série de données constituant la base dite de test est alors présentée au réseau. Cette seconde étape permet de vérifier la capacité de généralisation du modèle à des situations qu'il n'a pas apprises. Nous verrons que cette procédure permet d'éviter le phénomène de sur-apprentissage.

### III-1.2 Mise en œuvre

La mise en œuvre des réseaux de neurones impose un certain nombre de choix que nous développons ci-dessous.

#### III-1.2.1 Choix de la structure du réseau

Le choix de la structure du réseau est déterminante car elle conditionne la capacité du modèle à représenter le phénomène étudié.

- *Couches d'entrée et de sortie*

La couche de sortie contient les résultats à modéliser. La couche d'entrée doit quant à elle contenir tous les paramètres qui sont susceptibles d'influencer les résultats. Les entrées seront ainsi constituées par des conditions opératoires, des caractéristiques physico-chimiques du produit traité, etc... Il est bien évident que seuls les paramètres qui varient sur la base de données dont on dispose doivent être pris en compte.

Dans le cas de la représentation dynamique d'un phénomène, plusieurs possibilités sont envisageables pour introduire dans le réseau la notion de temps. La première possibilité consiste à considérer le temps comme une entrée explicite (**Figure III.3a**). Cette première option est la plus simple à mettre en œuvre et a déjà fait ses preuves en modélisation [ACUNA *et al.* 1993, LATRILLE *et al.* 1992]. Nous parlerons alors de réseaux de neurones avec entrée explicite du temps. L'autre possibilité consiste à introduire implicitement le temps dans le réseau. Les résultats obtenus à  $t-\Delta t$ ,  $t-2\Delta t$ , etc... sont utilisés en entrée pour calculer les résultats au temps  $t$  (modèle d'ordre 1, 2, etc...). Dans ce cas, nous parlerons de réseaux de neurones avec entrée implicite du temps. Notons que cette option nécessite obligatoirement un échantillonnage à intervalle de temps constant ( $\Delta t$ ) et que la structure du réseau est considérablement compliquée (multiplication du nombre d'entrées). Avec une telle configuration, il est envisageable de procéder à un apprentissage en mode direct (pour chaque temps  $t$ , les réponses expérimentales au temps  $t-\Delta t$ ,  $t-2\Delta t$ , etc... sont utilisées en entrée de réseau pour calculer la réponse au temps  $t$  : **Figure III.3b**) ou en mode récurrent (les réponses calculées au temps  $t-\Delta t$ ,  $t-2\Delta t$ , etc... sont réinjectées en entrée de réseau pour calculer la réponse au temps  $t$  : **Figure III.3c**) [BOCHEREAU 1991, DIRION *et al.* 1993, GRONDIN *et al.* 1993, SAINT-DONAS *et al.* 1991].

Compte tenu de la fonction d'activation choisie, il est nécessaire de conditionner toutes les données expérimentales (entrées et sorties) avant les calculs. Ce conditionnement appelé standardisation a pour but d'échelonner les données dans une gamme comprise entre 0 et 1 (entrées et sorties sont définies comme des activations pour le réseau) et de ramener leur moyenne à 0,5 pour avoir une dispersion optimale autour de l'activation moyenne. Dans la pratique, on préfère standardiser les données entre 0,05 et 0,95 afin de limiter les effets de bords (19).

$$\tilde{X}_i = 0,5 + 0,45 \frac{(X_i - \bar{X})}{\text{Max}_i(|X_i - \bar{X}|)} \quad (19)$$

avec  $X_i = i^{\text{ème}}$  valeur brute,  
 $\tilde{X}_i = i^{\text{ème}}$  valeur standardisée,  
 $\bar{X} =$  valeur moyenne sur l'ensemble de la base de données.

#### • Couches cachées

La détermination de la structure cachée est vraisemblablement une des étapes les plus délicates de l'utilisation des réseaux neuronaux. Elle fait le plus souvent appel à une approche très empirique qui consiste à tester successivement un nombre limité de structures et à vérifier la valeur des modèles ainsi constitués [BISHOP 1994]. A la suite de cette étude prospective, la structure qui donne les meilleurs résultats est conservée. Lors de la recherche de la structure cachée, il existe néanmoins une contrainte à respecter : le nombre de poids du réseau  $N_w$  (20) doit être au plus égal au tiers (voire pour certains auteurs au dixième) du nombre total de jeux de données présentés en apprentissage. Si cette condition n'est pas vérifiée, le nombre de paramètres du modèle à identifier devient trop important par rapport à l'information disponible.

$$N_w = \sum_{i=2}^s n_i \cdot (1 + n_{i-1}) \quad (20)$$

avec  $N_w =$  nombre total de poids du réseau (connections intercouches et biais),  
 $n_i =$  nombre de neurones de la  $i^{\text{ème}}$  couche du réseau,  
 $s =$  nombre total de couches du réseau.

Afin de codifier les diverses structures cachées des réseaux, nous adopterons par la suite la notation suivante :

RNx = réseau à une seule couche cachée comportant x neurones,

RNx/y = réseau à deux couches cachées comportant x et y neurones respectivement dans la première et la seconde couche cachée.

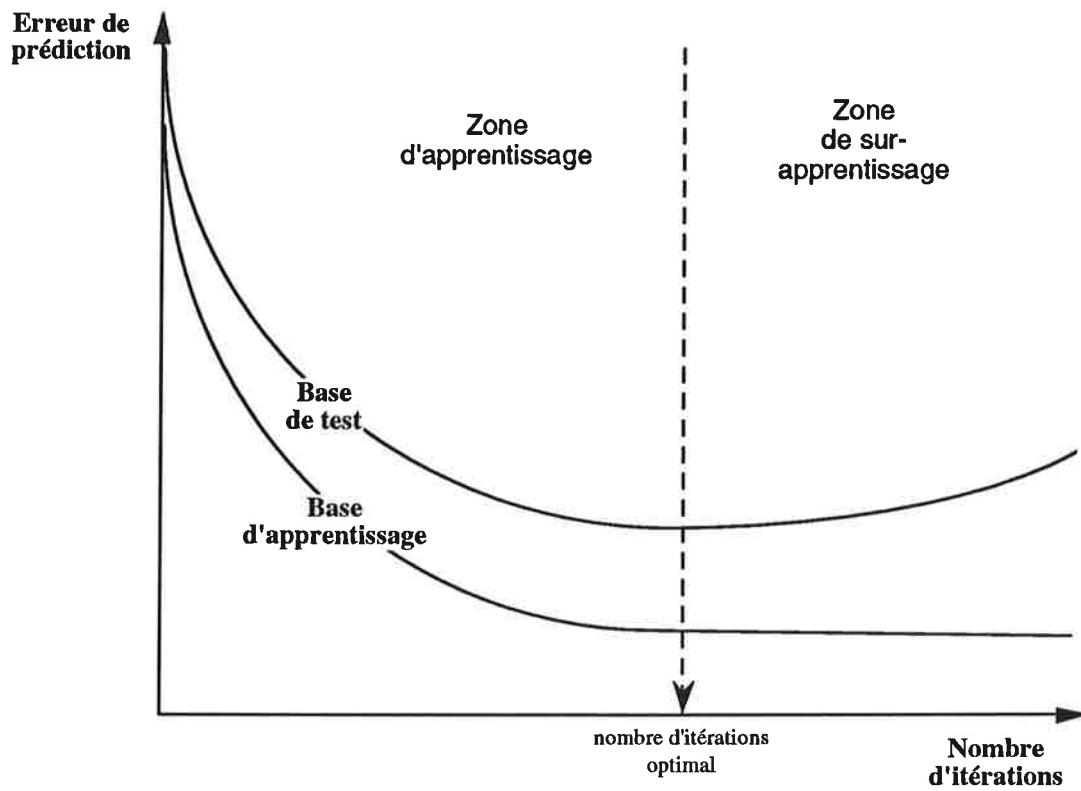
Bien que la recherche de la structure du réseau fasse finalement surtout appel à l'expérience de l'utilisateur, une des méthodes possibles est la suivante : à partir d'une structure minimale (pas de couche cachée), la structure est progressivement compliquée jusqu'à obtenir une bonne adéquation du modèle avec les données expérimentales. Dans la plupart des cas, il existe une complexité optimale au delà de laquelle la validité du modèle semble diminuer. Ce phénomène parfois appelé surparamétrisation, est probablement lié à la multiplication des minima locaux qui rend de plus en plus difficile l'approche du minimum global.

Pour terminer, nous noterons que l'intérêt des réseaux comportant plus d'une couche cachée est controversée. En effet, FUNAHASHI a mathématiquement démontré que toute fonction continue sur un intervalle fini peut être approximée par un réseau de neurones à une seule couche cachée constituée d'un nombre fini de neurones à fonction d'activation non-linéaire identique [FUNAHASHI 1989]. En théorie, les réseaux à structure cachée monocouche seraient donc capables de modéliser n'importe quel phénomène continu. Notons cependant qu'aucune validation expérimentale de ce théorème n'a été réellement effectuée jusqu'ici.

### III-1.2.2 Choix des bases de données

Il est évident que le choix des bases de données utilisées pour les phases d'apprentissage et de test est fondamental et ne doit pas être fait au hasard. La base d'apprentissage doit être la plus représentative possible des résultats expérimentaux. Il est ainsi préférable qu'elle contienne des données traduisant les effets principaux de chacun des paramètres ainsi que leurs interactions, qu'elle ne favorise aucun des paramètres par rapport aux autres et qu'elle contienne des essais aussi bien en périphérie qu'au centre du domaine paramétrique exploré. La base de test doit être quant à elle significativement différente de la base d'apprentissage et doit contenir des jeux de données suffisamment éloignés les uns des autres. Enfin, sur l'ensemble des jeux de données, environ 2/3 doivent être utilisés pour la base d'apprentissage et au moins 1/3 doivent être réservés pour la base de test (ratio apprentissage/test au plus égal à 2). Cette répartition est impérative pour assurer la validité de l'étude [BOCHEREAU 1991].

Comme nous le précisons dans le paragraphe suivant, la base de test intervient directement sur l'apprentissage. Ainsi, l'utilisation d'une troisième base de données, dite base de validation, peut être envisagée en supplément pour confirmer la capacité prédictive du modèle. L'utilisation de cette base, totalement indépendante de l'apprentissage, se justifie surtout lorsque la complexité du phénomène à représenter est très importante. Dans notre cas particulier, nous n'avons pas choisi de considérer de base de validation.



**Figure III.4 : influence du nombre d'itérations sur l'évolution de l'erreur de prédiction effectuée par un réseau de neurones pour les bases d'apprentissage et de test.**

### III-1.2.3 Choix des paramètres de calcul

Pour effectuer les calculs, un certain nombre de paramètres doivent être définis.

- *Nombre d'itérations*

Comme nous le verrons par la suite, les algorithmes utilisés pour l'identification des poids du réseau procèdent par itérations successives. Sur la base d'apprentissage, plus le nombre d'itérations augmente, plus l'erreur de prédiction sur cette même base diminue. Après chaque itération, en présentant au réseau la base de test, on constate par contre que l'erreur de prédiction diminue tout d'abord, passe par un minimum pour augmenter ensuite (**Figure III.4**). A partir d'un certain nombre d'itérations, le réseau finit par intégrer les imperfections de la base d'apprentissage (bruit de fond, points aberrants, erreurs expérimentales, etc...); c'est le "sur-apprentissage" ou "parcœurisation". Sa capacité de généralisation à d'autres jeux de données (base de test) est alors fortement affectée et la valeur du modèle remise en cause. Ainsi, le nombre d'itérations optimal correspond à celui qui permet d'obtenir l'erreur minimale sur la base de test et non pas sur la base d'apprentissage. En pratique, la procédure utilisée est la suivante : toutes les  $\Delta$  itérations, l'apprentissage est stoppé et les valeurs des poids obtenus stockées. Le réseau est ensuite testé sur la base de test. L'erreur de prédiction sur cette même base est alors enregistrée. Si cette erreur augmente à la suite de plusieurs séries successives de  $\Delta$  itérations, les calculs sont stoppés. Les valeurs des poids finalement conservées sont celles correspondant à la dernière étape avant augmentation de l'erreur sur la base de test. La valeur de  $\Delta$  n'influence en rien l'apprentissage. Plus sa valeur est élevée, moins les calculs sont ralentis mais plus la détermination du nombre d'itérations optimal est imprécise.

- *Valeurs initiales des poids*

Avant les calculs, tous les poids du réseau doivent être initialisés. Ces valeurs initiales conditionnent la rapidité de la convergence. Elles peuvent également avoir d'importantes répercussions sur les résultats en cas de minima locaux. Deux cas de figure peuvent se présenter. Si l'utilisateur ne dispose d'aucune information a priori, les poids sont le plus souvent initialisés au hasard dans un intervalle  $[-w; +w]$  centré sur zéro. Cet intervalle doit être suffisamment étendu pour assurer une bonne dispersion des poids initiaux. Cependant des problèmes de convergence peuvent se poser si l'intervalle de tirage des poids est trop grand. Les intervalles  $[-0,5; +0,5]$  ou  $[-1; +1]$  sont en général préconisés pour le tirage aléatoire des poids [LINKO et ZHU 1992]. Il est nécessaire de procéder à plusieurs initialisations aléatoires différentes afin de limiter au mieux les problèmes de minima locaux. Si l'utilisateur possède un acquis, des valeurs de poids déterminés précédemment peuvent être réutilisées pour l'initialisation d'un nouveau calcul.

• *Paramètres spécifiques à l'algorithme d'apprentissage utilisé*

En fonction de l'algorithme choisi, il est parfois indispensable de fixer certains paramètres spécifiques. Par exemple, pour l'algorithme de rétropropagation du gradient de l'erreur, il s'agit du pas d'apprentissage et du moment comme nous le préciserons par la suite (§ III-1.3.1).

#### III-1.2.4 Choix des critères de validité d'un réseau

Afin de rendre compte de l'écart des valeurs prédites par rapport aux valeurs expérimentales, nous avons choisi d'utiliser trois critères. L'erreur quadratique moyenne  $\bar{E}$  (21) estime directement l'écart type de l'erreur effectuée par le modèle. Le coefficient de variation  $\gamma$  (22) permet d'exprimer l'erreur quadratique en pourcentage de la valeur moyenne. Le coefficient de détermination  $R^2$  (23) estime la quantité d'informations expliquées par rapport à l'information totale. Notons que  $R^2$  peut être comparé au coefficient de régression déjà défini pour les modèles linéaires.

$$\bar{E} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\hat{X}_i - X_i)^2}{n-1}} \quad (21)$$

$$\gamma = \frac{\bar{E}}{\bar{X}} \cdot 100 \quad (22)$$

$$R^2 = \left( 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (\hat{X}_i - X_i)^2}{\sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})^2} \right) \cdot 100 \quad (23)$$

avec sur la base considérée:

$n$  = nombre de valeurs expérimentales,

$X_i$  =  $i^{\text{ème}}$  valeur expérimentale,

$\hat{X}_i$  =  $i^{\text{ème}}$  valeur calculée,

$\bar{X}$  = valeur expérimentale moyenne.

### III-1.3 Techniques d'apprentissage

Comme nous l'avons déjà mentionné, l'identification des poids d'un réseau de neurones est effectuée à l'aide d'algorithmes dits d'apprentissage. Dans cette partie, nous rappelons tout d'abord le principe de l'algorithme le plus couramment mis en œuvre. Un nouvel algorithme, développé au cours de cette étude, est ensuite proposé et son intérêt vérifié.

<b>Symboles</b>	<b>Indices</b>
A = activation	h = relatif au neurone h suivant le neurone i
E = fonction coût pour le jeu de données n	i = relatif au neurone i
Et = fonction coût total	j = relatif au neurone j précédant le neurone i
S = stimulation totale	s = relatif au neurones de sortie
w = coefficient synaptique (poids)	ij = relatif à la connection arrivant sur le neurone i (récepteur) et provenant du neurone précédent j (émetteur)
Y = valeurs expérimentales	hi = relatif à la connection arrivant sur le neurone h (récepteur) et provenant du neurone i précédent (émetteur)

**Tableau III.1 : notation utilisée pour la description de l'algorithme de rétropropagation du gradient de l'erreur.**



### III-1.3.1 Algorithme de rétropropagation du gradient de l'erreur

Cet algorithme d'apprentissage est actuellement le plus largement utilisé. Notons que les perceptrons multicouches sont souvent appelés réseaux de neurones à rétropropagation pour cette raison. Développé dans les années 80 [LE CUN 1986, RUMELHART et ZIPSNER 1985], son principe est le suivant (cf. **Tableau III.1** pour la notation) :

Une fonction coût notée  $E_t$  est tout d'abord définie.  $E_t$  quantifie l'erreur totale entre les valeurs expérimentales présentées et les valeurs calculées par le réseau. Pour un jeu de  $n$  entrées/sorties,  $E_t$  s'écrit :

$$E_t = \sum_n E(n) \quad (24)$$

avec  $E(n)$ , fonction coût calculée pour le  $n^{\text{ième}}$  jeu de données, soit :

$$E(n) = \frac{1}{2} \cdot \sum_i (A_{is(n)} - Y_{is(n)})^2 \quad (25)$$

Afin de minimiser la fonction coût  $E_t$  définie ci-dessus, une technique classique de gradient à pas déterminé est utilisée. Elle consiste à modifier pas à pas tous les coefficients synaptiques  $w_{ij}$  suivant la règle générale :

$$w_{ij(p+1)} - w_{ij(p)} = \Delta w_{ij(p+1)} = -\delta \cdot \frac{\partial E_t}{\partial w_{ij(p+1)}} + \mu \cdot \Delta w_{ij(p)} \quad (26)$$

avec  $\delta$  = pas de calcul ou pas d'apprentissage (constant),

$\mu$  = moment (constant),

$(p)$  : à l'itération  $p$ ,

$(p+1)$  : à l'itération  $p+1$ .

Pour chacun des poids  $w_{ij}$  du réseau, on a :

$$\frac{\partial E_t}{\partial w_{ij}} = \sum_n \frac{\partial E(n)}{\partial w_{ij}} \quad (27)$$

Il suffit donc de calculer pour chacun des  $n$  jeux de données et pour chaque poids les valeurs des  $\frac{\partial E(n)}{\partial w_{ij}}$  afin d'obtenir  $\frac{\partial E_t}{\partial w_{ij}}$ . Pour simplifier, nous abandonnerons par la suite l'indice  $(n)$ .

Afin de calculer les  $\frac{\partial E_t}{\partial w_{ij}}$ , l'algorithme de rétropropagation du gradient de l'erreur procède pour

chaque itération de la manière suivante :

1. Pour chaque jeu de données, calcul des  $\frac{\partial E}{\partial w_{ij}}$  de la couche de neurones de sortie,
2. Utilisation de ces calculs pour celui des valeurs de  $\frac{\partial E}{\partial w_{ij}}$  de la couche cachée précédente, et ainsi de proche en proche, calcul de tous les  $\frac{\partial E}{\partial w_{ij}}$  (rétropropagation),
3. pour chaque poids, somme des  $n \frac{\partial E}{\partial w_{ij}}$  obtenus afin de calculer  $\frac{\partial E_t}{\partial w_{ij}}$ .

Pour un seul jeu de données, le principe du calcul des  $\frac{\partial E}{\partial w_{ij}}$  est plus précisément le suivant :

$$\text{soit} \quad \frac{\partial E}{\partial w_{ij}} = \frac{\partial E}{\partial S_i} \cdot \frac{\partial S_i}{\partial w_{ij}} \quad (28)$$

$$\text{on a} \quad \frac{\partial S_i}{\partial w_{ij}} = A_j \quad (29)$$

$$\text{et on pose} \quad \frac{\partial E}{\partial S_i} = \beta_i \quad (30)$$

ainsi, pour chaque poids :

$$\frac{\partial E}{\partial w_{ij}} = \beta_i \cdot A_j \quad (31)$$

- pour la couche de neurones de sortie :

$$\beta_{is} = \frac{\partial E}{\partial S_{is}} = \frac{\partial E}{\partial A_{is}} \cdot \frac{\partial A_{is}}{\partial S_{is}} \quad (32)$$

$$\text{or} \quad \frac{\partial E}{\partial A_{is}} = A_{is} - Y_{is} \quad (33)$$

$$\text{et} \quad \frac{\partial A_{is}}{\partial S_{is}} = A_{is} \cdot (1 - A_{is}) \quad (34)$$

$$\text{d'où} \quad \beta_{is} = (A_{is} - Y_{is}) \cdot A_{is} \cdot (1 - A_{is}) \quad (35)$$

- pour les couches cachées de neurones :

$$\beta_i = \frac{\partial E}{\partial S_i} = \sum_h \frac{\partial E}{\partial S_h} \cdot \frac{\partial S_h}{\partial S_i} \quad (36)$$

$$\text{or} \quad \frac{\partial E}{\partial S_h} = \beta_h \quad (37)$$

$$\text{et} \quad \frac{\partial S_h}{\partial S_i} = \frac{\partial S_h}{\partial A_i} \cdot \frac{\partial A_i}{\partial S_i} \quad (38)$$

$$\text{or} \quad \frac{\partial S_h}{\partial A_i} = w_{hi} \quad (39)$$

$$\text{et} \quad \frac{\partial A_i}{\partial S_i} = A_i \cdot (1 - A_i) \quad (40)$$

$$\text{d'où} \quad \mathbf{B}_i = \mathbf{A}_i \cdot (1 - \mathbf{A}_i) \cdot \sum_h (\mathbf{w}_{hi} \cdot \mathbf{B}_h) \quad (41)$$

Ainsi, à chaque itération, ces calculs sont effectués pour tous les coefficients synaptiques et pour tous les jeux de données constituant la base d'apprentissage.

### III-1.3.2 Développement d'un algorithme d'apprentissage sans calcul de dérivées

L'algorithme de rétropropagation présenté ci-dessus, est basé sur la méthode standard de descente de gradient à pas déterminé. Bien qu'utilisé dans la plus grande majorité des cas, cet algorithme présente certains inconvénients. En effet, sa lenteur à converger vers la solution, sa sensibilité aux minima locaux et la difficulté de réglage des paramètres d'apprentissage le rendent parfois délicat d'utilisation [BISHOP 1994, FAHLMAN 1988, JACOBS 1988, LIPPMANN 1987, SOLLA *et al.* 1988, SONTAG et SUSSMANN 1989].

Jusqu'à présent, de nombreuses études permettant essentiellement d'améliorer les temps de calcul ont été présentées. Ainsi plusieurs variantes de l'algorithme de rétropropagation originel sont proposées dans la littérature : modification du pas d'apprentissage en cours de calcul [BAFFES *et al.* 1991], définition d'un pas d'apprentissage spécifique à chaque poids du réseau [JACOBS 1988], amélioration du critère d'erreur [SOLLA *et al.* 1988], etc... D'autres auteurs préconisent l'utilisation d'algorithmes de second ordre, plus rapides, basés sur la méthode d'optimisation de Newton-Raphson ou encore sur les méthodes quasi-newtoniennes [ACUNA *et al.* 1993, PARKER 1987, RENO 1993, ZURADA 1992]. Tous ces algorithmes nécessitent l'estimation de la dérivée première et éventuellement celle de la dérivée seconde de l'erreur par rapport aux poids du réseaux.

En considérant l'identification des poids d'un réseau comme un problème classique d'optimisation non-linéaire, des méthodes multidimensionnelles sans calcul de dérivées peuvent également être envisagées. En effet, ces méthodes présentent l'avantage d'être très simples à mettre en œuvre et peu exigeantes en calculs. Dans cette optique, nous proposons un algorithme d'apprentissage pour perceptron multicouches sans calcul de dérivée basé sur une de ces méthodes. Afin de vérifier son intérêt, ce nouvel algorithme est comparé avec l'algorithme classique de rétropropagation du gradient de l'erreur dans le cas particulier de la modélisation du procédé de filtration tangentielle.

#### • *Principe de base*

Un perceptron multicouches peut s'exprimer sous la forme d'une fonction mathématique RN qui calcule un vecteur de sortie  $\hat{\mathbf{A}}_s$  en fonction d'un vecteur d'entrée  $\mathbf{A}_0$ . En notant  $\mathbf{A}_i$  le vecteur des activations des neurones de la couche  $i$ ,  $\mathbf{B}_i$  le vecteur des biais associés à la couche  $i$  et  $\mathbf{W}_i$  la matrice des poids reliant la couche  $i$  à la couche  $i-1$ , cette fonction est définie comme suit :

$$\text{RN} : A_0 \xrightarrow{\text{RN}} \hat{A}_s$$

$$\text{tel que} : \begin{cases} A_1 = \Phi (W_1 A_0 + B_1) \\ \dots \\ A_i = \Phi (W_i A_{i-1} + B_i) \\ \dots \\ \hat{A}_s = \Phi (W_s A_{s-1} + B_s) \end{cases}$$

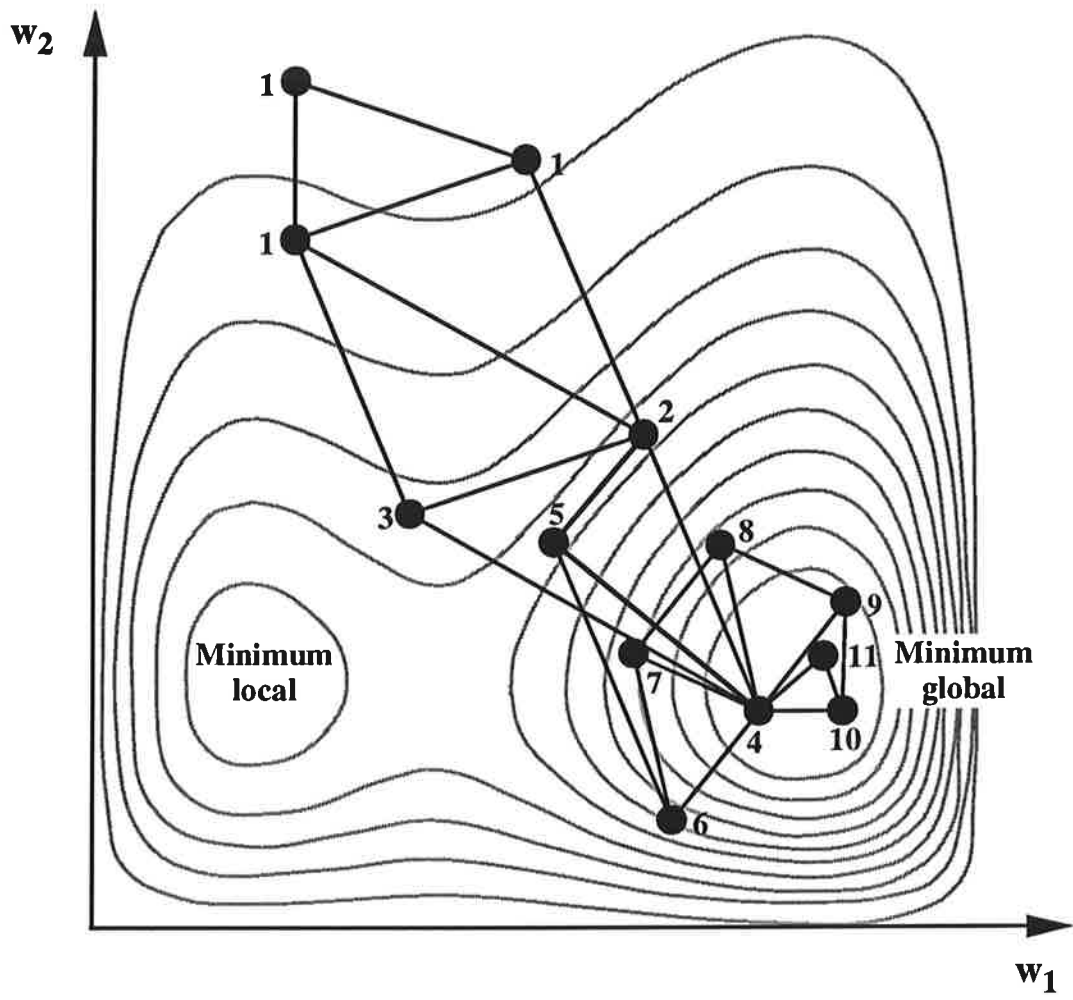
$$\text{avec } \Phi : \begin{pmatrix} x_1 \\ \dots \\ x_i \\ \dots \\ x_n \end{pmatrix} \xrightarrow{\Phi} \begin{pmatrix} f(x_1) \\ \dots \\ f(x_i) \\ \dots \\ f(x_n) \end{pmatrix}$$

et  $f$  : fonction d'activation.

La phase d'apprentissage consiste à déterminer les matrices  $W_i$  et les vecteurs  $B_i$  qui permettent à la fonction RN de représenter au mieux les couples de vecteurs  $(A_0, A_s)$  expérimentaux. L'apprentissage est donc un problème d'optimisation des paramètres de la fonction RN pour minimiser l'écart entre l'ensemble des sorties calculées  $\hat{A}_s$  et les sorties expérimentales correspondantes  $A_s$ . Pour ce faire, la méthode que nous proposons est une méthode classique d'optimisation non-linéaire sans calcul de dérivée : la méthode du Simplex [SPENDLEY *et al.* 1962]. La robustesse de cette méthode et de ses diverses variantes a en effet été démontrée dans de très nombreux domaines d'application [ABERG et GUSTAVSSON 1982, FREDENSLUND *et al.* 1977, HEYD 1991, KEEFER 1973, LEBERT et RICHON 1984, MORGAN et DEMING 1974, NAKAI 1981, PORTE *et al.* 1986, UMEDA 1969].

Parmi les nombreuses variantes possibles, nous avons choisi plus spécifiquement la méthode du Simplex modifiée proposée par NELDER et MEAD [LEBERT 1994, NELDER et MEAD 1965, PORTE *et al.* 1986]. Cette méthode est mise en œuvre pour ajuster les paramètres de la fonction RN en utilisant la somme des carrés des écarts entre les sorties expérimentales et calculées (SCE) comme fonction objectif à minimiser. Notons  $p$  le nombre de paramètres à ajuster (poids et biais). Une combinaison de ces paramètres définit un point dans l'espace paramétrique à  $p$  dimensions. Le principe de base de l'algorithme est le suivant :

1. Initialisation : choix de  $p+1$  points constituant une figure géométrique, appelée Simplex, de dimension  $p$  dans l'espace paramétrique.
2. Calcul de la SCE correspondant à chacun des  $p+1$  points ainsi définis.
3. Détermination du plus mauvais point, soit celui qui conduit à la SCE la plus élevée.



**Figure III.5 : exemple d'une progression de Simplex dans un espace à deux dimensions  $w_1$  et  $w_2$  (fonction de Hosaki [LEBERT 1994]).**

4. Elimination du plus mauvais point.
5. Calcul des coordonnées du symétrique du point éliminé par rapport au barycentre de l'ensemble des  $p$  points restant (réflexion du Simplex).
6. Calcul de la SCE correspondant à ce nouveau point.
7. Comparaison de la SCE correspondant à ce nouveau point par rapport aux autres.
8. Test d'un critère d'arrêt.
9. Eventuellement calcul des coordonnées d'un nouveau point suivant des règles de contraction ou de dilatation du Simplex et calcul de la SCE correspondant à ce nouveau point.
10. Retour à l'étape 3.

L'algorithme progresse donc pas à pas et se dirige par étapes successives vers les zones de faible SCE. Un exemple de progression du Simplex dans un espace paramétrique à deux dimensions est représenté sur la **Figure III.5**. Classiquement, l'initialisation (étape 1) est forcée afin de ne privilégier aucune direction de recherche particulière dans l'espace paramétrique [LEBERT 1994]. Cependant, il est parfois préférable de procéder à plusieurs initialisations aléatoires différentes si l'on craint l'existence de minima locaux. Enfin, le critère d'arrêt défini à l'étape 7 permet de stopper les calculs lorsque la SCE est très faible et/ou ne varie plus.

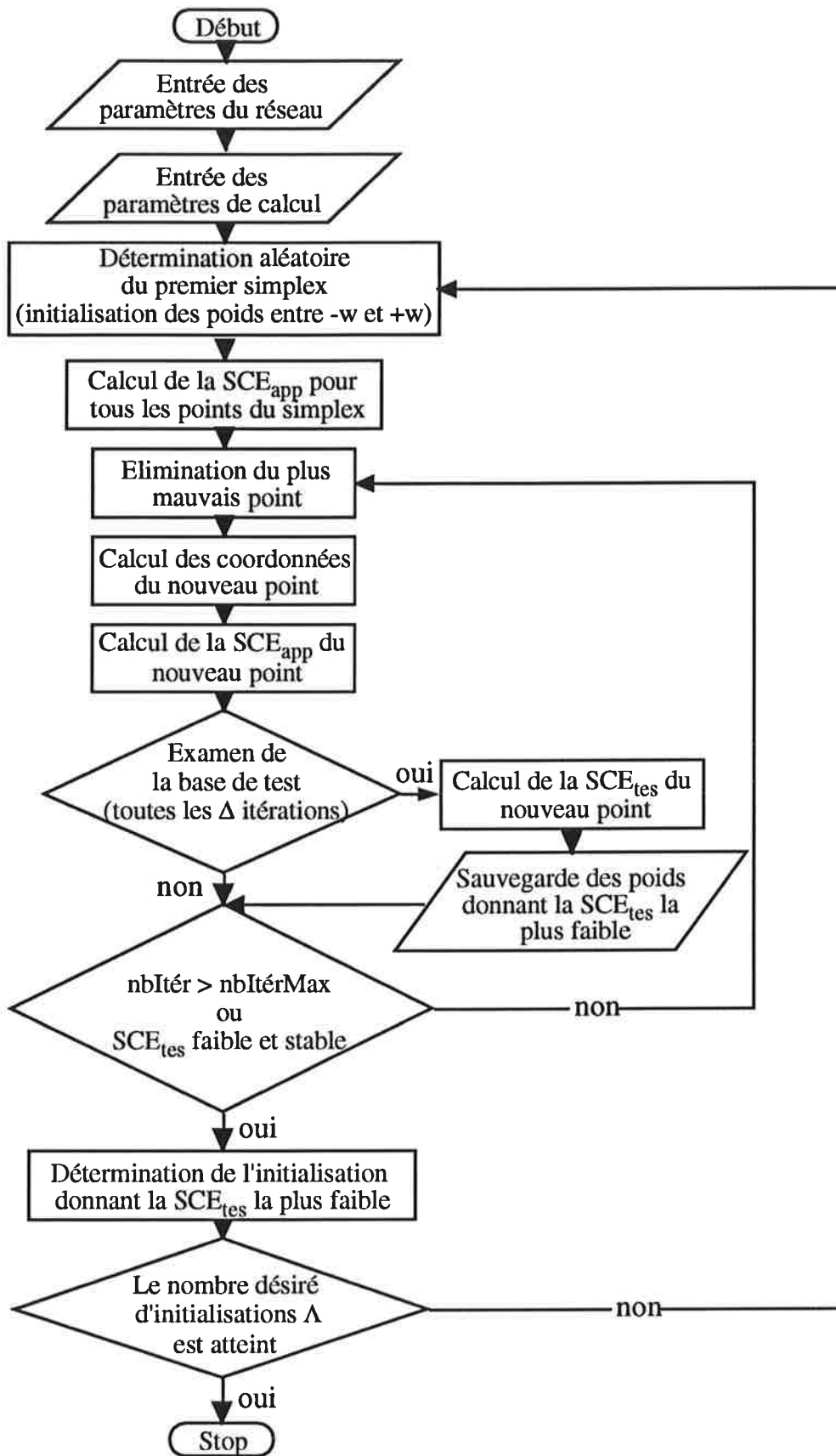
#### • *Implémentation*

Un programme informatique nommé NEUREX qui intègre l'algorithme précédemment décrit a ainsi été développé [HEYD 1994]. Conçu spécifiquement pour l'application des réseaux de neurones comme outil de modélisation, ce programme est disponible sous environnement MACINTOSH, DOS ou UNIX. Son organigramme est représenté schématiquement sur la **Figure III.6**.

La structure du perceptron choisie est définie dans un fichier annexe avant de lancer les calculs. Le nombre total de couches du réseau (entrée et sortie comprises) et le nombre de neurones contenus dans chacune de ces couches y sont simplement précisés.

Pour éviter le sur-apprentissage, NEUREX vérifie en cours d'apprentissage l'erreur de prédiction effectuée sur la base de test. L'apprentissage est stoppé lorsque cette erreur est minimale afin de garantir une capacité de généralisation optimale du modèle. L'erreur effectuée sur la base de test peut être calculée après chaque itération du Simplex ou à la suite d'un nombre fixé  $\Delta$  d'itérations afin de ne pas ralentir inutilement les calculs.

Dans la plupart des cas, l'erreur de prédiction comprend de nombreux minima locaux en fonction des paramètres du réseau. Il est donc hasardeux de se contenter d'une seule combinaison initiale de poids et biais pour conclure sur les résultats. Pour cette raison, NEUREX effectue les calculs à plusieurs reprises, en initialisant aléatoirement les poids et biais dans une gamme  $-w$  et  $+w$ . Le



$SCE_{app}$  : somme des carrés des erreurs sur la base d'apprentissage.

$SCE_{tes}$  : somme des carrés des erreurs sur la base de test.

$\Delta$  : pas d'examen de la base de test.

nbItér : nombre d'itérations.

nbItérMax : nombre d'itérations maximum pour une initialisation.

$\Lambda$  : nombre d'initialisations aléatoires désirées.

**Figure III.6 : organigramme du logiciel NEUREX.**

nombre d'initialisations souhaité  $\Lambda$  est défini en début de procédure.

Pour chaque tirage aléatoire de poids et biais, les résultats sont sauvegardés sous forme de quatre fichiers. Le premier contient l'évolution des erreurs de prédiction calculées sur les bases d'apprentissage et de test en fonction du nombre d'itérations. Le second contient les poids et biais correspondant au nombre optimal d'itérations (erreur minimale sur la base de test). Les deux suivants contiennent les entrées, les sorties expérimentales et les sorties calculées avec ces poids et biais sur la base d'apprentissage et la base de test. A la suite des diverses initialisations, un fichier récapitulatif est également créé. Il reprend pour chaque tirage le nombre optimal d'itérations et les erreurs sur la base d'apprentissage et de test correspondante.

Enfin, précisons que la fonction d'activation choisie est la fonction donnée en (17).

### III-1.3.3 Comparaison avec la rétropropagation

Le logiciel BP version 1.0 est choisi comme référence [McCLELLAND et RUMELHART 1988]. Ce logiciel utilise l'algorithme de rétropropagation de base avec un pas d'apprentissage constant. Il impose la fonction d'activation sigmoïde donnée précédemment (17). Installés sur station de travail HEWLETT PACKARD 9000, les logiciels NEUREX et BP sont utilisés pour traiter diverses bases de données. Les résultats obtenus sont ensuite confrontés à différents niveaux.

L'erreur de prédiction effectuée par les modèles est estimée sous la forme de coefficients de variation  $\gamma$  calculés sur la base de données considérée (22).

#### • *Bases de données traitées*

La modélisation par réseaux neuronaux est appliquée à la microfiltration tangentielle de deux produits différents sur la membrane MEMBRALOX de diamètre moyen de pores  $1,4 \mu\text{m}$ . Quatre bases de données sont étudiées. Elles se distinguent soit par le produit filtré soit par la grandeur que l'on cherche à représenter (Résistance hydraulique  $R_t$  ou Taux de rétention en matière sèche  $T_{MS}$ ) soit par la quantité d'informations contenue dans chaque fichier traité. Leurs principales caractéristiques sont données dans le **Tableau III.2**.

Chaque base de données contient les résultats obtenus à la suite de cinq filtrations réalisées à conditions constantes sur un même produit. Les seuls paramètres différenciant les filtrations les unes des autres sont la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et la vitesse tangentielle ( $U$ ). Les résultats se présentent sous forme de fichiers contenant la pression transmembranaire, la vitesse tangentielle et  $R_t$  ou  $T_{MS}$  en fonction du temps de filtration. Suivant la base de données considérée, la fréquence d'échantillonnage et le temps de filtration varient. Le nombre de points expérimentaux contenus



BASE DE DONNEES	Produit filtré	Grandeur modélisée	Température (°C)	Gamme de temps (min)	Gamme de P <sub>tm</sub> (bar)	Gamme de U (m/s)	Nombre moyen de points par filtration	Nombre total de points de la base de données	Nombre de points de la base d'apprentissage	Nombre de points de la base de test
GR1	Gomme arabique	Rt	70	0,3-66,0	1,7-4,5	6,5-7,5	309	1544	920	624
GR2	Gomme arabique	Rt	70	0,3-63,0	2,5-4,0	6,5-7,5	26	129	76	53
GT	Gomme arabique	TMS	70	5,0-60,0	2,5-4,0	6,5-7,5	23	115	69	46
SR	Sucre roux	Rt	80	0,1-121,0	1,2-3,3	4,0-6,0	34	170	102	68

Tableau III.2 : principales caractéristiques des bases de données utilisées pour la comparaison des logiciels BP et NEUREX [MEMBRALOX 1,4 µm].

BASES DE DONNEES	BP						NEUREX											
	w	μ	δ	Δ	Nombre optimal de neurones cachés	Nombre optimal de cycles	Temps de calcul* pour 1000 cycles (s)	γ (%) Base app.	γ (%) Base test	γ (%) Base totale	w	Δ	Nombre optimal de neurones cachés	Nombre optimal de cycles	Temps de calcul* pour 1000 cycles (s)	γ (%) Base app.	γ (%) Base test	γ (%) Base totale
GR1	0,5	0	0,010	500	3	76000	60	3,2	32,1	20,5	0,5	5	4	1825	72	6,7	9,0	7,7
GR2	0,5	0	0,200	1000	8	25000	14	1,7	26,3	16,8	0,5	5	8	1625	12	5,7	6,4	6,0
GT	0,5	0	0,005	20	8	260	13	22,3	26,8	24,1	0,5	5	8	2875	14	6,0	14,5	10,2
SR	0,5	0	0,010	500	10	11500	20	9,6	13,8	11,4	0,5	5	10	1415	17	10,1	11,9	10,8

\*: estimé sur station Hewlett Packard 9000-730 sans examen de la base de test en cours de calcul.

Tableau III.3 : comparaison des meilleurs résultats obtenus avec les logiciels BP et NEUREX sur les différentes bases de données étudiées.

dans chaque base est donc différent. Parmi les cinq filtrations constituant une même base de données, 3 sont utilisées pour la base d'apprentissage et 2 sont réservées pour la base de test.

Les données expérimentales ne font l'objet d'aucun lissage ou filtrage avant traitement. Néanmoins, compte tenu de la fonction d'activation choisie (17), entrées et sorties sont standardisées suivant l'équation (19).

• *Performances des algorithmes*

Pour chacune des bases de données vues ci-dessus, les deux logiciels BP et NEUREX sont comparés. Dans les deux cas, la procédure suivie est identique. Pour une structure cachée de réseau fixée, 20 initialisations aléatoires des poids et biais sont réalisées successivement. Différentes structures cachées sont ainsi testées en faisant varier le nombre de neurones de 1 à 10 dans une unique couche cachée. Pour le logiciel BP, les valeurs de pas d'apprentissage ( $\delta$ ) utilisées ont été choisies suite à une série d'essais préliminaires effectués sur chaque base de données testées. La valeur de  $\delta$  finalement retenue est la valeur la plus élevée qui a permis la convergence. Dans le **Tableau III.3** figurent les résultats obtenus qui correspondent à la meilleure structure cachée et à la meilleure initialisation des poids et biais.

- Erreur de prédiction : le critère qui estime la valeur prédictive globale des modèles constitués est le coefficient de variation calculé sur la base de données totale (base d'apprentissage et de test confondues). Il est donc utilisé comme élément de comparaison principal. Le coefficient de variation calculé sur la base de test donne en plus une indication sur la capacité de généralisation du modèle à des situations qu'il n'a pas apprises.

Après examen des coefficients de variation sur la base de test obtenus à partir des deux logiciels, nous constatons que la capacité de généralisation des modèles obtenus par BP est, dans tous les cas traités, moins satisfaisante. Les coefficients de variation sur la base totale obtenus par NEUREX sont meilleurs que ceux obtenus par BP. Pour les bases de données GR1, GR2 et GT la valeur prédictive des modèles est ainsi multipliée par un facteur de 2,4 à 2,8 en utilisant NEUREX. Pour la base GT, les résultats obtenus avec BP sont particulièrement médiocres (coefficient de variation total de 24,1 %). Pour la base SR, les résultats obtenus avec BP et NEUREX sont par contre comparables. Enfin, notons que le nombre optimal de neurones cachés obtenus par l'intermédiaire des deux logiciels est similaire pour toutes les bases de données étudiées. Pour chaque base de données traitée, il semble donc qu'il existe une structure cachée optimale caractéristique qui est indépendante de l'algorithme d'apprentissage utilisé.

Base de données	BP		NEUREX	
	GR1	GR2	GR1	GR2
Dispersion $\Delta\gamma_{tot}$	0,59	0,18	1,97	1,18
Résultats très satisfaisants $\gamma_{tot} \leq 10 \%$	0 %	0 %	7 %	2 %
Résultats satisfaisants $10 < \gamma_{tot} \leq 15 \%$	5 %	0 %	23 %	31 %
Résultats non-satisfaisants $\gamma_{tot} > 15 \%$	95 %	100 %	70 %	77 %

**Tableau III.4 : comparaison de la validité des résultats obtenus à la suite de 100 initialisations aléatoires des poids et biais (pour structures cachées et paramètres de calcul cf. Figure III.7).**

- Temps de calcul : les temps de calcul de 1000 itérations sont très comparables pour BP et NEUREX. Ils sont essentiellement fonction de la taille de la base d'apprentissage. Le temps de calcul total est estimé en multipliant le nombre optimal d'itérations par le temps de calcul nécessaire à une itération. Le temps nécessaire aux examens de la base de test en cours d'apprentissage n'est donc pas pris en compte. Pour les bases de données GR1, GR2 et SR, le nombre optimal d'itérations est beaucoup plus élevé avec BP qu'avec NEUREX. Ainsi, les temps de calcul observés avec BP sont nettement plus importants. En particulier pour la base de données la plus conséquente (GR1), NEUREX est environ 35 fois plus rapide que BP. Pour la base de données GT, BP est plus rapide mais les résultats obtenus sont inexploitable et sans intérêt.

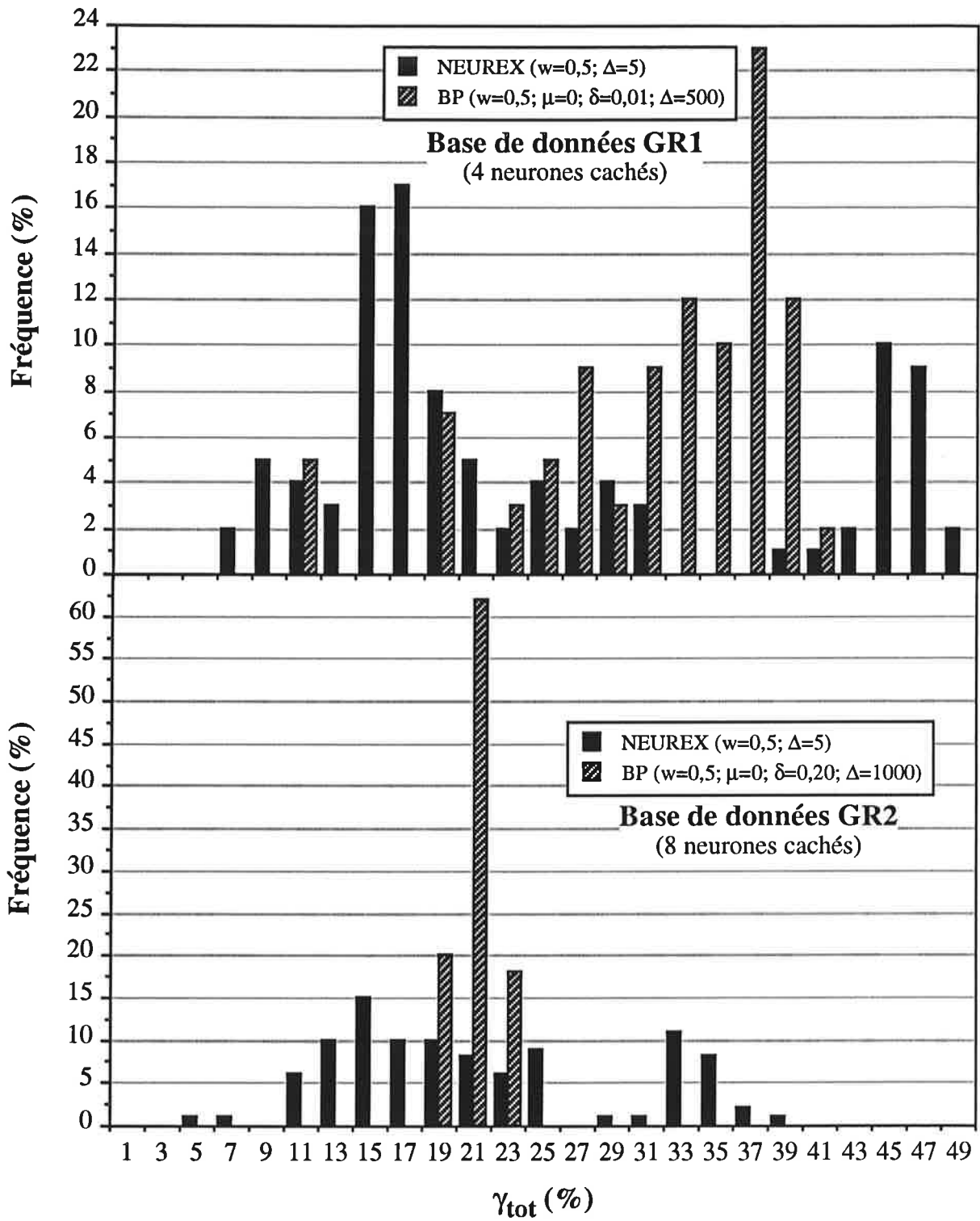
D'après ces constatations, il semble donc que l'algorithme du Simplex modifié permette dans certains cas d'accélérer considérablement les calculs par rapport à la rétropropagation classique. Grâce à sa rapidité, le logiciel NEUREX permet d'envisager un plus grand nombre d'initialisations aléatoires des poids et biais que BP tout en respectant des temps de traitement raisonnables. Signalons enfin que la version de NEUREX utilisée a été programmée en Pascal. Une version en langage C est en cours de préparation. Cette dernière devrait permettre de diminuer très fortement les temps de calcul annoncés lors de cette étude.

#### • *Problème de minima locaux*

Dans le cas des perceptrons multicouches, les problèmes liés à l'existence de minima locaux lors de la détermination des poids et biais sont très fréquents [BISHOP 1994]. Quelle que soit la méthode utilisée, le risque de confondre un minimum local avec le minimum global est présent ce qui rend souvent l'interprétation des résultats difficile. Une des méthodes qui permet d'estimer la sensibilité aux minima locaux des algorithmes d'apprentissage, consiste à quantifier l'influence de l'initialisation des poids et biais sur les résultats. Pour cela, il suffit de procéder à un grand nombre d'initialisations aléatoires différentes et d'analyser la dispersion et les fréquences des coefficients de variation obtenus.

Dans cette optique, pour chacun des algorithmes testés, 100 apprentissages sont effectués à la suite d'initialisations aléatoires différentes sur deux bases de données de taille différentes GR1 (1544 points expérimentaux) et GR2 (129 points expérimentaux). Les résultats obtenus par l'intermédiaire de BP et NEUREX sont comparés ci-dessous.

Dans le cas de la filtration tangentielle, nous jugeons que le modèle est très satisfaisant lorsque le coefficient de variation total est inférieur à 10 %, satisfaisant lorsqu'il est compris entre 10 et 15 % et non-satisfaisant lorsqu'il est supérieur à 15 %. Dans ces conditions, NEUREX conduit à des résultats satisfaisants voire très satisfaisants pour 30 % des initialisations aléatoires, aussi bien pour GR1 que GR2 (Tableau III.4). Par contre BP ne conduit à des résultats satisfaisants que dans 5 % des cas pour GR1. Pour GR2, aucun des résultats obtenus par BP n'est satisfaisant. Notons que



**Figure III.7 : dispersion et fréquence des coefficients de variation sur les bases de données totales ( $\gamma_{tot}$ ) obtenues après 100 initialisations aléatoires des poids et biais.**

ces résultats sont comparables à ceux obtenus précédemment.

Comme nous pouvons le constater sur la **Figure III.7**, les diagrammes de distribution des coefficients de variation obtenus en utilisant BP et NEUREX sont très différents pour les deux bases de données traitées. Caractérisée par l'indice  $\Delta\gamma_{\text{tot}}$  (42), la dispersion des résultats correspondant à BP est nettement moins importante (**Tableau III.4**). Ceci montre que BP a tendance à conduire plus systématiquement à un coefficient de variation équivalent quelles que soient les valeurs initiales des paramètres du réseau. NEUREX est par contre plus sensible à l'initialisation des poids et biais. Par ailleurs, les coefficients de variation obtenus par NEUREX présentent une distribution nettement bimodale qui n'apparaît pas dans le cas de BP. Les résultats se rapportant au second pic de fréquence correspondent à des initialisations à la suite desquelles l'apprentissage a été inefficace. Il est probable que des phénomènes de collapsus du Simplex apparaissant dès les premiers cycles de calcul en soient la cause.

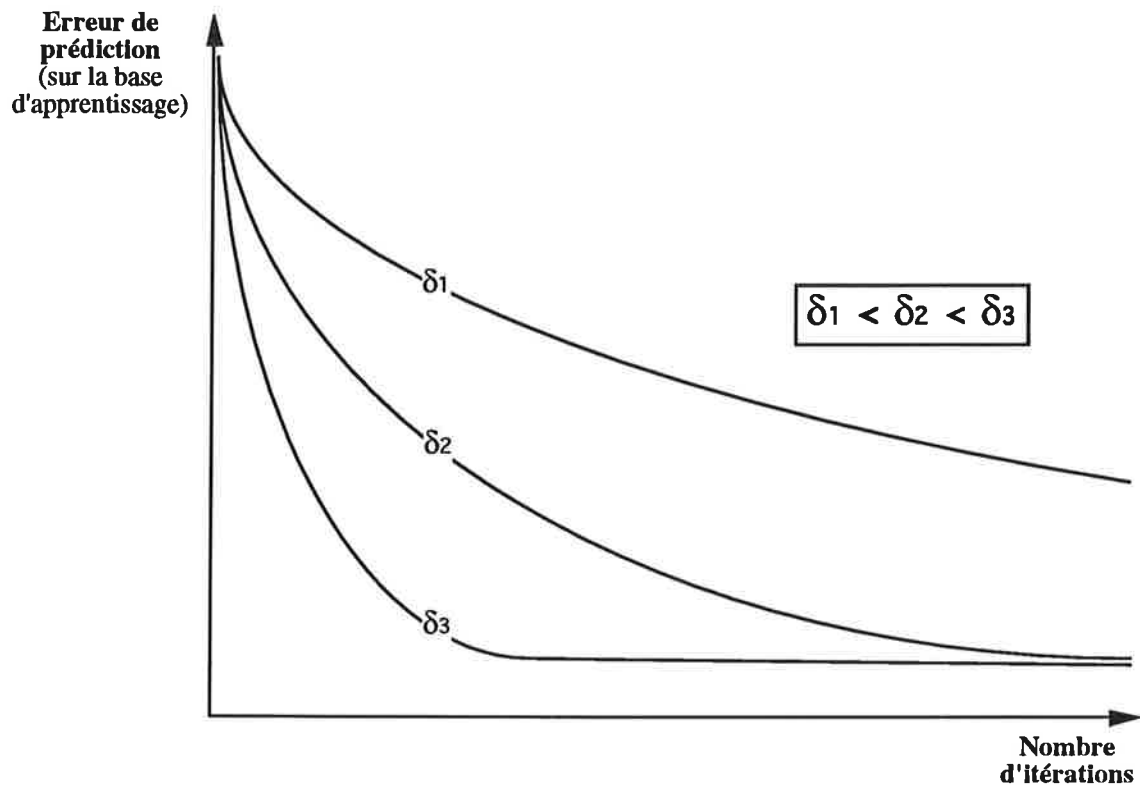
$$\Delta\gamma_{\text{tot}} = \frac{\gamma_{\text{tot}(90)} - \gamma_{\text{tot}(10)}}{\gamma_{\text{tot}(50)}} \quad (42)$$

avec  $\gamma_{\text{tot}(x)}$  = valeur du coefficient de variation sur la base de données totale en dessous de laquelle x % des initialisations aléatoires de poids ont abouti.

Suite à ces constatations, il semble que NEUREX explore de façon plus systématique l'espace des poids et biais. Les nombreux minima de la fonction objectif dans cet espace sont mieux mis en évidence lorsque l'algorithme du Simplex est utilisé. Grâce à cette propriété, pour les deux bases de données traitées, NEUREX a permis d'accéder dans environ 30 % des cas (1 initialisation sur 3), à un minimum qui correspond à des résultats satisfaisants. La rétropropagation a par contre toujours tendance à conduire à un même minimum local qui correspond à des résultats nettement moins acceptables. L'algorithme du Simplex permet donc de mieux estimer le minimum global de la fonction objectif que l'algorithme de la rétropropagation. Le nombre d'initialisations aléatoires nécessaire à cette estimation étant peu élevé, l'intérêt de ce type d'approche est mis en évidence.

#### • *Facilité d'utilisation*

- Paramètres de calcul : dans le cas de la rétropropagation, il est nécessaire de définir, avant le traitement de toute nouvelle base de données, deux paramètres spécifiques de calcul qui sont le pas d'apprentissage ( $\delta$ ) et le moment ( $\mu$ ). Comme dans toute méthode de gradient à pas déterminé, le pas d'apprentissage influence considérablement les résultats. Plus le pas d'apprentissage est petit, plus le nombre de calculs nécessaires à la convergence du modèle est grand et donc plus les temps de calcul sont élevés (**Figure III.8**). Cependant, si la valeur de  $\delta$  est choisie trop forte, le modèle peut ne pas converger vers la solution (oscillation ou divergence). Il faut donc trouver un compromis afin d'obtenir le plus rapidement possible la convergence. Il



**Figure III.8 : algorithme de rétropropagation: influence du pas d'apprentissage ( $\delta$ ) sur l'évolution de l'erreur de prédiction effectuée par un réseau de neurones en fonction du nombre d'itérations (algorithme de rétropropagation).**

n'existe pas de règle précise qui permette d'orienter a priori le choix du pas d'apprentissage. Le réglage de ce paramètre nécessite donc une série de calculs préliminaires avant le traitement de chaque base de données. En jouant sur le moment ( $\mu$ ), il est possible, dans certains cas, d'accélérer les calculs. Comme pour  $\delta$ , la détermination de la valeur optimale de  $\mu$  dépend de la base de données traitée et nécessite une étude préliminaire [BISHOP 1994]. L'algorithme du Simplex modifié ne fait par contre intervenir aucun paramètre spécifique de calcul (valeurs des coefficients de dilatation et de contraction du Simplex fixés respectivement à 2 et 0,5). Ainsi, contrairement à BP où l'ajustement du pas d'apprentissage est obligatoire avant chaque calcul, aucun réglage préliminaire n'est nécessaire dans le cas de NEUREX. Ceci permet donc un gain de temps considérable.

- Détermination du nombre optimal d'itérations : comme nous l'avons souligné précédemment, l'apprentissage doit être stoppé lorsque l'erreur de prédiction est minimale sur la base de test afin de garantir une capacité de généralisation optimale du modèle. Dans le cas de BP, l'utilisation d'un fichier de commande permet d'examiner en cours d'apprentissage la base de test. Néanmoins, le dépouillement des résultats est manuel ce qui rend l'opération très fastidieuse. Dans sa conception, NEUREX intègre ce dépouillement. Suite à un tirage aléatoire des poids et biais, le logiciel détermine automatiquement le nombre optimal d'itérations, ne conserve que les poids et biais correspondants et calcule les sorties du réseau avec ces paramètres. L'utilisation de NEUREX est par conséquent considérablement simplifiée par rapport à BP.
- Détermination de la meilleure initialisation des poids et biais : compte tenu des problèmes de minima locaux, il est indispensable de procéder à plusieurs initialisations aléatoires des poids et biais. Comme précédemment, le fichier de commande de BP peut être configuré pour effectuer successivement plusieurs initialisations différentes. Cependant, la détermination de la meilleure initialisation est là encore manuelle. Grâce au fichier récapitulatif créé par NEUREX, le bilan des diverses initialisations est présenté. Le choix de la meilleure initialisation est donc beaucoup plus aisé et rapide que dans le cas de BP.

#### III-1.3.4 Bilan

L'algorithme d'apprentissage intégré dans le logiciel NEUREX présente donc certains avantages par rapport à la rétropropagation classique : sur quatre bases de données différentes, l'algorithme du Simplex modifié a permis d'obtenir des résultats plus satisfaisants avec des temps de calcul moins élevés que l'algorithme de rétropropagation standard. Pour deux bases de données de tailles différentes, nous avons montré que l'utilisation du Simplex présente moins de risque de minima locaux que celle de la rétropropagation. Enfin, l'utilisation de NEUREX est particulièrement simple. En particulier, aucun réglage préliminaire de paramètre de calcul n'est nécessaire contrairement à la rétropropagation.



L'intérêt de ce type d'approche pour l'apprentissage des perceptrons multicouches est donc bien mise en évidence. Afin de confirmer ces résultats, il serait néanmoins souhaitable de procéder à la comparaison des deux algorithmes sur des fonctions mathématiques connues a priori ou à des cas plus complexes (structures de réseau plus importantes et bases de données plus conséquentes). L'examen des valeurs des poids des réseaux obtenus par les deux algorithmes pourrait également être envisagé. Notons enfin qu'il serait particulièrement intéressant de comparer l'algorithme du Simplex aux algorithmes de rétropropagation de second ordre (basés sur les méthodes de Newton-Raphson ou de quasi-Newton), plus rapides que la rétropropagation de premier ordre (méthode du gradient).

Par la suite, l'algorithme de rétropropagation (logiciel BP) ou celui du Simplex modifié (logiciel NEUREX) seront mis en œuvre indifféremment, soit sur stations de travail HEWLETT PACKARD 9000 ou sur stations SUN (SLC et SPARK II). Dans tous les cas, le logiciel utilisé sera clairement spécifié.

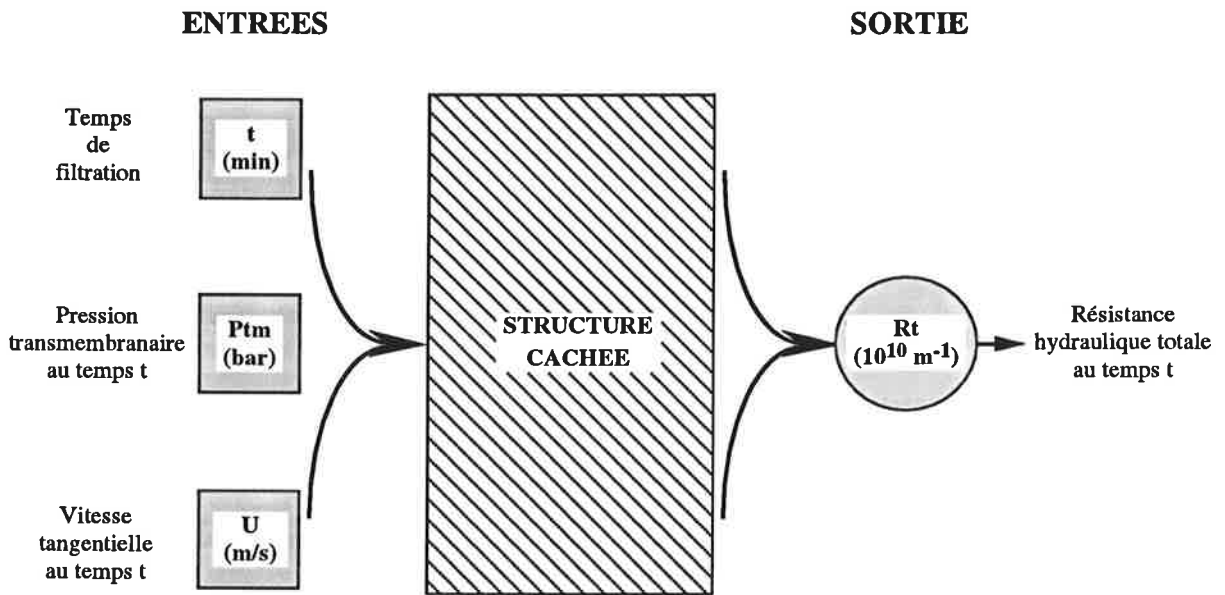
### **III-2 MODELISATION DYNAMIQUE DE LA FILTRATION TANGENTIELLE**

Afin de sonder l'intérêt des réseaux de neurones comme outils pour l'optimisation de la filtration tangentielle, l'approche décrite ci-dessus est appliquée à la modélisation dynamique du colmatage membranaire. Deux cas de figure sont successivement envisagés. Dans une première partie, nous traiterons les résultats issus de filtrations réalisées à conditions de  $P_{tm}$  et  $U$  constantes au cours du temps. Par la suite, nous tenterons de modéliser des filtrations durant lesquelles les conditions hydrodynamiques ont été modifiées en cours d'essais.

#### **III-2.1 Filtrations à conditions opératoires constantes au cours du temps**

La première étape de notre étude consiste à tenter d'appliquer les réseaux neuronaux sur une base de données comportant des enregistrements de filtrations à  $P_{tm}$  et  $U$  constantes au cours du temps. Pour cela, nous avons choisi de traiter les résultats obtenus à la suite du plan d'expériences central composite décrit précédemment. Cette base comprend donc 9 filtrations (double du point central non considéré). Les seuls paramètres différenciant les filtrations les unes des autres sont la pression transmembranaire ( $P_{tm}$  de 1,50 à 3,00 bar) et la vitesse tangentielle ( $U$  de 4,0 à 6,0 m/s). Nous rappelons que le produit est une refonte de sucre roux de canne à 60 gMS/100g (lot 4) filtré sur la membrane MEMBRALOX 1,4  $\mu$ m à une température de 80 °C. Le mode de démarrage choisi est brusque.

Chaque enregistrement représente l'évolution de  $R_t = f(t)$  pendant 120 min de filtration. La fréquence des échantillonnages est d'environ 5 s durant les 5 premières minutes de filtration puis d'environ 20 s par la suite. Un enregistrement comprend donc environ 400 jeux de quadruplets [ $t$ ,  $P_{tm}$ ,  $U$ ,  $R_t$ ].



**Figure III.9 : représentation schématique du type de réseaux de neurones avec entrée explicite du temps utilisé.**

Le logiciel BP est utilisé dans cette première partie. Pour tous les calculs, le pas d'apprentissage  $\delta$  est fixé à 0,01 ou 0,005 et le nombre d'itérations entre chaque examen de la base de test à 50, 500 ou 1000. A la suite d'une étude préliminaire, ces valeurs se sont avérées les mieux adaptées au traitement de nos données. Le moment ( $\mu$ ) est dans tous les cas fixé à 0. Tous les résultats présentés ci-dessous sont les meilleurs résultats obtenus à la suite d'au moins 4 initialisations aléatoires différentes des poids (tirés entre -0,5 et +0,5).

### III-2.1.1 Recherche d'une structure de réseau adaptée

#### • *Définition des entrées et sorties*

Compte tenu de la base de données considérée, la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et la vitesse tangentielle ( $U$ ) sont les seuls paramètres présentés en entrée du réseau. Le temps de filtration ( $t$ ) est également présenté directement en entrée (réseaux avec entrée explicite du temps). En sortie de réseau, la grandeur que nous choisissons de représenter est la résistance hydraulique totale  $R_t$  définie selon la loi de DARCY.

Les jeux de données présentés au réseau sont donc finalement des quadruplets composés de trois entrées et d'une sortie soit (**Figure III.9**) :

- Pour les entrées : le temps ( $t$ ), la pression transmembranaire moyenne au temps  $t$  ( $P_{tm}$ ), la vitesse tangentielle au temps  $t$  ( $U$ ),
- Pour la sortie : la résistance hydraulique totale au temps  $t$  ( $R_t$ ).

#### • *Choix de la structure cachée*

Sur les 9 expériences effectuées dans des conditions de  $P_{tm}$  et de  $U$  différentes, nous fixons arbitrairement pour cette première étape la répartition suivante :

- Base d'apprentissage : essais 101, 102, 103, 107, 110 soit 1985 quadruplets [ $t$ ,  $P_{tm}$ ,  $U$ ,  $R_t$ ],
- Base de test : essais 099, 104, 105, 109 soit 1615 quadruplets [ $t$ ,  $P_{tm}$ ,  $U$ ,  $R_t$ ].

Le ratio apprentissage/test est donc de 1,23.

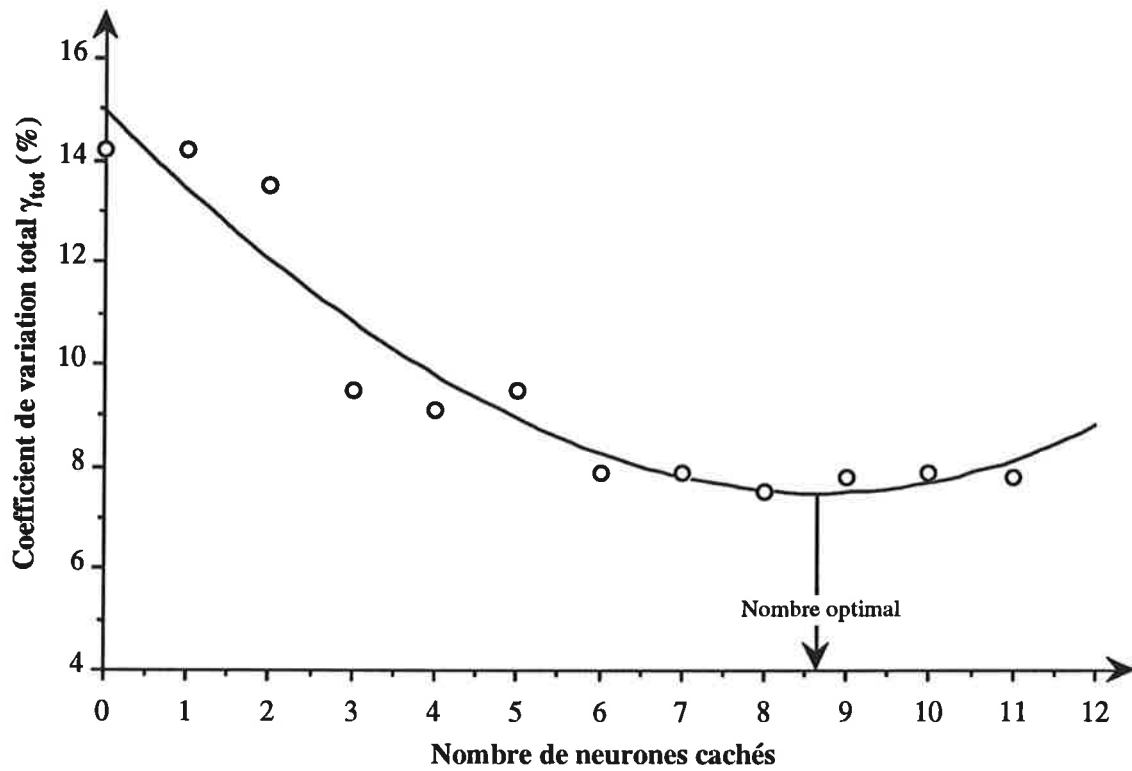
Cette répartition impose une structure de réseau qui comporte au maximum 661 poids (1/3 des quadruplets présentés en apprentissage) ce qui n'est pas restrictif dans notre cas.

Partant de la structure la plus simple, soit pas de couche cachée (réseau codé RN0), la structure est progressivement compliquée en augmentant tout d'abord le nombre de neurones dans une unique couche cachée puis en augmentant le nombre de couches cachées. Nous rappelons qu'il n'est aucunement question d'être exhaustif et que seul un nombre limité de structures est présenté. Les résultats obtenus sont consignés dans le **Tableau III.5**.

Structure du réseau	Nombre cellules cachées	Nombre de poids	Nombre d' itérations	$\delta$	Erreur moyenne $\bar{E}$ ( $10^{10} \text{ m}^{-1}$ )			Coefficient de variation $\gamma$ (%)			Coefficient de détermination $R^2$ (%)			
					Base app.	Base test	Base totale	Base app.	Base test	Base totale	Base app.	Base test	Base totale	
Mono- couche cachée	RN0	0	4	120	0,01	41,0	50,9	45,7	12,9	15,7	14,2	89,6	88,6	89,1
	RN1	1	6	8000	0,01	41,0	50,5	45,5	12,9	15,5	14,2	89,6	88,8	89,2
	RN2	2	11	8000	0,01	39,7	47,5	43,4	12,5	14,6	13,5	90,2	90,1	90,2
	RN3	3	16	10000	0,01	25,8	35,6	30,6	8,1	10,9	9,5	95,9	94,4	95,1
	RN4	4	21	8000	0,01	21,5	36,4	29,1	6,8	11,2	9,1	97,1	94,2	95,6
	RN5	5	26	4000	0,01	26,4	35,0	30,5	8,3	10,7	9,5	95,7	94,6	95,1
	RN6	6	31	6000	0,01	19,8	31,1	25,5	6,2	9,5	7,9	97,6	95,8	96,6
	RN7	7	36	5000	0,01	20,8	30,0	25,3	6,6	9,2	7,9	97,3	96,1	96,6
	RN8	8	41	7000	0,01	19,1	28,7	23,9	6,0	8,8	7,5	97,7	96,4	97,0
	RN9	9	46	7000	0,01	19,9	30,0	25,0	6,3	9,2	7,8	97,5	96,1	96,7
	RN10	10	51	9000	0,01	17,8	32,6	25,5	5,6	10,0	7,9	98,0	95,3	96,6
RN11	11	56	6000	0,01	20,3	29,6	24,9	6,4	9,1	7,8	97,4	96,1	96,7	
Bicouches cachée	RN2/2	4	17	7000	0,005	39,6	46,6	42,9	12,5	14,3	13,3	90,3	90,5	90,4
	RN2/3	5	21	18000	0,01	17,6	34,9	26,7	5,5	10,7	8,3	98,1	94,7	96,3
	RN2/4	6	25	20000	0,01	17,7	35,9	27,4	5,6	11,0	8,5	98,1	94,4	96,1
	RN2/5	7	29	15500	0,01	27,0	43,4	35,3	8,5	13,3	11,0	95,5	91,8	93,5
	RN2/6	8	33	28500	0,01	17,0	33,4	25,7	5,3	10,3	8,0	98,2	95,1	96,6
	RN3/2	5	23	5000	0,01	17,5	36,0	27,4	5,5	11,1	8,5	98,1	94,3	96,1
	RN3/3	6	28	14000	0,005	16,3	34,6	26,2	5,1	10,6	8,2	98,3	94,7	96,4
	RN3/4	7	33	13500	0,01	16,9	32,8	25,3	5,3	10,1	7,9	98,2	95,3	96,6
	RN3/5	8	38	12000	0,005	16,2	30,5	23,7	5,1	9,4	7,4	98,4	95,9	97,1
	RN3/6	9	43	13000	0,005	16,1	30,4	23,6	5,1	9,3	7,4	98,4	96,0	97,1
	RN4/2	6	29	9000	0,01	14,8	32,6	24,5	4,7	10,0	7,6	98,6	95,3	96,9
	RN4/3	7	35	10000	0,005	17,0	31,2	24,4	5,4	9,6	7,6	98,2	95,7	96,9
	RN4/4	8	41	11000	0,005	17,0	26,3	21,7	5,4	8,1	6,8	98,2	97,0	97,5
	RN4/5	9	47	15000	0,005	16,3	27,1	21,8	5,1	8,3	6,8	98,4	96,8	97,5
RN5/2	7	35	8000	0,01	13,8	29,7	22,4	4,4	9,1	7,0	98,8	96,1	97,4	
RN5/3	8	42	9500	0,01	13,8	29,5	22,3	4,4	9,1	6,9	98,8	96,2	97,4	
RN6/2	8	41	7000	0,01	14,1	31,3	23,5	4,4	9,6	7,3	98,8	95,7	97,1	

**Tableau III.5 : résultats obtenus pour les différentes structures de réseaux testées [répartition I; BP].**

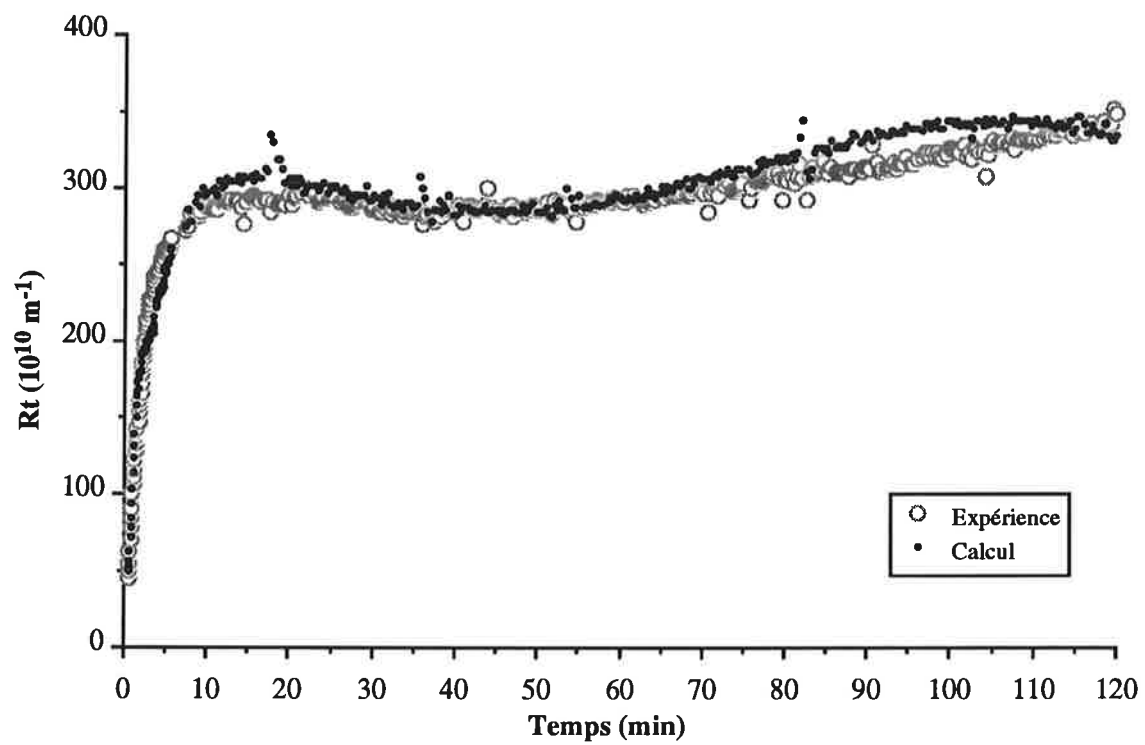
- Réseau sans structure cachée : ce réseau élémentaire (RN0) revient à modéliser la relation entrées-sortie par une simple sigmoïde. En considérant simplement l'allure des courbes  $R_t = f(t)$ , il est évident qu'une telle structure n'est pas adaptée. Signalons néanmoins que ce réseau de base permet déjà de représenter 89 % du phénomène sur l'ensemble des données (apprentissage et test).
- Réseaux à structure cachée monocouche : en augmentant progressivement le nombre de neurones de 1 à 11 sur une seule couche cachée, nous constatons que l'erreur sur la base d'apprentissage comme sur la base de test diminue, passe par un minimum puis a tendance à augmenter à nouveau. Ce comportement se retrouve sur le coefficient de variation total (**Figure III.10**). Les résultats sont donc bien en accord avec la littérature. Pour une telle structure monocouche, un nombre de neurones cachés optimal de huit apparaît clairement ici. Dans un premier temps, en fixant comme critère de choix un coefficient de variation total ( $\gamma_{tot}$ ) inférieur à 8 % et simultanément un coefficient de variation sur la base de test ( $\gamma_{test}$ ) inférieur à 10 %, plusieurs réseaux sont jugés satisfaisants soit : RN6, RN7, RN8, RN9, RN11. A l'examen des  $\gamma_{tot}$ , nous constatons néanmoins que la structure RN7 n'apporte pas d'amélioration sensible par rapport à la structure RN6. La même remarque peut être faite en comparant les structures RN11 et RN9. Ainsi les structures RN7 et RN11 ne présentent pas de réel intérêt puisqu'elles sont aussi performantes mais plus complexes (nombre de poids supérieur) que les structures RN6 et RN9. Suite à ces observations, nous retenons seulement trois réseaux à structure cachée monocouche dont les principales caractéristiques sont reprises dans le **Tableau III.6**.
- Réseaux à structure cachée bicouches : une série de structures bicouches est testée en faisant varier le nombre total de neurones cachés et le nombre de neurones par couche cachée. En reprenant le même critère de choix que ci-dessus, les structures suivantes peuvent être retenues : RN3/5, RN3/6, RN4/3, RN4/4, RN4/5, RN5/2, RN5/3. En comparant ces structures, nous remarquons qu'elles comportent toutes au total 7 à 8 neurones. Ce nombre correspond à celui qui a donné les meilleurs résultats en structure monocouche et semble être un facteur essentiel à la validité du modèle constitué. Ces structures comportent entre 35 et 42 poids. Le nombre de poids est donc assez variable et ne semble pas déterminant. Il est par contre possible qu'il existe un nombre de poids minimum en dessous duquel les performances du réseau sont diminuées. Enfin, ces structures comportent un nombre de neurones sur la première couche au moins égal au nombre d'entrées. Comme précédemment, après avoir noté que les structures RN3/6 et RN4/5 ne présentent pas d'intérêt par rapport aux structures plus simples RN3/5 et RN4/4, nous retenons les 6 réseaux bicouches cachées présentés dans le **Tableau III.6**.
- Bilan : après cette première sélection (sur les 29 cas étudiés), nous retenons 9 structures susceptibles de représenter de façon satisfaisante l'ensemble des données. Dans la grande majorité des cas (sauf pour RN4/3), les réseaux à structure bicouches apportent une amélioration



**Figure III.10 : détermination du nombre optimal de neurones cachés pour les réseaux à structure monocouche cachée [répartition I; BP].**

Structure de réseau	Nombre de neurones cachés	Nombre de poids	Coefficient de variation $\gamma$ (%)	
			Base de test	Base totale
RN6	6	31	9,5	7,9
RN8	8	41	8,8	7,5
RN9	9	46	9,2	7,8
RN3/5	8	38	9,4	7,4
RN4/3	7	35	9,6	7,6
RN4/4	8	41	8,1	6,8
RN5/2	7	35	9,1	7,0
RN5/3	8	42	9,1	6,9
RN6/2	8	41	9,6	7,3

**Tableau III.6 : récapitulation des caractéristiques des meilleurs réseaux obtenus [répartition I; BP].**



**Figure III.11 : comparaison de l'allure des courbes expérimentale et calculée par le réseau RN4/4 [répartition I; essai 099; BP].**



sensible sur le coefficient de variation total. Dans les cas les plus favorables (RN5/2, RN5/3, RN4/4), ce coefficient de variation total est diminué d'environ 9 % par rapport au meilleur résultat obtenu avec les structures monocouches (RN8). Les coefficients de variation sur la base de test semblent légèrement augmentés mais restent néanmoins proches de 9 %. Compte tenu de ces observations, les structures cachées bicouches semblent être plus performantes que les structures monocouches. Ce phénomène a déjà été remarqué dans d'autres cas de modélisation [ROCHAMIER 1993].

Suite à cette première approche, nous choisissons de nous intéresser plus particulièrement aux trois structures cachées qui donnent les plus faibles coefficients de variation totaux soit RN4/4, RN5/2 et RN5/3 :

- Structure RN4/4 : en comparant les courbes  $R_t = f(t)$  expérimentales et calculées par ce réseau (**Figure III.11**), nous constatons que la structure RN4/4 produit des courbes dont l'allure ne correspond pas à la réalité. En effet, en phase pseudo-stationnaire, les courbes calculées présentent une nette courbure négative qui n'a pas été observée expérimentalement. Cette distorsion gênante nous conduit à rejeter la structure RN4/4, bien qu'elle conduise aux meilleurs coefficients de variation.
- Structures RN5/2 et RN5/3 : malgré un léger avantage pour la structure RN5/3, les résultats obtenus par l'intermédiaire de ces 2 structures sont comparables. Les coefficients de variation atteints sur la base de données totale et sur la base de test sont en effet très voisins. La structure RN5/2 comprenant moins de poids (35 pour RN5/2 et 42 pour RN5/3), il nous semble plus judicieux de retenir la structure RN5/2.

#### • *Validation du modèle*

Rappelons que la structure RN5/2 comporte 7 neurones cachés et 35 poids au total (poids inter-neurones + biais).

En comparant l'ensemble des valeurs expérimentales et calculées sur la base d'apprentissage, nous constatons que le modèle représente parfaitement les données. En effet, les points calculés sont pour la presque totalité très proches des points expérimentaux. Les 5 courbes sont quasiment confondues (**Figure III.12**). Sur les 4 courbes constituant la base de test, celles correspondant aux essais 099, 104 et 109 sont également très bien représentées. Par contre, pour l'essai 105, à partir de 5 min de filtration le modèle sous-estime quelque peu les valeurs expérimentales (**Figure III.13**). Les résultats restent néanmoins très satisfaisants. Notons que l'essai qui est le moins bien représenté correspond aux conditions  $P_{tm} = 2,78$  bar et  $U = 4,3$  m/s et qu'il affiche les résistances hydrauliques les plus élevées de la série d'essais étudiée.

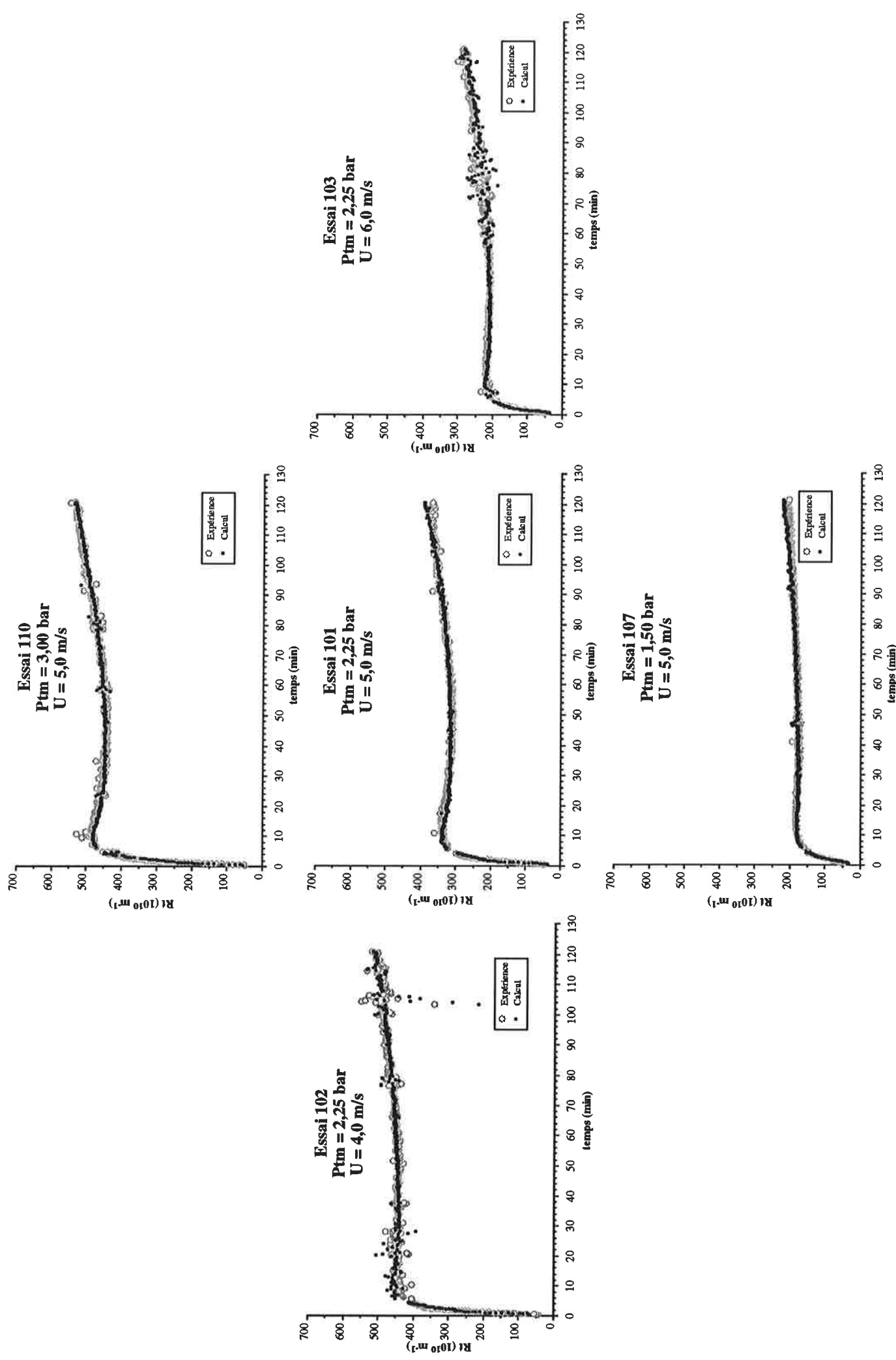


Figure III.12 : comparaison des courbes expérimentales et calculées par le réseau RN5/2 sur la BASE D'APPRENTISSAGE [répartition I; BP].

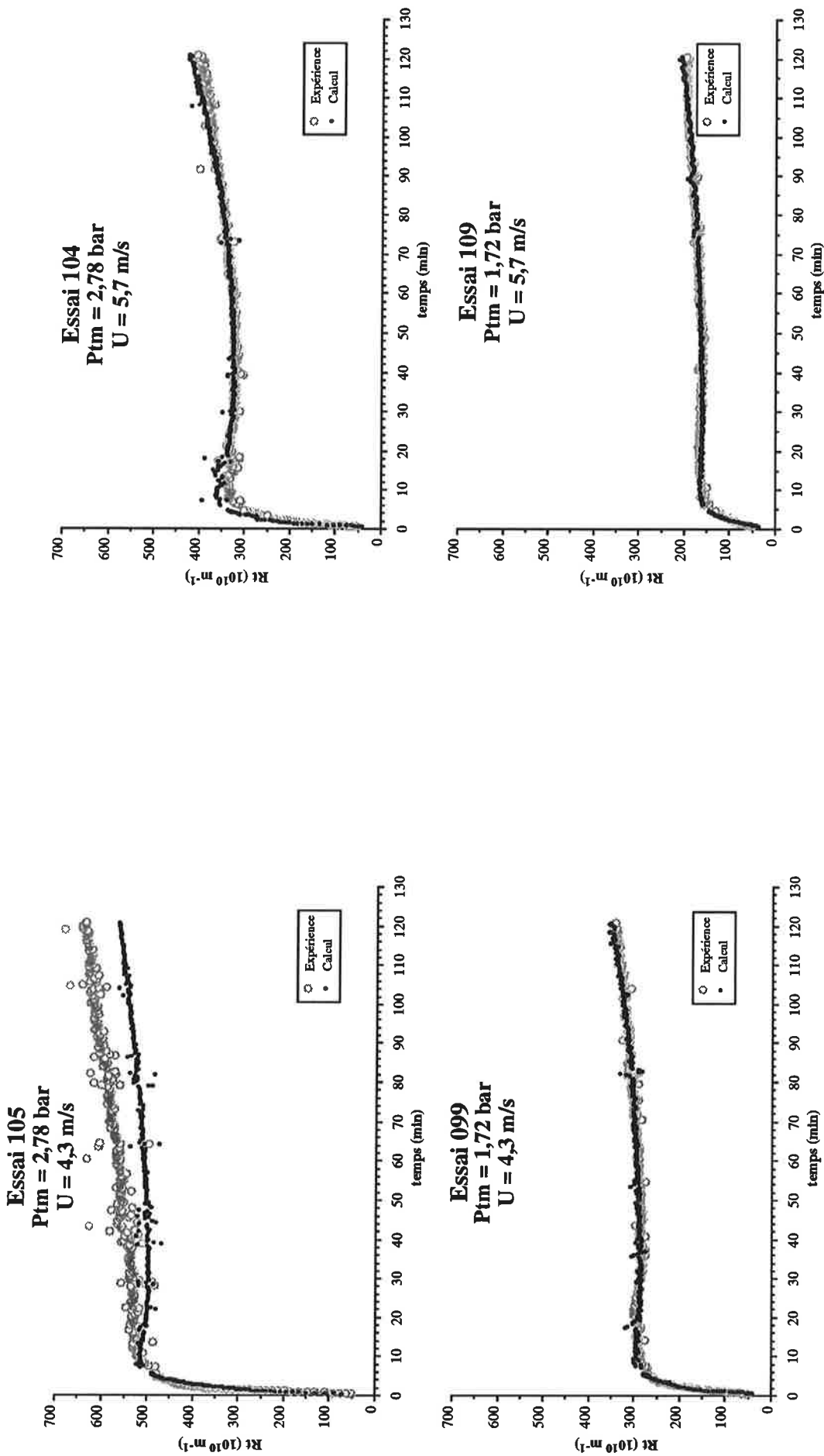


Figure III.13 : comparaison des courbes expérimentales et calculées par le réseau RN5/2 sur la BASE DE TEST [répartition I; BP].

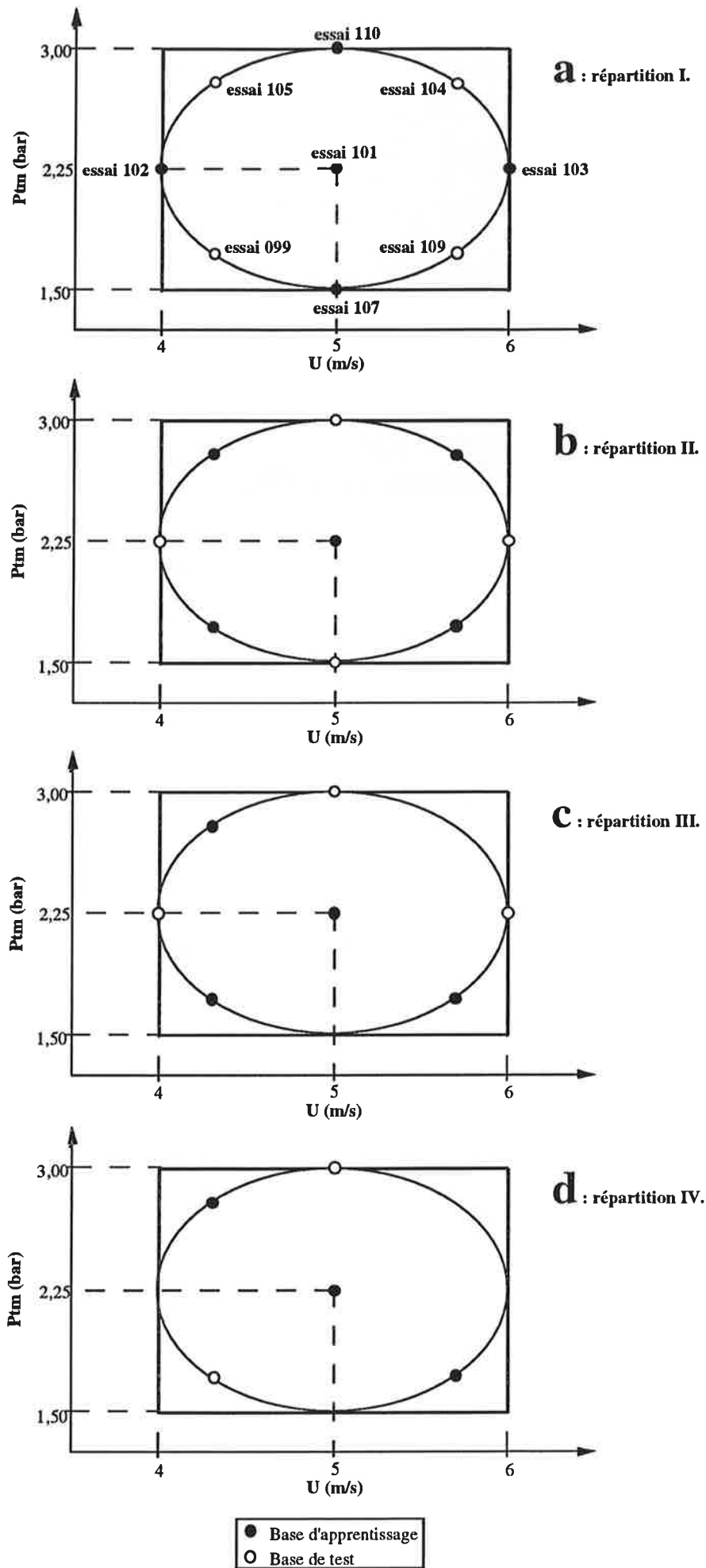


Figure III.14 : représentation schématique des répartitions des données I, II, III et IV.

### III-2.1.2 Influence de la répartition des bases de données

Les objectifs de cette seconde étape sont de mettre en évidence et de quantifier l'effet du choix de la base d'apprentissage sur la qualité de la modélisation, d'estimer le seuil minimum d'informations que doit contenir la base d'apprentissage et de déterminer quelle répartition apprentissage/test est la mieux adaptée en fonction du but recherché.

Nous procéderons à deux études successives. Dans un premier temps, en fixant 5 essais en apprentissage, nous testerons 2 répartitions de base de données différentes. Dans un second temps, nous étudierons l'effet d'une diminution puis d'une augmentation de la quantité d'informations présentée en apprentissage sur la validité du modèle. Pour cette étude, nous nous restreindrons aux deux meilleurs réseaux obtenus précédemment soit RN5/2 et RN5/3.

#### • *Cinq essais en apprentissage*

A partir de la base de données disponible (plan d'expériences central composite), la répartition avec 5 essais en apprentissage offre a priori de nombreux avantages. Pour la phase d'apprentissage, elle permet en effet de :

1. bien représenter tout le domaine paramétrique étudié en choisissant 1 essai au centre et 4 essais régulièrement répartis en périphérie,
2. ne pas favoriser l'information sur un des paramètres au détriment de l'autre (parfaite symétrie par rapport aux 2 paramètres  $P_{tm}$  et  $U$ ).

Pour ces raisons, ce premier type de répartition en apprentissage est choisi.

Comme nous l'avons précédemment souligné, le ratio apprentissage/test doit être au plus égal à 2 (au moins 1/3 des essais dans la base de test). Ainsi, pour 5 essais en apprentissage, il est nécessaire de prévoir au moins 3 essais en test. Dans notre cas, disposant encore de 4 essais (sur les 9 disponibles) nous choisissons de tous les considérer afin d'être le plus représentatif possible de l'espace paramétrique (ratio apprentissage/test = 1,25).

- **Caractéristiques des répartitions étudiées :** la base d'apprentissage de la répartition I (**Figure III.14a**) permet de bien caractériser les effets principaux des 2 paramètres étudiés ( $P_{tm}$  et  $U$ ). En effet, chaque paramètre y intervient à 3 niveaux parfaitement répartis sur le domaine paramétrique (1 niveau au minimum, 1 niveau intermédiaire et 1 niveau maximum). Par contre, elle offre une médiocre représentation des interactions éventuelles entre les 2 paramètres. La base d'apprentissage de la répartition II (**Figure III.14b**) semble mieux adaptée à la représentation des interactions entre les 2 paramètres  $P_{tm}$  et  $U$  mais moins adaptée à la représentation des effets principaux. Compte tenu de ces remarques, le choix d'une de ces 2 répartitions n'est pas évident a priori. Elles sont donc successivement testées sur les 2 réseaux retenus.

REPARTITION	Structure du réseau	Nombre cellules cachées	Nombre de poids	Nombre d'itérations	$\delta$	Erreur moyenne $\bar{E}$ ( $10^{10} \text{ m}^{-1}$ )			Coefficient de variation $\gamma$ (%)			Coefficient de détermination $R^2$ (%)		
						Base app.	Base test	Base totale	Base app.	Base test	Base totale	Base app.	Base test	Base totale
I (5 essais)	RN5/2	7	35	8000	0,01	13,8	29,7	22,4	4,4	9,1	7,0	98,8	96,1	97,4
	RN5/3	8	42	9500	0,01	13,8	29,5	22,3	4,4	9,1	6,9	98,8	96,2	97,4
II (5 essais)	RN5/2	7	35	6000	0,005	20,6	31,6	26,1	6,4	9,9	8,1	97,8	94,8	96,4
	RN5/3	8	42	9000	0,005	15,9	29,2	22,7	4,9	9,2	7,1	98,7	95,6	97,3
III (4 essais)	RN5/2	7	35	17000	0,005	14,7	35,9	25,9	4,6	9,8	7,6	99,2	93,2	97,1
	RN5/3	8	42	16000	0,005	11,6	34,1	23,9	3,6	9,3	7,0	99,5	93,8	97,5
IV (3 essais)	RN5/2	7	35	750	0,005	46,1	52,2	48,6	13,6	14,4	14,0	93,8	80,2	90,9
	RN5/3	8	42	1100	0,005	45,7	51,4	48,0	13,5	14,1	13,8	93,9	80,8	91,1
V (6 essais)	RN5/2	7	35	20000	0,005	9,5	28,9	18,3	2,7	7,7	5,7	99,5	95,4	98,2
	RN5/3	8	42	7000	0,005	18,7	23,4	20,4	5,4	6,2	6,3	98,2	97,0	97,8

Tableau III.7 : influence de la répartition des données en apprentissage sur les résultats [BP].

- Comparaison des résultats : les différents éléments de comparaison entre les 2 répartitions pour les réseaux RN5/2 et RN5/3 sont repris dans le **Tableau III.7**. Pour le réseau RN5/2, nous constatons que la répartition I permet d'atteindre de meilleurs coefficients de variation ( $\gamma$ ) aussi bien sur la base de test que sur la base d'apprentissage. L'utilisation de la répartition I, conduit ainsi à un coefficient de variation total plus faible de 14 % par rapport à la répartition II. Notons cependant que les erreurs moyennes ( $\bar{E}$ ) sont mieux réparties sur la base d'apprentissage et sur la base de test dans la cas de la répartition II (erreur moyenne test / erreur moyenne apprentissage = 2,2 et 1,5 pour les répartitions I et II, respectivement). Pour le réseau RN5/3, les coefficients de variation obtenus suite aux traitements des répartitions I et II sont par contre très voisins. En ce qui concerne la répartition de l'erreur, nous constatons comme ci-dessus une amélioration dans le cas de la répartition II (erreur moyenne test / erreur moyenne apprentissage = 2,1 et 1,8 pour les répartitions I et II, respectivement). En comparant les courbes obtenues dans les 2 cas, nous constatons finalement que l'erreur est mieux répartie sur la base de test avec la répartition II. Pour la répartition I, une seule des 4 courbes de la base de test est particulièrement mal représentée alors que les autres le sont parfaitement. Dans le cas de la répartition II, la même erreur est globalement effectuée sur l'ensemble de la base de test mais sa répartition est beaucoup plus homogène sur l'ensemble des courbes.
- Bilan : ces constatations montrent que le choix de la répartition des données a une influence significative sur les résultats. En effet, les 2 répartitions étudiées ici qui sont finalement assez proches l'une de l'autre (même quantité d'informations en apprentissage et en test, 4 essais en périphérie et 1 au centre du domaine paramétrique pour l'apprentissage), conduisent à des résultats différents. Le choix d'une de ces répartitions plutôt qu'une autre n'est néanmoins pas évident. Malgré les plus médiocres résultats obtenus avec le réseau RN5/2, l'utilisation de la répartition II nous paraît quand même plus satisfaisante. En effet elle permet d'obtenir une meilleure répartition de l'erreur sur l'ensemble des données. Finalement, le réseau RN5/2 semble beaucoup moins robuste que le réseau RN5/3 puisque ses performances dépendent de façon plus marquée de la répartition des données en apprentissage.

- *Diminution de la quantité de données en apprentissage*

Comme nous venons de le montrer, une répartition avec 5 essais sur 9 en apprentissage donne des résultats très satisfaisants. Dans le but de déterminer la quantité d'informations minimale nécessaire, nous avons également étudié l'effet d'une diminution du nombre de données présentées au réseau durant la phase d'apprentissage.

- Quatre essais en apprentissage : il est nécessaire de disposer dans la base d'apprentissage d'essais au centre et en périphérie du domaine paramétrique (afin de conserver une correcte représentation

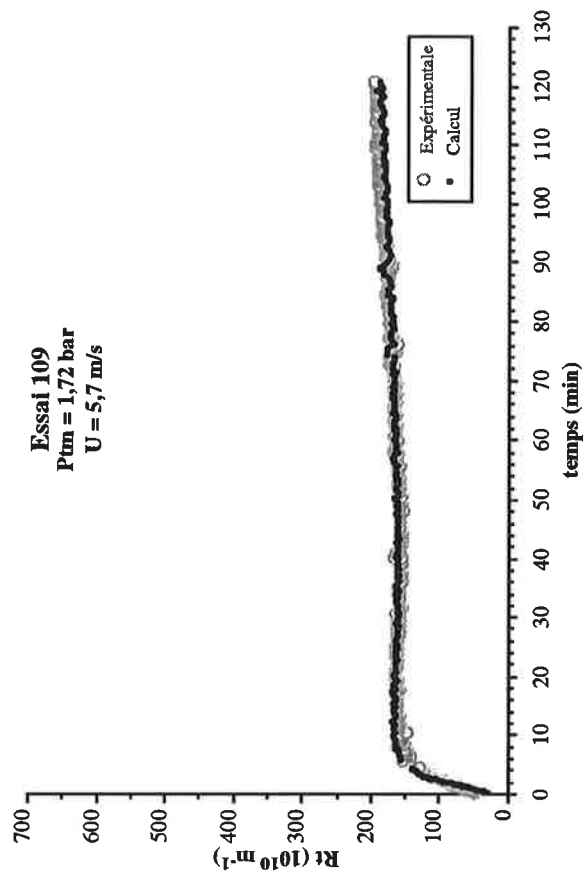
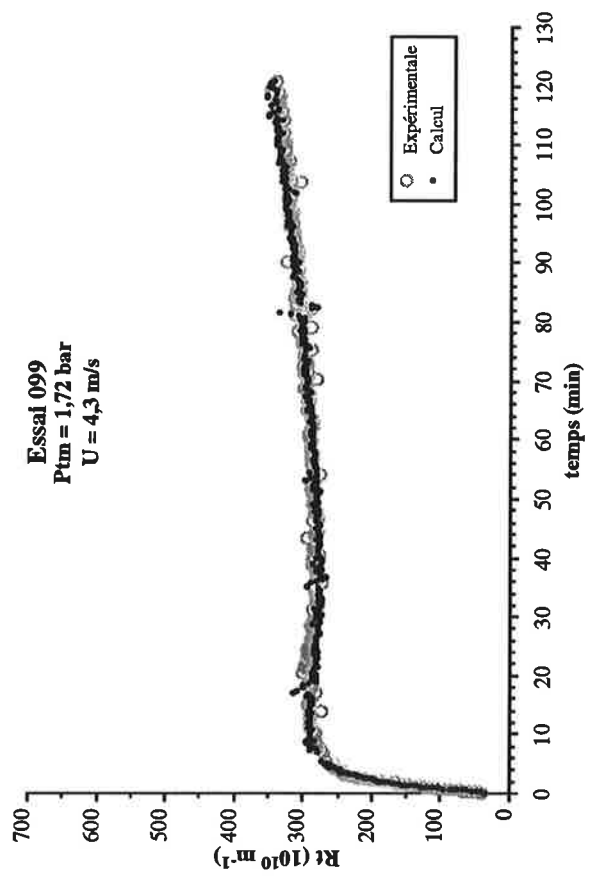
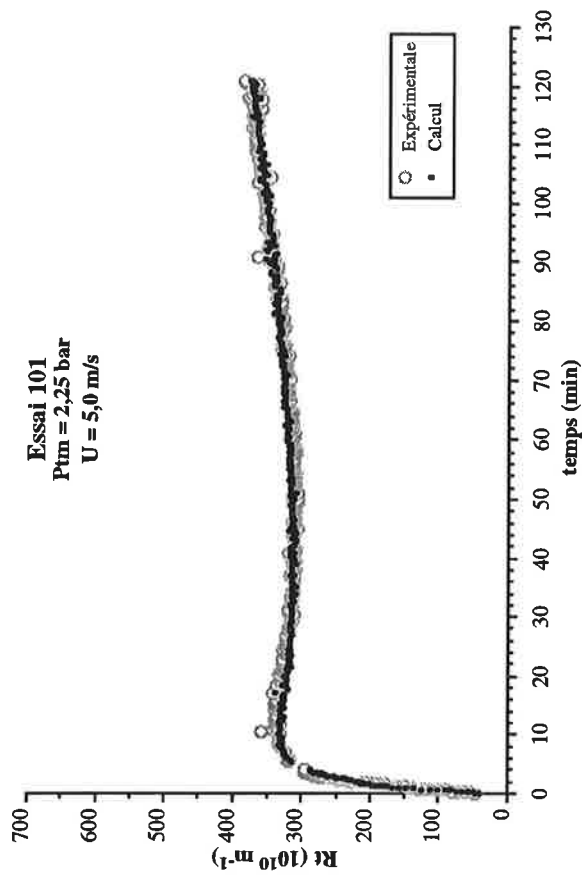
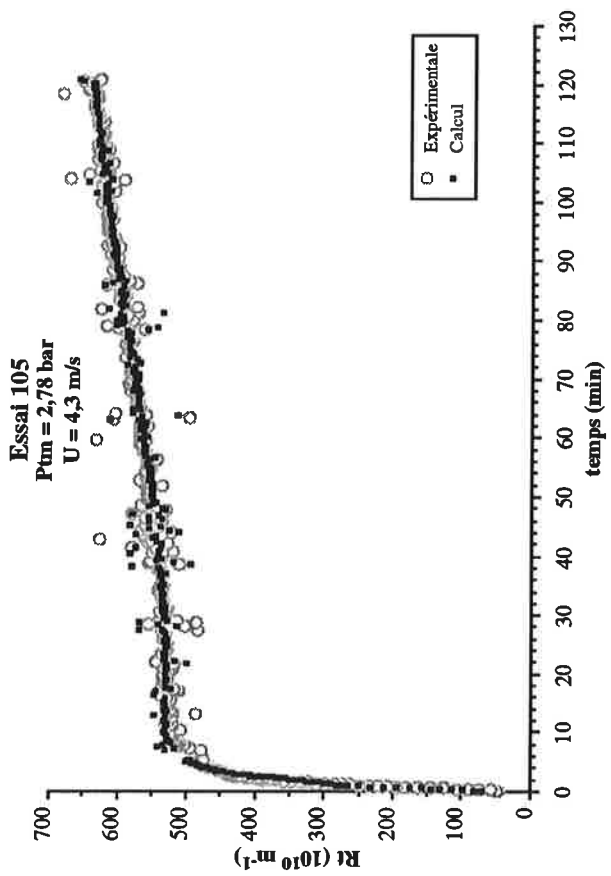


Figure III.15 : comparaison des courbes expérimentales et calculées par le réseau RNS/3 sur la BASE D'APPRENTISSAGE [répartition III; BP].



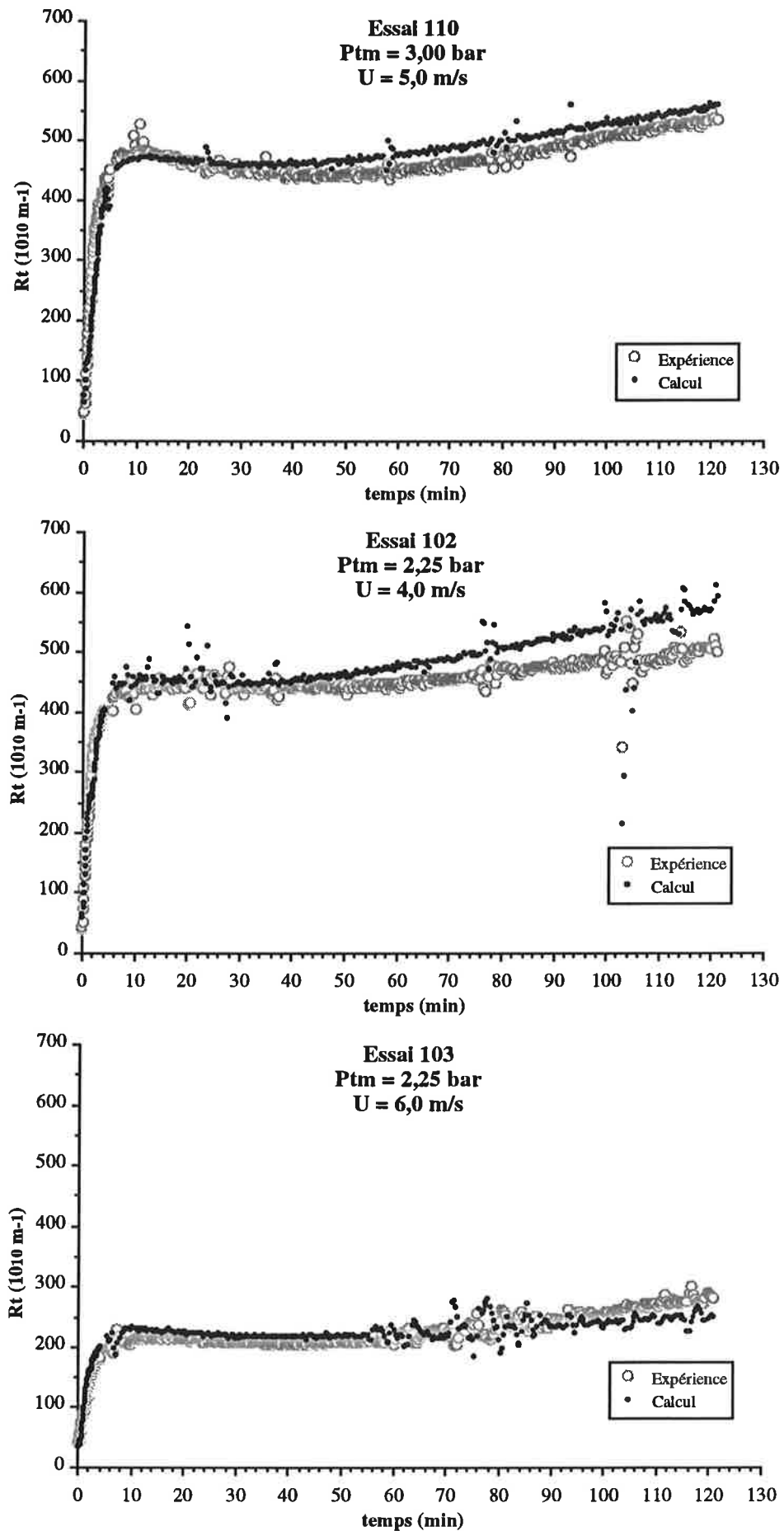
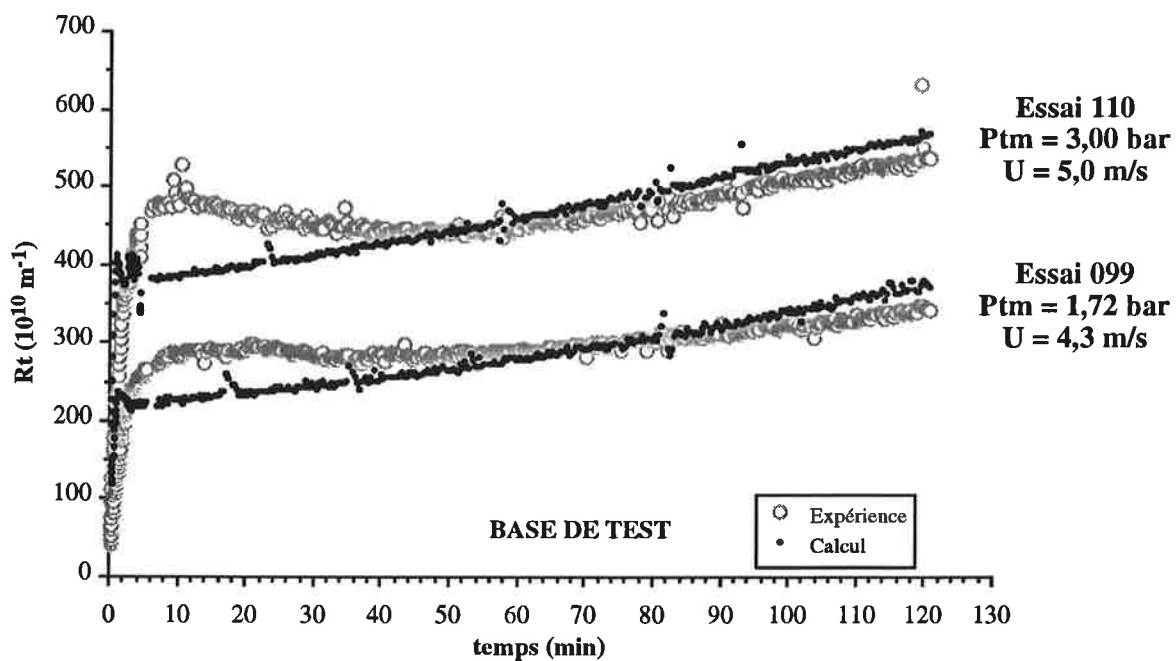
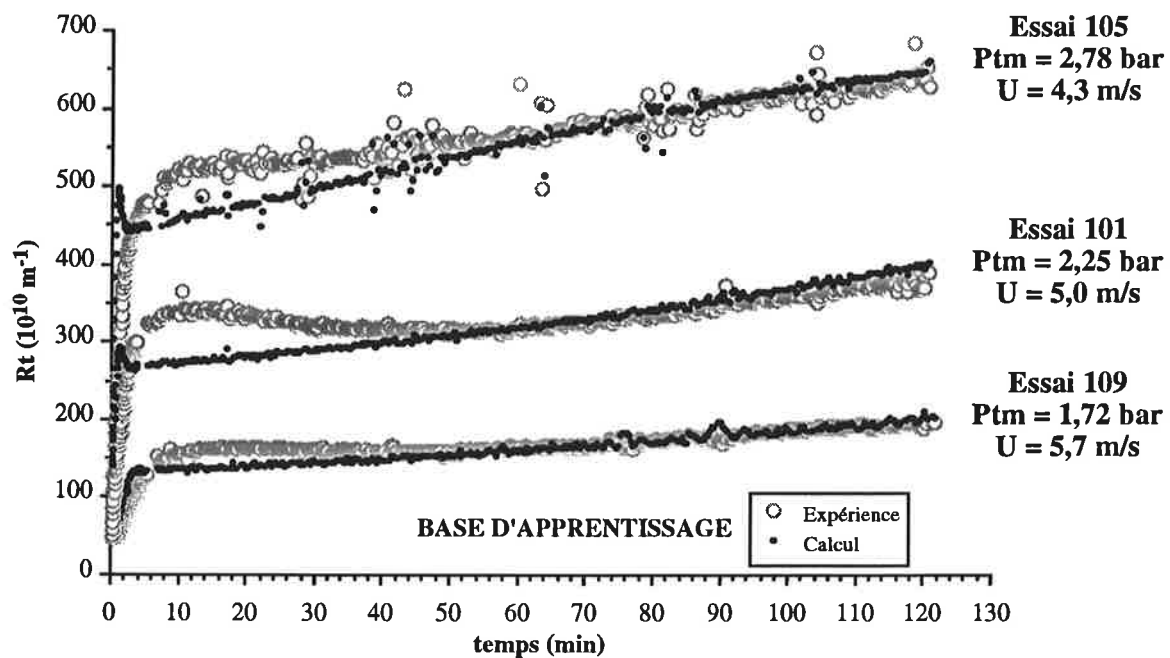


Figure III.16 : comparaison des courbes expérimentales et calculées par le réseau RN5/3 sur la BASE DE TEST [répartition III; BP].



**Figure III.17: comparaison des courbes expérimentales et calculées par le réseau RN5/3 [répartition IV; BP].**

de l'espace des paramètres). Comme vu précédemment, une répartition favorisant la représentation des interactions est plutôt favorable en apprentissage. Nous choisissons donc la répartition notée III schématisée sur la **Figure III.14c**. Notons que cette répartition ne couvre pas la totalité du domaine paramétrique étudié et qu'elle est plus représentative de la région faibles pressions / faibles vitesses. Afin de conserver un ratio apprentissage/test équivalent à ceux utilisés ci-dessus, 3 essais sont utilisés en test (ratio apprentissage/test = 1,3). Pour le réseau RN5/2, en comparant les coefficients de variation avec les meilleurs obtenus précédemment (répartition I), nous constatons que la répartition III conduit à des erreurs plus élevées (**Tableau III.7**). Néanmoins une diminution de 20 % de l'information présentée en apprentissage se traduit par une augmentation de seulement 9 % de l'erreur totale. Les résultats obtenus avec 4 essais en apprentissage restent donc acceptables. Pour le réseau RN5/3, les coefficients de variation obtenus avec 4 essais en apprentissage (répartition III) sont tout à fait comparables à ceux obtenus avec 5 essais en apprentissage (répartitions I et II). Dans ce cas, la diminution de l'information présentée ne se traduit par aucun effet sur l'erreur. En visionnant les courbes (**Figures III.15 et III.16**), nous constatons comme précédemment une bonne représentation des divers essais.

- Trois essais en apprentissage : à partir de la base de données disponible et toujours dans le souci d'être au mieux représentatif du domaine paramétrique exploré, la répartition IV représentée sur la **Figure III.14d** est choisie. Pour la même raison que celle énoncée ci-dessus, 2 essais sont utilisés en test (ratio apprentissage/test = 1,5). Pour les 2 réseaux étudiés, nous constatons dans le **Tableau III.7** que les erreurs sont très fortement augmentées car multipliées environ par un facteur 2 par rapport aux résultats précédemment obtenus. Les coefficients de variation passent ainsi à des valeurs proches de 14 % aussi bien en apprentissage qu'en test. Les résultats sont donc médiocres et ne sont plus satisfaisants pour la modélisation dynamique du colmatage. Après examen des différentes courbes (**Figure III.17**), nous constatons néanmoins que le modèle traduit bien l'évolution du colmatage membranaire en phase pseudo-stationnaire. Ainsi, bien que la première partie des courbes soit mal représentée, cette base d'apprentissage contenant seulement 3 essais permet d'évaluer avec une bonne précision, la résistance hydraulique totale et son évolution dans le temps, au delà de 60 min de filtration.
- Bilan : suite à ces résultats, une répartition avec 4 essais en apprentissage semble suffisante pour obtenir une bonne représentation de l'ensemble des données. En effet, nous n'avons pas (dans le cas du réseau RN5/3) ou peu (dans le cas du réseau RN5/2) observé d'augmentation de l'erreur par rapport à une répartition comprenant 5 essais en apprentissage. Notons qu'il serait plus favorable de disposer d'une répartition qui soit plus représentative de l'ensemble du domaine paramétrique. Celle qui est représentée sur la **Figure III.18** serait une répartition probablement mieux adaptée que celle utilisée pour notre étude. Etant alors suffisant de ne considérer que 2 essais pour la base de test, 6 essais expérimentaux au total seraient suffisants pour obtenir les résultats escomptés. Une répartition comprenant seulement 3 essais en apprentissage ne permet pas une bonne représentation de l'ensemble des courbes expérimentales. Néanmoins, elle est

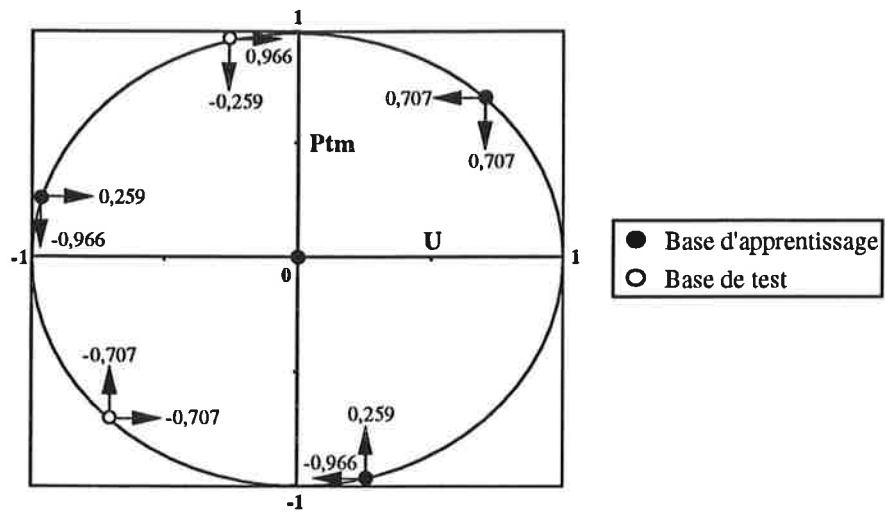


Figure III.18 : représentation schématique du plan d'expériences proposé avec 4 essais en apprentissage (coordonnées codées entre +1 et -1).

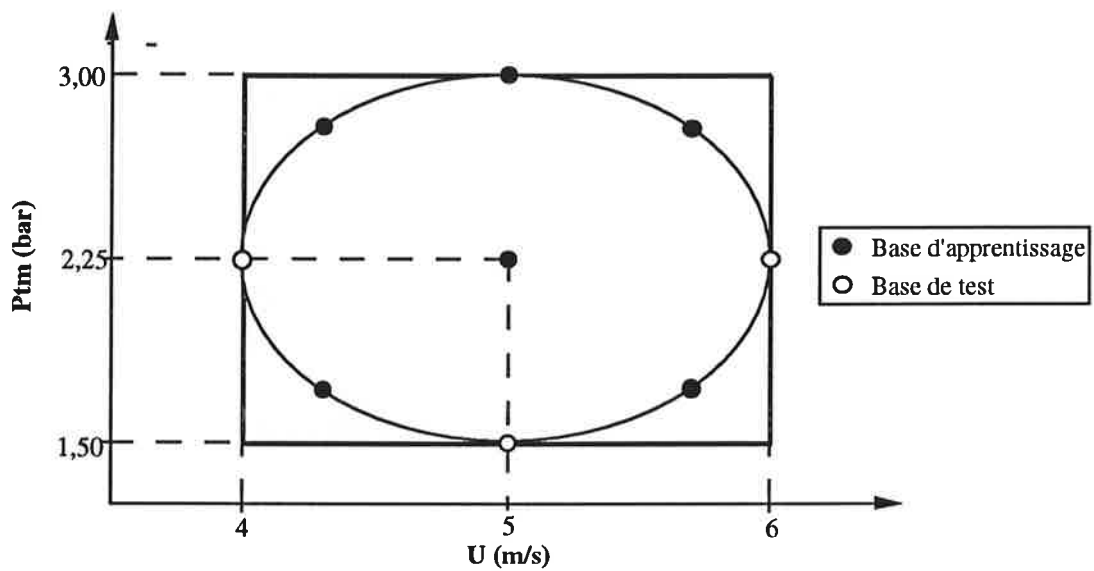


Figure III.19 : représentation schématique de la répartition V.

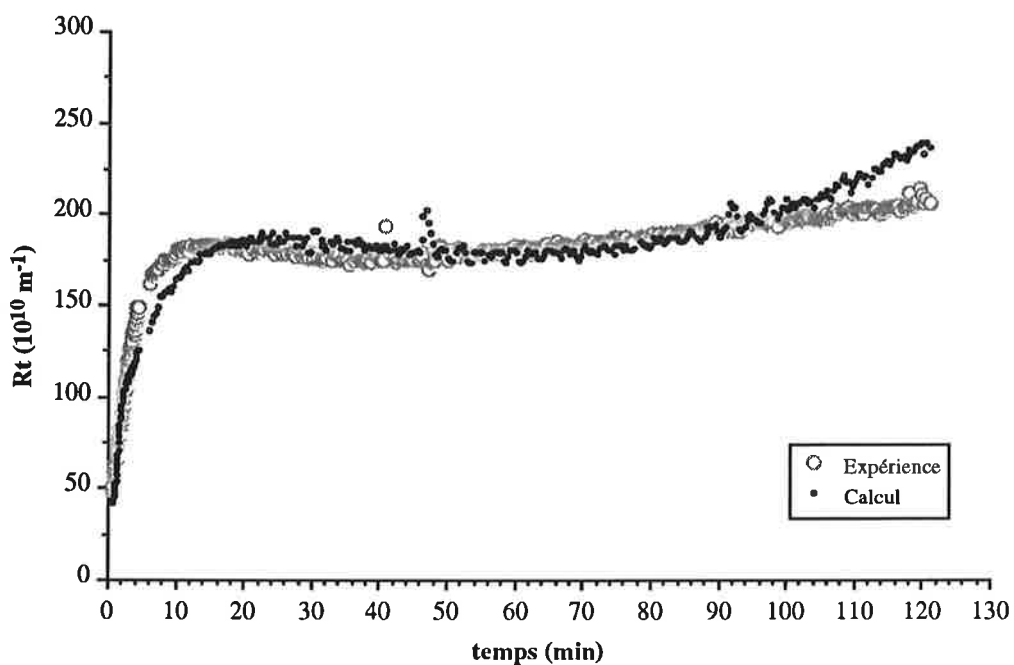


Figure III.20 : comparaison de l'allure des courbes expérimentales et calculées par le réseau RN5/3 [répartition V; essai 107; BP].

suffisante pour décrire de façon satisfaisante l'évolution de la résistance hydraulique totale en phase pseudo-stationnaire et ce sur tout le domaine de  $P_{tm}$  et  $U$  balayé. Remarquons enfin que, dans les 2 cas étudiés ici, le réseau RN5/2 conduit à de moins bons résultats que le réseau RN5/3 ce qui confirme la tendance déjà mise en évidence avec les répartitions I et II (5 essais en apprentissage).

- *Augmentation de la quantité de données en apprentissage*

L'objectif est, dans ce cas, de quantifier l'effet d'une augmentation de la quantité d'informations présentée au réseau en phase d'apprentissage sur la validité du modèle. Pour cela, la répartition V est choisie (**Figure III.19**). Cette dernière répartition est constituée en apprentissage des mêmes essais que ceux utilisés dans la répartition II, plus un essai supplémentaire soit au total 6 essais pour la base d'apprentissage. Compte tenu des données disponibles, les 3 essais restant sont utilisés pour la base de test (ratio apprentissage/test = 2).

A l'analyse des coefficients de variation (**Tableau III.7**), nous constatons une amélioration significative des performances des 2 réseaux étudiés. Ainsi l'erreur moyenne totale est diminuée de 8 à 18 % par rapport aux meilleurs résultats obtenus précédemment. Les modèles constitués semblent ainsi nettement meilleurs. A l'examen des diverses courbes obtenues pour le réseau RN5/3, nous constatons qu'elles sont toutes correctement représentées. Cependant, les courbes simulées présentent dans certains cas une nette courbure positive qui n'a pas été observée expérimentalement (**Figure III.20**). Ainsi, bien que l'erreur moyenne de prédiction soit améliorée par rapport aux répartitions vues précédemment, les résultats obtenus ici ne sont pas plus satisfaisants (introduction d'une distorsion gênante dans l'allure des courbes).

Notons que le réseau RN5/3 permet une répartition plus homogène de l'erreur sur les bases d'apprentissage et de test (erreur moyenne test / erreur moyenne apprentissage = 3,0 et 1,3 pour les réseaux RN5/2 et RN5/3, respectivement) ce qui lui confère ici encore l'avantage.

Les principales conclusions issues de cette partie sont regroupées à la fin du chapitre.

### **III-2.2 Filtrations à conditions opératoires variables au cours du temps**

Les conditions industrielles de filtration imposent souvent un comportement des conditions opératoires variable dans le temps. Il est donc particulièrement intéressant d'étudier l'applicabilité des réseaux de neurones à ce type d'essai.

En nous retraçant uniquement aux réseaux de neurones avec entrée explicite du temps, deux séries de données ont été successivement traitées. La première correspond à des résultats obtenus lors de filtrations réalisées à conditions variables durant la phase de démarrage (premières minutes de

Essai	Lot de sucre	Mode de démarrage	Durée d'enregistrement (min)	nombre de quadruplets [t,Ptm,U,Rt]
100	4	Brusque	130	438
101	4	Brusque	127	416
117	5	lent, faibles U, Ptm à t=0	196	396
122	5	très lent	181	353
123	5	très lent	183	345
124	5	lent	102	399
126	5	lent	137	272
127	5	lent Jf < 100 L/(h.m <sup>2</sup> )	141	274
128	5	Brusque	125	250
129	5	lent Jf < 80 L/(h.m <sup>2</sup> )	161	318

**Tableau III.8 : caractéristiques des enregistrements utilisés pour l'étude de la modélisation en conditions variables au démarrage par les réseaux de neurones.**

Répartition	Essais constituant la base d'apprentissage	Essais constituant la base de test
DEM <sub>A</sub>	117 - 123 - 126 - 129	122 - 124 - 127
DEM <sub>B</sub>	117 - 123 - 126 - 127	122 - 124 - 129
DEM <sub>C</sub>	100 - 101 - 117 - 123 - 126 - 127	122 - 124 - 129

**Tableau III.9 : diverses répartitions des essais dans les bases d'apprentissage et de test pour la modélisation des filtrations à conditions variables lors du démarrage.**

l'opération). La seconde se compose de filtrations durant lesquelles un échelon de pression transmembranaire et/ou de vitesse tangentielle a été effectué en cours d'opération.

### III-2.2.1 Variation de $P_{tm}/U$ au démarrage

Les données présentées dans ce paragraphe sont traitées par le logiciel BP en utilisant le meilleur réseau de neurones obtenu lors de l'étude à conditions constantes soit RN5/3.

- *Base de données*

Les résultats traités dans cette partie correspondent à des filtrations réalisées avec une augmentation plus ou moins progressive de  $P_{tm}$  et  $U$  au début de la filtration. La base de données comprend une sélection de 10 expériences issues de l'étude du mode de démarrage qui sera décrite plus en détail dans un chapitre ultérieur. Ces expériences ne se différencient les unes des autres que par le mode de démarrage. La membrane utilisée est la membrane MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$ , le produit la solution de sucre roux à 60 gMS/100g (lots 4 et 5), le système sans circulation de filtrat et la température de traitement 80 °C.

Chaque enregistrement représente comme précédemment l'évolution de  $R_t = f(t)$ . Pour les modes de démarrage lents, les conditions de  $P_{tm}$  et  $U$  sont variables durant la phase de démarrage. Les différents enregistrements ne sont pas homogènes aussi bien en durée qu'en nombre de quadruplets  $[t, P_{tm}, U, R_t]$  (**Tableau III.8**).

Différentes répartitions de données entre la base d'apprentissage et la base de test sont utilisées en intégrant ou non, des essais à conditions constantes parmi ceux obtenus à conditions variables. Les principales caractéristiques des bases de données utilisées sont reprises dans le **Tableau III.9**. Les répartitions  $DEM_A$  et  $DEM_B$  ne se constituent que d'essais réalisés en démarrage lent. Elles permettent une bonne représentativité des différentes procédures de démarrage lent disponibles sur la base d'apprentissage. Pour la répartition  $DEM_A$ , la base de test contient 2 essais sur 3 qui sont proches de ceux constituant la base d'apprentissage (essais 124 et 127). Par contre, pour la répartition  $DEM_B$ , la base de test contient 2 essais sur 3 significativement différents de ceux de la base d'apprentissage (essais 122 et 129). La troisième répartition choisie (répartition  $DEM_C$ ) correspond à la répartition  $DEM_A$  complétée par des essais obtenus en démarrage brusque.

Notons que les bases de données utilisées n'ont pas été constituées dans le but précis de cette étude. Elle ne sont donc certainement pas optimales pour l'utilisation des réseaux de neurones dans de telles conditions.

REPARTITION	Initialisation des poids	Nombre d'itérations	$\delta$	Erreur moyenne $\bar{E}$ (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )			Coefficient de variation $\gamma$ (%)			Coefficient de détermination $R^2$ (%)		
				Base app.	Base test.	Base tot.	Base app.	Base test.	Base tot.	Base app.	Base test.	Base tot.
DEMA (démarrages lents)	au hasard	24500	0,01	35,0	46,8	40,6	13,0	17,6	15,1	92,8	81,4	88,8
	conditions constantes	14000	0,01	33,4	44,9	38,8	12,4	16,8	14,5	93,5	82,9	89,8
DEMB (démarrages lents)	au hasard	10000	0,005	39,2	48,2	43,5	14,4	18,3	16,2	90,3	82,8	87,2
	conditions constantes	350	0,005	39,2	47,4	43,1	14,4	17,9	16,1	90,3	83,4	87,4
DEMC (démarrages lents et brusques)	au hasard	10000	0,005	50,1	49,6	49,9	17,5	18,0	17,7	80,9	74,5	79,0
	conditions constantes	5000	0,005	42,7	52,4	46,5	14,9	19,0	16,5	86,1	71,6	81,7

Tableau III.10 : résultats obtenus pour les différentes répartitions de données testées en conditions variables au cours du démarrage [RN5/3; BP].



- *Vérification de la nécessité d'un apprentissage en conditions variables*

Cette étude a pour but de vérifier si une validation du modèle en conditions variables à partir d'un apprentissage en conditions constantes est envisageable. Les poids obtenus lors de l'apprentissage à conditions constantes (répartition I avec 5 essais en apprentissage) sont utilisés pour la modélisation des courbes correspondant aux essais effectués à conditions variables (répartition DEM<sub>A</sub>).

Les coefficients de variation obtenus sont très médiocres. La visualisation des courbes montre que le modèle élaboré à conditions constantes ne permet pas de représenter de façon satisfaisante les essais à conditions variables, en particulier lors de la première phase du démarrage. Plusieurs explications en sont probablement la cause. Tout d'abord, les pressions et vitesses rencontrées lors de la première phase des démarrages lents, n'ont pas été présentées au réseau pendant l'apprentissage. Le modèle fonctionne donc en totale extrapolation (conditions opératoires très en dehors des limites du domaine paramétrique appris). Enfin, la série de données présentée en apprentissage n'a pas subi la même standardisation que la série de données correspondant aux démarrages lents (moyennes et écarts maximums à la moyenne différents pour les deux séries de données).

Suite à ces résultats, un nouvel apprentissage avec des essais obtenus en conditions variables semble donc nécessaire pour assurer une bonne représentation des différentes courbes.

- *Apprentissage en conditions variables*

L'utilisation du réseau passe donc par une phase d'apprentissage d'essais à conditions variables. Les calculs sont effectués en initialisant les poids du réseau soit au hasard (5 tirages aléatoires), soit en utilisant les poids obtenus lors de l'étude à conditions constantes (répartition avec 5 essais en apprentissage).

Les résultats sont présentés dans le **Tableau III.10**. Pour les répartitions testées, nous constatons que les coefficients de variation totaux sont nettement plus élevés que ceux atteints lors de l'étude des essais à conditions constantes ( $\gamma_{\text{tot}} > 14,5 \%$ ). L'initialisation des poids avec les valeurs obtenues précédemment (essais à conditions constantes) permet une convergence plus rapide et améliore quelque peu les résultats.

Comme nous pouvions nous y attendre, les résultats issus du traitement de la répartition DEM<sub>A</sub> sont meilleurs que ceux obtenus avec la répartition DEM<sub>B</sub>. La plus grande ressemblance des bases de test et d'apprentissage de la répartition DEM<sub>A</sub> en est vraisemblablement l'explication. La visualisation des courbes simulées par le réseau montre qu'elles suivent correctement l'allure des courbes expérimentales (**Figures III.21 et III.22**). Dans l'ensemble, les courbes sont donc représentées de façon satisfaisante aussi bien durant la phase de démarrage qu'après établissement du régime

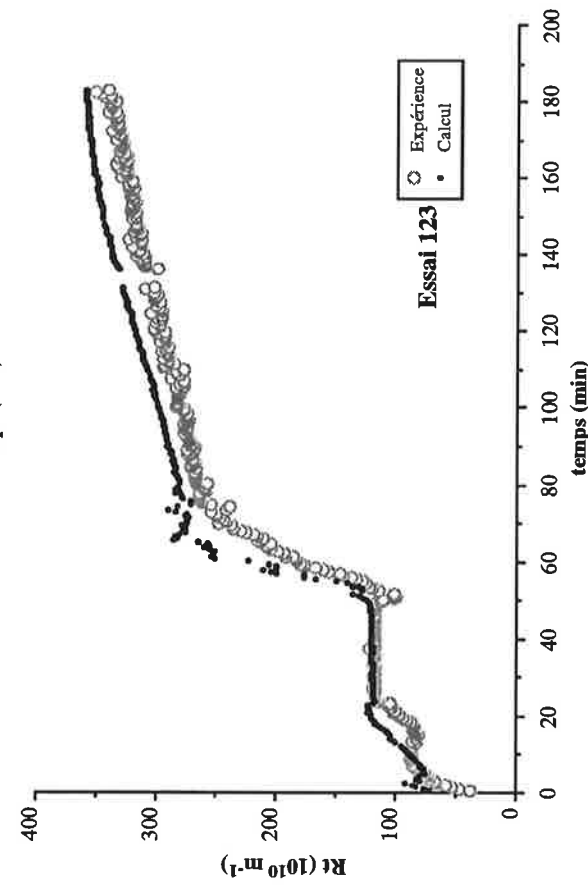
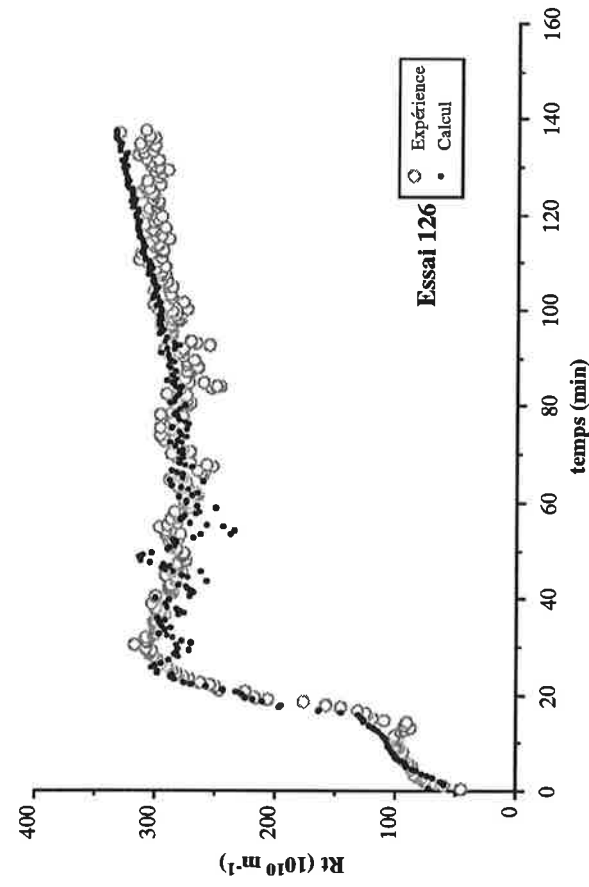
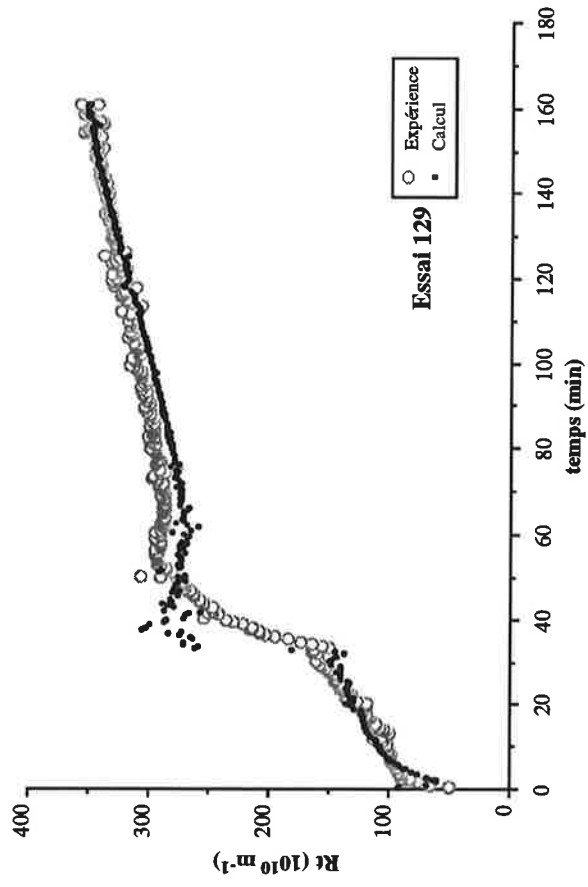
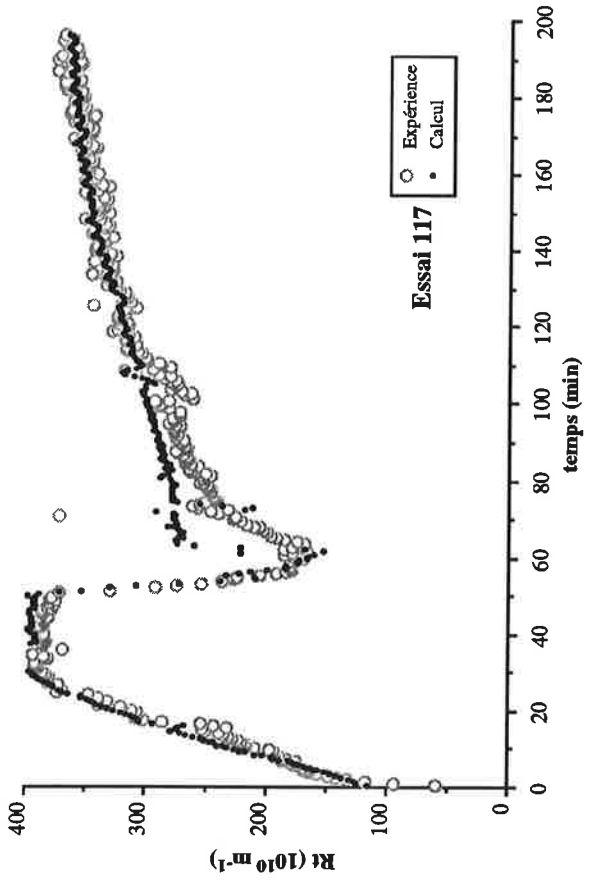


Figure III.21 : comparaison des courbes expérimentales et calculées par le réseau RN5/3 sur la BASE D'APPRENTISSAGE [répartition DEM<sub>A</sub>; BP].

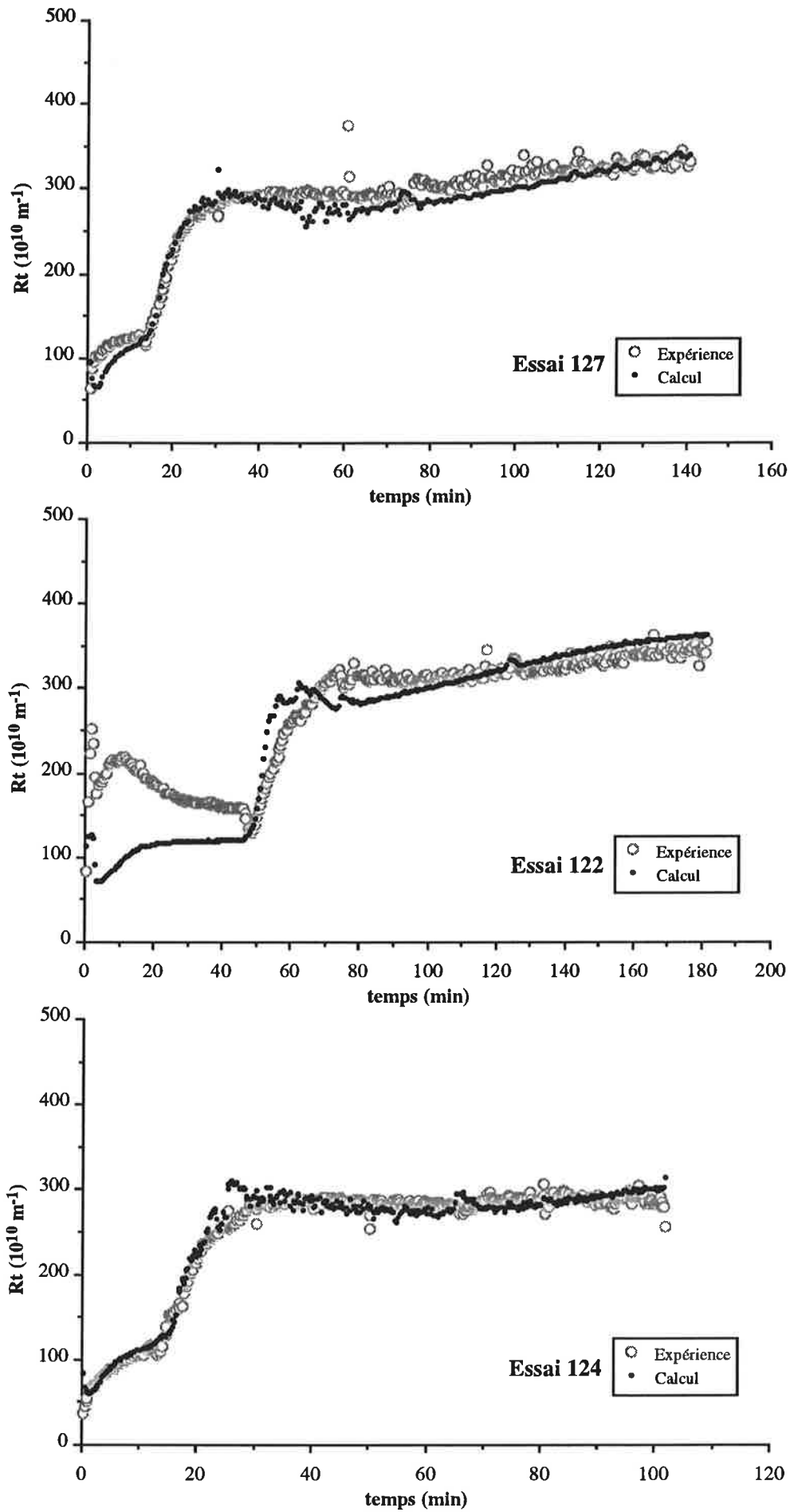


Figure III.22 : comparaison des courbes expérimentales et calculées par le réseau RN5/3 sur la BASE DE TEST [répartition  $DEM_A$ ; BP].

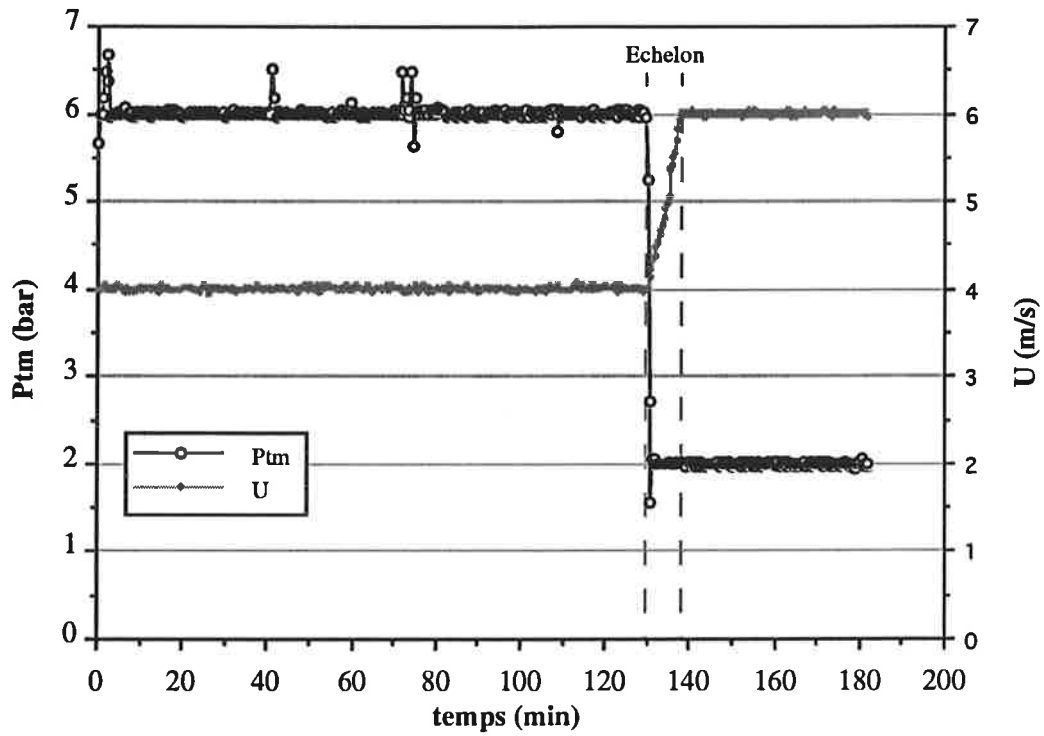


Figure III.23: exemple d'évolution de la pression transmembranaire (Ptm) et de la vitesse tangentielle (U) au cours d'un échelon [sucre (lot 8)/membrane d'ultrafiltration; essai 173].

pseudo-stationnaire. Seule la première partie de la courbe correspondant à l'essai 122 est mal traduite avec une sous-estimation de la résistance hydraulique pour les 50 premières minutes de la filtration. Aucune hypothèse satisfaisante n'a pu être avancée pour expliquer ce défaut de représentation.

Pour la répartition  $DEM_C$ , les coefficients de variation obtenus sont moins bons que ceux vus ci-dessus. En visualisant les diverses courbes, nous constatons que les essais avec démarrage lent sont dans l'ensemble assez bien représentés alors que ceux avec démarrage brusque le sont moins bien (sous estimation de  $R_t$  en phase pseudo-stationnaire). Il semble donc que le réseau ne parvienne pas à représenter simultanément les 2 types de démarrage. Il manque probablement dans la base de données des essais effectués dans des conditions intermédiaires de démarrage. Les deux procédures de démarrage se différencient par un phénomène de type "tout ou rien" (démarrage lent ou non). Il pourrait être envisagé d'indiquer au réseau en entrée, le type de démarrage utilisé (par exemple : démarrage brusque = 0, démarrage lent = 1). Enfin, la structure cachée du réseau RN5/3 n'est peut-être pas la mieux adaptée pour représenter simultanément les deux modes de démarrage.

#### • *Bilan*

Un réseau direct avec entrée explicite du temps permet de représenter de façon satisfaisante l'évolution de la résistance hydraulique totale au cours de filtrations réalisées à conditions de  $P_{tm}$  et  $U$  variables lors de la phase de démarrage. La capacité des modèles connectionnistes à intégrer les effets complexes des variations de conditions opératoires sur le colmatage membranaire semble donc bien vérifiée.

L'initialisation des poids du réseau avant apprentissage avec des valeurs prédéterminées permet un gain de temps de calcul considérable et une amélioration sensible des résultats.

Dans le cas spécifique traité, un apprentissage effectué avec des essais à conditions constantes ne donne pas de bons résultats lors d'une validation sur des essais à conditions variables. Un apprentissage avec des essais à conditions variables est donc indispensable. De plus, le modèle utilisé n'a pas permis de représenter correctement à la fois des essais effectués en démarrage brusque et en démarrage lent. Bien que les résultats obtenus soient très encourageants, il semble indispensable de valider ce type de modèle en utilisant des bases de données plus complètes et mieux adaptées. L'utilisation de réseaux avec entrée implicite du temps pourrait être également envisagée dans ce cadre.

Essai	Conditions initiales		Conditions finales		Type d'échelon (effectué à environ 65 min)
	Ptm (bar)	U (m/s)	Ptm (bar)	U (m/s)	
148	2,50	7,5	—	—	sans échelon
149	4,00	7,5	2,50	6,5	-Ptm/-U
150	2,50	6,5	4,00	7,5	+Ptm/+U
151	4,00	6,5	2,50	7,5	-Ptm/+U
152	3,25	7,0	4,00	7,0	+Ptm

**Tableau III.11 : caractéristiques des échelons de la base de données GV: gomme / MEMBRALOX 1,4  $\mu$ m sans circulation de filtrat, 70 °C, démarrage brusque.**

Essai	Conditions initiales		Conditions finales		Type d'échelon (effectué à environ 125 min)
	Ptm (bar)	U (m/s)	Ptm (bar)	U (m/s)	
142	0,50	5,00	—	—	sans échelon
143	0,50	5,00	—	—	sans échelon
144	0,28	5,71	—	—	sans échelon
145	0,57	5,98	—	—	sans échelon
161	0,79	5,26	0,21	4,74	-Ptm/-U
162	0,71	4,29	0,29	5,71	-Ptm/+U
163	0,42	4,03	0,58	5,97	+Ptm/+U
164	0,21	4,71	0,79	5,26	+Ptm/+U

**Tableau III.12 : caractéristiques des échelons de la base de données SSV: sucre (lot 7t) / MEMBRALOX 1,4  $\mu$ m avec circulation de filtrat, 80 °C, démarrage lent.**

Essai	Conditions initiales		Conditions finales		Type d'échelon (effectué à environ 125 min)
	Ptm (bar)	U (m/s)	Ptm (bar)	U (m/s)	
169	4,0	5,0	—	—	sans échelon
171	6,0	6,0	—	—	sans échelon
172	2,0	4,0	6,0	6,0	+Ptm/+U
173	6,0	4,0	2,0	6,0	-Ptm/+U
174	2,0	6,0	6,0	4,0	+Ptm/-U
175	5,0	5,5	2,0	4,0	-Ptm/-U
167	Ptm augmentée en paliers successifs d'environ 0,5 bar (toutes les 15 min) de 2,2 à 5,6 bar et U maintenue à 5,0 m/s				

**Tableau III.13 : caractéristiques des échelons de la base de données SKV: sucre (lot 8) / membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat, 80 °C, démarrage brusque.**

### III-2.2.2 Echelon Ptm/U en cours de filtration

- *Base de données*

Dans le but de récupérer le maximum d'informations en un minimum d'essais expérimentaux, nous avons choisi d'effectuer des échelons de pression transmembranaire et de vitesse tangentielle simultanés. Après un certain temps de filtration dans des conditions initiales de Ptm et U, les consignes sont modifiées à des valeurs dites finales (**Figure III.23**). Le passage des valeurs initiales aux valeurs finales est effectué automatiquement grâce à une programmation adéquate de l'automate. Si nécessaire, l'intervention directe de l'opérateur permet d'accélérer la procédure afin d'assurer une transition brusque de type échelon. Nous notons -Ptm ou -U les échelons négatifs (diminution) et +Ptm ou +U les échelons positifs (augmentation).

Le choix des échelons à effectuer pour assurer une représentation globale de l'effet des variations de Ptm et U sur les résultats est délicat. D'une part, il est impossible de tester toutes les possibilités. D'autre part, il n'existe pas de méthodologie bien définie pour ce type d'études. Nous avons donc choisi d'effectuer les essais expérimentaux suivant une méthodologie simple : dans la mesure du possible, les conditions finales sont choisies comme le symétrique des conditions initiales par rapport au centre du domaine Ptm/U exploré.

Trois couples produit/membrane ont été étudiés. Pour chacun d'eux, une série de filtrations comportant ou non un échelon de pression transmembranaire et de vitesse tangentielle a été effectuée. Les conditions opératoires correspondant à ces essais sont portées dans les **Tableaux III.11, III.12 et III.13**. Pour toutes les bases de données, nous disposons de 4 échelons Ptm/U différents. Pour la base de données SKV (sucre/membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat, 80 °C, démarrage brusque), un essai comportant des échelons de pression transmembranaire d'environ 0,5 bar de 2,2 à 5,6 bar est utilisé en supplément (essai 167).

En considérant les bases de données disponibles, le choix de la répartition des données entre la base d'apprentissage et la base de test est difficile. En tout état de cause, la base d'apprentissage doit contenir suffisamment d'informations aussi bien sur les conditions de Ptm et U initiales que sur le type d'échelon effectué. Afin d'estimer l'influence de la répartition apprentissage/test, nous avons donc envisagé plusieurs cas de figure pour chacun des couples produit/membrane étudié. Les répartitions testées ont été choisies afin de conserver une bonne représentation de l'espace paramétrique pour les conditions initiales et de présenter différents types d'échelon Ptm/U dans les bases d'apprentissage et de test. Pour le cas gomme/MEMBRALOX 1,4 µm, sans circulation de filtrat, 70 °C, démarrage brusque (base de données GV), nous nous limiterons à l'étude de 2 répartitions. Pour la cas sucre/MEMBRALOX 1,4 µm, avec circulation de filtrat, 80 °C, démarrage lent (base de données SSV), 3 répartitions sont définies. Dans le cas sucre/membrane d'ultrafiltration, sans circulation de filtrat, 80 °C, démarrage brusque (base de données SKV), 4

Base de données	Répartition	Essais constituant la base d'apprentissage	Essais constituant la base de test
GV	GV <sub>A</sub>	148 - 151 - 152	149 - 150
	GV <sub>B</sub>	148 - 149 - 150	151 - 152
SSV	SSV <sub>A</sub>	142 - 144 - 162 - 164	145 - 161 - 163
	SSV <sub>B</sub>	142 - 145 - 161 - 163	144 - 162 - 164
	SSV <sub>C</sub>	144 - 161 - 163 - 164	142 - 145 - 162
SKV	SKV <sub>A</sub>	169 - 171 - 172 - 175	173 - 174
	SKV <sub>B</sub>	169 - 173 - 174	171 - 172
	SKV <sub>C</sub>	167 - 169 - 173 - 175	171 - 172 - 174
	SKV <sub>D</sub>	167 - 171 - 172 - 174	169 - 173 - 175

Tableau III.14 : diverses répartitions des essais dans les bases d'apprentissage et de test pour la modélisation des filtrations avec échelon.

REPARTITION	Nombre optimal de neurones cachés	Erreur moyenne $\bar{E}$ ( $10^{10} \text{ m}^{-1}$ )	Coefficient de variation $\gamma$ (%)
GV <sub>A</sub>	5	44,0	20,2
GV <sub>B</sub>	5	44,9	20,6
SSV <sub>A</sub>	3	14,9	18,7
SSV <sub>B</sub>	5	15,8	20,0
SSV <sub>C</sub>	10	15,5	19,5
SKV <sub>A</sub>	9	57,7	7,6
SKV <sub>B</sub>	8	51,5	6,8
SKV <sub>C</sub>	10	72,5	9,7
SKV <sub>D</sub>	4	59,6	7,9

Tableau III.15 : meilleurs résultats obtenus sur les bases de données totales lors de la modélisation des filtrations avec échelon [structure cachée monocouche; entrée explicite du temps; NEUREX].



répartitions différentes sont envisagées en introduisant ou non dans la base d'apprentissage l'essai 167 (**Tableau III.14**).

Toutes les données sont ici traitées avec le logiciel NEUREX. Pour chacune des répartitions considérées, différentes structures cachées monocouches sont testées en faisant varier le nombre de neurones de 1 à 10. Pour chaque structure cachée, 20 initialisations aléatoires des poids et biais sont successivement réalisées. Les meilleurs résultats obtenus (meilleure structure cachée et meilleure initialisation) sont présentés dans le **Tableau III.15**, en se limitant aux erreurs moyennes et aux coefficients de variations calculés sur les bases de données totales.

• *Gomme/MEMBRALOX, sans circulation de filtrat, 70 °C, démarrage brusque (base GV)*

Les coefficients de variation obtenus sur les bases totales sont très médiocres et voisins pour les 2 répartitions étudiées (environ 20 %). Dans ce cas de figure, la répartition des données n'a pas d'influence sur la qualité des prédictions. En visualisant les diverses courbes, la mauvaise modélisation des résistances est confirmée. En effet, les courbes simulées sont très éloignées des courbes expérimentales aussi bien durant la phase initiale (60 premières minutes) que durant la phase finale. L'évolution de  $R_t$  pendant les échelons de  $P_{tm}/U$  est également très mal représentée. Sur la base d'apprentissage, nous pouvons tout au plus noter que les courbes calculées suivent bien la tendance des courbes expérimentales (**Figure III.24**). Par contre, sur la base de test, les prédictions du modèle sont totalement erronées (**Figure III.25**). Ainsi, dans les conditions d'utilisation choisies et pour ce premier couple produit/membrane, les réseaux de neurones avec entrée explicite du temps ne semblent pas capables de représenter l'évolution de  $R_t$  lors de filtrations avec échelon de pression/vitesse. Il est cependant difficile de conclure compte tenu de la faible quantité de données disponible. Pour terminer, nous pouvons souligner que la structure cachée optimale est identique pour les répartitions  $GV_A$  et  $GV_B$  (5 neurones cachés).

• *Sucre/MEMBRALOX, avec circulation de filtrat, 80 °C, démarrage lent (base SSV)*

Pour ce second cas, les coefficients de variation sont également très élevés. Ils sont compris entre 18 et 20 %. Ici encore, la répartition des données entre les bases d'apprentissage et de test n'influence pas significativement la qualité des prédictions. Cependant, en examinant les courbes (**Figures III.26 et III.27**), nous découvrons que le modèle décrit le phénomène de façon satisfaisante. Les tendances expérimentales sont conservées sur la base d'apprentissage et sur la base de test. Les courbes simulées sont proches des courbes expérimentales aussi bien durant la phase de démarrage (premières minutes de filtration) que durant la phase initiale (jusqu'à 120 min) ou la phase finale. L'effet des échelons  $P_{tm}/U$  sur  $R_t$  est également bien représenté. Les médiocres coefficients de variation obtenus sont donc liés au caractère bruité des courbes (grande sensibilité aux petites fluctuations de  $P_{tm}$  engendrées par le système de régulation). Notons néanmoins que la simulation de l'essai 144 (base d'apprentissage) n'est pas satisfaisante car elle présente une

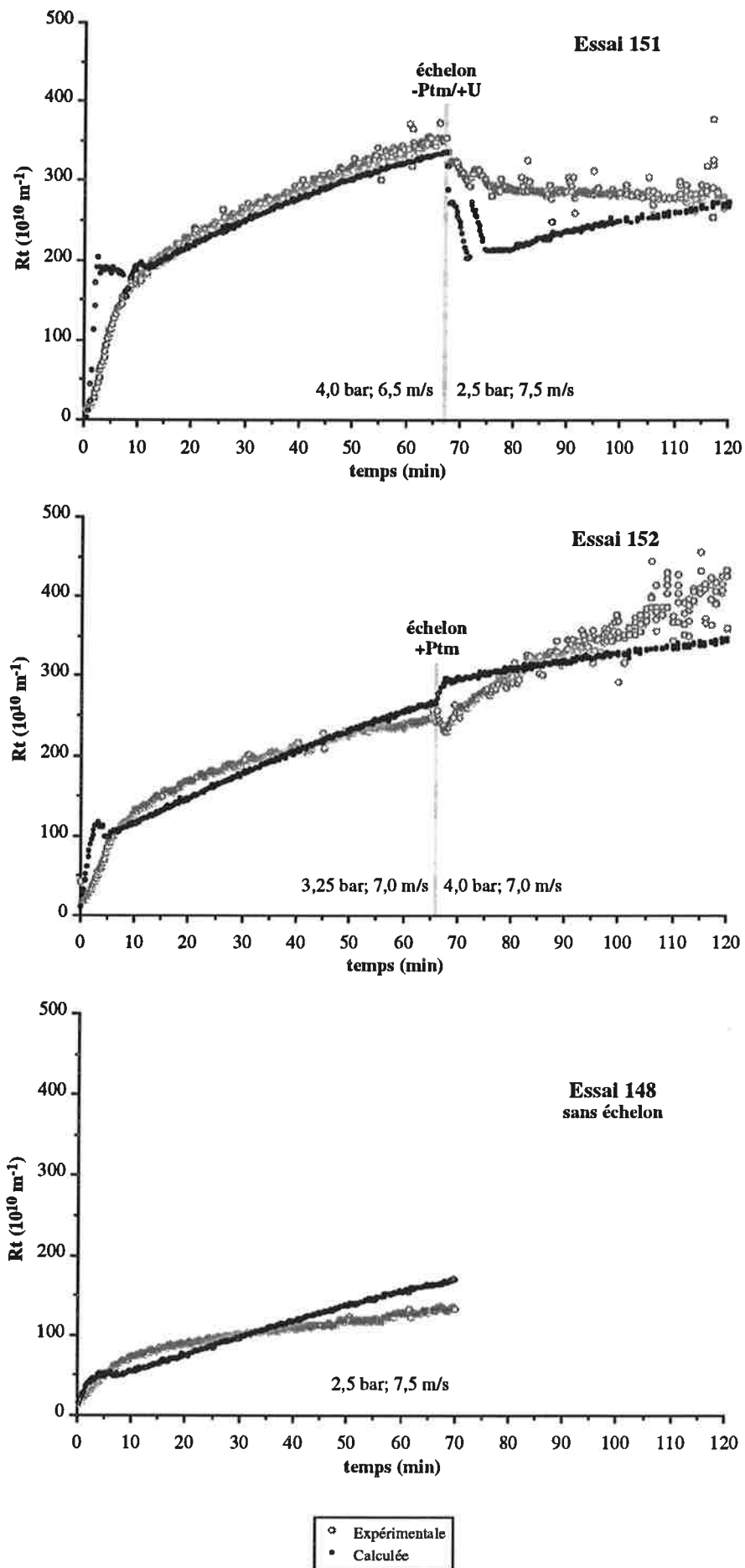


Figure III.24 : BASE D'APPRENTISSAGE : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données  $GV_A$  [gomme / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de filtrat, 70 °C, RN5, NEUREX].

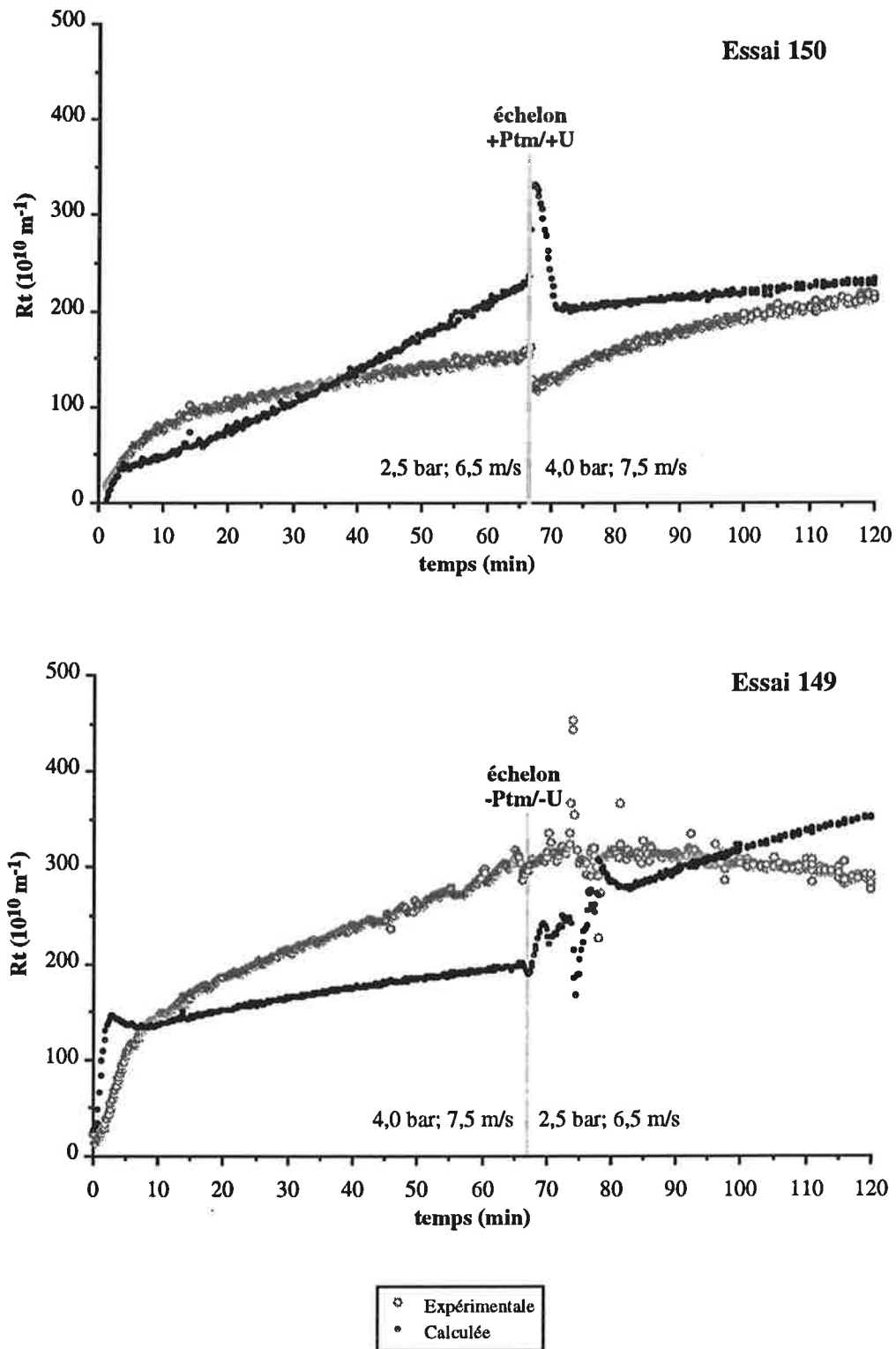
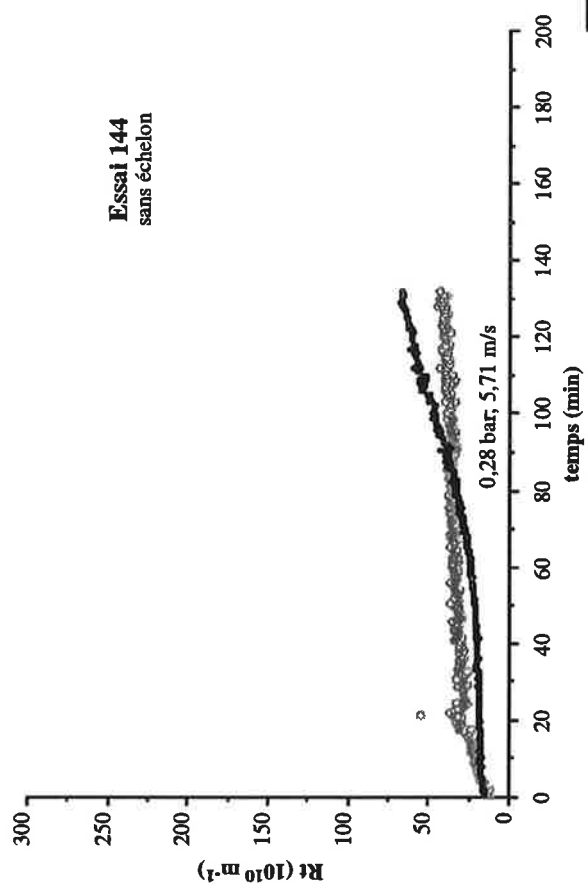
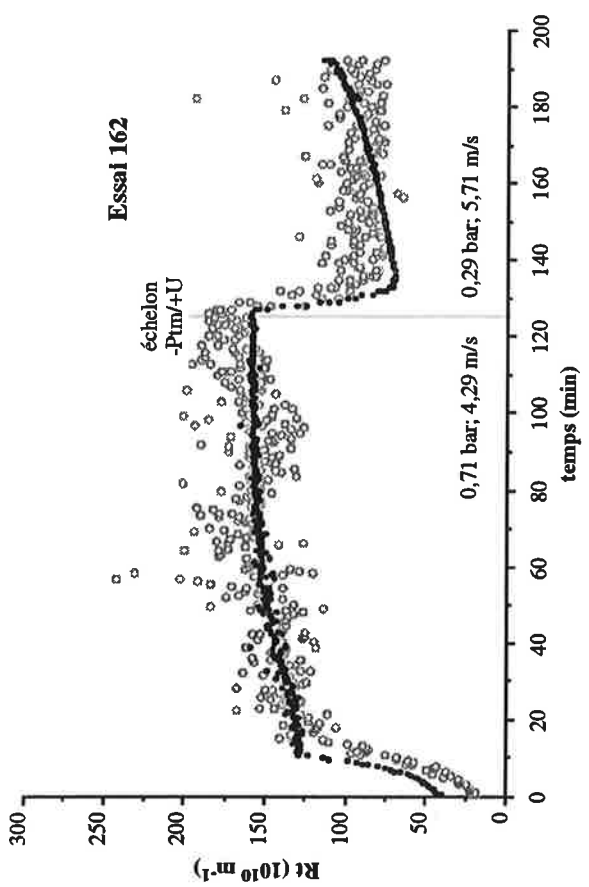
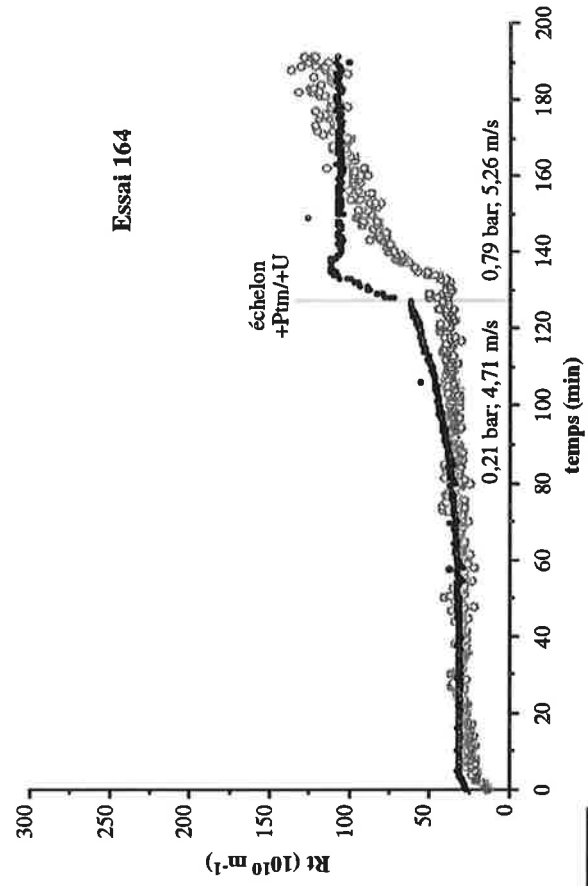
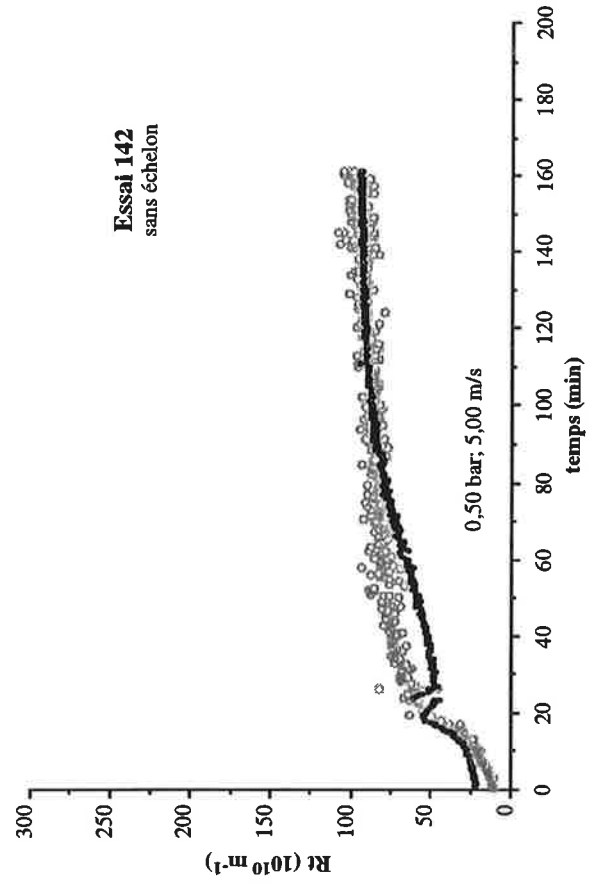


Figure III.25 : BASE DE TEST : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données  $GV_A$  [gomme / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de filtrat, 70 °C, RN5, NEUREX].



○ Expérimentale  
● Calculée

**Figure III.26 : BASE D'APPRENTISSAGE : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données SSV<sub>A</sub> [sucre / MEMBRALOX 1,4 μm avec circulation de filtrat, 80 °C, RN3, NEUREX].**

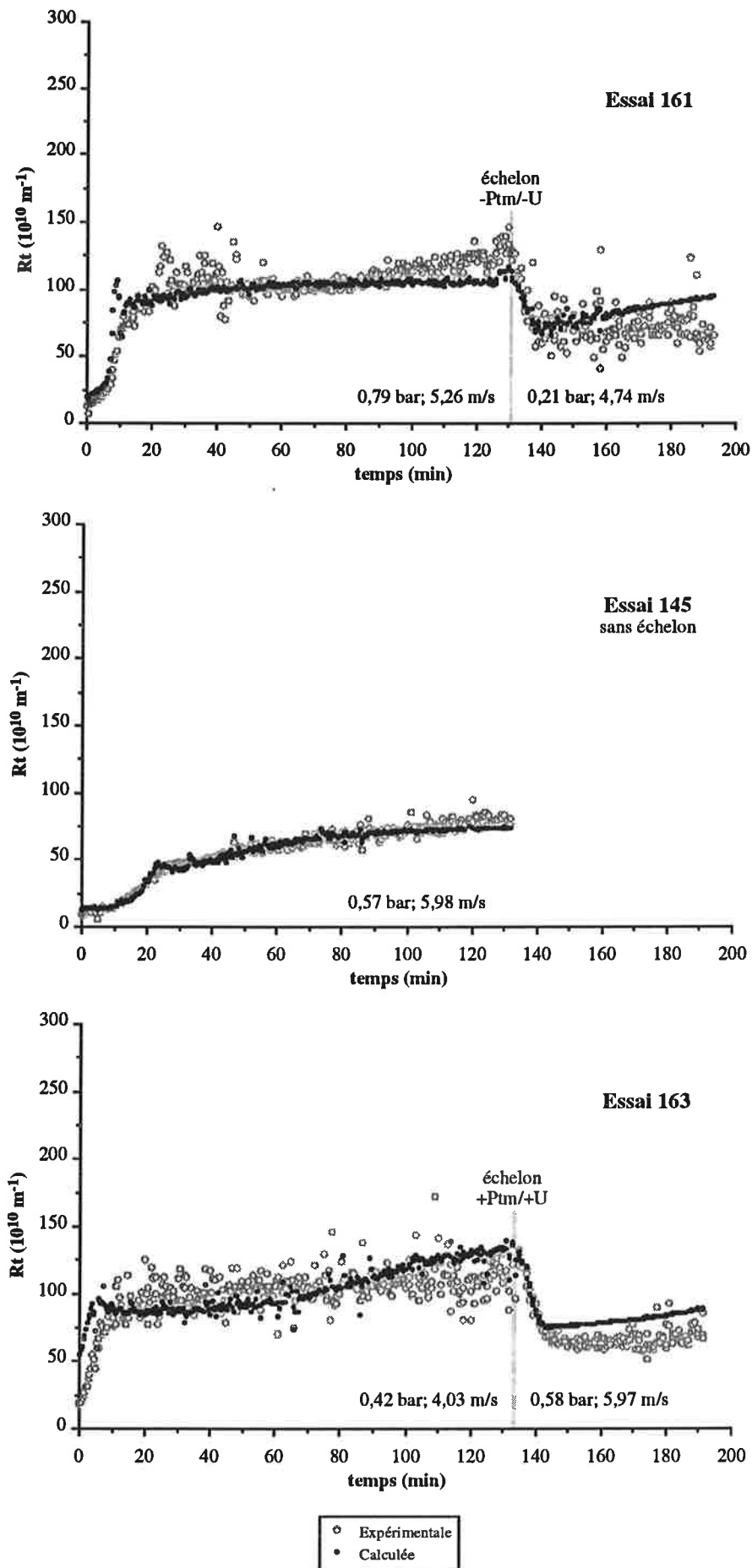
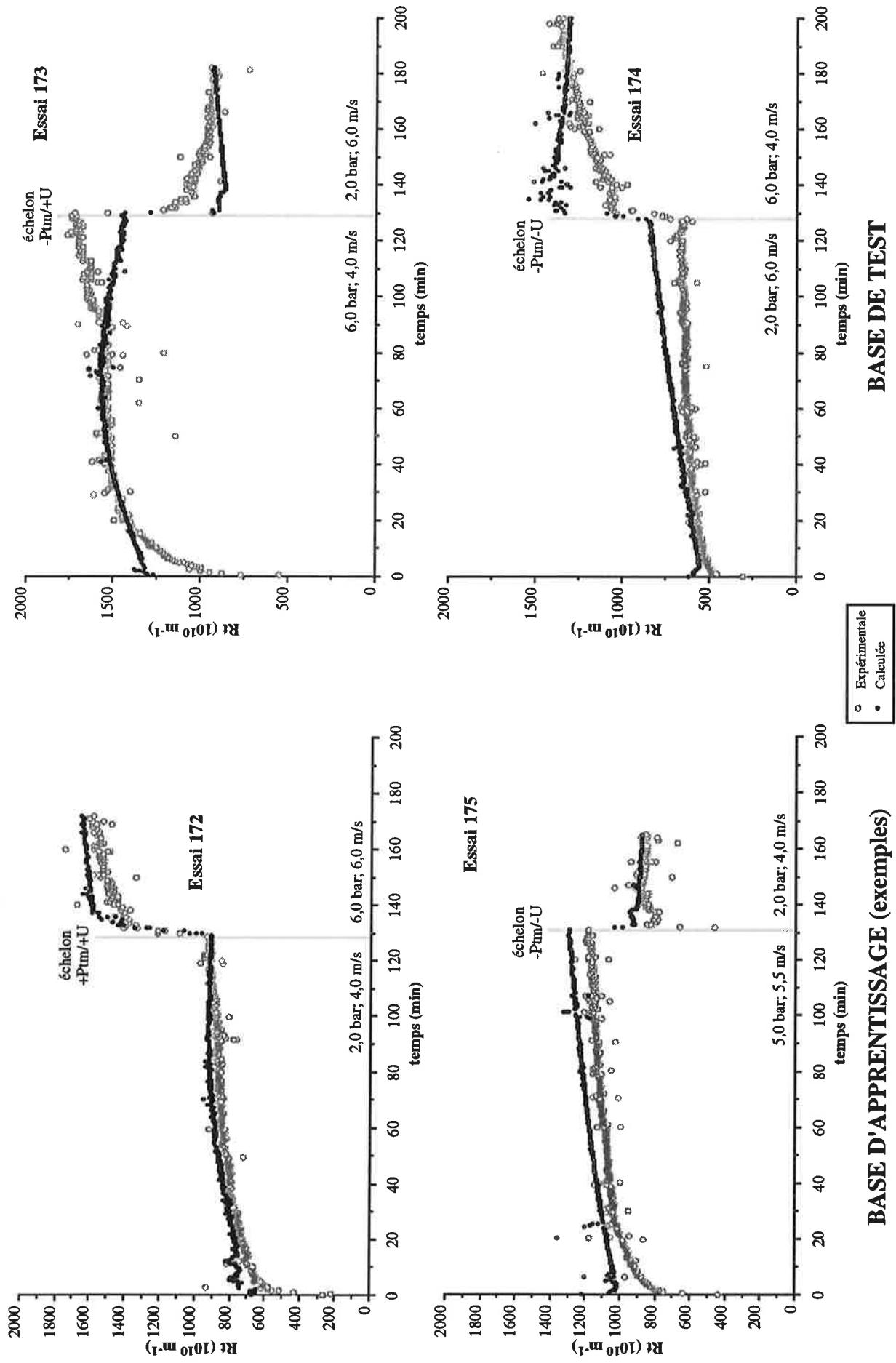


Figure III.27 : BASE DE TEST : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données  $SSV_A$  [sucre / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  avec circulation de filtrat, 80 °C, RN3, NEUREX].



**BASE D'APPRENTISSAGE (exemples)**

○ Expérimentale  
● Calculée

**BASE DE TEST**

Figure III.28 : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données SKVA [sucre / membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat, 80 °C, RN9, NEUREX].

courbure positive au lieu d'une stabilisation. Enfin, la structure cachée optimale est fortement dépendante de la répartition choisie (varie de 3 à 10).

Ces résultats sont donc particulièrement intéressants. En effet, ils montrent qu'un réseau de neurones avec entrée explicite du temps est capable de prévoir l'effet d'échelons différents de ceux qu'il a appris. Par exemple, pour la répartition  $SSV_A$ , la base d'apprentissage contient un échelon  $-P_{tm}/+U$  (essai 162) et un échelon  $+P_{tm}/+U$  (essai 164). Ces informations suffisent au modèle pour prévoir avec une bonne précision l'effet d'un échelon  $-P_{tm}/-U$  (essai 161) et d'un échelon  $+P_{tm}/+U$  différent (essai 163). Il serait néanmoins souhaitable de valider ces résultats sur des essais expérimentaux supplémentaires. Enfin, il est probable que les performances du modèle puissent être améliorées en disposant d'une base de données plus importante.

• *Sucre/membrane ultrafiltration, sans circulation de filtrat, 80 °C, démarrage brusque (base SKV)*

Pour ce troisième couple produit/membrane, les coefficients de variation sont nettement moins élevés que dans les cas précédents. Compris entre 6 et 10 %, ils attestent d'une représentation satisfaisante des résultats expérimentaux. Pour toutes les répartitions testées, les courbes sont en effet assez bien décrites sur la base d'apprentissage comme sur la base de test (**Figure III.28**). Notons cependant une distorsion sur l'allure des courbes correspondant aux essais 173 et 174. Cette observation est valable pour toutes les répartitions que ces essais soient dans la base d'apprentissage ou dans la base de test. Comme précédemment, la structure cachée optimale dépend de la répartition étudiée.

Ici encore, la validation du modèle sur des échelons non appris est relativement satisfaisante. Pour la répartition  $SKV_A$ , le seul apprentissage d'échelons  $+P_{tm}/+U$  et  $-P_{tm}/-U$  permet la représentation d'échelons  $-P_{tm}/+U$  et  $+P_{tm}/-U$ . En examinant les résultats correspondant aux répartitions  $SKV_C$  et  $SKV_D$ , aucune amélioration significative du modèle n'est observée. L'introduction de l'essai 167 en apprentissage ne confère pas une meilleure valeur prédictive au modèle.

### III-2.3 Validation des réseaux avec entrée implicite du temps

Comme nous l'avons précédemment souligné (cf. § III-1.2.1), il est possible d'introduire la notion de temps indirectement dans les modèles. Au lieu d'utiliser directement le temps, une partie des informations obtenues à des temps antérieurs ( $t-k\Delta t$ ) peuvent être présentées en entrée de réseau pour prévoir le résultat au temps  $t$ . Le nombre entier  $k$  correspond à l'ordre du modèle par rapport à la variable considérée (variable d'état ou de commande). Un grand nombre de structures peuvent être envisagées en faisant varier l'ordre du modèle par rapport aux différentes variables. Rappelons que deux modes d'apprentissage différents sont possibles pour les réseaux de neurones avec entrée implicite du temps. Le mode d'apprentissage direct utilise en entrée de réseau les réponses expérimentales au temps  $t-\Delta t$ ,  $t-2\Delta t$ , etc... Le mode d'apprentissage récurrent utilise les réponses

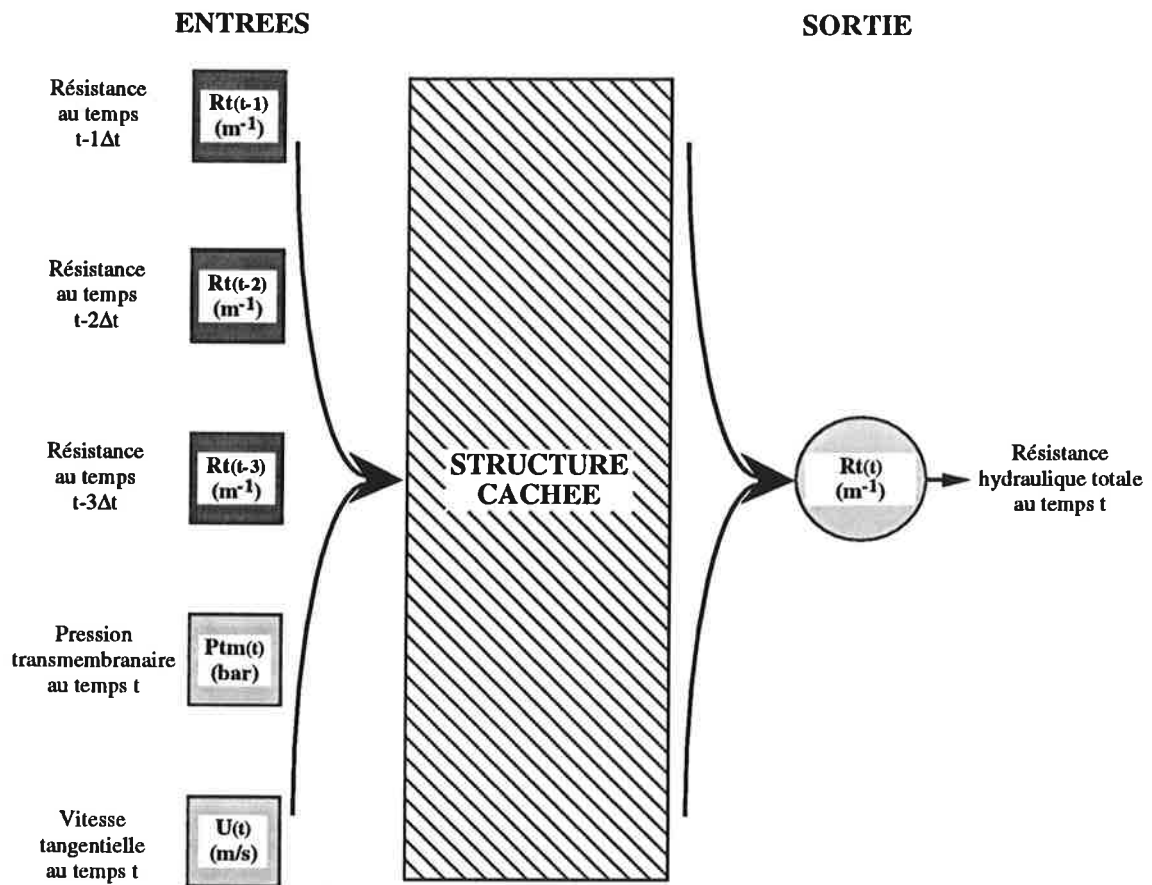


Figure III.29 : représentation schématique du type de réseaux de neurones avec entrée implicite du temps utilisé.

REPARTITION	Nombre optimal de neurones cachés	Erreur moyenne $\bar{E}$ ( $10^{10} \text{ m}^{-1}$ )	Coefficient de variation $\gamma$ (%)
DEMB	3	5,1	1,9
GV <sub>A</sub>	5	7,0	3,2
SSV <sub>A</sub>	5	7,4	9,3
SKV <sub>A</sub>	4	25,6	3,3

Tableau III.16 : meilleurs résultats obtenus sur les bases de données totales lors de la modélisation des filtrations avec échelon [structure cachée monocouche; entrée implicite du temps; NEUREX].



précédemment calculées au temps  $t-\Delta t$ ,  $t-2\Delta t$ , etc... pour calculer à son tour la réponse au temps  $t$ .

Suite aux bons résultats obtenus par les réseaux de neurones avec entrée explicite du temps, nous ne nous sommes pas intéressés à l'utilisation de ce second type de réseau pour les filtrations à conditions constantes. Par contre, pour les filtrations à conditions variables, nous avons souhaité tester ce second type de réseaux de neurones sur quelques unes des bases de données disponibles afin de comparer leur capacité prédictive à celle des réseaux avec entrée explicite du temps. Cette étude se voulant prospective, nous l'avons limitée aux modèles d'ordre 3 par rapport à la variable d'état i.e. la résistance hydraulique (**Figure III.29**). Cette configuration s'est en effet avérée bien adaptée dans un cas proche de celui traité [RENOU 1993].

### III-2.3.1 Mise en œuvre

Pour cette étude exploratoire, les phases d'apprentissage et de test ont été effectuées en mode direct. Ainsi, pour chaque temps  $t$ , la résistance a été calculée à partir des résistances expérimentales à 3 pas de temps antérieurs  $t-\Delta t$ ,  $t-2\Delta t$  et  $t-3\Delta t$ . Les divers enregistrements expérimentaux ne présentent pas nécessairement une période d'échantillonnage homogène. Il a donc été nécessaire de prétraiter les données pour avoir un échantillonnage à pas de temps constant sur l'ensemble des fichiers (interpolation linéaire). Afin de ne pas perdre d'informations, le pas de temps ( $\Delta t$ ) que nous avons choisi est de 20 s.

Pour toutes les expériences de filtrations réalisées à conditions variables (démarrage et échelon  $P_{tm}/U$ ), une répartition de données représentative est choisie. Les répartitions  $DEM_B$ ,  $GV_A$ ,  $SSV_A$  et  $SKV_A$  déjà décrites lors de la modélisation à l'aide des réseaux avec entrée explicite du temps sont ainsi utilisées pour valider ce second type de réseaux de neurones.

Ici encore, nous nous limiterons à l'étude des structures cachées monocouche en faisant varier de 1 à 10 le nombre de neurones cachés. Les valeurs présentées ci-dessous correspondent aux meilleurs résultats obtenus à la suite de 20 initialisations aléatoires des poids et à la meilleure structure cachée. Toutes les données sont traitées à l'aide du logiciel NEUREX.

### III-2.3.2 Résultats

Comme nous pouvons le constater dans le **Tableau III.16**, les coefficients de variation obtenus sont particulièrement faibles pour les bases  $DEM_B$ ,  $GV_A$  et  $SKD_A$  ( $< 4\%$ ). Pour la base  $SSV_A$ ,  $\gamma_{tot}$  est plus élevé mais reste inférieur à 10 %. Ces résultats sont très nettement inférieurs à ceux observés dans le cas des réseaux avec entrée explicite du temps. Dans tous les cas testés, aussi bien pour des variations de conditions opératoires au démarrage qu'en cours d'essai (échelon), la validité des prédictions est donc très satisfaisante. Cette affirmation est bien vérifiée en comparant les diverses courbes expérimentales et calculées. Pour les différentes bases de données, nous pouvons

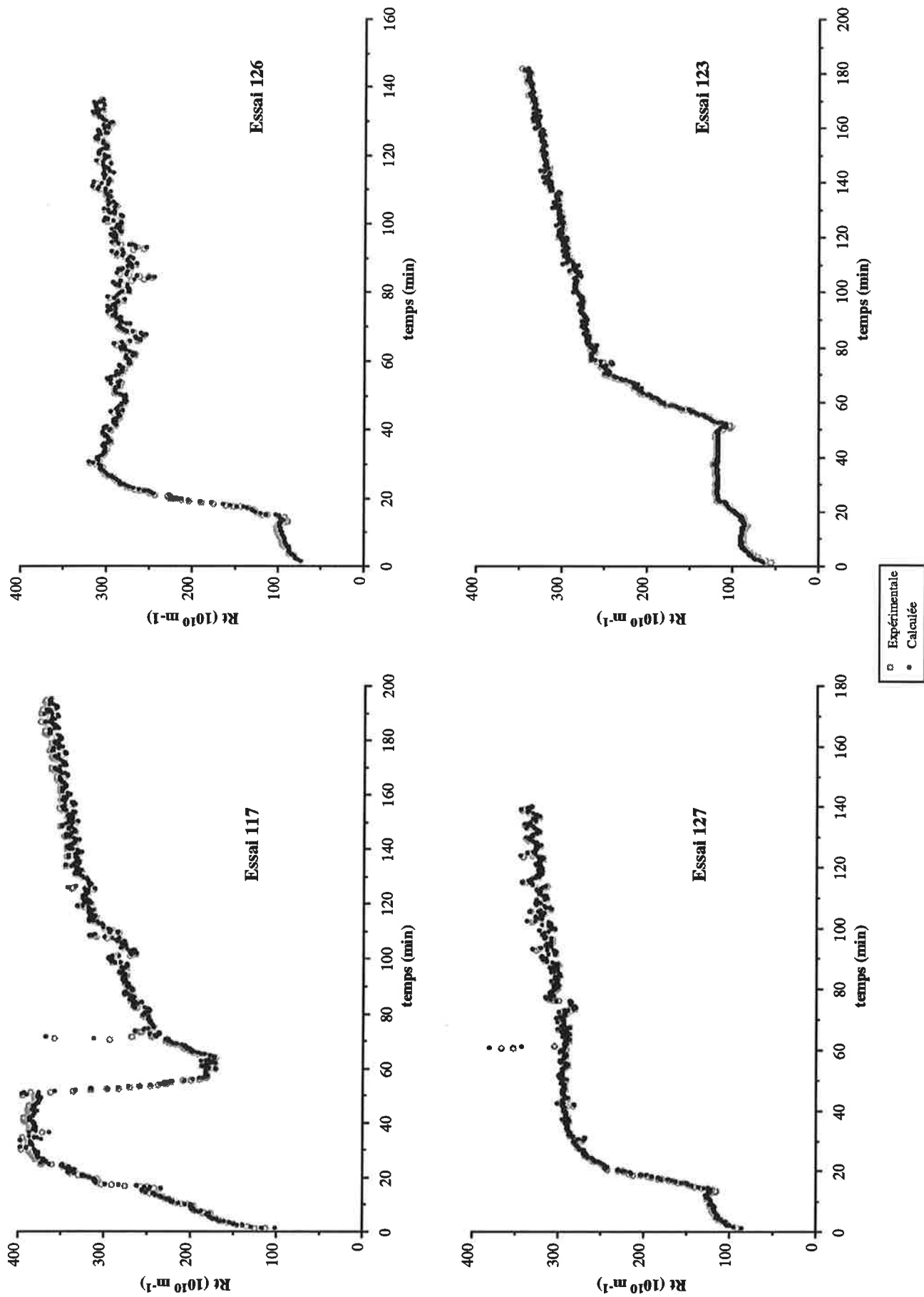


Figure III.30 : BASE D'APPRENTISSAGE : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données DEM<sub>B</sub> [sucre/MEMBRALOX 1,4 µm sans circulation de filtrat, 80 °C, RN3 entrée implicite du temps, NEUREX].

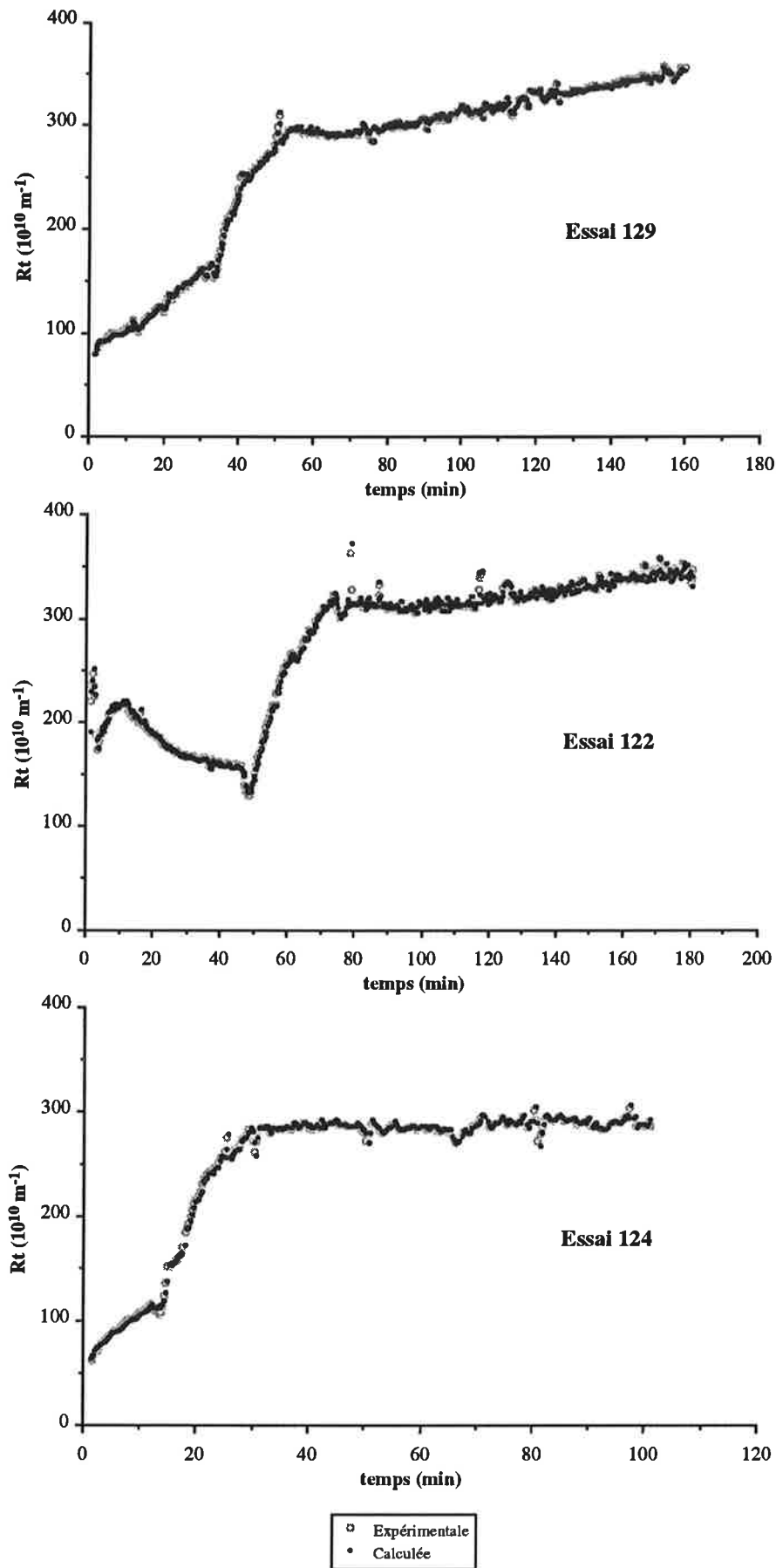


Figure III.31 : BASE DE TEST : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données  $DEM_B$  [sucre / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de filtrat, 80 °C, RN3 entrée implicite du temps, NEUREX].

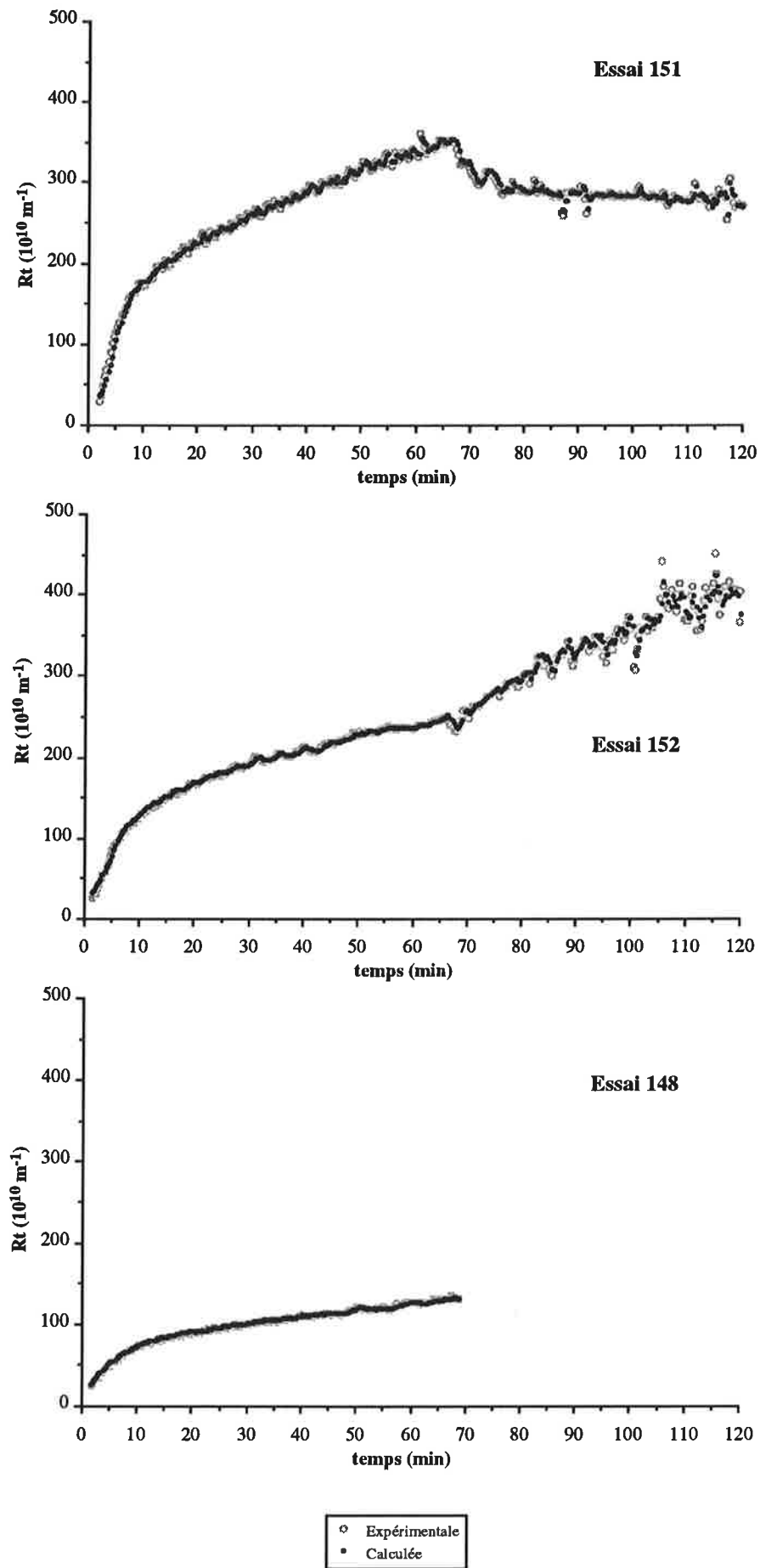


Figure III.32 : BASE D'APPRENTISSAGE : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données  $GV_A$  [gomme/MEMBRALOX 1,4  $\mu m$  sans circulation de filtrat, 70 °C, RN5 entrée implicite du temps, NEUREX].

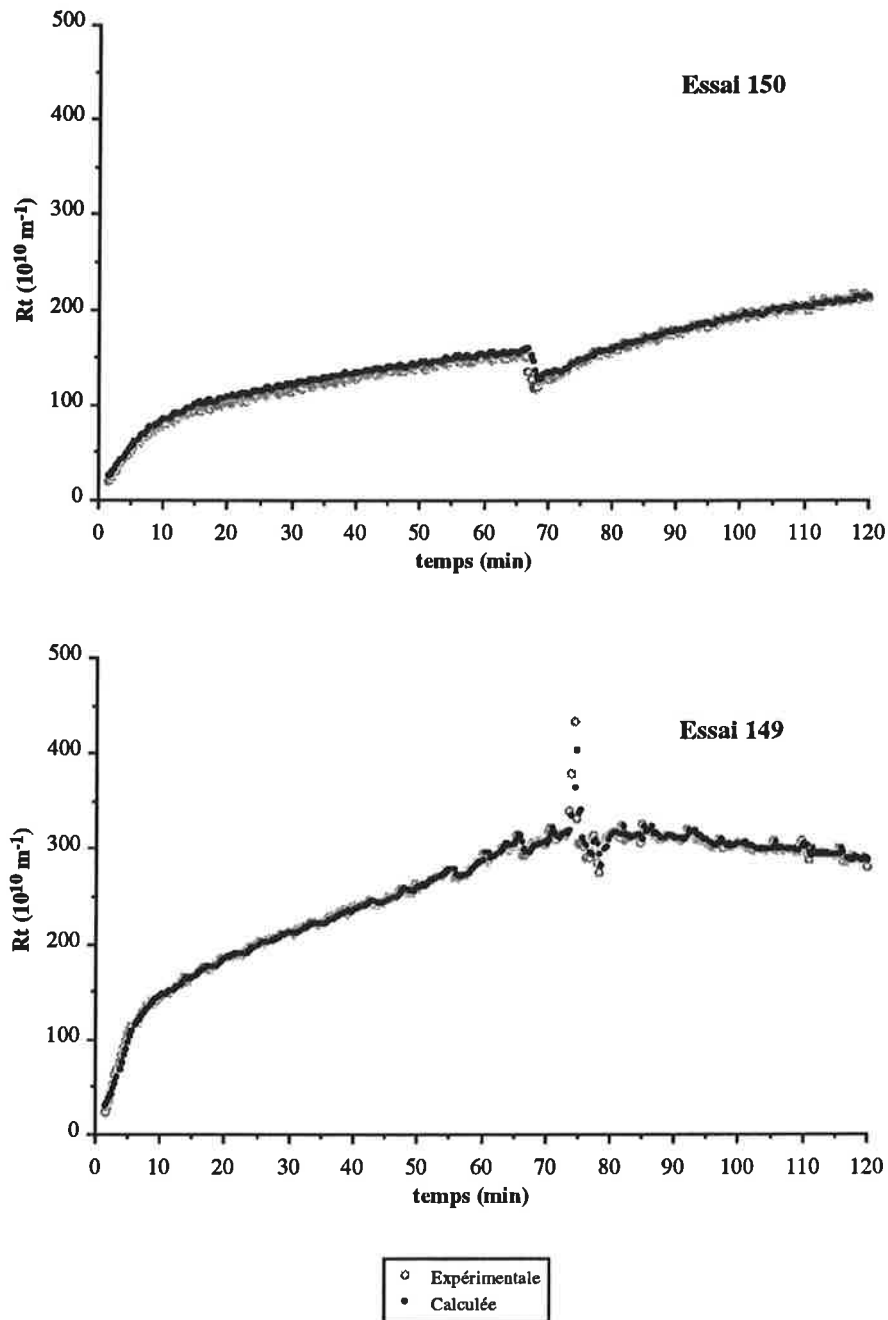


Figure III.33 : BASE DE TEST : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données  $GV_A$  [gomme/MEMBRALOX  $1,4 \mu\text{m}$  sans circulation de filtrat,  $80^\circ\text{C}$ , RN5 entrée implicite du temps, NEUREX].

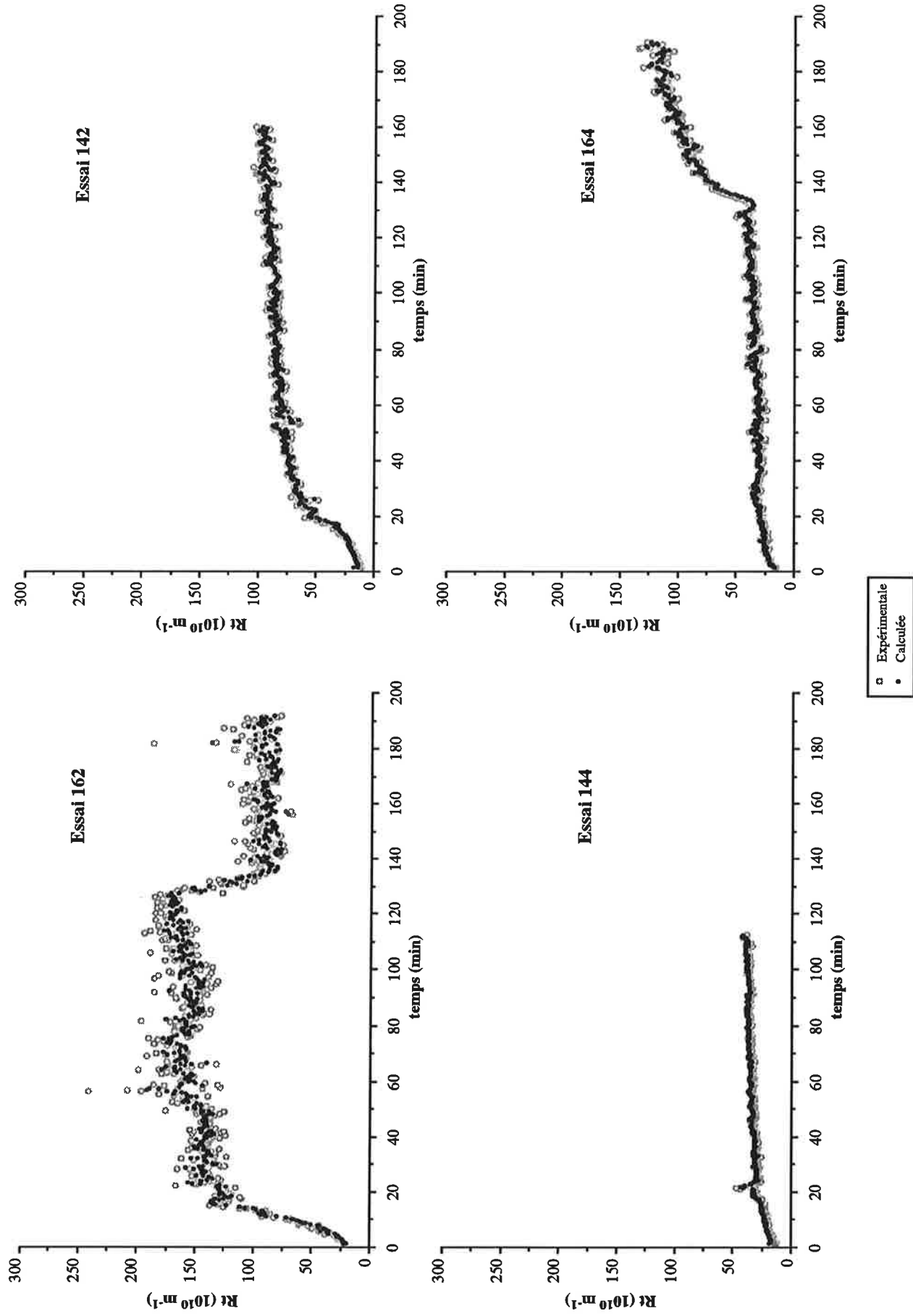


Figure III.34 : BASE D'APPRENTISSAGE : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données  $SSV_A$  [sucre / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  avec circulation de filtrat, 80 °C, RN5 entrée implicite du temps, NEUREX].

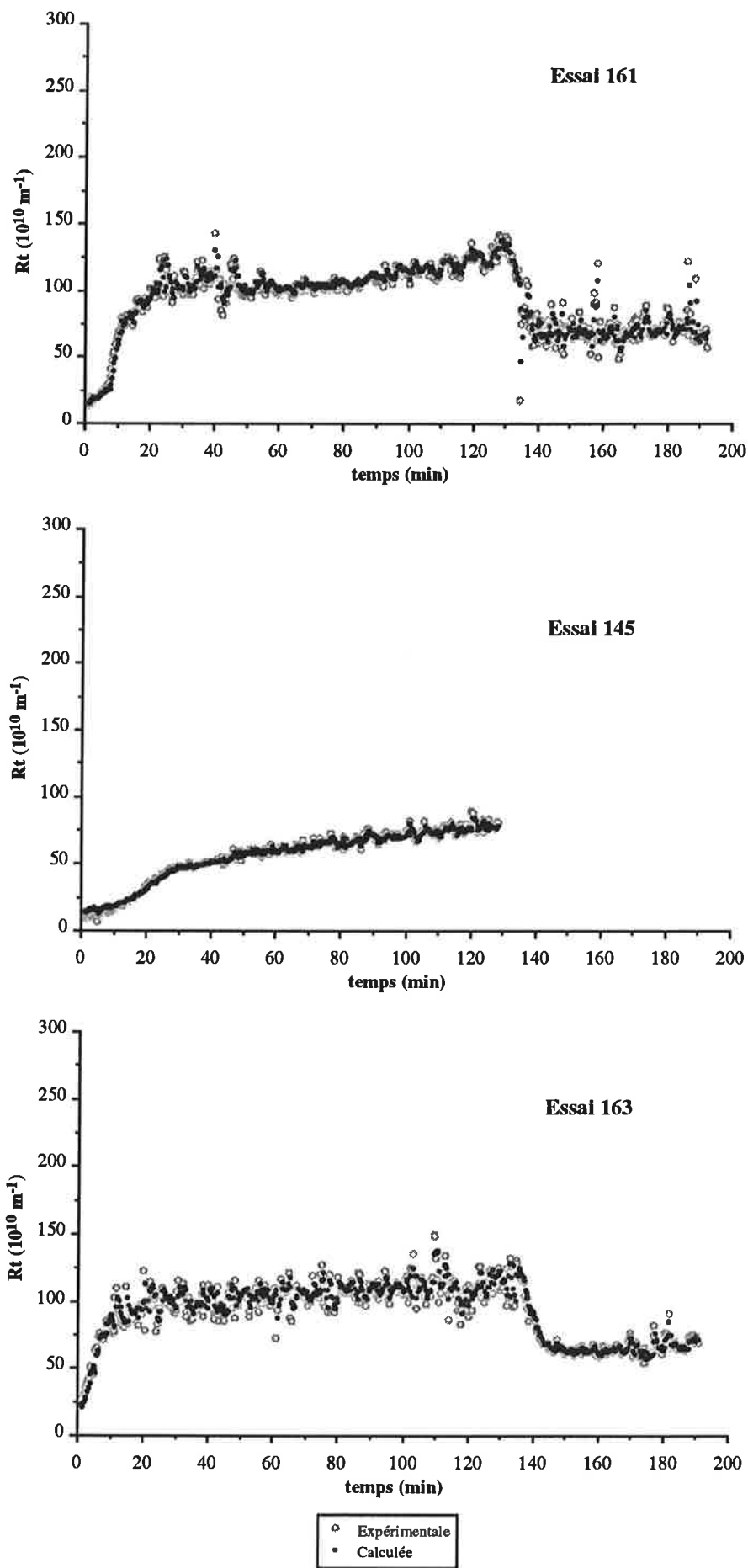


Figure III.35 : BASE DE TEST : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données  $SSV_A$  [sucre / MEMBRALOX 1,4  $\mu$ m avec circulation de filtrat, 80 °C, RN5 entrée implicite du temps, NEUREX].

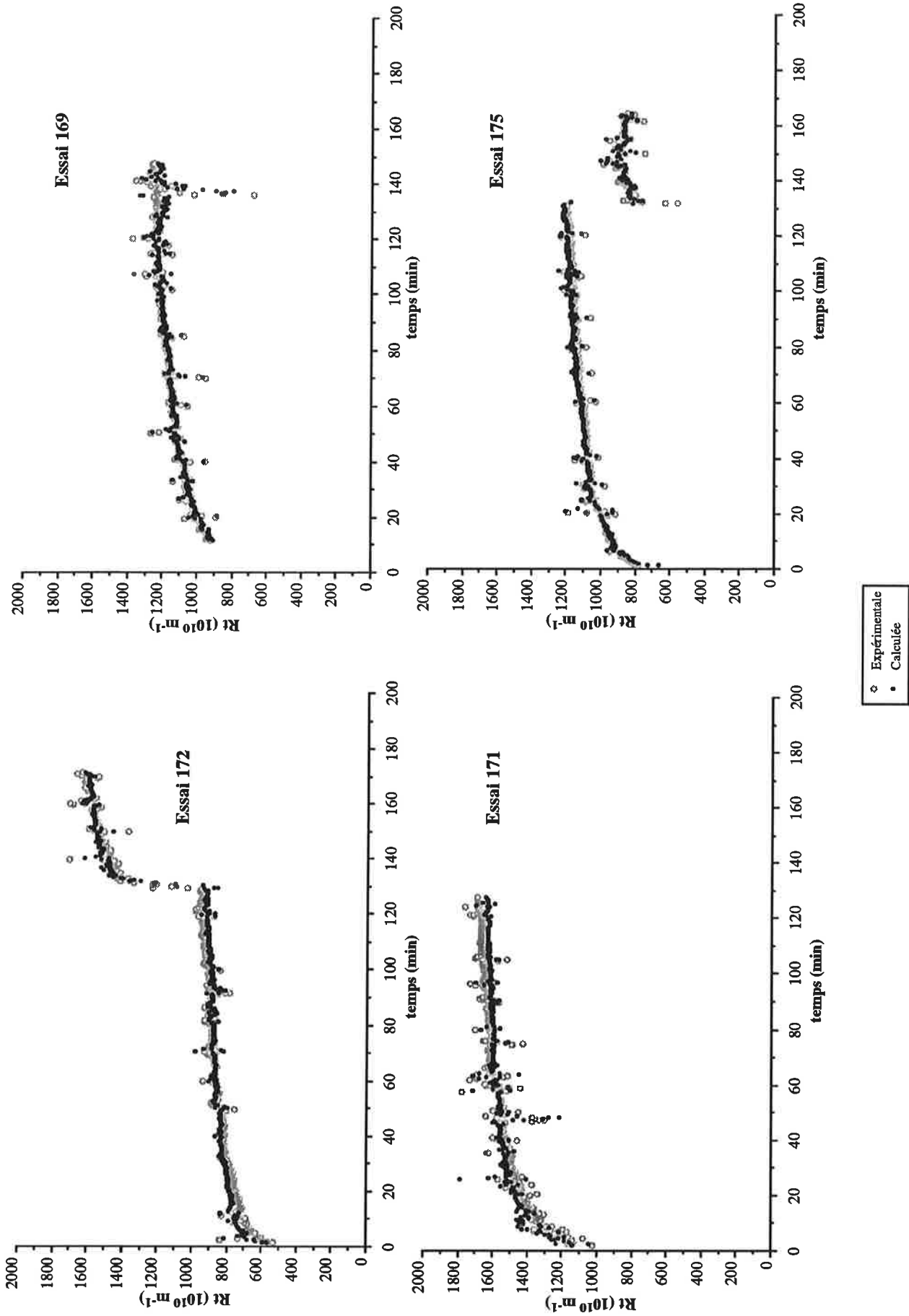


Figure III.36 : BASE D'APPRENTISSAGE : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données SKVA [sucre / membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat, 80 °C, RN4 entrée implicite du temps, NEUREX].



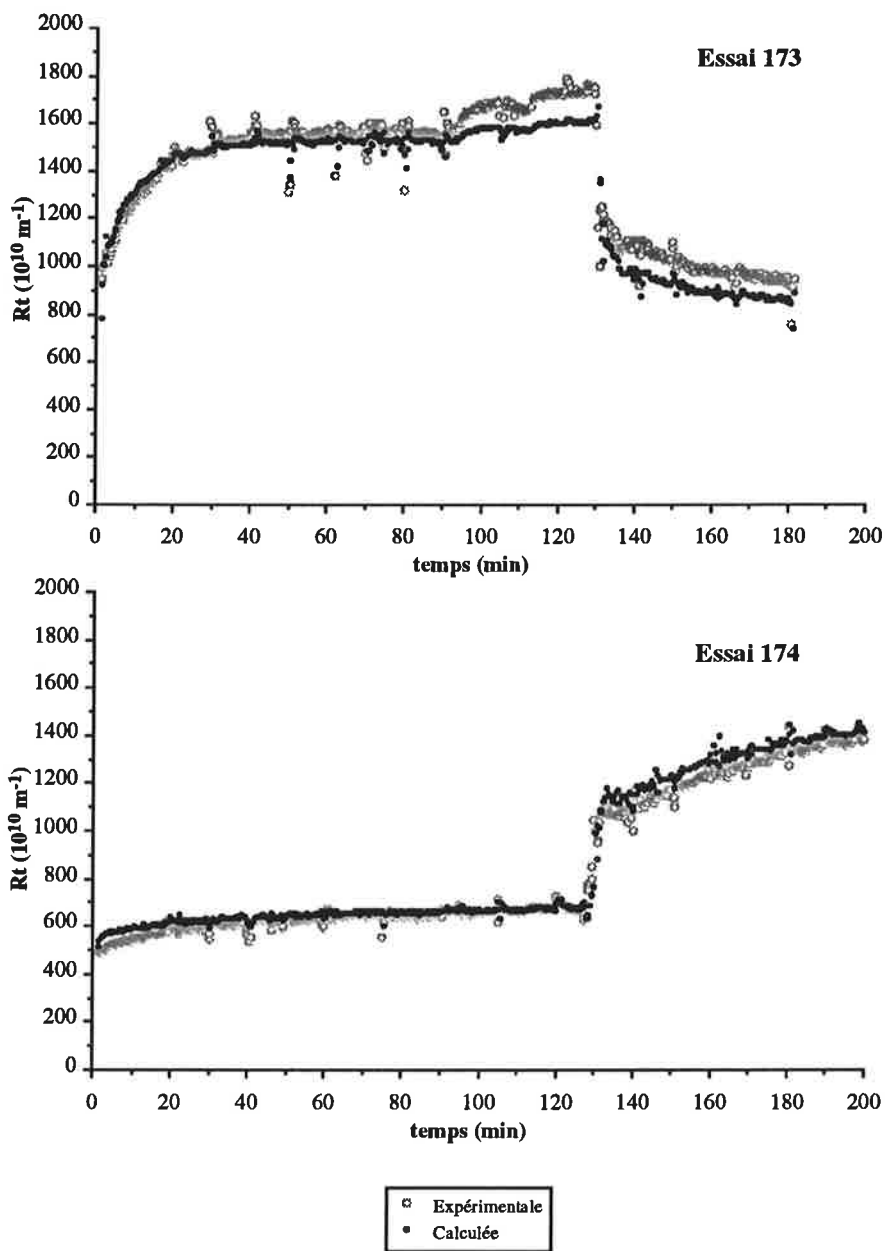


Figure III.37 : BASE DE TEST : comparaison des courbes expérimentales et calculées de la répartition de données  $SKV_A$  [sucre / membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat, 80 °C, RN4 entrée implicite du temps, NEUREX].

constater que toutes les courbes sans exception sont parfaitement représentées. Pour la base DEM<sub>B</sub>, les écarts observés précédemment entre l'expérience et le modèle n'apparaissent plus (**Figures III.30 et III.31**). Le modèle est même capable de suivre les petites variations de  $R_t$  dues aux régulations. Contrairement aux réseaux avec entrée explicite du temps, les courbes de la base de données GV<sub>A</sub> sont également modélisées avec une grande précision (**Figures III.32 et III.33**). Malgré une base de données peu étoffée, ce second type de réseau permet une représentation très précise du phénomène. Des remarques similaires peuvent être faites pour les bases SSV<sub>A</sub> et SKV<sub>A</sub> (**Figures III.34, III.35, III.36 et III.37**). Le modèle représente fidèlement les courbes bruitées de la base SSV<sub>A</sub>. Les courbes calculées sont nettement moins lissées que dans le cas précédent. Enfin, nous remarquons que les effets des échelons P<sub>tm</sub>/U sont très précisément suivis aussi bien sur les bases d'apprentissage que sur les bases de test.

Enfin, nous remarquons que, malgré le nombre plus important d'entrées, les réseaux avec entrée implicite du temps ne nécessitent pas une structure cachée plus complexe. En effet, pour toutes les bases de données traitées, la structure cachée optimale est identique ou plus simple que dans les cas précédents.

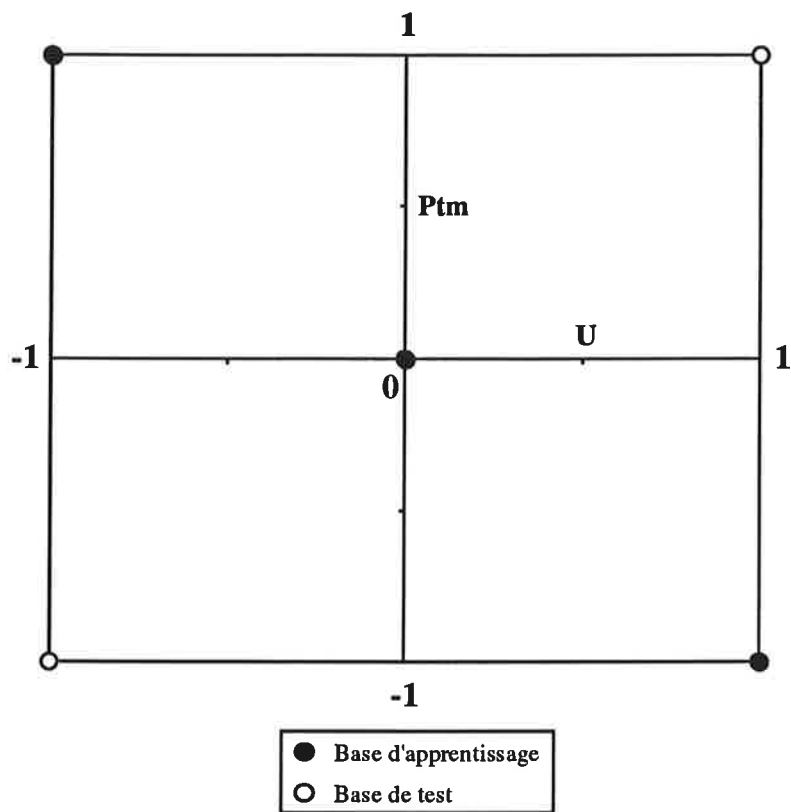
### III-3 CONCLUSION

L'application des réseaux de neurones à la filtration tangentielle a montré que ces modèles permettent de représenter de façon satisfaisante l'évolution de la résistance hydraulique en cours de filtration et ce à conditions constantes ou variables.

#### III-3.1 Filtrations à conditions constantes

Les principales conclusions issues de ces résultats sont les suivantes :

- La qualité des simulations issues des deux réseaux testés (RN5/2 et RN5/3) est très sensible à la configuration de la base d'apprentissage. Cette configuration ne doit donc pas être choisie au hasard. Une planification d'expériences s'impose afin d'optimiser l'utilisation des réseaux neuronaux.
- Une bonne représentation de l'ensemble des données a été obtenue avec une base d'apprentissage comprenant 4 essais expérimentaux.
- Une base avec 5 essais n'apporte pas d'amélioration sensible des résultats.
- Une base avec 6 essais diminue l'erreur moyenne de prédiction mais introduit des distorsions sur l'allure des courbes.
- Une base avec 3 essais est insuffisante pour obtenir un modèle dynamique performant sur l'ensemble du temps de filtration choisi. Cependant, elle permet une bonne représentation de la phase pseudo-stationnaire dans le domaine de P<sub>tm</sub> et U testé.
- Le réseau RN5/3 semble finalement mieux adapté que le réseau RN5/2. En effet, il permet d'atteindre de meilleurs résultats dans la majorité des cas, il conduit à une meilleure répartition



**Figure III.38 : représentation schématique de la répartition proposée avec 3 essais en apprentissage (plan d'expériences factoriel centré).**

de l'erreur sur l'ensemble des données et il est moins sensible à la répartition des données dans la base d'apprentissage.

Suite à ces constatations, il nous est possible de suggérer les répartitions optimales suivantes en fonction de l'objectif désiré :

- **Objectif 1 : modélisation dynamique du colmatage membranaire**

Le but étant de déterminer le modèle qui décrit le plus précisément possible l'évolution du colmatage au cours du temps dans différentes conditions opératoires ( $P_{tm}$  et  $U$ ), il est préférable de choisir une base d'apprentissage comprenant 4 essais répartis de la façon la plus homogène possible sur le domaine paramétrique étudié (par exemple 1 essai au centre et 3 en périphérie du domaine). La répartition pourrait être celle présentée précédemment (**Figure III.18**). La base de test nécessite alors 2 essais supplémentaires ce qui donne au total 6 essais à réaliser.

- **Objectif 2 : détermination des conditions optimales de fonctionnement lors d'essais de faisabilité**

Dans ce second cas de figure, le but est de déterminer les conditions optimales de  $P_{tm}$  et  $U$  avec une marge de sécurité satisfaisante et au moindre coût. L'intérêt de l'utilisateur se portant sur la phase pseudo-stationnaire, 3 essais en apprentissage sont suffisants pour permettre une bonne représentation du colmatage (donc de la densité de flux de filtrat) après 60 min de filtration. La répartition préconisée serait alors celle représentée sur la **Figure III.38**. La base de test nécessitant 2 essais supplémentaires, ceci conduirait à réaliser au total 5 essais expérimentaux répartis dans le domaine paramétrique suivant un plan d'expériences factoriel centré. Pour ce type d'approche, notons qu'il faudrait considérer conjointement à la résistance hydraulique, l'efficacité de l'opération. Pour ce, il est possible de rajouter une sortie supplémentaire au réseau ou d'utiliser parallèlement un second réseau de neurones spécifique. Remarquons qu'une acquisition en ligne de la turbidité du filtrat serait alors souhaitable.

### **III-3.2 Filtrations à conditions variables**

#### **III-3.2.1 Réseaux avec entrée explicite du temps**

Nous avons montré que les réseaux de neurones avec entrée explicite du temps sont capables de modéliser l'évolution de la résistance hydraulique totale durant des filtrations effectuées à conditions hydrodynamiques variables. Pour cela, un apprentissage en conditions variables est nécessaire. En effet, il n'a pas été possible de réutiliser les modèles issus du traitement des résultats en conditions constantes. Dans 3 cas sur 4, les prédictions dynamiques de ces modèles sont assez satisfaisantes aussi bien pour des changements de conditions opératoires progressifs (démarrages lents) que brutaux (échelons  $P_{tm}/U$ ). Nous avons en particulier démontré que ces réseaux de neurones sont capables de prévoir les effets de situations qu'ils n'ont pas apprises. Cette propriété leur confère un grand intérêt. Remarquons également, que ce type de réseaux a un fort effet de filtrage sur les

courbes expérimentales. Très aisés à manipuler grâce à leur configuration simple, ces modèles sont bien adaptés pour simuler, avec un risque d'erreur limité, différents scénarios P<sub>tm</sub>/U sans avoir recours à l'expérience. Utilisés sur des bases de données judicieusement choisies, les réseaux de neurones avec entrée explicite du temps sont donc des outils potentiellement intéressants pour optimiser en dynamique le procédé à moindre frais. Cependant, pour un des couples produit/membrane étudiés, aucun résultat probant n'a été obtenu. Dans ce cas particulier, il est difficile de conclure à une déficience du modèle compte tenu de la base de données peu étoffée disponible.

### III-3.2.2 Réseaux avec entrée implicite du temps

Ce second type de réseaux de neurones utilisés en mode direct, conduit à des résultats nettement améliorés par rapport aux précédents. Dans la totalité des cas traités, l'utilisation des réseaux avec entrée implicite du temps a permis une représentation dynamique très fine du phénomène de colmatage en conditions variables. Les prédictions obtenues sont d'une grande précision. La quantité plus importante d'informations présentées en entrée de réseau explique vraisemblablement ces meilleures performances. A partir de renseignements passés et présents, ces modèles permettent de prévoir des résultats futurs. Cette capacité d'anticipation les rend particulièrement bien adaptés pour être utilisés comme outils de contrôle-commande. Intégrés dans un automate, ces modèles pourraient par exemple servir à déterminer la stratégie de commande optimale à suivre pour maintenir un flux le plus élevé possible pendant une durée la plus longue possible ou encore pour rectifier une déviation de consigne. Avec ce type de réseau, il est également possible d'envisager un apprentissage en ligne (ce qui n'est pas le cas pour les réseaux avec entrée explicite du temps).

Notre étude n'a cependant portée que sur l'utilisation des réseaux avec entrée implicite du temps en mode direct. Seule une prévision un pas en avant peut être effectuée ce qui limite l'application de ces modèles. Afin de déployer tout leur intérêt, il est donc absolument indispensable d'approfondir ces travaux prospectifs en développant ces modèles en mode récurrent. Cette approche différente, apporterait une capacité d'anticipation bien supérieure en prévoyant plusieurs pas en avant. Dans cette perspective, les résultats obtenus ci-dessus en mode direct sont particulièrement encourageants.

Finalement, il semble que les deux types de réseaux étudiés présentent des potentialités complémentaires. L'entrée explicite du temps, plus simple à mettre en œuvre, apparaît bien adaptée pour faire de la simulation. L'entrée implicite du temps est par contre l'unique alternative pour une utilisation en contrôle-commande. Néanmoins, une étude plus approfondie est nécessaire avant de conclure plus avant.

Notons finalement que, contrairement aux conditions constantes, l'utilisation des réseaux de neurones en conditions variables se heurte à un obstacle de taille : le choix des bases de données. La multitude des combinaisons possibles rend cette étape particulièrement délicate. Il est ainsi difficile

d'être certain que le modèle élaboré sur une répartition apprentissage/test particulière est utilisable dans tous les autres cas. La base de test intervenant sur l'apprentissage (arrêt de l'apprentissage à erreur minimale sur la base de test), il pourrait être judicieux de considérer une troisième base indépendante pour s'assurer de la validité du modèle (base de validation).

<p><b>- CHAPITRE IV -</b>  <b>REFLEXION SUR LES APPORTS</b>  <b>DES MODELES ELABORES</b></p>
--

<b>IV-1 OPTIMISATION DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES A UN TEMPS DE REFERENCE.....</b>	<b>97</b>
IV-1.1 Présentation de la méthode.....	97
IV-1.1.1 Principe de base.....	97
IV-1.1.2 Comparaison avec des modèles simples.....	98
IV-1.2 Application de la méthode.....	99
IV-1.2.1 Résistance hydraulique.....	99
IV-1.2.2 Rétention.....	102
IV-1.3 Détermination des conditions optimales.....	103
IV-1.4 Bilan.....	104
<b>IV-2 SYNTHESE SUR L'INFLUENCE DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES EN REGIME PSEUDO-STATIONNAIRE.....</b>	<b>105</b>
IV-2.1 Effet de la Pression transmembranaire.....	105
IV-2.1.1 Densité de flux de filtrat.....	105
• Comportement 1: $J_f$ est une fonction croissante de $P_{tm}$ .....	105
• Comportement 2: $J_f$ est une fonction décroissante de $P_{tm}$ .....	107
• Comportement 3: $J_f$ présente un maximum en fonction de $P_{tm}$ .....	107
IV-2.1.2 Résistance hydraulique totale.....	107
IV-2.1.3 Rétention membranaire.....	108
IV-2.2 Effet de la Vitesse tangentielle.....	108
IV-2.3 Conclusion.....	109
<b>IV-3 TEST D'UNE METHODE D'OPTIMISATION PAS A PAS.....</b>	<b>109</b>
IV-3.1 Les méthodes d'optimisation pas à pas.....	109
IV-3.2 Exemple d'application.....	111
IV-3.3 Bilan.....	112
<b>IV-4 CONCLUSION.....</b>	<b>113</b>

Produit	Membrane	Circulation de filtrat	U <sub>min</sub> (m/s)	U <sub>max</sub> (m/s)	P <sub>tmmin</sub> à U <sub>max</sub> * (bar)	P <sub>tmmax</sub> à U <sub>max</sub> * (bar)	Gamme U choisie (m/s)	Gamme P <sub>tm</sub> choisie (bar)
Sucre roux de canne 60 gMS/100g 80 °C	MEMBRALOX 1,4 µm	non	2,2	6,0	1,5	6,5	4,3 - 5,7 <sup>(1)</sup>	1,7 - 2,8 <sup>(1)</sup>
		oui	2,2	6,0	0,0	5,2	4,3 - 5,7 <sup>(2)</sup>	0,2 - 0,8 <sup>(2)</sup>
	Ultra-filtration	non	3,5	6,0	1,8	6,2	4,0 - 6,0	2,0 - 6,0
Gomme arabique 20 gMS/100g 70 °C	MEMBRALOX 1,4 µm	non	6,5	7,5	2,4	5,6	6,5 - 7,5	2,5 - 4,0
		oui	6,5	7,5	0,0	3,4	6,5 - 7,5	0,3 - 1,8

\*: P<sub>max</sub> = 8 bar, P<sub>f</sub> = P<sub>fs</sub> = 0,2 bar.

(1): données extraites de l'application du PECC.

(2): données extraites de l'application du PEUDM.

Tableau IV.1 : domaine paramétrique retenu pour les divers couple produit/membrane étudiés.



Comme nous l'avons montré pour les filtrations menées à conditions constantes, divers modèles associés à une planification d'expériences adaptée, peuvent être utilisés pour représenter l'effet des conditions hydrodynamiques sur les résultats à un temps de référence. La validité des prédictions obtenues permet d'envisager la mise en œuvre de tels outils à différents niveaux.

Sans chercher à être exhaustif, nous avons choisi de discuter dans ce chapitre quelques applications possibles de ces modèles. Nous présentons tout d'abord comment de tels modèles, en particulier les réseaux de neurones, peuvent être utilisés comme outils d'optimisation pour les conditions hydrodynamiques à un temps de référence. Grâce à ces modèles, nous tentons ensuite de tirer quelques conclusions sur l'effet des conditions opératoires dans des intervalles continus de pression transmembranaire et de vitesse tangentielle. Nous abordons enfin l'utilisation de ces modèles pour tester l'intérêt d'une autre méthode d'optimisation sans avoir recours à l'expérience.

#### **IV-1 OPTIMISATION DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES A UN TEMPS DE REFERENCE**

L'utilisation des réseaux de neurones (avec entrée explicite du temps) pour la modélisation de filtrations à conditions constantes, a montré qu'il était possible de représenter, à la suite de seulement 5 essais expérimentaux, l'effet de  $P_{tm}$  et  $U$  sur les performances en régime pseudo-stationnaire. Ces modèles dynamiques semblent donc être directement exploitables pour représenter les résultats de la filtration à un temps de référence pourvu qu'il soit choisi dans la phase pseudo-stationnaire.

Dans ce cadre, nous suggérons de tester une nouvelle méthode mettant en œuvre les réseaux de neurones comme outils d'optimisation pour les conditions de filtration à un temps de référence ( $t_r$ ) en phase pseudo-stationnaire. Pour sa validation, cette approche est successivement appliquée à plusieurs couples produit/membrane.

##### **IV-1.1 Présentation de la méthode**

###### **IV-1.1.1 Principe de base**

Les domaines  $P_{tm}/U$  disponibles ont tout d'abord été déterminés suivant la méthode déjà décrite pour les plans d'expériences. A la suite d'une étude préliminaire rapide, les domaines  $P_{tm}/U$  à explorer ont été choisis. Les domaines paramétriques retenus sont présentés dans le **Tableau IV.1** pour les différents cas considérés.

La méthode proposée se décompose alors en deux étapes successives :

1. Pour chaque couple produit/membrane étudié, un plan d'expériences factoriel centré est effectué sur le domaine paramétrique retenu. Les réseaux de neurones avec entrée explicite du temps sont ensuite utilisés comme précédemment pour modéliser les diverses courbes expérimentales en fonctions du temps (performances et efficacité). La couche d'entrée des perceptrons mis en œuvre contient la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ), la vitesse tangentielle ( $U$ ) et le temps de filtration. Cette configuration permet de recueillir une grande quantité de données expérimentales par filtration et ainsi de diminuer fortement le nombre de combinaisons pression/vitesse à tester expérimentalement pour l'élaboration du modèle. Parmi les résultats issus du plan d'expériences choisi, trois essais sont réservés à la base d'apprentissage et 2 à la base de test suivant la répartition donnée sur la **Figure III.38**.
2. Après avoir vérifié la bonne représentation des résultats en phase pseudo-stationnaire, le temps de référence ( $t_r$ ) est choisi. Les modèles dynamiques obtenus suite à la phase 1 sont alors utilisés pour déterminer les performances et l'efficacité de la filtration à ce temps de référence en fonction de la pression transmembranaire et de la vitesse tangentielle.

Nous avons choisi de mettre en œuvre deux réseaux de neurones indépendants, l'un pour représenter les performances, l'autre pour représenter l'efficacité de la filtration. Les résistances hydrauliques totales ( $R_t$ ) sont présentées en sortie du premier réseau. Pour le second réseau, un critère de rétention membranaire adéquat ( $T_Q$ ) définit directement la couche de sortie. Le logiciel d'apprentissage NEUREX est utilisé pour cette étude en se limitant aux structures cachées monocouche (nombre de neurones cachés variant de 1 à 10). Nous ne présentons ci-dessous que les meilleurs résultats obtenus à la suite de 20 initialisations aléatoires des poids.

#### IV-1.1.2 Comparaison avec des modèles simples

Afin de vérifier son intérêt, l'approche proposée ci-dessus est comparée à des techniques de modélisation plus simples [APOSTOLOS *et al.* 1994]. Compte tenu du type de plan d'expériences choisi (5 essais), les modèles classiques utilisables pour représenter  $R_t$  et/ou  $T_Q$  au temps de référence ( $t_r$ ) sont limités. En effet, le nombre de degrés de liberté disponibles est seulement de 5. Etant indispensable de réserver au moins 2 degrés de liberté pour l'estimation de l'erreur de prédiction, les modèles susceptibles d'être utilisés ne doivent pas faire intervenir plus de 3 paramètres. Compte tenu de cette contrainte, nous avons choisi d'utiliser seulement les modèles affine et exponentiel. Les résultats expérimentaux obtenus au temps de référence sont donc finalement modélisés sous trois formes :

Essai	Ptm (bar)	U (m/s)	MS (g/100g)	Jf <sub>120min</sub> (L/(h.m <sup>2</sup> ))	Rt <sub>120min</sub> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	TMS <sub>120min</sub> (%)	TtU <sub>120min</sub> (%)	TCOL <sub>120min</sub> (%)
105	2,75	4,2	57,8	37	640	< 1	76	11
101	2,25	5,0	57,9	48	380	2	74	10
109	1,72	5,7	57,8	72	197	< 1	78	7
099	1,72	4,3	57,7	42	343	1	76	17
104	2,78	5,7	57,9	56	402	< 1	76	15

Tableau IV.2 : principaux résultats obtenus dans le cas sucre/MEMBRALOX 1,4 µm sans circulation de filtrat [lot 4; 80 °C].

Essai	Ptm (bar)	U (m/s)	MS (g/100g)	Jf <sub>120min</sub> (L/(h.m <sup>2</sup> ))	Rt <sub>120min</sub> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	TMS <sub>120min</sub> (%)	TtU <sub>120min</sub> (%)
162	0,71	4,29	58,0	33	173	3	64
142	0,50	5,00	59,1	41	90	2	66
144	0,29	5,71	59,5	50	40	2	66
161	0,79	5,26	58,6	50	122	3	66
164	0,21	4,74	58,7	42	39	2	66

Tableau IV.3 : principaux résultats obtenus dans le cas sucre/MEMBRALOX 1,4 µm avec circulation de filtrat [lot 7t; 80 °C].

Essai	Ptm (bar)	U (m/s)	MS (g/100g)	Jf <sub>120min</sub> (L/(h.m <sup>2</sup> ))	Rt <sub>120min</sub> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	TMS <sub>120min</sub> (%)	TtU <sub>120min</sub> (%)
173	6,0	4,0	60,2	23	1702	1	> 99
169	4,0	5,0	60,0	22	1217	2	> 99
174	2,0	6,0	60,4	19	670	1	> 99
172	2,0	4,0	59,1	16	917	3	> 99
171	6,0	6,0	59,1	27	1645	3	> 99

Tableau IV.4 : principaux résultats obtenus dans le cas sucre/membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat [lot 8; 80 °C].

Essai	Ptm (bar)	U (m/s)	MS (g/100g)	Jf <sub>60min</sub> (L/(h.m <sup>2</sup> ))	Rt <sub>60min</sub> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	TMS <sub>60min</sub> (%)	TtU <sub>60min</sub> (%)
151	4,00	6,5	14,6	40	339	21	95
152	3,25	7,0	15,2	46	240	17	92
148	2,50	7,5	16,7	66	126	10	94
150	2,50	6,5	16,3	57	150	11	95
149	4,00	7,5	15,1	48	289	18	95

Tableau IV.5 : principaux résultats obtenus dans le cas gomme/MEMBRALOX 1,4 µm sans circulation de filtrat [70 °C].

Essai	Ptm (bar)	U (m/s)	MS (g/100g)	Jf <sub>60min</sub> (L/(h.m <sup>2</sup> ))	Rt <sub>60min</sub> (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	TMS <sub>60min</sub> (%)	TtU <sub>60min</sub> (%)
159	1,80	6,5	16,2	49	128	11	88
160	1,05	7,0	16,6	88	42	9	86
158	0,30	7,5	17,3	106	10	4	83
155	0,30	6,5	17,5	97	10	4	81
156	1,80	7,5	16,6	64	100	9	88

Tableau IV.6 : principaux résultats obtenus dans le cas gomme/MEMBRALOX 1,4 µm avec circulation de filtrat [70 °C].

$$\begin{array}{ll}
\text{par les réseaux de neurones} & : \quad \hat{Y} = \text{RN}(t_r, P_{tm}, U) \\
\text{par le modèle affine} & : \quad \hat{Y} = a_0 + a_1.P_{tm} + a_2.U \\
\text{par le modèle exponentiel} & : \quad \hat{Y} = e_0.\exp(e_1.P_{tm} + e_2.U)
\end{array}$$

avec  $\hat{Y}$  = résultat calculé à  $t_r$  (résistance hydraulique totale ou taux de rétention).

Afin de comparer la valeur prédictive de ces modèles, l'erreur est estimée sous la forme d'un coefficient de variation ( $\gamma$ ) qui se calcule dans ce cas suivant l'équation (43).

$$\gamma = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^5 (\hat{Y}_i - Y_i)^2}}{2 \cdot \bar{Y}} \times 100 \quad (43)$$

avec au temps de référence ( $t_r$ ) :

$Y_i$  =  $i^{\text{ème}}$  résultat expérimental,

$\hat{Y}_i$  =  $i^{\text{ème}}$  résultat calculé,

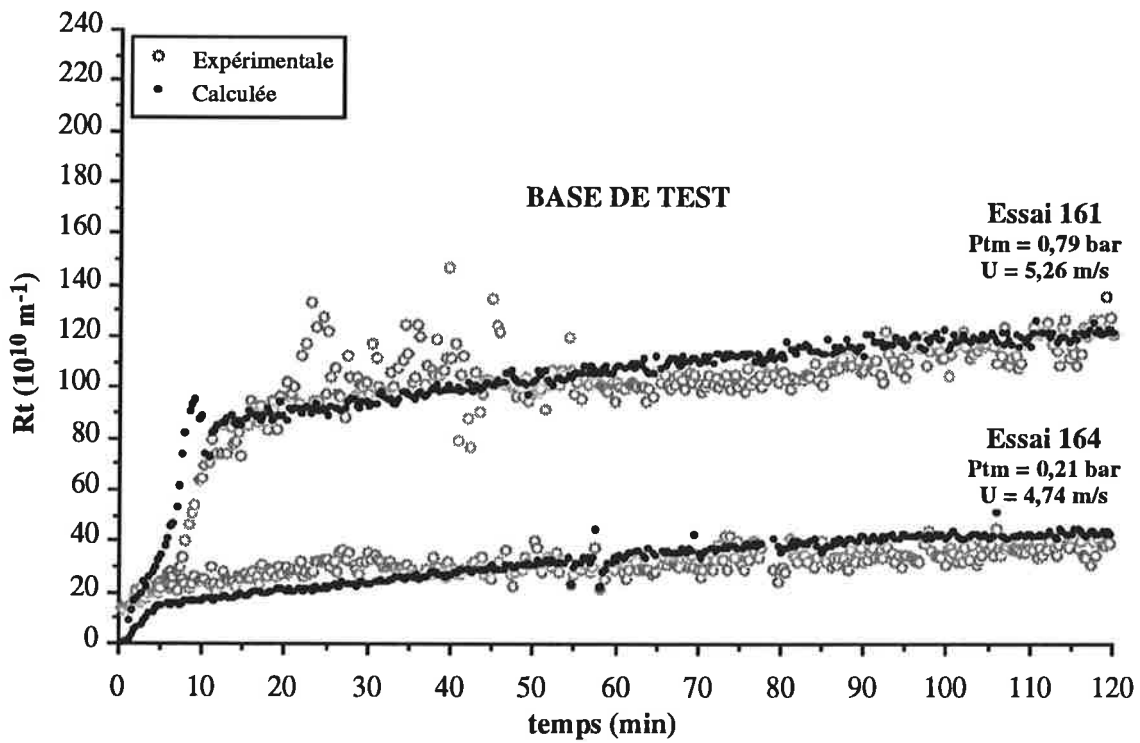
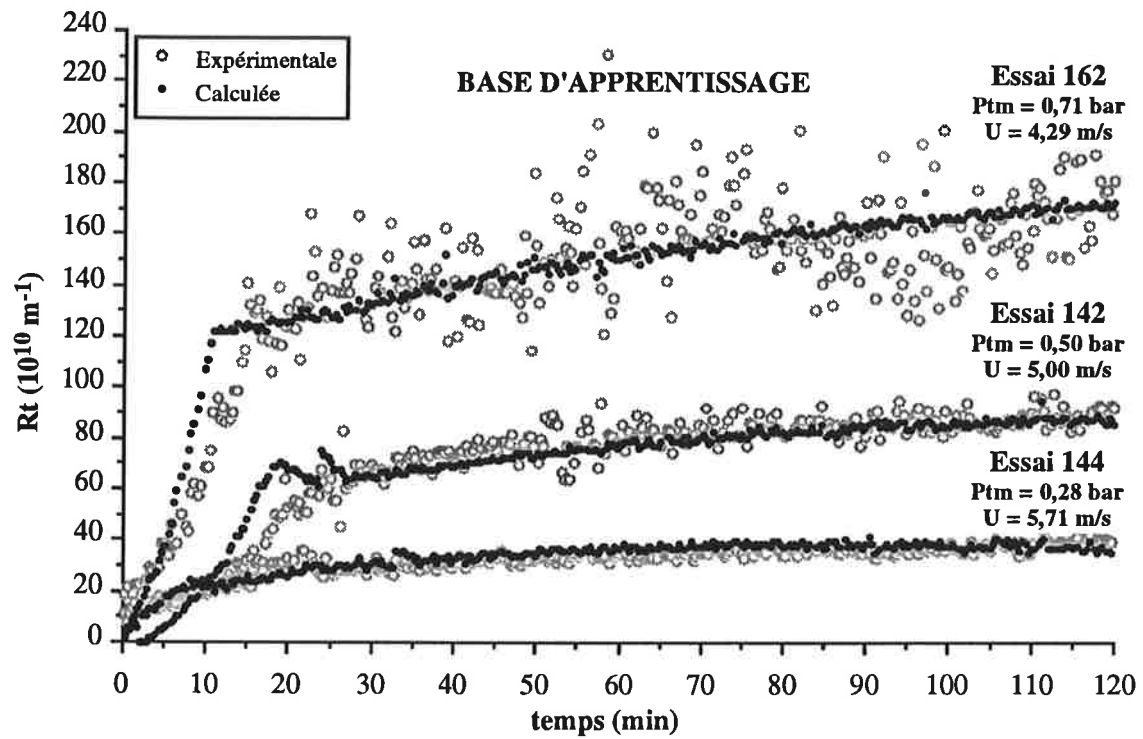
$\bar{Y}$  = moyenne des résultats expérimentaux.

## IV-1.2 Application de la méthode

Pour les cas sucre/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans et avec circulation de filtrat, les résultats expérimentaux sont extraits des essais effectués pour la validation des méthodes basées sur les plans d'expériences (Tableaux IV.2 et IV.3). Pour les autres cas étudiés, les résultats mesurés au temps de référence à la suite du plan d'expériences factoriel centré, sont donnés dans les Tableaux IV.4 à IV.6.

### IV-1.2.1 Résistance hydraulique

Quel que soit le couple produit/membrane ou le système de filtration étudié, l'évolution des résistances hydrauliques totales au cours du temps est bien représentée en phase pseudo-stationnaire par les réseaux de neurones. Quelques exemples de courbes simulées sont donnés sur les Figures IV.1 à IV.3. Les résultats obtenus dans le chapitre précédent sont confirmés pour d'autres cas : avec une distribution de 3 essais en apprentissage et de 2 essais en test, les réseaux de neurones permettent de modéliser de façon satisfaisante  $R_t$  après un certain temps de filtration. Ils sont donc bien utilisables pour prédire la résistance hydraulique totale au temps de référence représentatif de la phase pseudo-stationnaire.



**Figure IV.1 : comparaison des courbes expérimentales et calculées pour le couple sucre / MEMBRALOX  $1,4 \mu\text{m}$  avec circulation de filtrat à  $80 \text{ }^\circ\text{C}$  [RN7; NEUREX].**

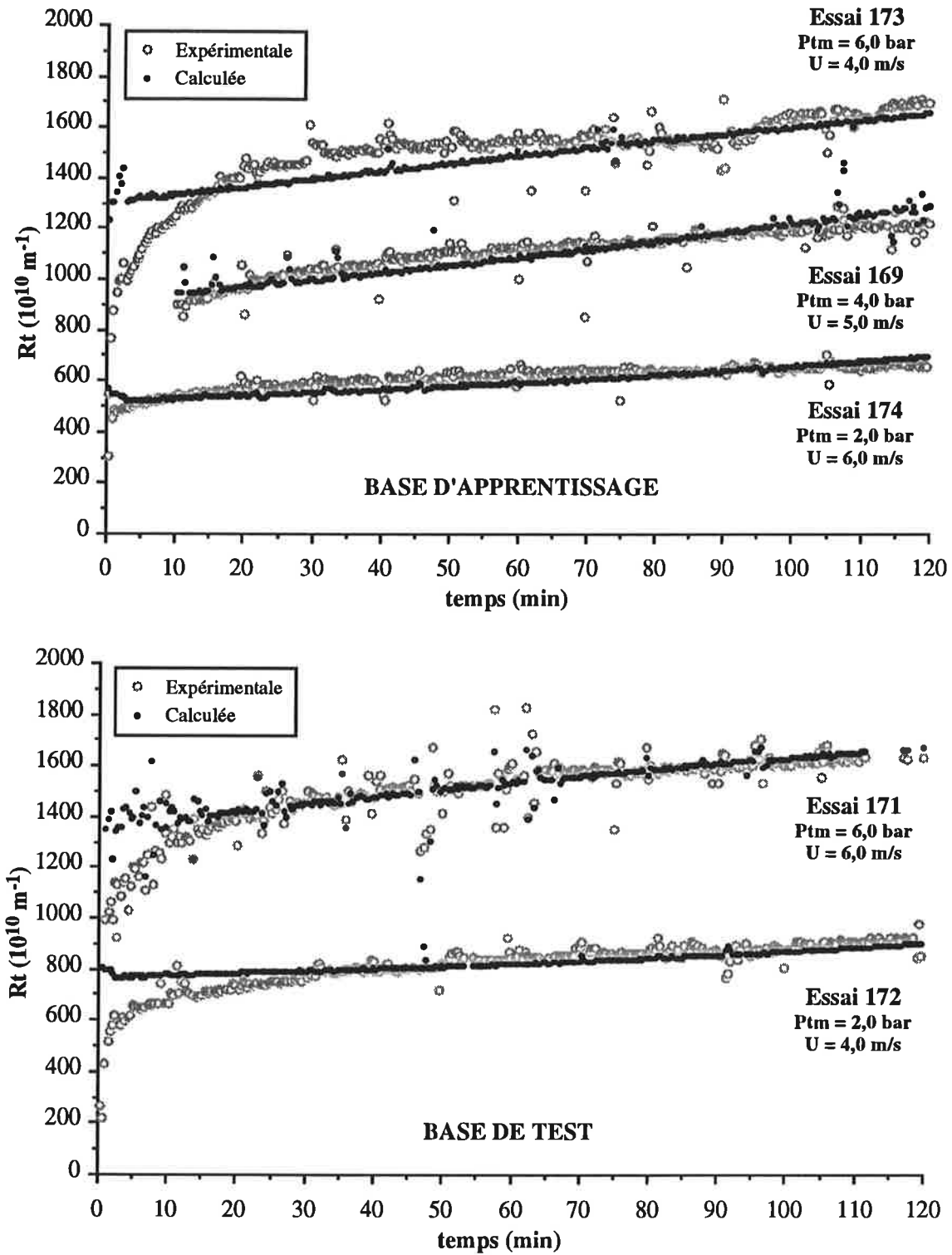


Figure IV.2 : comparaison des courbes expérimentales et calculées pour le couple sucre / membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat à 80 °C [RN5; NEUREX].

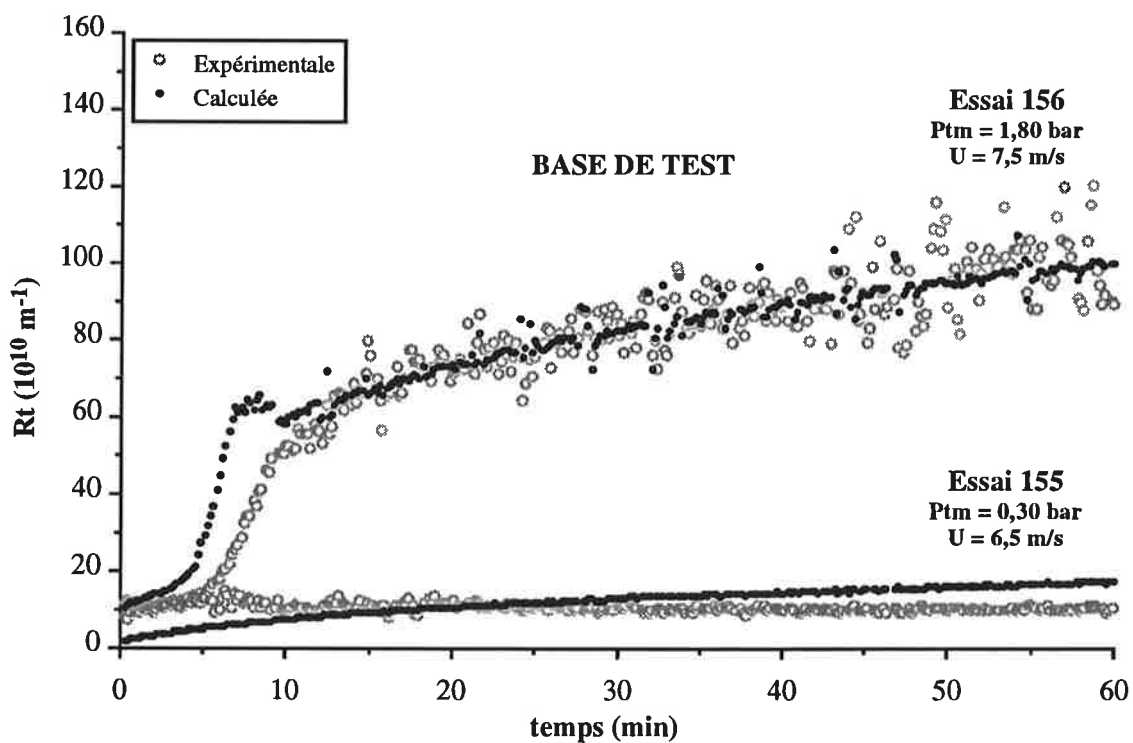
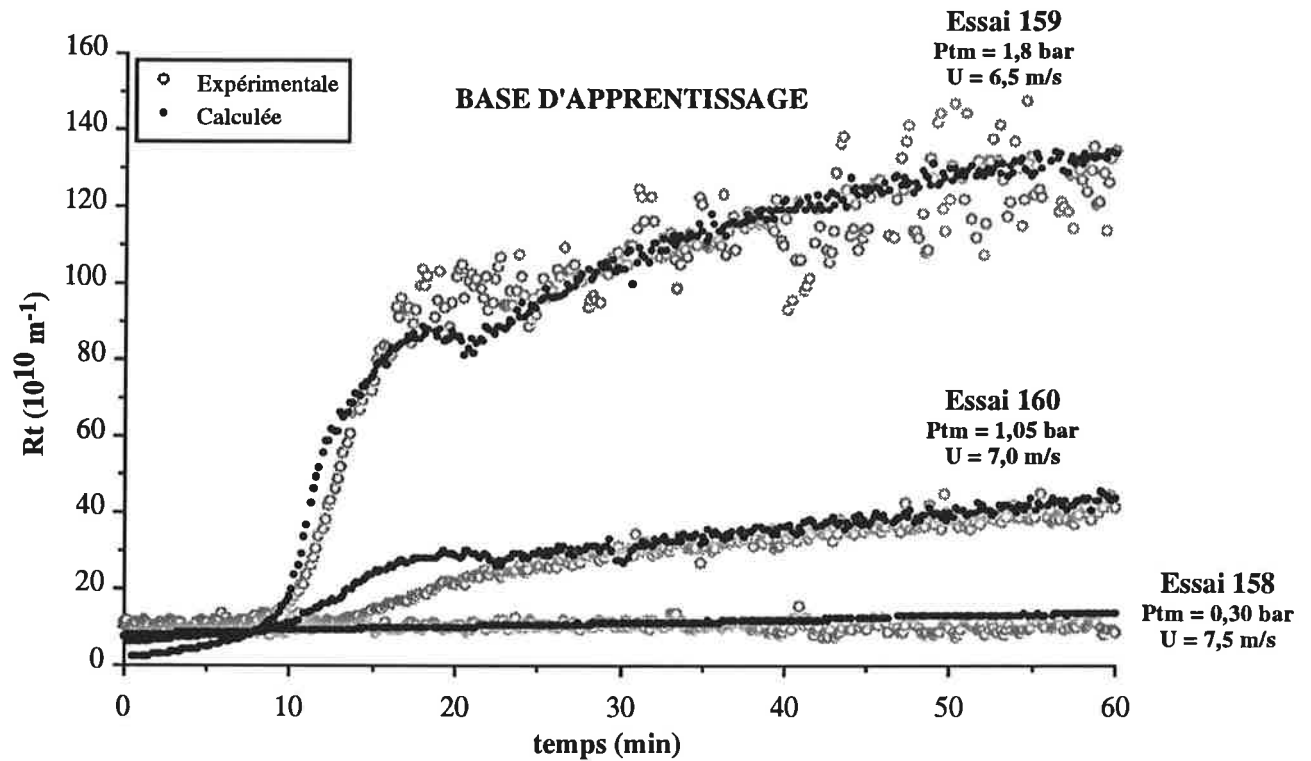


Figure IV.3 : comparaison des courbes expérimentales et calculées pour le couple gomme / MEMBRALOX 1,4 μm avec circulation de filtrat à 70 °C sur [RN3; NEUREX].

Produit	Membrane	Circul. filtrat	Temps de référence (min)	Réseau de neurones (1 couche cachée, NEUREX)		Modèle affine $\gamma$ (%)	Modèle expon. $\gamma$ (%)
				Neurones cachés	$\gamma$ (%)		
Sucre roux 60 gMS/100g 80 °C	MEMBRA-LOX 1,4 $\mu$ m	lot 4 non	120	2	5	6	4
		lot 7t oui		7	5	13	11
	lot 8 Ultra-filtration non	5		3	2	6	
Gomme arabique 20 gMS/100g 70 °C	MEMBRA-LOX 1,4 $\mu$ m	non	60	4	4	4	7
		oui		3	9	19	18

Tableau IV.7 : coefficients de variation obtenus par les différents modèles sur les résistances hydrauliques totales au temps de référence.

Produit	Membrane	Circul. filtrat	Temps de référence (min)	TMS (%)	T <sub>TU</sub> (%)	T <sub>COL</sub> (%)
Sucre roux 60 gMS/100g 80 °C	MEMBRA-LOX 1,4 $\mu$ m	lot 4 non	120	1	76	11
		lot 7t oui		3	65	—
	lot 8 Ultra-filtration non	2		> 99	Variable	
Gomme arabique 20 gMS/100g 70 °C	MEMBRA-LOX 1,4 $\mu$ m	non	60	Variable	94	—
		oui		7	86	—

Tableau IV.8 : capacités de rétention moyennes obtenues pour les différents couple produit/membrane testés.

Produit	Membrane	Circul. filtrat	Critère de rétention	Temps de référence (min)	Réseau de neurones (1 couche cachée, NEUREX)		Modèle affine $\gamma$ (%)	Modèle expon. $\gamma$ (%)
					Neurones cachés	$\gamma$ (%)		
Sucre roux - lot 8 60 gMS/100g 80 °C	Ultra-filtration	non	COL	120	9	3	7	6
Gomme arabique 20 gMS/100g 70 °C	MEMBRA-LOX 1,4 $\mu$ m	non	MS	60	8	7	8	9

Tableau IV.9 : coefficients de variation obtenus par les différents modèles sur les taux de rétention au temps de référence.



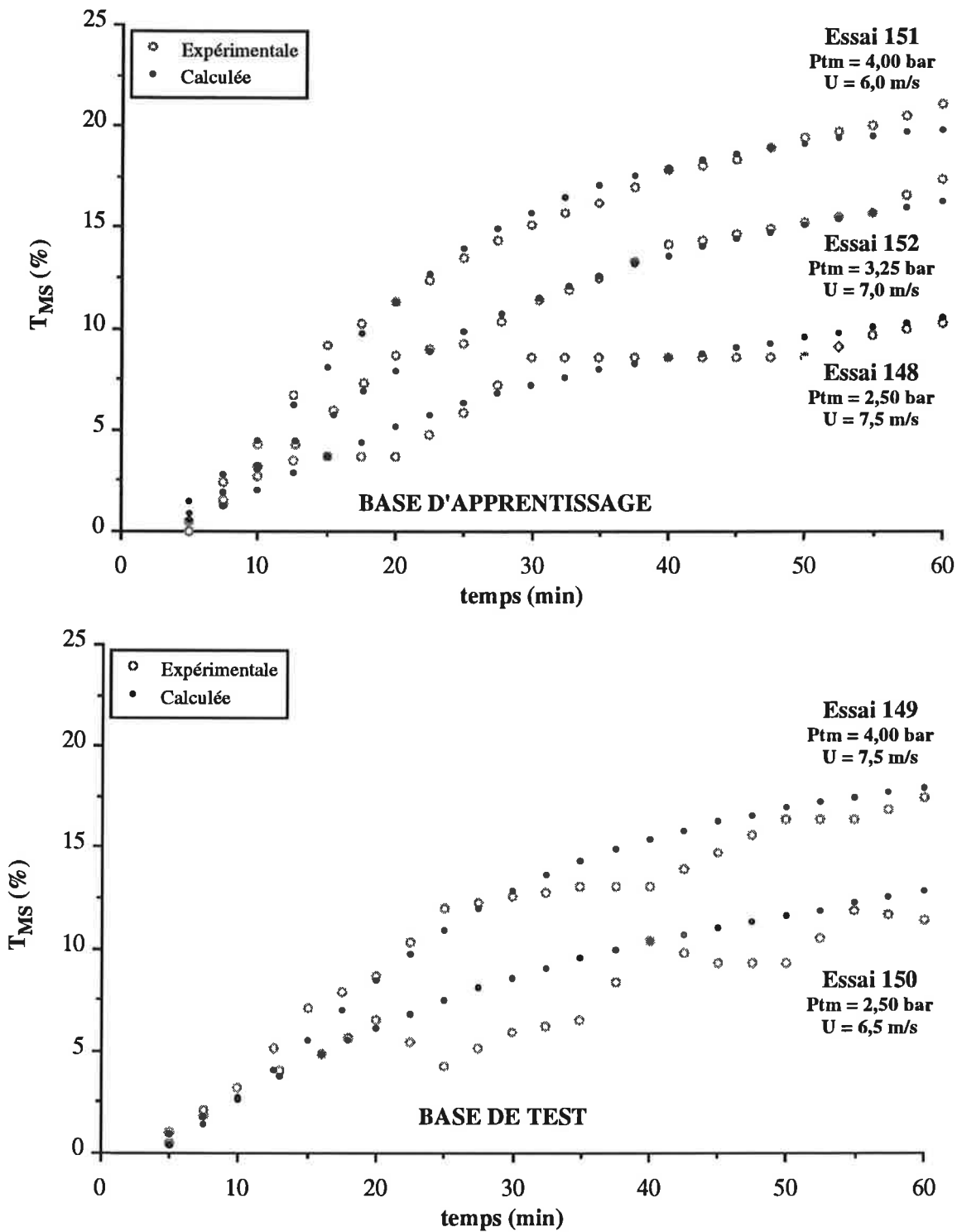


Figure IV.4 : comparaison des courbes expérimentales et calculées pour le couple gomme / MEMBRALOX  $1,4 \mu\text{m}$  sans circulation de filtrat à  $70^\circ\text{C}$  [RN8; NEUREX].

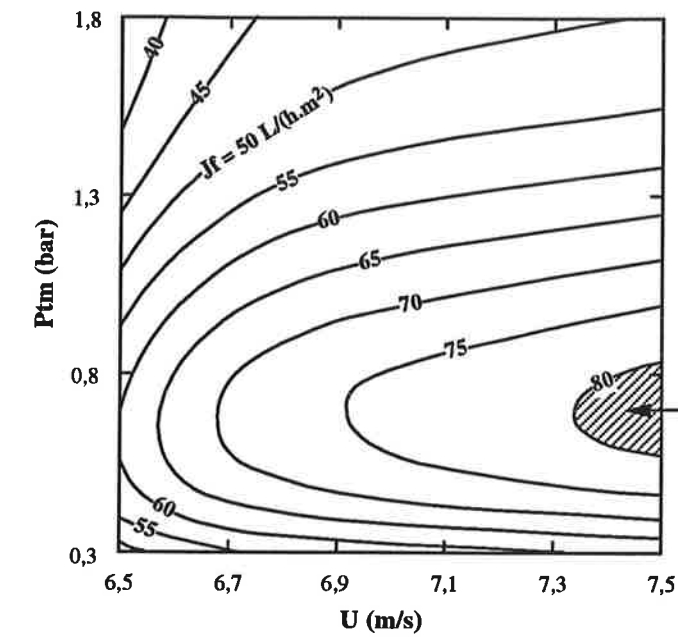
Pour les résistances hydrauliques totales à  $t_r$ , les coefficients de variation obtenus pour les différents couples produit/membrane testés sont donnés dans le **Tableau IV.7**. Dans tous les cas traités, les réseaux de neurones conduisent à des coefficients de variation compris entre 3 et 9 %. La valeur prédictive de ces modèles est donc très satisfaisante ce qui confirme bien nos résultats précédents. En comparant les réseaux de neurones aux modèles affine et exponentiel, nous constatons que dans certains cas, les réseaux de neurones n'apportent pas d'amélioration. Il est probable que ceci soit lié au choix du domaine paramétrique. En effet, lorsque la gamme de pression-vitesse explorée est suffisamment restreinte, l'approximation de  $R_t = f(P_{tm}, U)$  par un plan ou une surface exponentielle est possible. Par contre, pour les couples sucre/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  et gomme/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  avec circulation de filtrat, la valeur prédictive des réseaux de neurones est environ deux fois plus élevée que la valeur prédictive du meilleur modèle classique. L'utilisation des réseaux de neurones permet donc d'améliorer considérablement les résultats.

Dans ce dernier cas, la non-linéarité des effets de  $P_{tm}$  et de  $U$  sur la résistance en phase pseudo-stationnaire est clairement mise en évidence. En effet, pour de faibles pressions,  $P_{tm}$  a peu d'influence sur la résistance au transfert. Les résistances prédites aux plus faibles valeurs de  $P_{tm}$  sont très proches de la résistance membranaire mesurée sur eau ( $R_m$ ). Lorsque  $P_{tm}$  augmente, les courbes croissent par contre rapidement. L'influence de la vitesse tangentielle est également peu marquée aux faibles pressions. Par contre, aux plus fortes  $P_{tm}$ , une diminution de la vitesse s'accompagne d'une importante augmentation de la résistance hydraulique totale. Ainsi, la capacité des modèles connectionnistes à intégrer les non-linéarités des effets de  $P_{tm}$  et  $U$  sur  $R_t$  est bien démontrée.

#### IV-1.2.2 Rétention

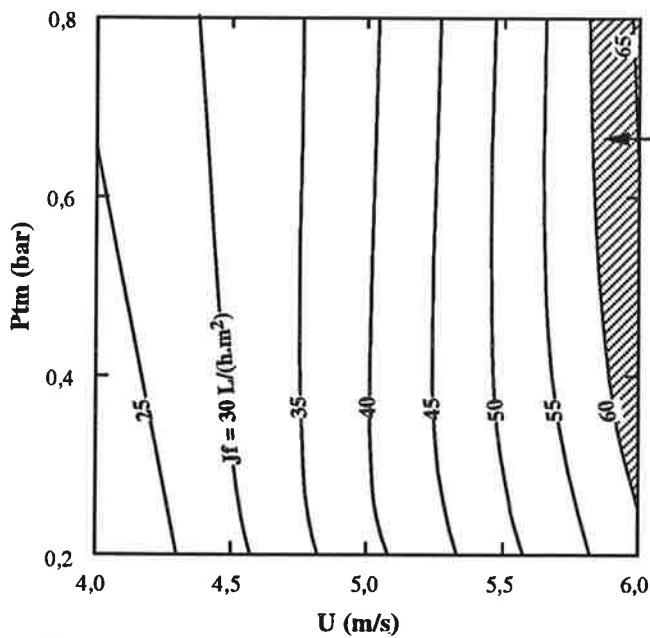
Dans la plupart des cas testés, la rétention membranaire n'est pas significativement affectée par les conditions opératoires ou alors n'y est pas corrélée sur les domaines pression-vitesse explorés. Les valeurs moyennes obtenues sont consignées dans le **Tableau IV.8**.

Une influence des conditions de traitement a seulement été constatée pour le taux de rétention en matière sèche ( $T_{MS}$ ) avec le couple gomme/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  et pour le taux de décoloration ( $T_{COL}$ ) avec le couple sucre/membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat. Comme pour  $R_t$ , les réseaux de neurones utilisés en dynamique permettent de représenter de façon satisfaisante l'évolution de la rétention en phase pseudo-stationnaire (**Figure IV.4**). Par rapport au modèle affine, la modélisation par les réseaux de neurones au temps de référence n'apporte pas d'amélioration significative dans le premier cas. Par contre, dans le second cas, le coefficient de variation obtenu est deux fois plus faible avec les réseaux de neurones (**Tableau IV.9**). Ainsi, comme pour la résistance hydraulique totale, l'utilisation des modèles connectionnistes pour la modélisation de la rétention membranaire peut, dans certains cas, améliorer considérablement la



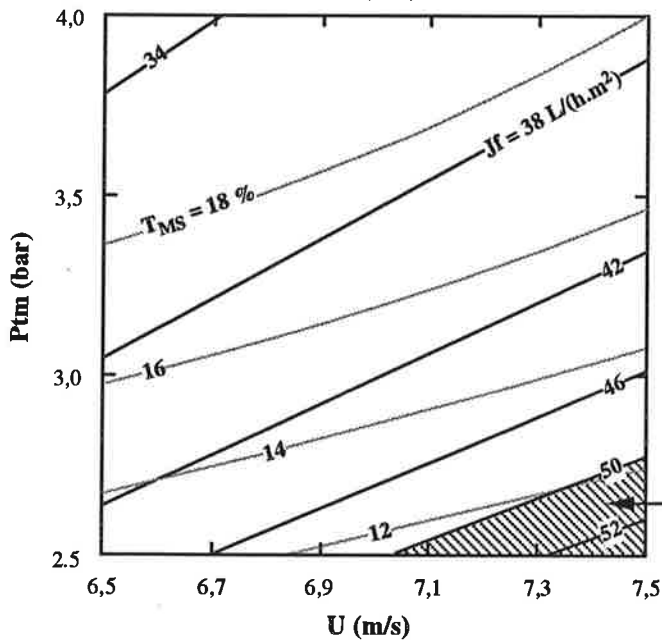
**a** : gomme (20 gMS/100g) / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$   
avec circulation de filtrat (70 °C)  
 $t_r = 60$  min

Région optimale



**b** : sucre (60 gMS/100g) / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$   
avec circulation de filtrat (80 °C)  
 $t_r = 120$  min

Région optimale



**c** : gomme (20 gMS/100g) / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$   
sans circulation de filtrat (70 °C)  
 $t_r = 60$  min

Région optimale

Figure IV.5 : influence simulée de la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et de la vitesse tangentielle ( $U$ ) sur la densité de flux de filtrat ( $J_f$ ) et taux de rétention en matière sèche ( $T_{MS}$ ) dans différents cas.

qualité des prédictions.

### IV-1.3 Détermination des conditions optimales

Comme nous l'avons montré précédemment, les modèles établis sont utilisables pour prédire à  $t_r$  la résistance hydraulique totale et, éventuellement, les critères de rétention, sur la totalité du domaine pression-vitesse exploré. Pour chaque couple produit-membrane, parmi les trois types de modèle testés (réseaux de neurones, modèle affine ou modèle exponentiel), seul celui qui conduit au plus faible coefficient de variation est retenu pour la détermination des conditions opératoires optimales.

Dans tous les cas, il s'agit de maximiser les performances. En ce qui concerne l'efficacité, il est par contre possible de chercher à maximiser ou à minimiser le critère choisi. Pour les applications envisagées, nous avons cherché à maximiser la clarification et éventuellement la décoloration. La rétention en matière sèche doit quant à elle être simultanément minimisée pour limiter au mieux les pertes de produit.

Les densités de flux de filtrat sont déduites des résistances hydrauliques totales simulées (loi de DARCY). Il est alors possible, pour chaque couple produit/membrane, de représenter les courbes de niveaux correspondant aux résultats prédits par les modèles.

Quand la rétention ne varie pas significativement sur le domaine pression-vitesse balayé, la détermination de l'optimum de fonctionnement est simple puisque seul le critère performance intervient. Le type de résultats obtenus est illustré avec les couples gomme/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  et sucre/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  avec circulation de filtrat sur la **Figure IV.5a** et **b**. Dans le premier cas, le modèle prévoit un flux de filtrat maximal ( $J_f \geq 80 \text{ L}/(\text{h}.\text{m}^2)$ ) pour une pression transmembranaire d'environ 0,7 bar et des vitesses tangentielles voisines de 7,5 m/s. La zone optimale de fonctionnement est donc aisément définie. Dans le second cas, la gamme de pression transmembranaire balayée est moins bien choisie. Il est néanmoins possible de prévoir une pression optimale proche de 0,8 bar.

Lorsque la rétention est affectée par les conditions opératoires, il est nécessaire de considérer simultanément les critères performance et efficacité. Par superposition des courbes de niveaux, la détermination d'un optimum peut être également effectuée. Le cas du couple gomme/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de filtrat est présenté sur la **Figure IV.5c**. Dans ce cas, les zones optimales prédites pour la densité de flux de filtrat et la rétention en matière sèche sont pratiquement confondues ( $J_f$  maximum et  $T_{MS}$  minimum). Pour le couple sucre/membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat, les optima de densités de flux et de décoloration ( $J_f$  et  $T_{COL}$  maximum) sont également situés dans la même zone  $P_{tm}/U$  (fortes  $P_{tm}$  et  $U$ ). Ainsi, dans ces deux cas, les conditions de pression et de vitesse les plus adaptées sont donc faciles à déterminer.

Produit	Membrane	Circulation de filtrat	Conditions optimales		Résultats prédits			
			U (m/s)	P <sub>tm</sub> (bar)	tr (min)	J <sub>fr</sub> (L/(h.m <sup>2</sup> ))	T <sub>Mstr</sub> (%)	TTU <sub>tr</sub> (%)
Sucre roux de canne 60 gMS/100g 80 °C	MEMBRA- LOX 1,4 µm	non	5,6 - 5,7	1,7 - 1,8	120	56-62	1	76
		oui	5,8 - 6,0	0,7 - 0,8	120	60-65	3	65
	Ultra-filtration	non	5,5 - 6,0	5,0 - 6,0	120	24-25	2	> 99
Gomme arabique 20 gMS/100g 70 °C	MEMBRA- LOX 1,4 µm	non	7,3 - 7,5	2,5 - 2,6	60	50-52	12-13	94
		oui	7,4 - 7,5	0,6 - 0,8	60	80-82	7	86

**Tableau IV.10 : conditions de pression transmembranaire (P<sub>tm</sub>) et de vitesse tangentielle (U) optimales et résultats optimaux prédits.**

La même démarche est suivie, pour les autres cas étudiés. Les domaines optimaux de pression transmembranaire et de vitesse tangentielle sont ainsi prédits pour tous les couples produit/membrane testés (**Tableau IV.10**).

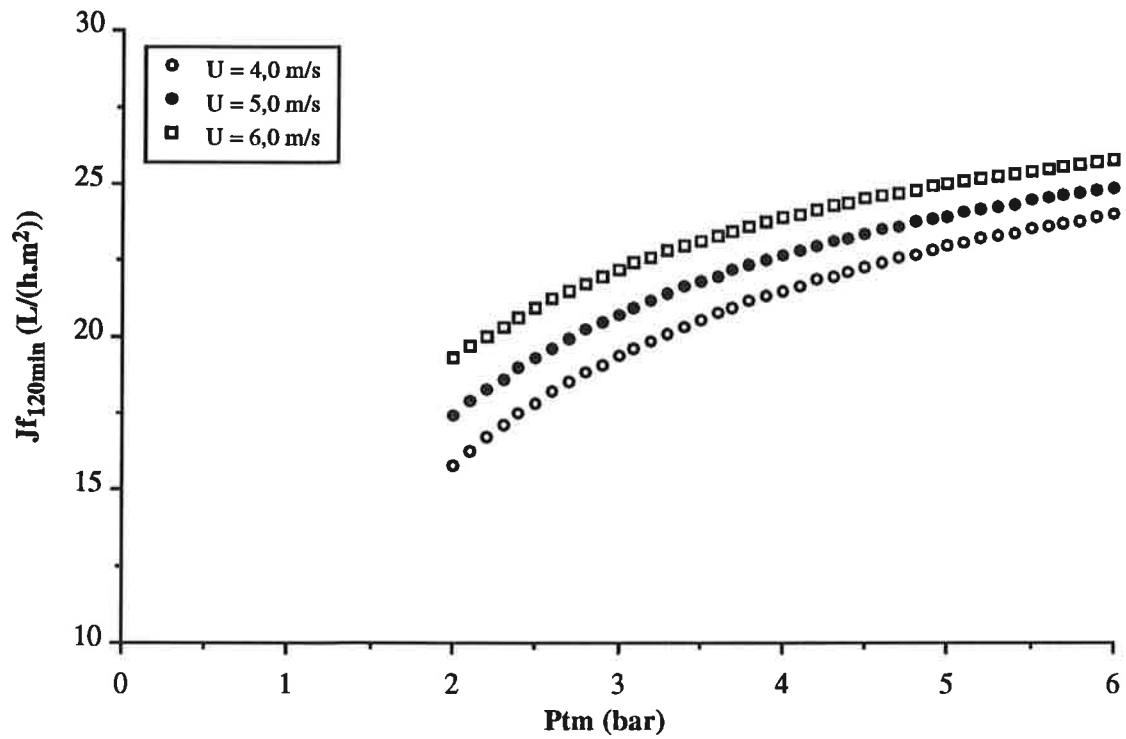
#### **IV-1.4 Bilan**

Dans tous les cas traités, la méthode proposée avec mise en œuvre des réseaux de neurones, a permis de modéliser l'influence des conditions opératoires sur les densités de flux de filtrat et les capacités de rétention membranaire en régime pseudo-stationnaire. A la suite de seulement 5 essais expérimentaux, cette approche a conduit à des résultats très satisfaisants pour tous les couples produit/membrane étudiés. Comparés à des techniques de modélisation plus simples et pour le même nombre d'essais pilote, les réseaux de neurones se sont montrés plus performants lorsque les effets des conditions opératoires sont significativement non-linéaires sur le domaine paramétrique choisi. Dans certains cas, les modèles connexionnistes présentent donc un intérêt certain par rapport aux modèles plus classiques.

Compte tenu de la valeur prédictive des modèles établis et pour tous les couples produit/membrane testés, il est possible de déterminer les conditions de pression transmembranaire et de vitesse tangentielle optimales avec une marge de sécurité satisfaisante. Notons que la méthode décrite ne nécessite qu'un faible nombre d'essais pilote. Ainsi, lors de l'étude d'un nouveau couple produit/membrane, le coût de l'optimisation est limité par rapport aux approches PECC ou PEUDM. Enfin, comme pour les plans d'expériences, cette méthodologie permet d'optimiser le procédé en intégrant simultanément les performances et l'efficacité de l'opération.

Suite à ces résultats, l'intérêt du système avec circulation de filtrat est clairement mis en évidence pour le couple gomme/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$ . En effet, pour ce couple produit/membrane, l'optimum de pression transmembranaire se situe dans une gamme incompatible avec le système sans circulation de filtrat ( $P_{\text{tm}_{\text{opti}}} < P_{\text{tm}_{\text{min}}}$ ). Grâce à cette configuration, les densités de flux maximales atteintes ont ainsi été augmentées de plus de 50 %. La diminution des capacités de rétention observée est peu importante (86 % au lieu de 94 %) et ne discrédite pas l'intérêt du système. Notons enfin que la rétention en matière sèche est significativement plus faible avec la circulation de filtrat ce qui présente un avantage supplémentaire dans ce cas.

En ce qui concerne l'application du système avec circulation de filtrat pour la microfiltration tangentielle des sirops de sucre roux, l'effet "lot de sucre" a perturbé considérablement les résultats. En effet, comme nous l'avons précédemment souligné, les deux lots de sucre utilisés pour cette étude présentent des propriétés très différentes au niveau du colmatage membranaire (cassonade pour les essais sans circulation de filtrat et sucre brut pour ceux avec circulation de filtrat). Une nouvelle étude du système avec circulation de filtrat sur un lot de cassonade serait donc nécessaire avant de conclure. Nous remarquons cependant que la clarification n'est que de 65 % avec la



**Figure IV.6 : simulation de l'évolution de la densité de flux de filtrat à 120 min ( $J_{f_{120\text{min}}}$ ) avec la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et la vitesse tangentielle ( $U$ ) pour le couple sucre (60gMS/100g) / membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat, 80 °C.**

circulation de filtrat (au lieu de 76 % sans circulation de filtrat) ce qui peut contribuer à remettre en cause l'intérêt du procédé.

Finalement, notre étude semble confirmer les résultats d'autres travaux : le système avec circulation de filtrat est bien adapté au traitement sur membrane de microfiltration à gros diamètre de pores pour obtenir des densités de flux élevées [MALMBERG et HOLM 1988, PLETT 1989, VAN DER HORST *et al.* 1994]. Cependant, il semble moins intéressant au niveau rétention.

## IV-2 SYNTHÈSE SUR L'INFLUENCE DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES EN RÉGIME PSEUDO-STATIONNAIRE

Lors de la mise au point des méthodes d'optimisation, divers modèles ont été établis. Validés sur les résultats expérimentaux, ces modèles sont directement utilisables pour prédire les effets des conditions hydrodynamiques sur les résultats de la filtration en régime pseudo-stationnaire. Grâce à ces outils, il est donc possible de représenter l'évolution des performances et éventuellement de l'efficacité de la filtration dans un domaine continu de pression et de vitesse.

Notre objectif est ici de rassembler les résultats issus des diverses modélisations et de tenter d'en tirer quelques conclusions. Pour chacun des couples produit/membrane traités, un des modèles mis au point a été choisi pour représenter à un temps de référence (phase pseudo-stationnaire),  $J_f$ ,  $R_t$  et, dans certains cas la rétention en fonction de  $P_{tm}$  et de  $U$ .

### IV-2.1 Effet de la Pression transmembranaire

#### IV-2.1.1 Densité de flux de filtrat

Suivant le couple produit/membrane, le système de filtration utilisé (avec ou sans circulation de filtrat) et la gamme paramétrique explorée ( $P_{tm}$  et  $U$ ), il est possible de distinguer trois grands types de comportement pour la densité de flux de filtrat :

- *Comportement 1 :  $J_f$  est une fonction croissante de  $P_{tm}$*

Ce premier type de comportement est observé dans les conditions opératoires explorées, pour les couples sucre/membrane d'ultrafiltration, sans circulation de filtrat et sucre/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$ , avec circulation de filtrat à 80 °C. Dans le premier cas,  $J_{f_{120\text{min}}}$  est d'autant moins sensible à  $P_{tm}$  que celle-ci est élevée (**Figure IV.6**). Les courbes semblent se rapprocher d'une valeur limite qui dépend de la vitesse tangentielle. Dans le second cas, une tendance similaire est observée, mais l'influence de  $P_{tm}$  sur  $J_{f_{120\text{min}}}$  est très faible sur la gamme de  $P_{tm}$  testée et rend l'exploitation des résultats plus délicate. Soulignons que ce type de comportement vis à vis de la pression transmembranaire est très couramment cité dans la littérature tout particulièrement en ultrafiltration



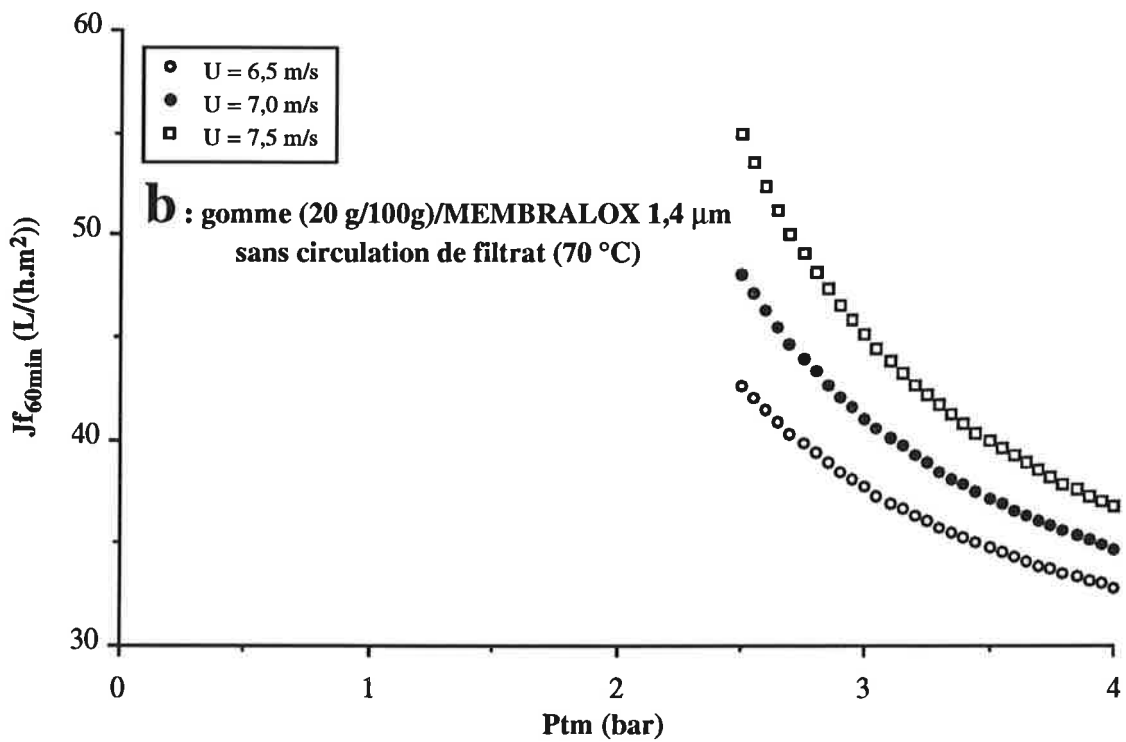
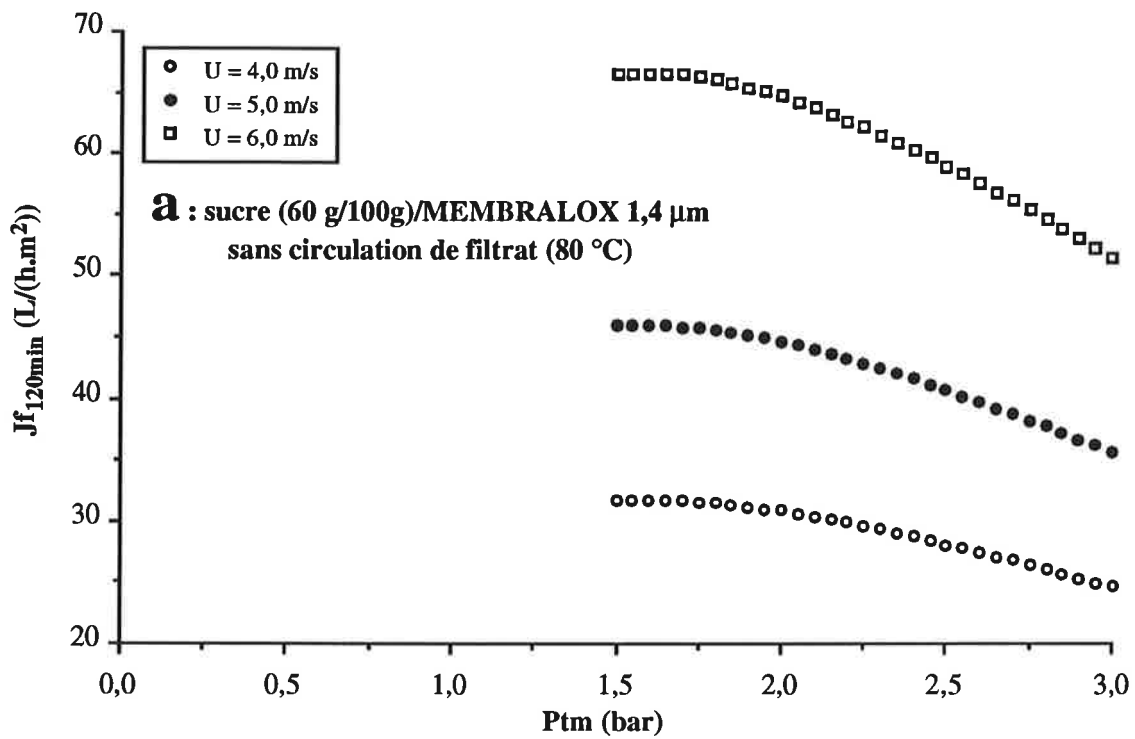


Figure IV.7 : simulation de l'évolution de la densité de flux de filtrat au temps de référence avec la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et la vitesse tangentielle ( $U$ ).

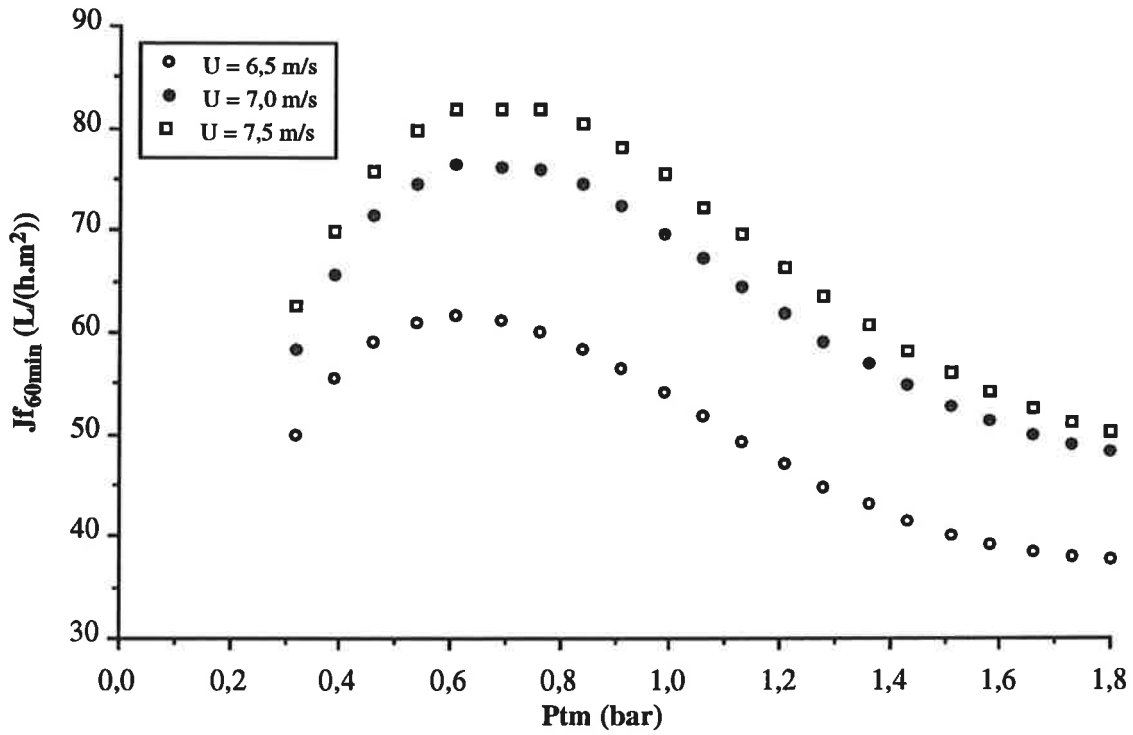


Figure IV.8 : simulation de l'évolution de la densité de flux de filtrat à 60 min ( $J_{f_{60\text{min}}}$ ) avec la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et la vitesse tangentielle ( $U$ ) pour le couple gomme (20 g/100g)/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  avec circulation de filtrat, 70 °C.

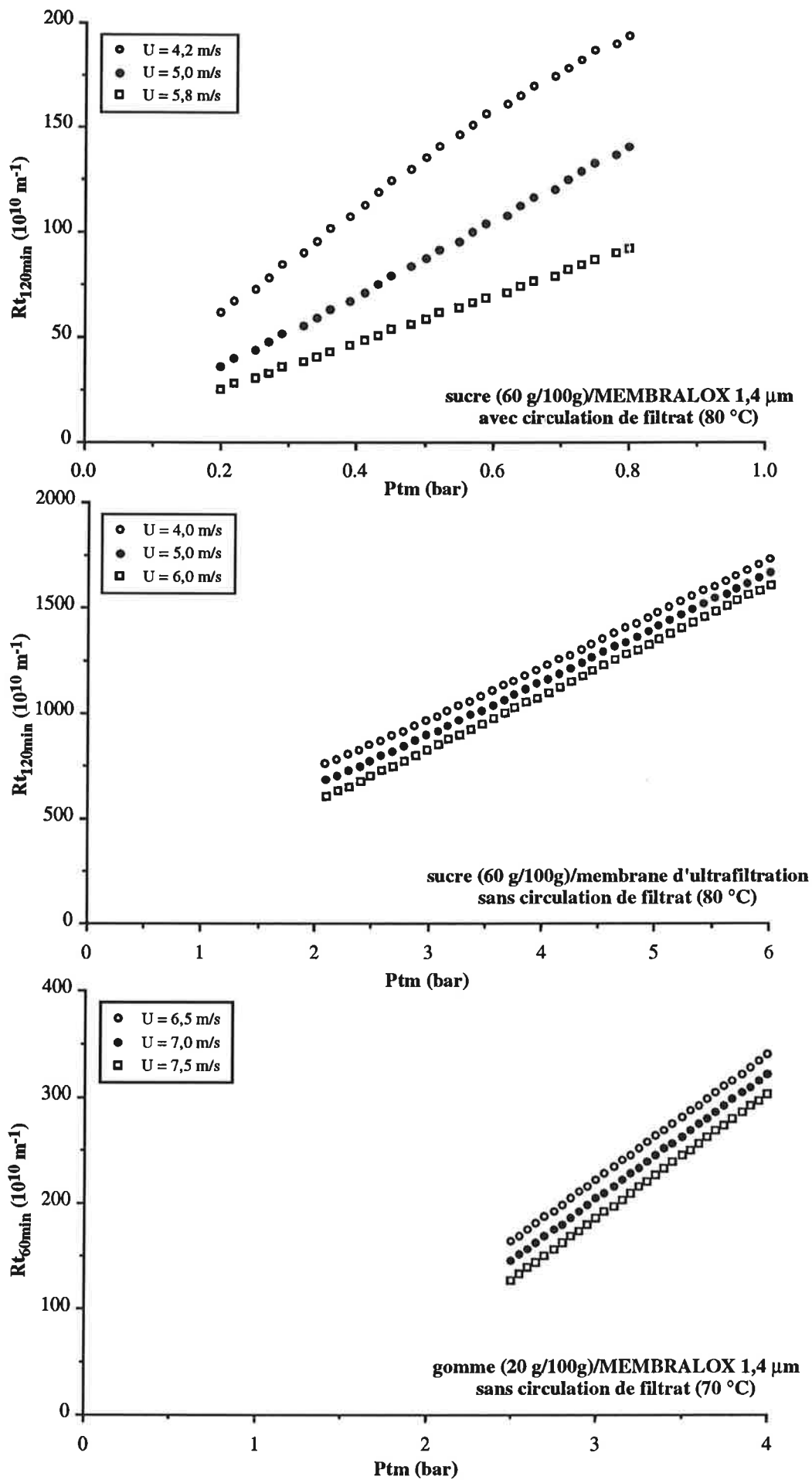


Figure IV.9 : simulation de l'évolution de la résistance hydraulique totale au temps de référence ( $R_t$ ) en fonction de la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ), à différentes vitesses tangentielles ( $U$ ).

[CHERYAN 1986, JAFFRIN *et al.* 1993, LOZANO *et al.* 1986, TANAKA *et al.* 1993, TARLETON et WAKEMAN 1994, TARODO DE LA FUENTE *et al.* 1989a et 1989b].

• *Comportement 2 : Jf est une fonction décroissante de Ptm*

Les cas sucre/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$ , sans circulation de filtrat à 80 °C et gomme/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$ , sans circulation de filtrat à 70 °C correspondent à ce second type de comportement. Dans le premier cas, les courbes présentent une courbure négative (**Figure IV.7a**). Ainsi, pour les faibles valeurs de Ptm, la pression influe peu sur  $Jf_{120\text{min}}$ . Par contre, pour les plus fortes valeurs de Ptm testées, une augmentation de la pression transmembranaire se traduit par une chute de Jf plus importante. Dans le second cas, la courbure des courbes est fortement positive (**Figure IV.7b**). A l'inverse du cas précédent, la densité de flux à 60 min est donc d'autant plus affectée par Ptm que cette dernière est forte. Plus rarement observés que le comportement de type 1, quelques cas similaires ont déjà été décrits [CHERYAN 1986, LIBERGE 1993, PIOT *et al.* 1987]. Les applications concernées correspondent typiquement à des opérations de microfiltration.

• *Comportement 3 : Jf présente un maximum en fonction de Ptm*

Le cas gomme/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$ , avec circulation de filtrat à 70 °C est présenté sur la **Figure IV.8**. En augmentant la pression transmembranaire,  $Jf_{60\text{min}}$  augmente tout d'abord puis passe par un maximum. Les courbes deviennent alors décroissantes en présentant un point d'inflexion bien marqué (courbure négative puis positive). Pour les plus fortes valeurs de Ptm,  $Jf_{60\text{min}}$  semble tendre vers une valeur limite qui est fonction de la vitesse tangentielle. Les quelques études qui ont déjà conduit à un tel maximum de densité de flux, font plutôt référence à la microfiltration [BELFORT 1984, COLMAN et MURTON 1991, FLINN 1970, KUO et CHERYAN 1983, SZANIAWSKI et SPENCER 1991, TADDEI 1986, VAN DER HORST *et al.* 1994].

Ainsi, suivant le couple produit/membrane considéré et la gamme Ptm/U explorée, la densité de flux de filtrat est influencée de façon très variable par la pression transmembranaire. Dans certains cas, l'effet de Ptm sur Jf est même très complexe.

#### IV-2.1.2 Résistance hydraulique totale

En considérant les résistances hydrauliques totales correspondant à ces densités de flux, nous constatons que dans tous les cas,  $R_t$  augmente avec Ptm. Toutefois, l'allure des courbes présente 3 variantes. La première est une allure linéaire sur le domaine de Ptm testé. Elle s'observe pour les couples sucre/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  avec circulation de filtrat, sucre/membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat à 80 °C et 120 min et gomme/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de

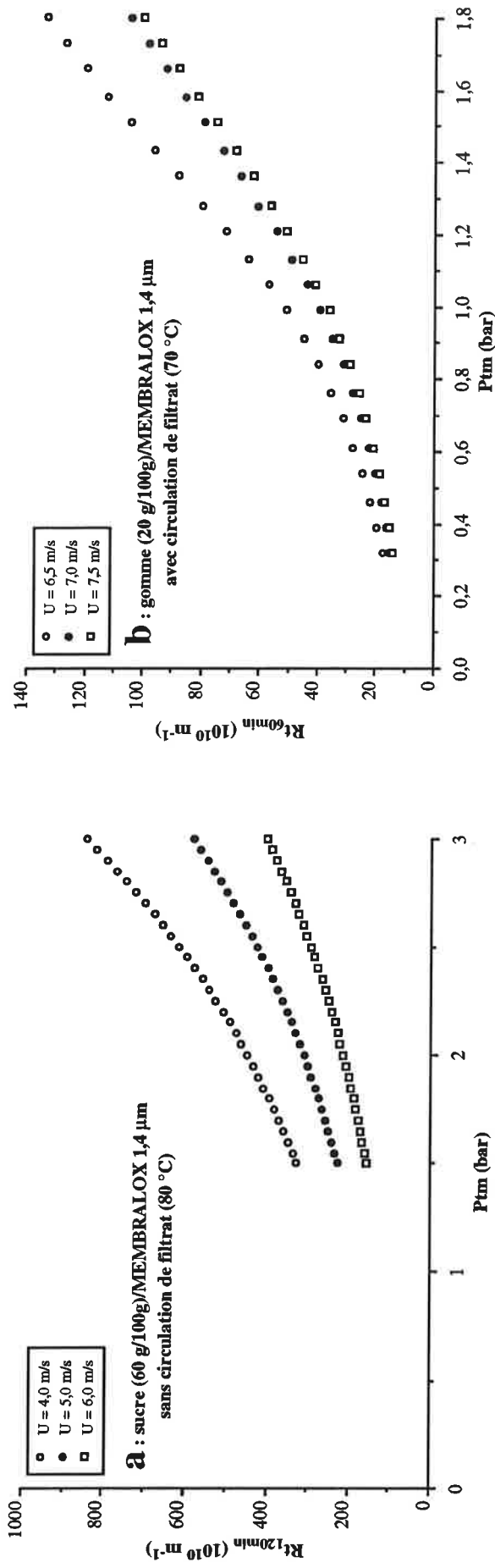


Figure IV.10 : simulation de l'évolution de la résistance hydraulique totale au temps de référence (Rt) en fonction de la pression transmembranaire (Ptm), à différentes vitesses tangentielles (U).

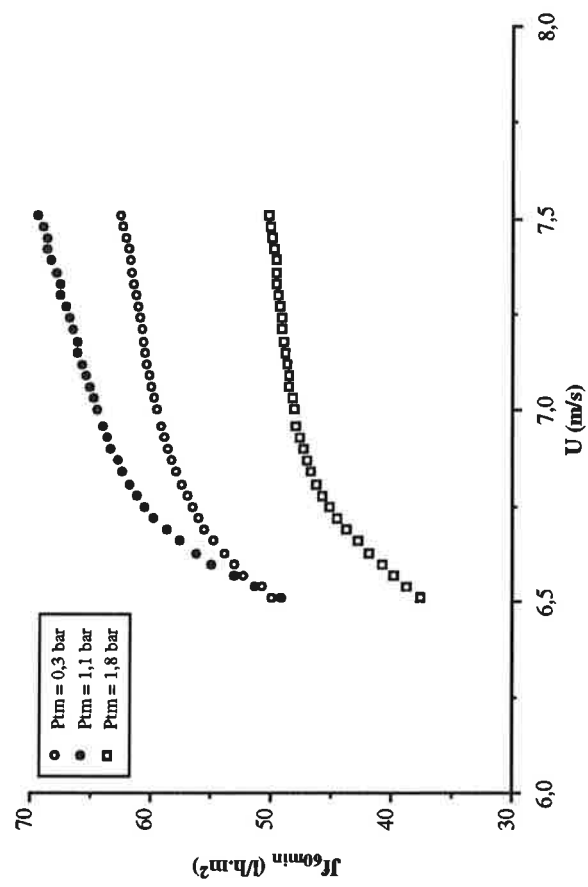


Figure IV.11 : simulation de l'évolution de la densité de flux de filtrat à 60 min ( $J_{f,60\text{min}}$ ) avec la vitesse tangentielle (U), à différentes pressions transmembranaires (Ptm) pour le couple gomme (20 g/100g)/MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  avec circulation de filtrat, 70 °C.

filtrat à 70 °C et 60 min (**Figure IV.9**). La deuxième variante qui correspond à une allure exponentielle est rencontrée dans le cas sucre/MEMBRALOX 1,4 µm sans circulation de filtrat à 80 °C et 120 min (**Figure IV.10a**). Enfin, pour le cas gomme/MEMBRALOX 1,4 µm avec circulation de filtrat à 70 °C et 60 min, les courbes obtenues ont une allure exponentielle pour les plus faibles  $P_{tm}$  puis deviennent linéaires pour les pressions les plus élevées (**Figure IV.10b**).

#### IV-2.1.3 Rétention membranaire

Pour la majorité des cas étudiés, nous avons déjà souligné que la rétention est peu affectée par les conditions hydrodynamiques dans les gammes testées. Lorsque l'effet pression est significatif, une élévation de  $P_{tm}$  s'accompagne toujours d'une augmentation des capacités de rétention membranaire. Cette affirmation se vérifie pour la clarification dans le cas sucre/MEMBRALOX sans circulation de filtrat après la filtration de 150 litres de produit par  $m^2$  de membrane, pour la rétention en matière sèche dans le cas gomme/MEMBRALOX sans circulation de filtrat à 60 min et pour la décoloration dans le cas sucre/membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat à 120 min.

#### IV-2.2 Effet de la Vitesse tangentielle

La vitesse tangentielle a toujours un effet positif sur les densités de flux de filtrat. Dans la majorité des cas étudiés, l'effet de  $U$  sur  $J_f$  au temps de référence est approximativement linéaire dans la gamme explorée (sucre/MEMBRALOX avec et sans circulation de filtrat, sucre/membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat et gomme/MEMBRALOX sans circulation de filtrat). Pour le couple gomme/MEMBRALOX avec circulation de filtrat, l'augmentation de  $J_{f_{60min}}$  se ralentit nettement à partir d'environ 6,8 m/s (**Figure IV.11**). A des valeurs élevées, la vitesse a donc moins d'influence sur  $J_{f_{60min}}$  que la pression.

A une pression transmembranaire donnée, les résistances hydrauliques totales sont inversement proportionnelles aux densités de flux. Les allures des courbes de  $R_t$  sont donc inversées par rapport à celle de  $J_f$ .

L'influence de la vitesse tangentielle sur la rétention membranaire est variable suivant le critère choisi et le couple produit/membrane considéré. En effet, la clarification et la rétention en matière sèche diminuent lorsque  $U$  augmente respectivement pour les couples sucre/MEMBRALOX sans circulation de filtrat après la filtration de 150 litres de produit par  $m^2$  de membrane et gomme/MEMBRALOX sans circulation de filtrat à 60 min. Par contre, la décoloration augmente avec  $U$  dans le cas sucre/membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat.

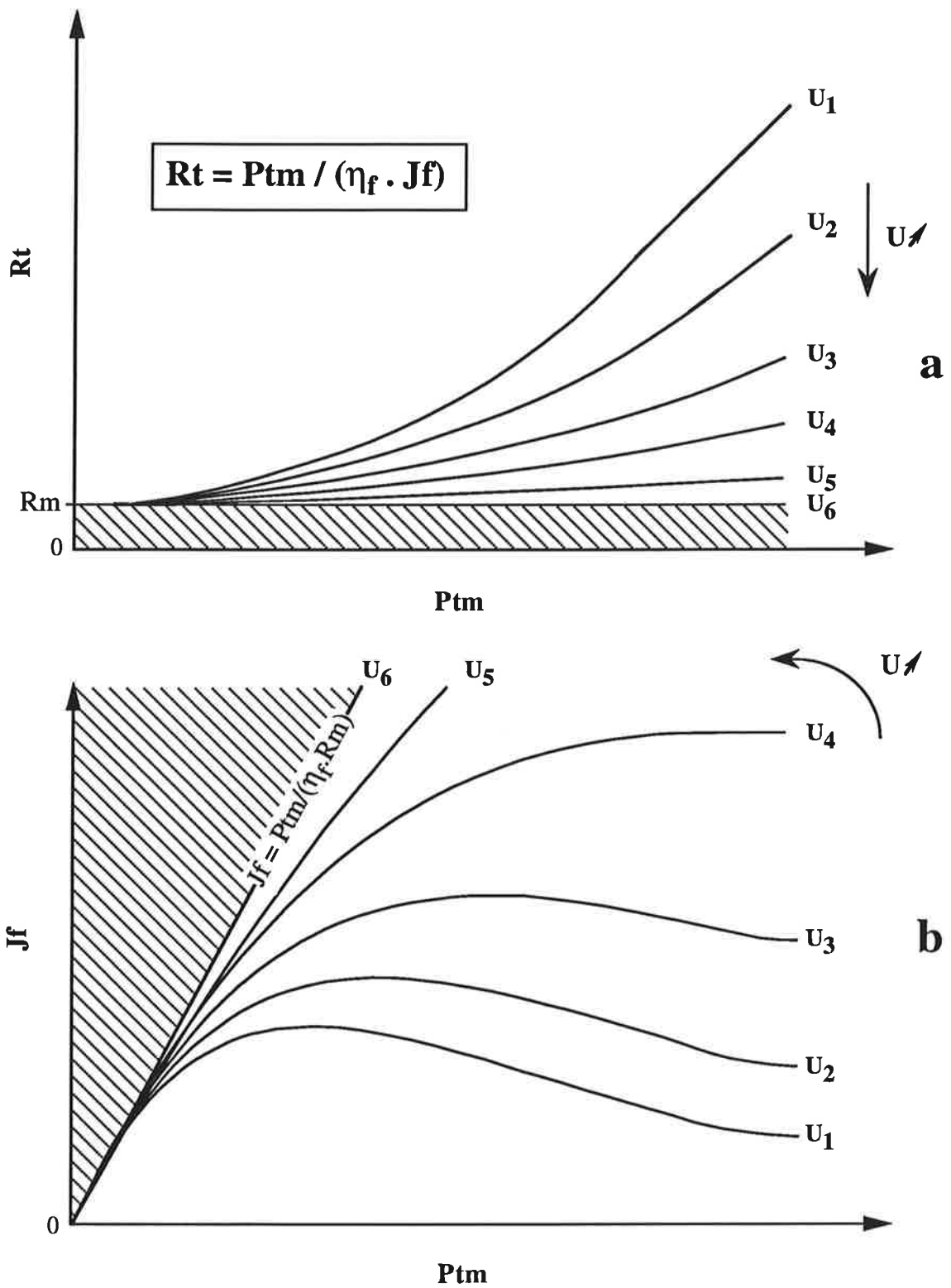


Figure IV.12 : évolution générale de la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) et de la densité de flux de filtrat ( $J_f$ ) en régime pseudo-stationnaire en fonction de la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et de la vitesse tangentielle ( $U$ ).

### IV-2.3 Conclusion

D'après ces observations, il apparaît que l'évolution de  $R_t$  en fonction des conditions hydrodynamiques est toujours du même type. En effet, dans tous les cas traités, les courbes obtenues ont une allure commune quel que soit le couple produit/membrane étudié. Ces courbes sont toujours strictement croissantes en fonction de la pression transmembranaire et strictement décroissantes en fonction de la vitesse tangentielle. Ainsi, à une grande diversité d'allures de courbe de densité de flux correspond toujours une même allure de courbe de résistance hydraulique totale. En considérant nos divers résultats, il est vraisemblable que l'allure générale des courbes de résistance hydraulique soit proche de celle représentée sur la **Figure IV.12a** et ce aussi bien en microfiltration qu'en ultrafiltration. Pour de faibles pressions,  $P_{tm}$  a peu d'influence sur la résistance au transfert. Pour les plus faibles valeurs de  $P_{tm}$ , les résistances hydrauliques sont très proches de la résistance membranaire ( $R_m$ ). Lorsque  $P_{tm}$  augmente, les courbes croissent tout d'abord progressivement (allure exponentielle) puis linéairement. L'influence de la vitesse tangentielle est peu marquée aux faibles pressions. Par contre, aux plus fortes  $P_{tm}$ , une diminution de la vitesse s'accompagne d'une plus importante augmentation de la résistance hydraulique.

L'ensemble des courbes de résistance décrites ci-dessus correspond bien à tous les types de courbes de densité de flux de filtrat rencontrées en filtration tangentielle (**Figure IV.12b**). Aux plus faibles pressions, les courbes de densité de flux suivent pratiquement la loi de DARCY. Les courbes s'éloignent de plus en plus de la droite de DARCY au fur et à mesure que  $P_{tm}$  augmente. En fonction du comportement de la résistance hydraulique totale vis à vis de  $P_{tm}$ , il est alors possible d'observer directement une stabilisation (plutôt le cas en ultrafiltration) ou le passage par un maximum suivi d'une diminution puis d'une stabilisation (plutôt le cas en microfiltration). Avant de conclure définitivement, il serait néanmoins nécessaire de vérifier ces observations sur de plus larges gammes de  $P_{tm}$  et  $U$  notamment en ultrafiltration. Dans cette hypothèse, il apparaît clairement a posteriori que la modélisation de la résistance hydraulique en fonction de  $P_{tm}$  est beaucoup plus aisée que celle des densités de flux de filtrat.

Dans les cas particuliers traités, la rétention membranaire augmente toujours avec  $P_{tm}$ . Dans 2 cas sur 3, elle diminue lorsque que  $U$  augmente. Cependant, il semble difficile de généraliser à ce niveau compte tenu du peu d'éléments dont nous disposons.

## IV-3 TEST D'UNE METHODE D'OPTIMISATION PAS A PAS

### IV-3.1 Les méthodes d'optimisation pas à pas

Dans le cadre de l'optimisation du procédé de filtration tangentielle à un temps de référence, les stratégies abordées précédemment sont basées sur l'élaboration de modèles qui permettent de représenter l'effet des conditions opératoires sur les résultats de la filtration (modèles linéaires ou



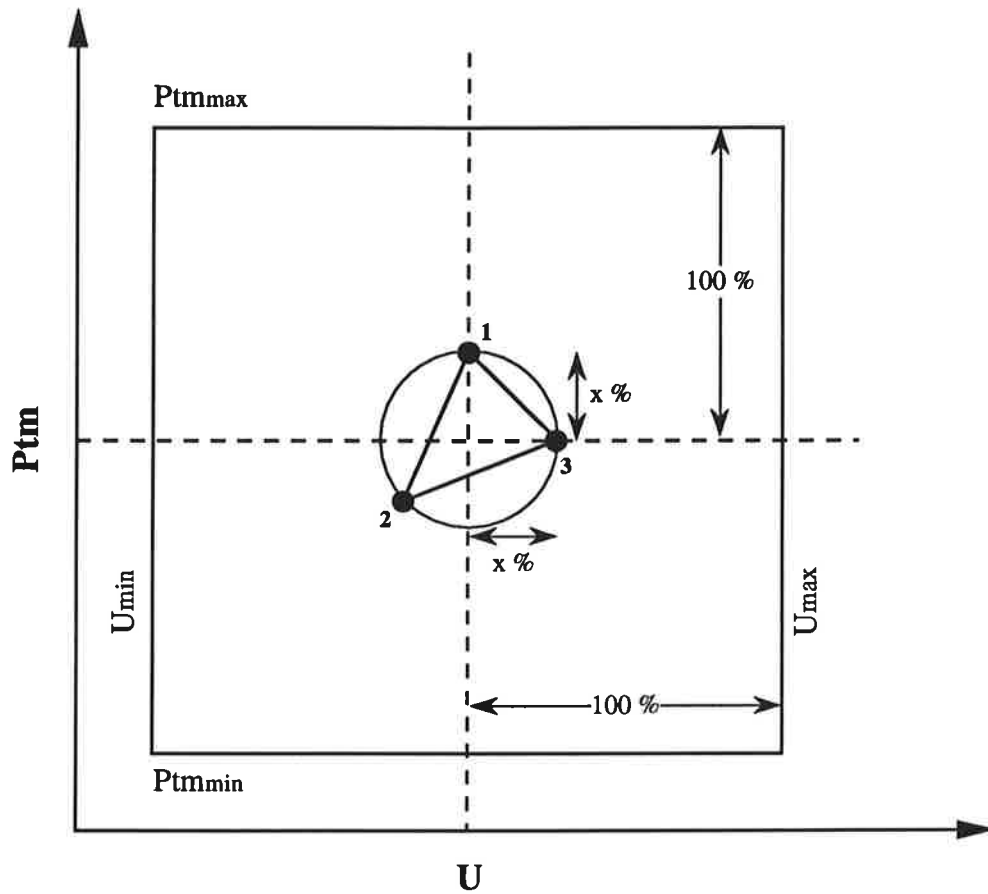
réseaux de neurones). Etablis à partir d'un nombre restreint d'essais expérimentaux, ces modèles sont utilisés comme outils de simulation pour déterminer l'optimum de fonctionnement.

Afin de tester son intérêt pour l'optimisation des conditions hydrodynamiques, nous avons choisi d'aborder ici une autre approche très différente des précédentes. Elle consiste à explorer l'espace paramétrique  $P_{tm}/U$  par étapes successives sans faire intervenir de modèle. Nous avons ici choisi de sonder très sommairement les possibilités offertes par ce type de méthode d'optimisation dite pas à pas.

A partir d'une série initiale d'expériences, les conditions de  $P_{tm}$  et  $U$  à tester sont déterminées étape par étape pour se rapprocher progressivement de la zone optimale de fonctionnement. La progression dans l'espace paramétrique s'effectue suivant des règles précises qui dépendent de la méthode choisie. Une synthèse très complète des diverses méthodes aujourd'hui disponibles a été proposée par LEBERT [1994]. Les plus couramment utilisées sont les méthodes du gradient à pas déterminé, de la plus forte pente, de Newton-Raphson, de quasi-Newton qui nécessitent l'estimation des dérivées premières voire secondes de la réponse par rapport aux paramètres étudiés (estimation numérique dans un cas comme le nôtre) et les méthodes de Hooke et Jeeves, du Simplex et de Rosenbrock qui ne nécessitent aucun calcul de dérivées. Utilisées avec succès dans divers autres cas, ces méthodes sont susceptibles de présenter un intérêt pour l'optimisation des conditions hydrodynamiques en filtration tangentielle.

Néanmoins, pour être appliquées à l'optimisation d'un procédé, ces méthodes posent certains problèmes :

- Les méthodes d'optimisation pas à pas sont dans leur principe mono-critère. Elles ne sont pas adaptées pour optimiser plus d'une réponse à la fois. Ainsi, quelle que soit la méthode utilisée, la progression obtenue dans l'espace paramétrique sera différente pour chaque variable d'état considérée (performance et efficacité en filtration). Leur utilisation ne présente donc un véritable intérêt que si l'on est capable de fusionner tous les critères mis en jeu en un seul et unique critère d'optimisation. Comme nous l'avons déjà souligné, une telle transformation n'est pas simple. Les diverses méthodes proposées font toujours appel à deux étapes successives [LIANG et FLOROS 1991]. Il est tout d'abord nécessaire de normaliser chacun des critères afin de les ramener à des valeurs comparables. La manière d'effectuer cette normalisation présente la première des difficultés. Ensuite, ces critères doivent être intégrés dans une seule fonction la plus représentative possible de l'ensemble. Une des possibilités consiste à sommer les différents critères normalisés après pondération individuelle. Le choix des pondérations est particulièrement délicat car il doit rendre compte des impératifs industriels. Dans notre cas, il est par exemple extrêmement difficile de quantifier l'importance relative du critère densité de flux de filtrat par rapport au critère rétention.
- Le choix des expériences à réaliser au départ a généralement une grande influence sur les résultats. Plus particulièrement, ce choix conditionne le nombre d'essais nécessaires à la détermination de



**Figure IV.13 : représentation schématique du Simplex de départ dans le domaine pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) - vitesse tangentielle ( $U$ ) exploré.**

l'optimum. Pour certaines des méthodes pas à pas, il existe quelques règles permettant d'orienter ce choix. Néanmoins, elles restent peu précises.

- Afin de stopper la progression lorsque l'optimum est atteint, il est nécessaire de définir un critère d'arrêt. Parmi les multiples possibilités, le choix du critère d'arrêt est totalement arbitraire. Ce choix conditionne néanmoins les résultats.
- Dans le cas de la filtration tangentielle, un certain nombre de contraintes sur les paramètres ( $P_{tm}$  et  $U$ ) sont à considérer. La gestion de ces contraintes lors de la progression dans l'espace paramétrique est là encore délicate [KEEFER 1973, SUBRAHMANYAM 1989]. Les stratégies à adopter lorsque la progression sort du domaine paramétrique disponible sont mal définies. Or, elles peuvent avoir beaucoup d'influence sur les résultats.

Ces méthodes pas à pas nous apparaissent donc plus délicates à mettre en œuvre que celles vues précédemment. Pour cette raison, nous n'avons pas choisi de les développer outre mesure. Néanmoins, afin de vérifier succinctement qu'elles sont potentiellement utilisables, nous proposons de les tester en simulant une campagne d'essais à partir des modèles précédemment élaborés.

### IV-3.2 Exemple d'application

La méthode d'optimisation pas à pas choisie est la méthode du Simplex modifié [NELDER et MEAD 1965]. Son principe et ses avantages ont déjà été précisés lors de la présentation de l'algorithme d'apprentissage sans calcul de dérivées pour les réseaux de neurones (§ III-1.3.2).

Le cas traité est celui du couple gomme / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  avec circulation de filtrat à 70 °C. Nous avons choisi ce cas particulier, car la zone optimale de fonctionnement est bien délimitée dans le domaine paramétrique balayé (Figure IV.5a). De plus, la rétention n'est pas significativement affectée par les conditions opératoires ce qui simplifie nettement le problème. En effet, le seul critère d'optimisation à considérer est dans ce cas la densité de flux de filtrat (optimisation mono-critère). Les densités de flux de filtrat à 60 min ( $J_{f60\text{min}}$ ) sont calculées par le réseau de neurones RN3 avec entrée explicite du temps. La campagne d'essais présentée ci-dessous est donc simulée à l'aide du modèle précédemment élaboré.

Le Simplex initial correspondant aux 3 couples  $P_{tm}/U$  à tester au départ, est choisi de telle façon à ne pas favoriser l'axe de recherche sur un des paramètres. De plus le barycentre de ce premier Simplex est positionné au centre du domaine paramétrique étudié (Figure IV.13). L'écart type calculé sur les 3 dernières densités de flux de filtrat est choisi comme critère d'arrêt. Nous supposons que la zone optimale est atteinte lorsque ce dernier est inférieur à 1 L/(h.m<sup>2</sup>). Le modèle utilisé n'est valable que pour des pressions transmembranaires et des vitesses tangentielles comprises entre 0,3 et 1,8 bar et 6,5 et 7,5 m/s. Ces contraintes sont donc à considérer. La stratégie utilisée lorsque la combinaison  $P_{tm}/U$  proposée sort du domaine est une simple projection orthogonale sur la frontière. Bien que cette solution ne soit vraisemblablement pas la plus

Taille Simplex de départ x (%)	Nombre d'essais nécessaire pour déterminer l'optimum	Jf <sub>60min</sub> optimale déterminée (L/(h.m <sup>2</sup> ))	Conditions optimales déterminées P <sub>tm</sub> (bar) / U (m/s)
10	17	81	0,83 / 7,5
20	16	78	0,81 / 7,2
30	16	81	0,82 / 7,5
40	14	82	0,77 / 7,5

**Tableau IV.11: influence de la taille du Simplex de départ sur la détermination de l'optimum par la méthode du Simplex modifié [gomme (20g/100g) /MEMBRALOX 1,4 μm avec circulation de filtrat, 70 °C].**

judicieuse, elle est la plus aisée à mettre en œuvre.

En faisant varier la taille du Simplex initial, diverses campagnes d'essais ont été simulées. Les résultats obtenus sont portés dans le **Tableau IV.11**. Dans tous les cas, cette méthode permet d'estimer correctement l'optimum  $P_{tm}/U$ . En effet, les densités de flux de filtrat optimales trouvées correspondent à quelques  $L/(h.m^2)$  près à l'optimum (estimé par le modèle réseau à environ  $82 L/(h.m^2)$ ). La taille du Simplex initial a peu d'influence sur les résultats finaux. Par contre, il semble que plus le Simplex de départ est étendu, plus le nombre de combinaisons  $P_{tm}/U$  à tester pour atteindre l'optimum est faible. La localisation de la zone optimale en bordure de domaine explique vraisemblablement cette surprenante constatation.

### IV-3.3 Bilan

D'après cette étude exploratoire, nous avons montré que les méthodes pas à pas sont susceptibles d'être utilisées pour l'optimisation des conditions opératoires en filtration tangentielle. Néanmoins une étude plus conséquente s'impose pour valider cette affirmation. En particulier, il serait absolument nécessaire d'approfondir la transformation du problème multi-critères en problème mono-critère afin d'intégrer simultanément densité de flux et rétention (et éventuellement consommation énergétique). La gestion des contraintes sur les paramètres est également un aspect qui mériterait une analyse plus poussée. Notons que dans un cas réel, les contraintes sur la pression transmembranaire sont plus complexes que dans le cas traité ci-dessus ( $P_{tm_{min}} < P_{tm} < P_{tm_{max}}$  avec  $P_{tm_{min}}$  et  $P_{tm_{max}}$  fonctions de  $U$ ).

Comparée aux méthodes déjà présentées, la méthodologie pas à pas n'apporte pas d'amélioration sur le nombre d'essais expérimentaux à effectuer pour l'optimisation. Dans le cas particulier traité, au minimum 14 combinaisons  $P_{tm}/U$  ont été nécessaires alors qu'il aurait fallu seulement 10 expériences pour le PECC, 8 pour le PEUDM et 5 pour l'approche réseaux de neurones. Notons que ces méthodes se limitent également à une approche à un temps de référence. De plus, les méthodes pas à pas ne faisant intervenir aucun modèle, elles ne fournissent pas d'informations sur le comportement du colmatage membranaire vis à vis des conditions opératoires. Enfin, comme nous l'avons déjà souligné, la mise en œuvre des méthodes pas à pas se heurte à de nombreuses difficultés parfois délicates à résoudre. L'intérêt de ce type d'approches par rapport à celles vues précédemment semble donc limité.

Enfin, l'application présentée ci-dessus est simulée. Bien que le modèle utilisé pour cette simulation ait été validé, le cas décrit ne correspond pas exactement à une situation réelle. Les méthodes pas à pas gagneraient à être testées lors de véritables campagnes d'essais sur un domaine plus étendu de pression et de vitesse. Finalement, d'autres méthodes pas à pas avec ou sans estimation de dérivées pourraient être mises en œuvre comparativement à celle du Simplex modifié.

#### IV-4 CONCLUSION

Les modèles élaborés sont donc des outils qui présentent de nombreuses potentialités. Associés à une planification d'expériences adaptée, nous avons en particulier démontré, qu'ils peuvent être utilisés pour optimiser les conditions hydrodynamiques à un temps de référence à la suite d'un nombre restreint d'essais pilote. Nous avons également souligné l'intérêt de ces modèles pour appréhender l'effet des conditions opératoires sur un domaine continu de pression et de vitesse. Notons que cette seconde approche a permis de tirer quelques conclusions d'ordre général sur le colmatage membranaire. Enfin, grâce à ces outils, il a été possible de tester une autre méthode d'optimisation sans avoir recours à une campagne d'essais pilote. A partir de résultats simulés par le modèle, nous avons ainsi pu montrer qu'une méthode d'optimisation pas à pas a peu de chance de présenter un réel intérêt dans le cas de la filtration tangentielle.

Dans le cas particulier des réseaux de neurones, toutes les applications suggérées ci-dessus se cantonnent néanmoins à l'utilisation de modèles dynamiques pour représenter les résultats à un seul temps de référence. Une grande partie des potentialités de ces modèles n'a donc pas été exploitée au cours de ce travail. Notamment dans le domaine du contrôle-commande, l'aspect dynamique des réseaux de neurones devrait présenter un grand intérêt. Ce point sera développé dans une étude ultérieure.

**- CHAPITRE V -  
MISE EN EVIDENCE DE  
L'IMPORTANCE DU MODE DE  
CONDUITE EN MICROFILTRATION**

<b>V-1 INFLUENCE DE LA PROCEDURE DE DEMARRAGE .....</b>	<b>114</b>
V-1.1 Comparaison entre mode de démarrage brusque et lent.....	115
V-1.2 Influence de la vitesse de montée aux consignes .....	116
V-1.3 Effet d'une limitation de la densité de flux de filtrat .....	116
V-1.4 Effet des valeurs de $P_{tm}$ et de $U$ au début de l'essai.....	116
V-1.5 Influence du démarrage sur l'efficacité.....	116
V-1.6 Bilan et comparaison avec l'ultrafiltration .....	117
<b>V-2 REVERSIBILITE DU COLMATAGE .....</b>	<b>118</b>
V-2.1 Microfiltration à haute pression d'une solution de gomme.....	119
V-2.2 Microfiltration à basse pression d'un sirop de sucre .....	119
V-2.3 Bilan et comparaison avec l'ultrafiltration .....	121
<b>V-3 CONCLUSION.....</b>	<b>122</b>

ESSAI	MEMBRANE	SUCRE ROUX		PROCEDURE DE DEMARRAGE*										RESULTATS							
		Lot	MS (g/100g)	$\eta_{80}$ °C (mPas)	Type	PHASE I					PHASE II					après 120 min de filtration					
						U <sub>0</sub> (m/s)	P <sub>tm,0</sub> (bar)	U <sub>c</sub> (m/s)	t <sub>i</sub> (min)	P <sub>tm,i</sub> (bar)	P <sub>tm,c</sub> (bar)	t <sub>II</sub> (min)	Durée totale (min)	Jf (L/(h.m <sup>2</sup> ))	TTU (%)	TCOL (%)	Rt (10 <sup>10</sup> m <sup>-1</sup> )	MSréf. (g/100g)	Jf*		
101			58,0	4,43	brusque	5,0	1,6		0,0	1,6		2,3			49	74		375		46	
100			57,9	4,39	brusque	5,0	1,5		0,0	1,5		2,0			48	76		377		46	
126		5	59,1	4,90	lent	2,3	0,3		11,8	1,1		5,6			55	76		306 (-18 %)		57 (+24 %)	
127			59,1	4,90	lent	2,2	0,3		11,9	1,3		5,4			51	69		323 (-14 %)		54 (+17 %)	
123			58,4	4,60	très lent	2,3	0,2		49,5	1,3		16,0			60	76		301 (-20 %)		58 (+26 %)	
129			59,0	4,85	lent, Jf < 80 L/(h.m <sup>2</sup> )	2,3	0,3		12,1	1,3		20,9			50	70		331 (-12 %)		52 (+13 %)	
132			57,7	4,31	brusque	5,0	1,6	5,0	0,0	1,6	2,25	2,1			33	81	—	592	58,6	29	
130	MEMBRALOX	6	59,0	4,85	lent	2,3	0,8		12,9	1,6		2,1			33	76		501 (-15 %)		35 (+21 %)	
131	1,4 µm		59,3	4,98	lent, vitesse nulle à t = 0	0,0	0,3		14,1	1,7		2,7			33	74		507 (-14 %)		34 (+17 %)	
133			57,7	4,31	brusque	5,0	1,5		0,0	1,5		2,2			34	75		545		32	
134			59,2	4,94	lent, vitesse nulle à t = 0	0,0	0,0		17,5	1,3		4,1			34	74		476 (-13 %)		36 (+13 %)	
137		6t	57,8	4,35	brusque	6,0	1,2		0,0	1,2	1,50	13,5			65	73		192		60	
136			58,8	4,76	lent, Jf < 80 L/(h.m <sup>2</sup> )	2,3	0,1	6,0	36,0	1,2		54,0			72	65		157 (-18 %)		74 (+23 %)	
169	membrane	8	60,0	5,31	brusque	5,0	> 3,0	5,0	0,0	> 3,0	4,00	< 3,0		21	> 99	41	1317	60,0	21		
170	d'ultrafiltration		59,5	5,08	lent	2,2	0,3		6,0	1,0		32		23	> 99	38	1194 (-9 %)		22 (+5 %)		

\* : cf. § 1-3.2.1 pour explications.

Tableau V.1 : conditions et principaux résultats des différents essais effectués lors de l'étude du mode de démarrage [sans circulation de filtrat; 80 °C].



Peu d'études font mention du mode de conduite utilisé lors de la filtration tangentielle. Cependant, d'après quelques travaux antérieurs, il semble que la manière de conduire l'opération peut influencer significativement les résultats, en particulier lors de la mise en œuvre de membranes à gros diamètre de pores. L'importance des premiers instants de la filtration a notamment été nettement mise en évidence sur diverses membranes céramiques de microfiltration [COURTOIS 1992, PUNIDADAS 1990].

Compte tenu de ces remarques, nous avons choisi de rassembler dans ce chapitre quelques résultats visant à confirmer ces hypothèses. Dans ce cadre, nous présentons tout d'abord une étude de l'influence du mode de démarrage en microfiltration. Afin d'appréhender l'effet de changements brutaux de conditions opératoires en cours de procédé, nous proposons ensuite une nouvelle analyse des résultats issus des filtrations avec un échelon  $P_{tm}/U$  déjà citées dans le chapitre III-2.2.2.

## V-1 INFLUENCE DE LA PROCEDURE DE DEMARRAGE

La microfiltration de sirops de sucre roux de canne sur membrane MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de filtrat à 80 °C a été choisie pour cette étude. Les résultats obtenus lors de filtrations de plusieurs refontes à 60 gMS/100g (lots 5, 6 et 6t) suivant différentes procédures de démarrage sont ainsi comparés (Tableau V.1).

Durant la campagne d'essais correspondant à cette étude, une variation significative de la teneur en matière sèche des sirops traités a été observée, notamment entre les procédures de démarrage lent et brusque (57,7 à 59,2 gMS/100g). La viscosité des solutions filtrées varie donc significativement d'un essai à un autre. En supposant que les variations de matière sèche observées entre les essais n'interviennent qu'au niveau de la viscosité des produits, une densité de flux de filtrat ramenée à une teneur en matière sèche moyenne (58,6 gMS/100g) est ici définie. Cette densité de flux standardisée, notée  $J_f^*$ , se calcule suivant l'équation (44) et permet une meilleure comparaison entre les essais.

$$J_f^* = \frac{\eta_f}{\eta_{(58,6\text{gMS}/100\text{g})}} \cdot J_f \quad (44)$$

$$\text{avec } \eta_{(58,6\text{gMS}/100\text{g})} = 4,68 \text{ mPa.s,}$$

Afin de caractériser l'effet de l'opération sur la qualité du produit, le critère d'efficacité choisi est le taux de clarification ( $T_{TU}$ ).

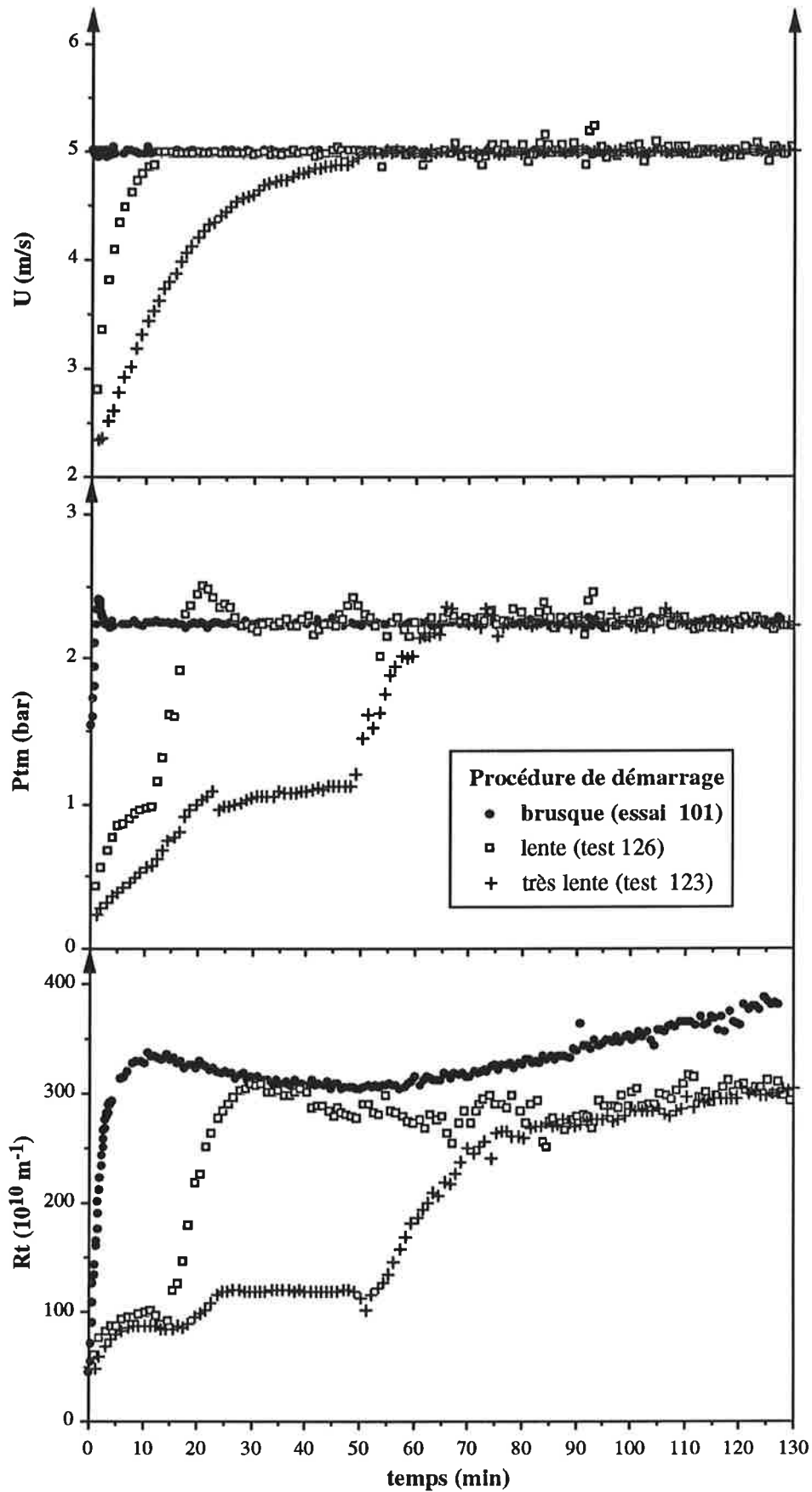


Figure V.1 : évolution de la vitesse tangentielle ( $U$ ), de la pression transmembranaire ( $P_{tm}$ ) et de la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) au cours du temps pour différentes procédures de démarrage: sucre lot 5 / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de filtrat, 80 °C.

Différents essais de reproductibilité, aussi bien en mode de démarrage brusque que lent, ont permis de vérifier la validité de l'étude. Les principaux résultats obtenus sont repris dans le **Tableau V.1**.

### V-1.1 Comparaison entre mode de démarrage brusque et lent

Dans des conditions opératoires de consigne moyennes fixées (soit 2,25 bar et 5 m/s), chaque lot de sucre est filtré en utilisant un mode de démarrage brusque qui tient lieu de référence et un mode de démarrage lent. Rappelons que ces diverses procédures de démarrage ont été plus précisément définies dans le chapitre I (§ I-3.2.1).

A titre d'exemple, les courbes obtenues pour le lot 5 sont présentées sur la **Figure V.1** :

- Pour le mode de démarrage brusque, la vitesse tangentielle est égale à sa valeur de consigne dès les premiers instants de la filtration. La pression transmembranaire, égale à 1,6 bar au départ, atteint en 2,3 min sa valeur de consigne. Après une augmentation rapide de  $40$  à  $340 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ,  $R_t$  se stabilise, diminue puis augmente à nouveau faiblement et linéairement. Cette singulière allure de courbe, spécifiquement obtenue avec le sucre du lot 5, a déjà été décrite précédemment.
- Pour le mode de démarrage lent, les phases I et II de montée aux consignes durent respectivement 11,8 et 5,6 min. La vitesse tangentielle en début de phase I est fixée à 2,2 m/s, valeur minimale pour assurer un régime d'écoulement turbulent dans les conditions de travail choisies. En début de phase I et II, la pression transmembranaire est respectivement de 0,3 et 1,1 bar.  $R_t$  passe de  $40$  à  $100 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$  durant la phase I. L'augmentation progressive de  $P_{tm}$  en phase II s'accompagne d'une forte augmentation de  $R_t$  qui suit alors une allure similaire à celle du démarrage brusque. Après 120 min de filtration, les résistances hydrauliques totales ( $R_{t120\text{min}}$ ) atteignent  $375 \cdot 10^{10}$  et  $306 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$  respectivement pour les démarrages brusque et lent. Cette diminution de résistance hydraulique (-18 %) se traduit par un gain de 24 % sur les densités de flux standardisées  $J_f^*$ .

Pour les lots 6 et 6t et dans les mêmes conditions opératoires, l'évolution de la résistance hydraulique au cours du temps est strictement croissante. Les valeurs des résistances hydrauliques totales sont plus élevées que pour le lot 5 (**Figure V.2**). Remarquons que l'effet lot est considérable et qu'il peut être souhaitable de prétraiter la refonte avant la filtration. Cependant, la même constatation que précédemment peut être faite : le démarrage lent permet de diminuer  $R_{t120\text{min}}$  d'environ 14 % et d'augmenter les densités de flux standardisées de 13 à 21 % par rapport au démarrage brusque.

Enfin, pour le lot 6t, en passant à d'autres valeurs de consignes (1,5 bar, 6 m/s et 80 °C), le mode de démarrage lent conduit à des  $R_t$  plus faibles que le démarrage brusque (-18 %). Il permet de gagner ici encore 23 % sur les densités de flux standardisées.

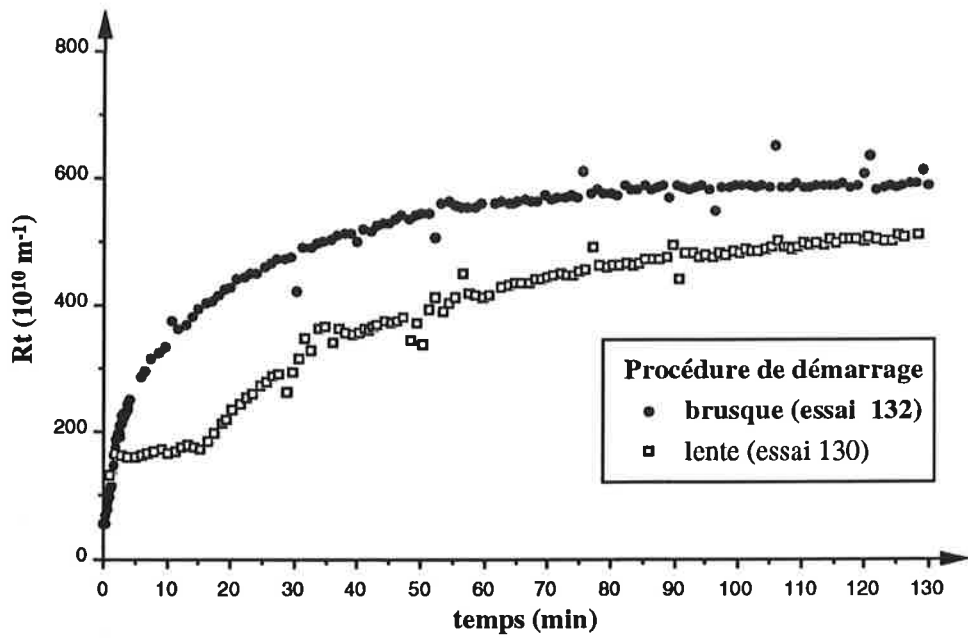


Figure V.2 : évolution de la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) au cours du temps pour différentes procédures de démarrage: sucre lot 6 / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de filtrat, 80 °C.

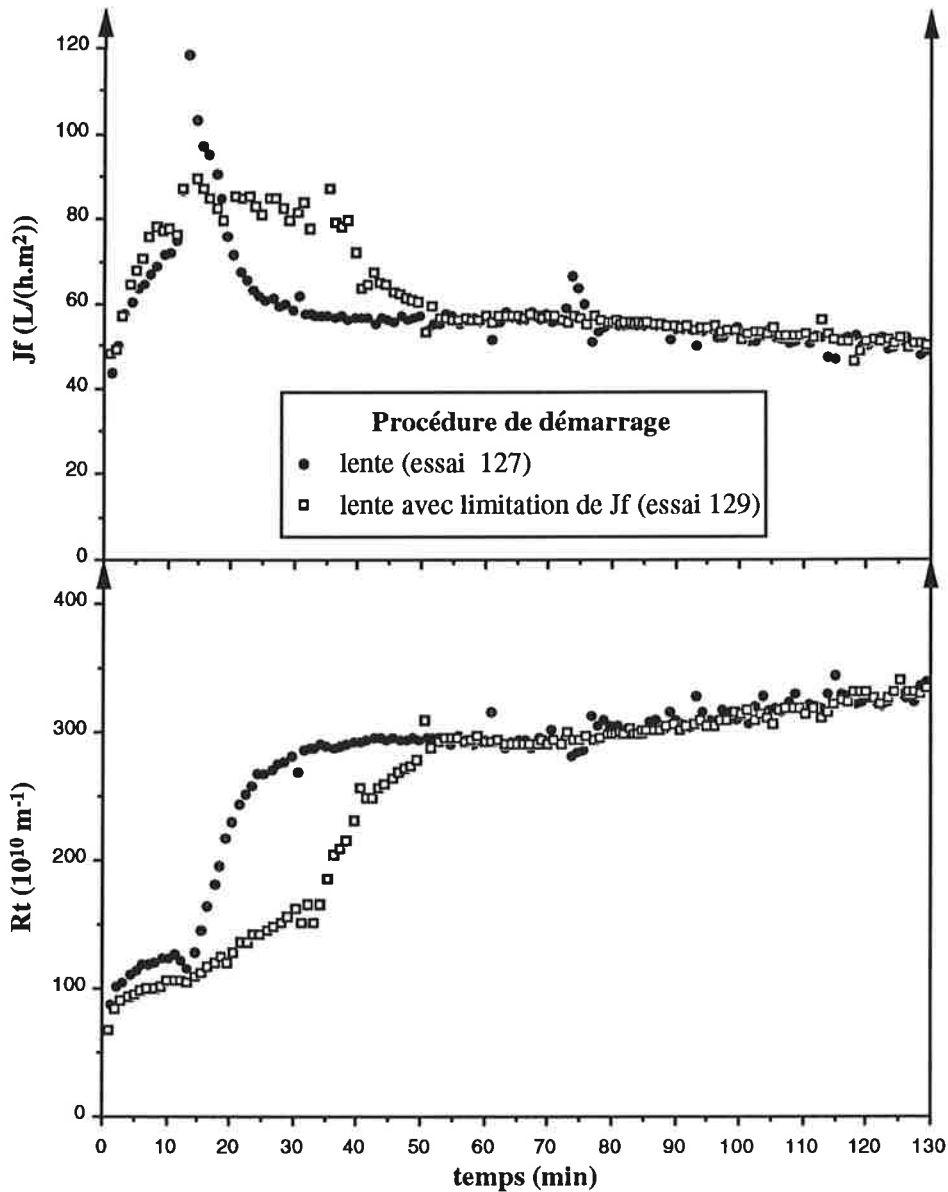


Figure V.3 : évolution de la densité de flux de filtrat ( $J_f$ ) et de la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) au cours du temps pour différentes procédures de démarrage: sucre lot 5 / MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sans circulation de filtrat, 80 °C.

### **V-1.2 Influence de la vitesse de montée aux consignes**

Afin de mettre en évidence un éventuel effet de ce paramètre, un essai supplémentaire a été effectué avec le lot 5 en ralentissant les phases I et II du démarrage. Durant cet essai qualifié de très lent, les consignes ont été atteintes après 65,5 min. Durant la phase I, la résistance hydraulique croît légèrement pour se stabiliser à environ  $100.10^{10} \text{ m}^{-1}$ . Durant la phase II, elle augmente beaucoup plus rapidement, pour atteindre  $301.10^{10} \text{ m}^{-1}$  après 120 min. En comparant ces résultats à ceux obtenus lors du démarrage lent classique déjà décrit, aucune amélioration sensible n'est observée.

### **V-1.3 Effet d'une limitation de la densité de flux de filtrat**

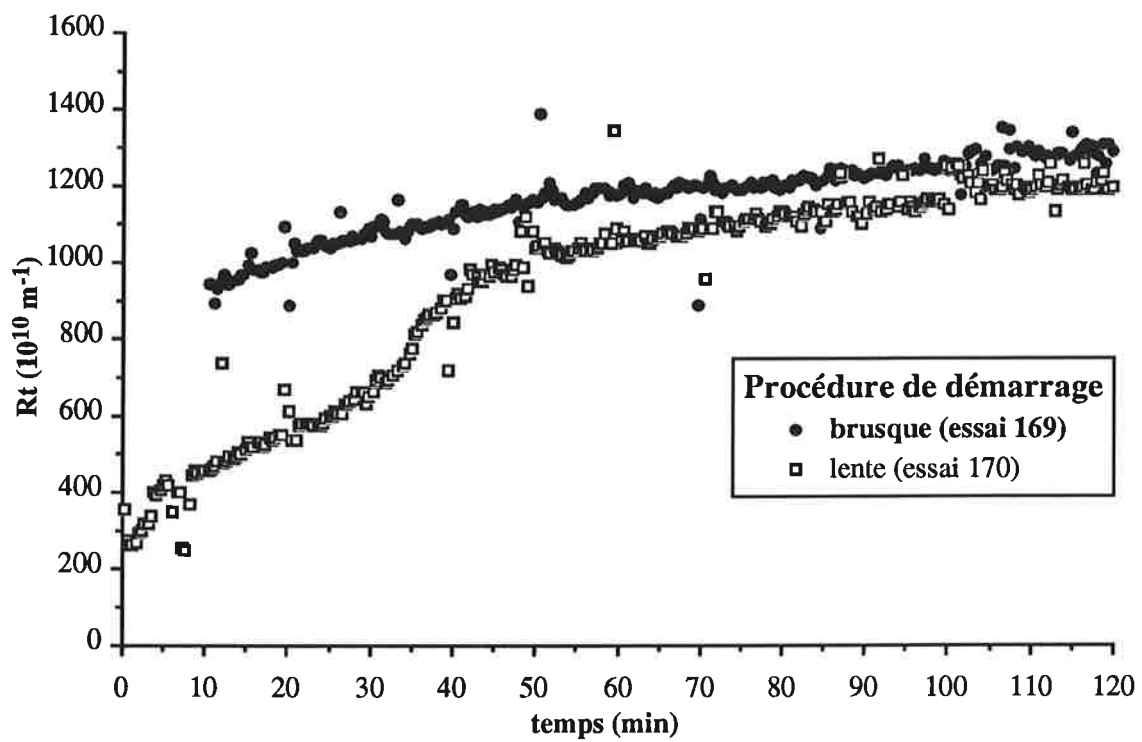
Les fortes densités de flux de filtrat peuvent provoquer un afflux massif de matière au niveau de la membrane, induisant un brusque colmatage. Nous avons donc voulu étudier si une limitation de  $J_f$  avait une influence significative sur les performances finales de l'essai. Compte tenu des impératifs de rentabilité industrielle de l'opération [ROUSSEAU et BERRECHID 1991], des limitations à  $80 \text{ L}/(\text{h}.\text{m}^2)$  et à  $100 \text{ L}/(\text{h}.\text{m}^2)$  ont été choisies. Dans les deux cas testés sur le lot 5 (consignes finales 2,25 bar et 5 m/s), la résistance hydraulique totale n'est plus significativement différente de celle obtenue avec le démarrage lent classique, au delà de 60 min de filtration (Figure V.3).

### **V-1.4 Effet des valeurs de $P_{tm}$ et de $U$ au début de l'essai**

Nous avons pensé qu'une plus faible pression transmembranaire au début de la filtration limiterait encore davantage les phénomènes de colmatage. En commençant la filtration avec une vitesse tangentielle nulle (filtration frontale), il est possible de démarrer avec une  $P_{tm}$  très faible. Cette autre procédure de démarrage a été comparée avec le démarrage lent de référence (lot 6). Aucune différence significative n'est mise en évidence sur l'évolution des résistances hydrauliques totales entre les deux essais (Tableau V.1).

### **V-1.5 Influence du démarrage sur l'efficacité**

En comparant les taux de clarification mesurés après 120 min de filtration ( $T_{TU120\text{min}}$ ), l'effet clarificateur de l'opération ne semble pas clairement affecté par le mode de démarrage. Toutes les valeurs sont comprises entre 65 et 81 % de clarification ce qui correspond à des turbidités pour les filtrats comprises entre 90 et 150 UNT. Néanmoins, il semble que dans quelques cas, le démarrage brusque ait tendance à améliorer la clarification par rapport aux démarrages lents (lot 6 à 2,25 bar et 5 m/s, lot 6t à 1,5 bar et 6 m/s).



**Figure V.4 : évolution de la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ) au cours du temps pour différentes procédures de démarrage: couple sucre lot 8 / membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat, 80 °C.**

### V-1.6 Bilan et comparaison avec l'ultrafiltration

L'importance du mode de démarrage sur les performances de la microfiltration tangentielle du sucre roux est donc bien démontrée. Dans tous les cas de figure testés, une augmentation progressive de la vitesse tangentielle  $U$  et de la pression transmembranaire  $P_{tm}$  a conduit à des résistances hydrauliques totales à 120 min plus faibles de 13 à 20 % par rapport à un démarrage brusque équivalent. Ce phénomène correspond à des améliorations sensibles de densités de flux de filtrat comprises entre 13 et 26 % et ne s'accompagne pas de modifications significatives de l'effet clarificateur. Cependant, en comparant les divers modes de démarrage lent entre eux, aucune différence significative sur les performances finales de l'opération n'est mise en évidence. Ainsi, bien qu'un démarrage lent permette d'améliorer considérablement les résultats par rapport au démarrage brusque, l'intérêt d'un démarrage très lent n'est pas justifié. Au niveau industriel, il est en effet préférable que la procédure de démarrage ne soit pas trop longue afin de limiter les pertes de temps et de capacité de traitement.

Compte tenu du diamètre de pores de la membrane utilisée, ces résultats sont typiquement représentatifs de la microfiltration. Afin de les confronter à un cas d'ultrafiltration, nous avons comparé une procédure de démarrage brusque à une procédure de démarrage lente avec le cas sucre (lot 8) / membrane d'ultrafiltration, sans circulation de filtrat, à 80 °C. Comme ci-dessus, une densité de flux de filtrat standardisée est calculée sur une teneur de référence en matière sèche de 60,0 gMS/100g. Pour ce second couple produit/membrane, les caractéristiques des procédures de démarrage suivies et les résultats obtenus sont consignés dans le Tableau V.1. L'évolution de la résistance au cours du temps est du même type que celle décrite lors de la microfiltration du lot 6 (Figure V.4). Malgré une légère diminution de la résistance hydraulique totale, l'effet du mode de démarrage sur les densités de flux de filtrat standardisées ( $J_f^*$ ) n'est plus significatif après 80 min de filtration. De même, la clarification est peu affectée par le mode de démarrage. Une légère dégradation de la décoloration est toutefois détectée.

D'après ces résultats, une nette différence de comportement est donc mise en évidence entre la microfiltration et l'ultrafiltration. L'influence du mode de démarrage sur les performances est considérable dans le cas de la microfiltration alors qu'elle est nettement moins marquée dans le cas de l'ultrafiltration. Cette différence de comportement peut s'expliquer de la façon suivante :

Lors d'un démarrage brusque, la membrane propre est soumise dès le départ à une forte  $P_{tm}$ . Ceci conduit à un afflux soudain de particules au niveau de la surface membranaire nue.

- Dans le cas de la membrane de microfiltration, le rapport (taille des particules) / (taille des pores) est vraisemblablement inférieur ou proche de 1. La clarification incomplète du produit confirme cette hypothèse. La brutale arrivée de matière provoque le blocage immédiat d'une partie des pores par colmatage interne. Par contre, lors d'un démarrage lent, l'augmentation plus progressive de  $P_{tm}$  favoriserait l'établissement préférentiel d'un colmatage externe (dépôt en surface). Ce

colmatage jouerait alors un rôle protecteur des pores contre leur propre obstruction et conduirait à des résistances hydrauliques totales plus faibles.

- Pour la membrane d'ultrafiltration, le rapport (taille des particules) / (taille de pores) est certainement très supérieur à 1. Cette affirmation est bien confirmée par les valeurs des  $T_{TU}$  obtenus (> 99 %). La membrane se conduirait alors comme un filtre écran pratiquement parfait assurant une rétention quasi-totale des particules à sa surface. La composante interne du colmatage membranaire serait donc faible devant sa composante externe et devant les phénomènes de polarisation de concentration (rétention importante de macromolécules probable à un tel seuil de coupure). Notons que ces hypothèses corroborent celles suggérées dans d'autres travaux [OUSMAN 1992, PUNIDADAS 1990].

## V-2 REVERSIBILITE DU COLMATAGE

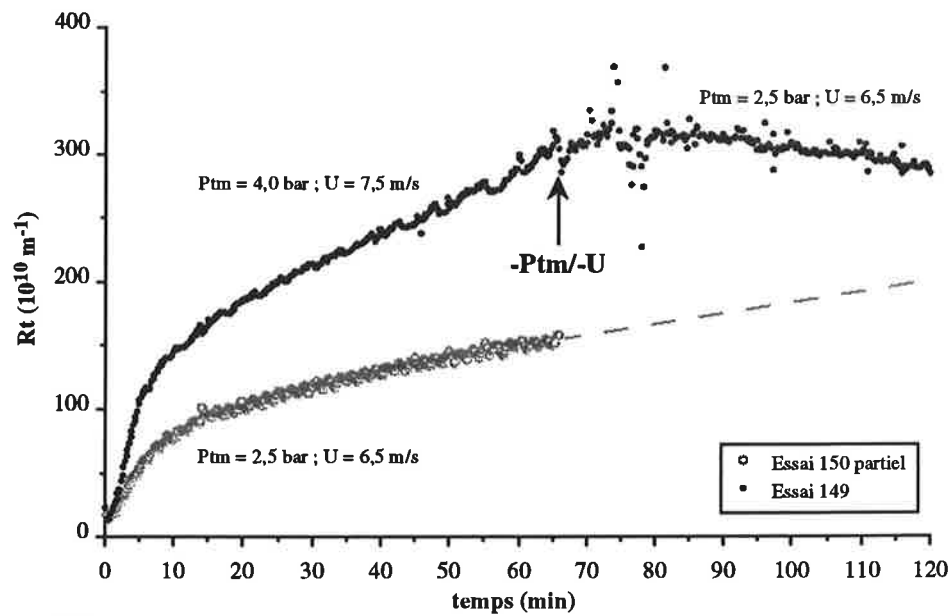
Les essais de filtrations avec échelon de pression transmembranaire et/ou de vitesse tangentielle présentés précédemment (§ III-2.2.2) sont repris et analysés dans cette partie. La même notation qu'auparavant est utilisée pour caractériser les divers échelons  $P_{tm}/U$  effectués.

Rappelons que ces essais sont démarrés dans des conditions de  $P_{tm}/U$  initiales  $(P_{tm}/U)_{init}$ . Après un certain temps de filtration, les consignes de pression sont brusquement modifiées à des valeurs finales  $(P_{tm}/U)_{fin}$ . Dans la plupart des cas, les valeurs  $(P_{tm}/U)_{fin}$  ont été choisies égales aux valeurs  $(P_{tm}/U)_{init}$  d'autres essais. Il est donc possible de comparer une filtration n° 1 directement démarrée dans des conditions  $(P_{tm}/U)_{init1}$  et une filtration n° 2 démarrée dans d'autres conditions  $(P_{tm}/U)_{init2}$  qui, après avoir subi l'échelon, est poursuivie tel que  $(P_{tm}/U)_{fin2} = (P_{tm}/U)_{init1}$ . Grâce à cette comparaison, la réversibilité du colmatage membranaire vis à vis des conditions hydrodynamiques peut être appréhendée.

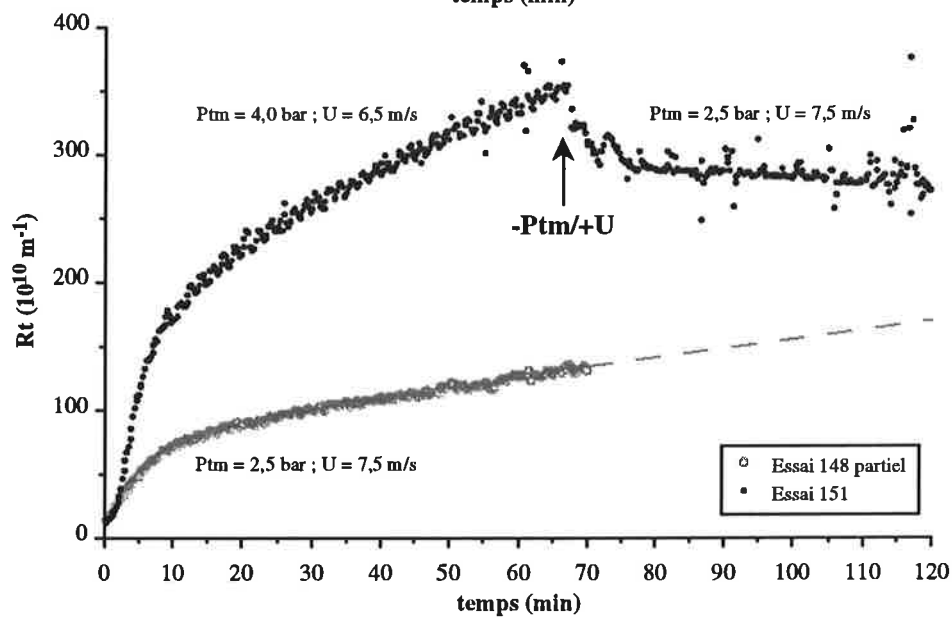
Comme critère de comparaison, nous avons choisi d'examiner la résistance hydraulique totale ( $R_t$ ). Celle-ci est en effet directement représentative de l'intensité du colmatage membranaire et nous paraît ici plus appropriée que la densité de flux de filtrat. Si la résistance hydraulique totale mesurée après l'échelon  $P_{tm}/U$  de la filtration n° 2 est comparable à celle obtenue sans échelon (filtration n° 1), alors le colmatage membranaire est réversible vis à vis des conditions opératoires.

Deux cas de microfiltration sur membrane MEMBRALOX 1,4  $\mu\text{m}$  sont successivement présentés. Pour chacun des échelons  $P_{tm}/U$ , nous proposons tout d'abord d'analyser sommairement l'effet de cet échelon sur l'évolution de  $R_t$  dans le temps puis, nous comparons les résistances hydrauliques totales obtenues avec échelon et sans échelon (en procédant à une extrapolation linéaire).

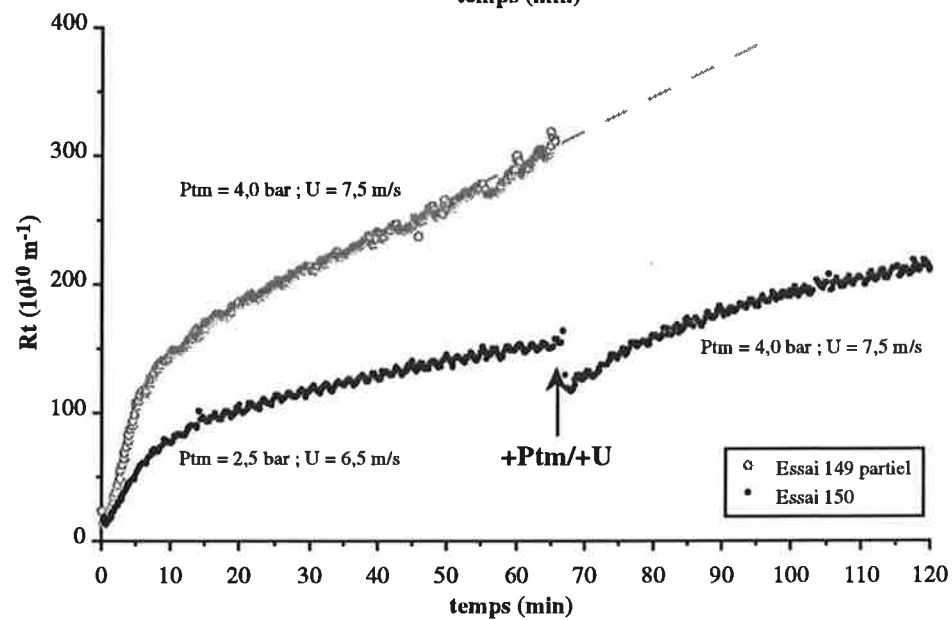




a



b



c

Figure V.5 : comparaison des courbes de résistance hydraulique ( $R_t$ ) sans échelon et avec échelon. Gomme / MEMBRALOX 1,4  $\mu$ m sans circulation de filtrat, 70 °C, haute pression.

### V-2.1 Microfiltration à haute pression d'une solution de gomme

Les essais présentés ci-dessous correspondent à des filtrations de solutions de gomme arabique à 20 gMS/100g et 70 °C, sans circulation de filtrat, avec une procédure de démarrage brusque.

- Echelon -Ptm/-U (essai 149) : juste après celui-ci, la résistance continue tout d'abord à croître puis diminue sans montrer de stabilisation même après 50 min (**Figure V.5a**). Ce phénomène est vraisemblablement dû aux effets antagonistes sur  $R_t$ , de la diminution de  $U$  (qui a tendance à faire augmenter  $R_t$ ) et de la diminution de  $P_{tm}$  (qui a tendance à la faire diminuer). Immédiatement après l'échelon, le principal effet serait celui de la baisse de  $U$ , puis l'effet de la diminution de  $P_{tm}$  deviendrait prédominant. Remarquons qu'une stabilisation voire une nouvelle augmentation de  $R_t$  aurait certainement été observée si la filtration avait été menée plus avant. En comparant les résultats des filtrations avec et sans échelon, nous constatons que la résistance hydraulique finale obtenue après l'échelon est toujours plus élevée que la valeur correspondant à l'essai sans échelon. A  $P_{tm}$  égales, la densité de flux de filtrat finale mesurée lors de la filtration avec échelon est donc plus faible que celle observée lors de la filtration sans échelon.
- Echelon -Ptm/+U (essai 151) :  $R_t$  chute brusquement juste après l'échelon (**Figure V.5b**). Cette observation est certainement corrélée aux effets - $P_{tm}$  et + $U$  qui contribuent conjointement à faire diminuer  $R_t$ . La chute de  $R_t$  se ralentit ensuite très nettement. Après 120 min, la résistance hydraulique atteint  $270.10^{10} \text{ m}^{-1}$  ce qui est beaucoup plus faible que les valeurs estimées par extrapolation linéaire à partir de la courbe sans échelon ( $170.10^{10} \text{ m}^{-1}$ ). Ici encore, les densités de flux de filtrat sont donc plus faibles pour la filtration avec échelon.
- Echelon +Ptm/+U (essais 150) : nous observons tout d'abord une légère diminution de  $R_t$  immédiatement après l'échelon. Celle-ci s'explique probablement par l'effet favorable de  $U$  (**Figure V.5c**).  $R_t$  augmente alors à nouveau très progressivement. Elle conserve néanmoins des valeurs environ deux fois plus faibles que celles mesurées à partir de l'essai sans échelon. Ainsi, en initiant la filtration à  $P_{tm}$  modérée puis en augmentant celle-ci, il est possible de doubler les densités de flux. Ces résultats corroborent ceux obtenus lors de l'étude du mode de démarrage.

### V-2.2 Microfiltration à basse pression d'un sirop de sucre

Les essais présentés ci-dessous correspondent à des filtrations de sirops de sucre roux de canne (lot 6t) à 60 gMS/100g et 80 °C, avec circulation de filtrat (démarrage lent).

- Echelon -Ptm (essais 161 et 162) : dans les deux cas, nous constatons que  $R_t$  diminue brusquement pour atteindre des valeurs légèrement plus élevées que celles des filtrations sans échelon (**Figure V.6**). Aussi bien pour - $P_{tm}$ /- $U$  que pour - $P_{tm}$ /+ $U$ , la différence entre les  $R_t$

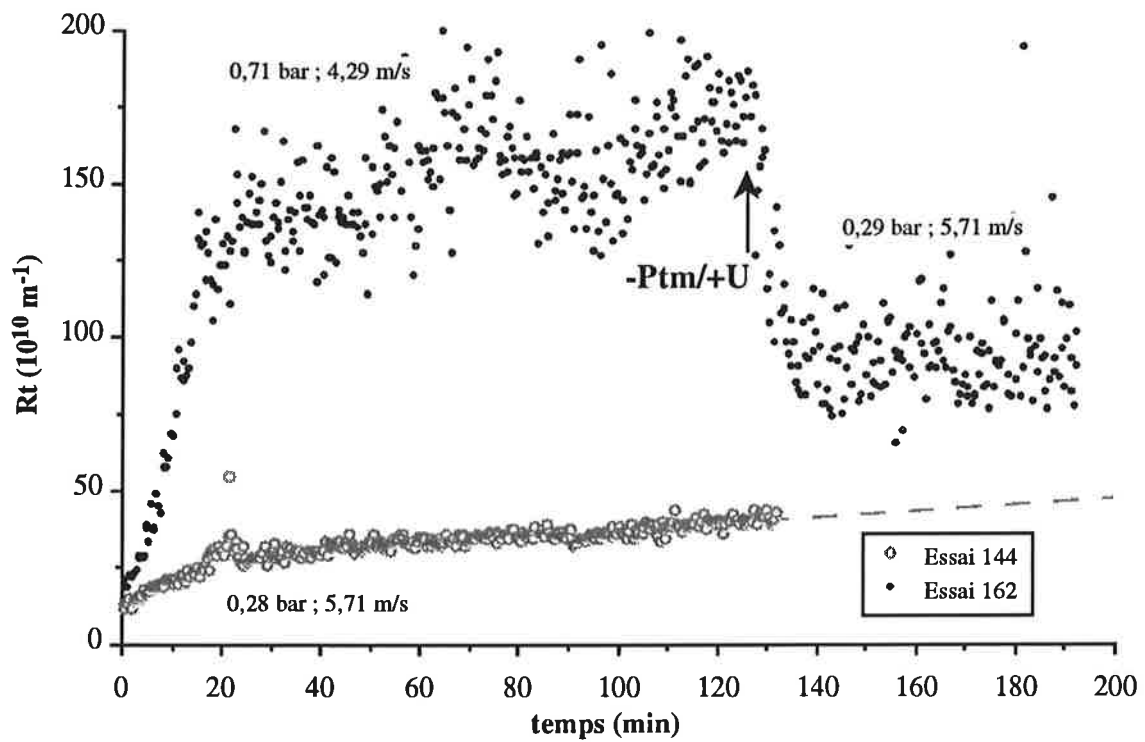
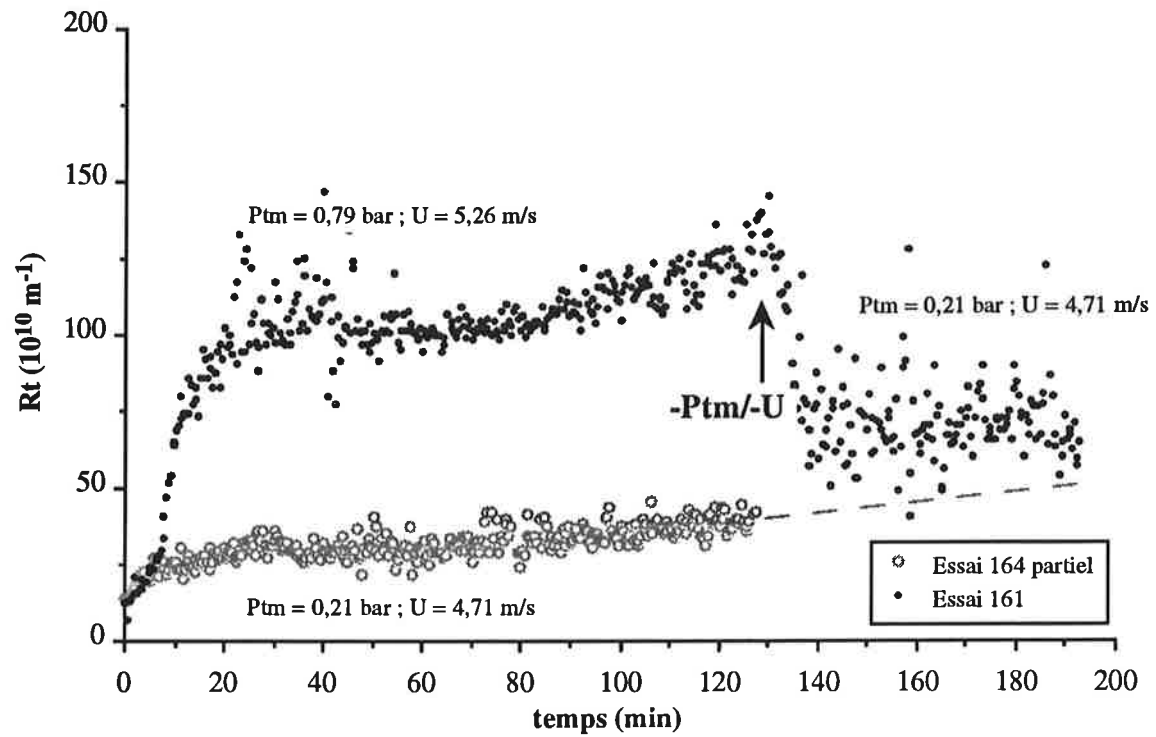


Figure V.6 : comparaison des courbes de résistance hydraulique ( $R_t$ ) sans échelon et avec échelon  $-P_{tm}$ . Sucre / MEMBRALOX  $1,4 \mu\text{m}$  avec circulation de filtrat,  $80^\circ\text{C}$ , faible pression.

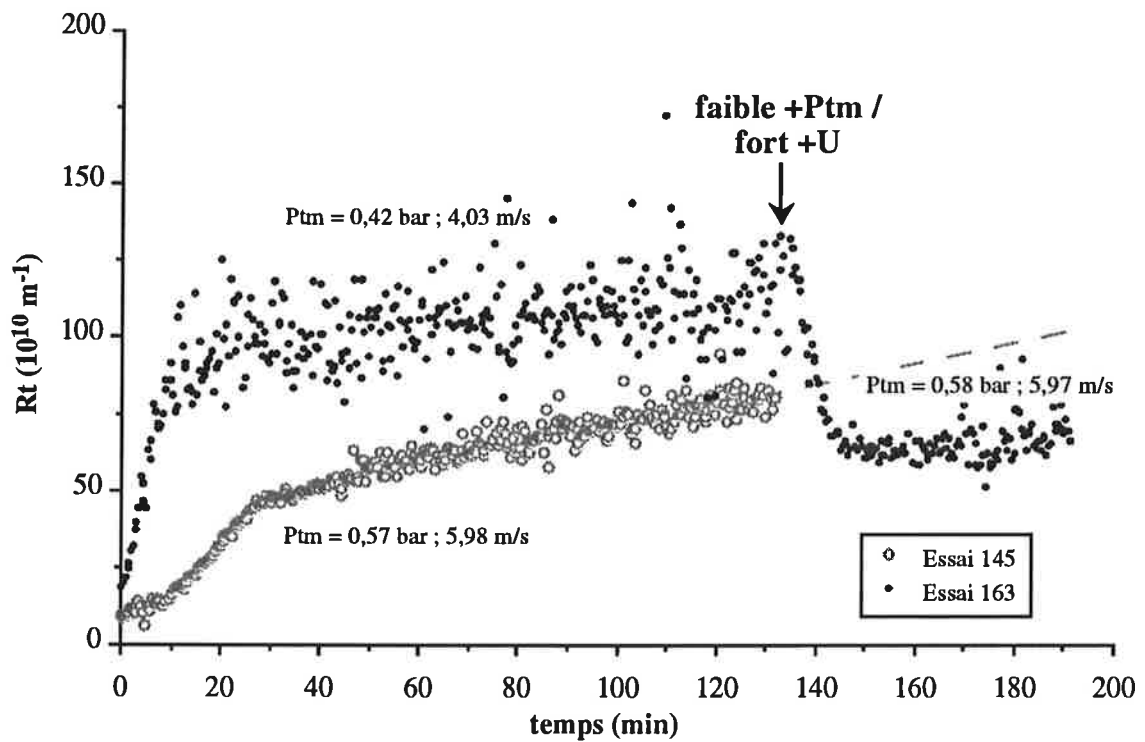
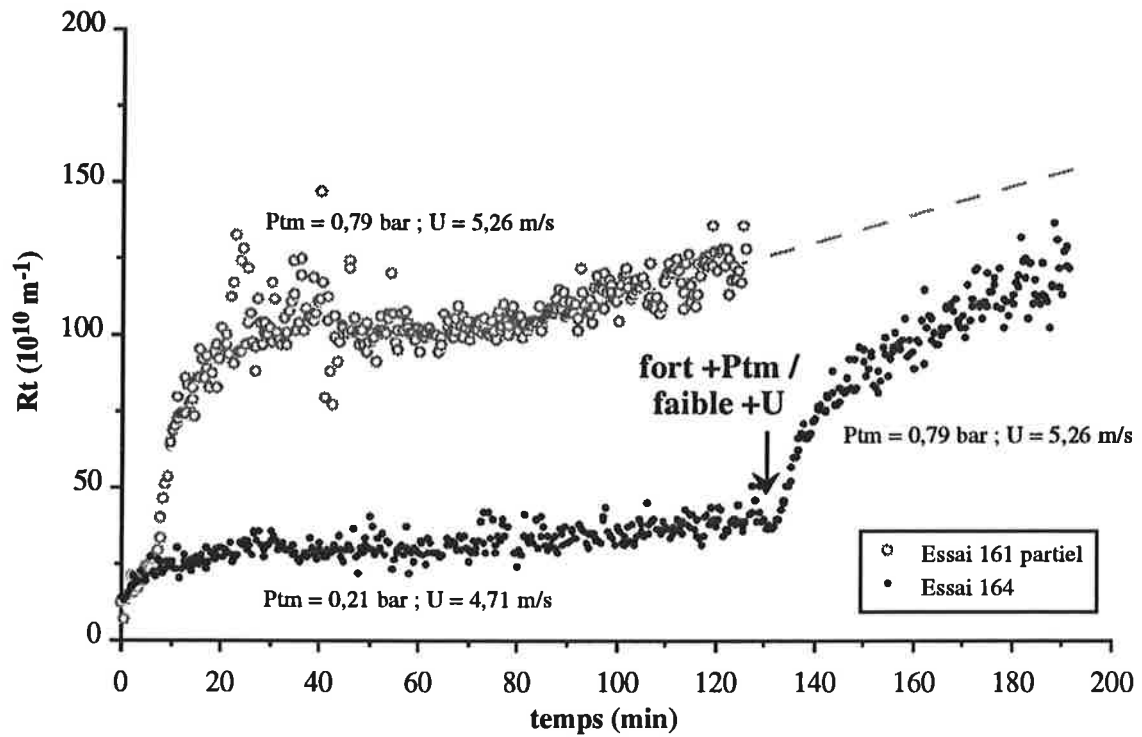


Figure V.7 : comparaison des courbes de résistance hydraulique ( $R_t$ ) sans échelon et avec échelon  $+P_{tm}/+U$ . Sucre / MEMBRALOX  $1,4 \mu\text{m}$  avec circulation de filtrat,  $80^\circ\text{C}$ , faible pression.

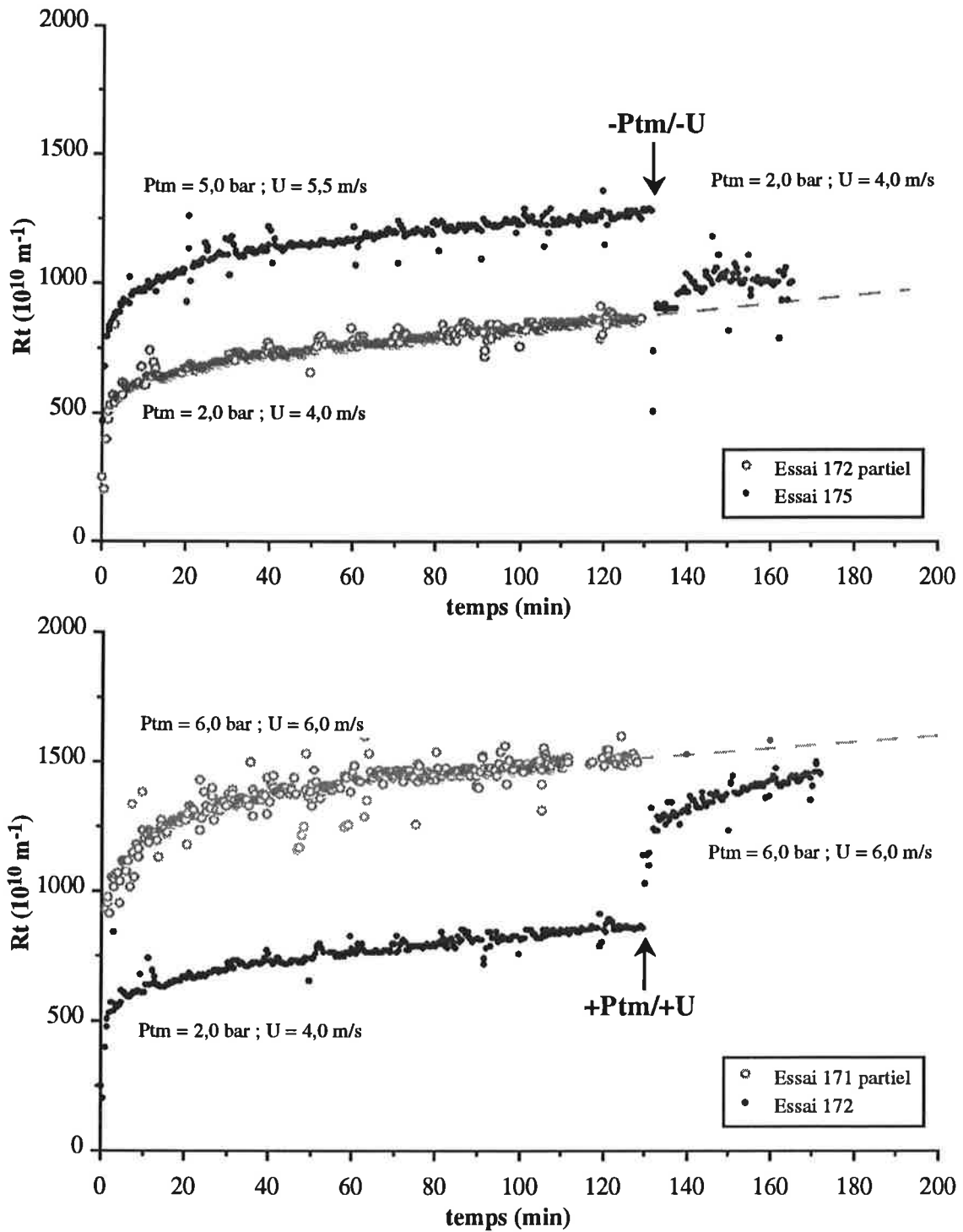


Figure V.8 : comparaison des courbes de résistance hydraulique ( $R_t$ ) sans échelon et avec échelon. Sucre / membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat,  $80^\circ\text{C}$ .

obtenues avec et sans échelon est nettement plus faible que pour la microfiltration des solutions de gomme à forte pression.

- Echelons +P<sub>tm</sub>/+U : deux cas se distinguent (**Figure V.7**). Lors de l'essai 164 (fort + P<sub>tm</sub> / faible + U), l'échelon est suivi d'une augmentation de R<sub>t</sub> qui semble se rapprocher lentement de la valeur estimée à partir de la courbe sans échelon. Pour l'essai 163 (faible + P<sub>tm</sub> / fort + U), l'échelon s'accompagne d'une brutale diminution de R<sub>t</sub>. La résistance mesurée après l'échelon est alors plus faible que celle correspondant à l'essai sans échelon. Ce surprenant résultat pourrait être expliqué par une meilleure protection de la membrane contre le colmatage lorsque la filtration est initiée à plus faible P<sub>tm</sub>. Là encore, les valeurs de R<sub>t</sub> obtenues avec ou sans échelon sont plus proches que dans le cas gomme - forte pression.

### V-2.3 Bilan et comparaison avec l'ultrafiltration

Pour le cas de la microfiltration à forte pression de solutions de gomme, il apparaît clairement que le colmatage est en partie irréversible. En effet, l'intensité du colmatage dépend fortement de l'histoire P<sub>tm</sub>/U qu'a subie la membrane. Une augmentation identique de pression en début ou après un certain temps de filtration ne se traduit pas du tout par le même effet sur la résistance hydraulique totale. Une fois le colmatage établi dans des conditions de P<sub>tm</sub> et de U données, il est extrêmement difficile de faire changer ses caractéristiques en jouant sur les conditions hydrodynamiques. Compte tenu de la taille des pores membranaires (1,4 μm), une grande partie de la composante irréversible du colmatage correspond probablement à un colmatage interne. Une fois en place, ce colmatage ne peut en effet plus être altéré par un changement des conditions opératoires. Ce premier cas, typique de la microfiltration à forte pression transmembranaire, est donc particulièrement complexe et nécessiterait une étude plus approfondie. Afin de rendre les résultats plus simples à exploiter, il serait notamment souhaitable de dissocier les échelons de pression et de vitesse. Notons qu'il n'est pas envisageable dans un tel cas, de procéder à des échelons successifs de pression ou de vitesse au cours d'une seule et unique filtration pour approcher les conditions opératoires optimales. Cette méthode, souvent mise en œuvre pour une estimation rapide, aurait ici conduit à des résultats totalement erronés.

Pour le cas de la microfiltration à faible pression de sirops de sucre, les mêmes constatations que précédemment peuvent être faites. Cependant, l'irréversibilité du colmatage vis à vis des conditions hydrodynamiques est nettement moins marquée. La gamme de pressions beaucoup plus faible est vraisemblablement la principale explication de cette différence de comportement. Comme nous en avons déjà fait l'hypothèse lors de l'étude du mode de démarrage, les faibles P<sub>tm</sub> mises en jeu favoriseraient davantage la mise en place d'un colmatage externe (dépôt en surface). La résistance spécifique et l'épaisseur de ce dépôt seraient plus facilement modifiées par un changement des conditions hydrodynamiques. Notons cependant que la nature des produits traités est très différente et que la configuration utilisée n'est pas identique (avec et sans circulation de filtrat). La

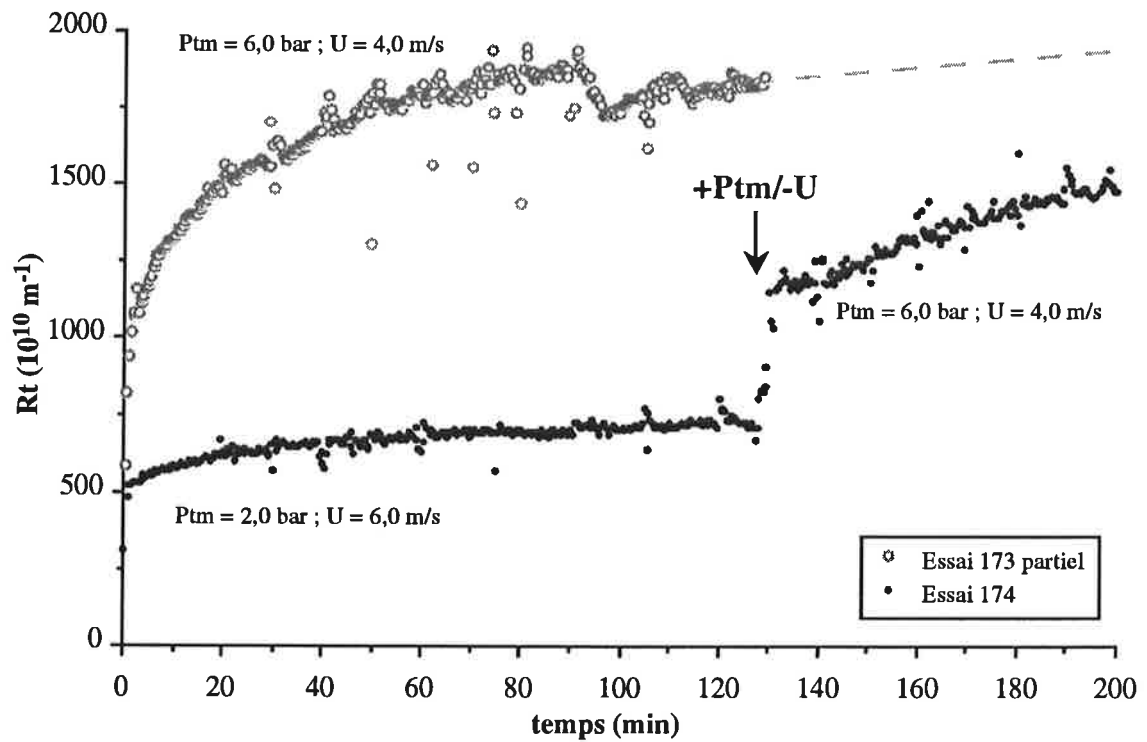
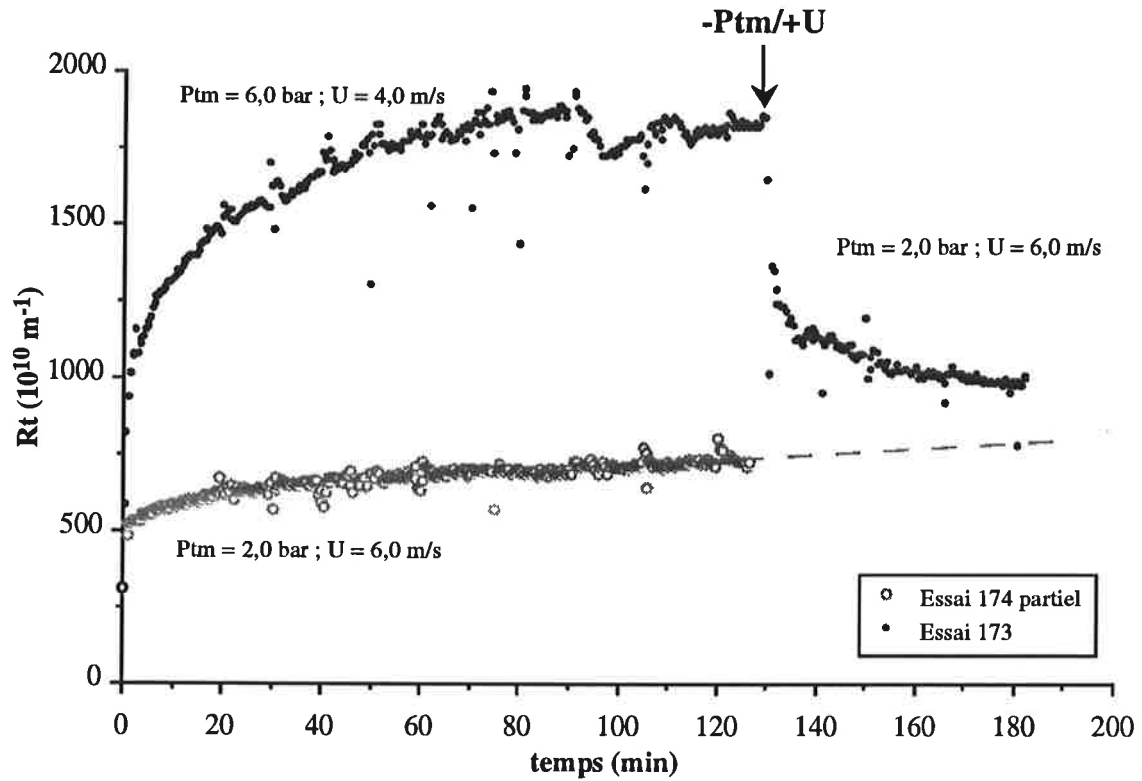


Figure V.9 : comparaison des courbes de résistance hydraulique ( $R_t$ ) sans échelon et avec échelon. Sucre / membrane d'ultrafiltration sans circulation de filtrat, 80 °C.

comparaison de ces deux cas doit donc être effectuée avec prudence.

Afin de comparer ces résultats avec un cas d'ultrafiltration, nous avons repris, comme pour le démarrage, le couple sucre/membrane d'ultrafiltration. Dans ce cas, pour tous les échelons P<sub>tm</sub>/U effectués, R<sub>t</sub> tend à retrouver une valeur proche de celle obtenue lors de filtrations sans échelon (**Figure V.8 et V.9**). Le phénomène est particulièrement rapide dans le cas des échelons -P<sub>tm</sub>/-U (essai 175) et +P<sub>tm</sub>/+U (essai 172). Il est plus lent pour les échelons -P<sub>tm</sub>/+U (essai 173) et +P<sub>tm</sub>/-U (essai 174). D'après ces résultats, il semble que l'influence de l'histoire pression-vitesse est très atténuée pour ce troisième couple produit/membrane. Quel que soit le profil P<sub>tm</sub>-U subi au cours du temps, l'intensité du colmatage est essentiellement fonction des valeurs de la pression et de la vitesse. Les phénomènes de colmatage sont presque totalement réversibles vis à vis des conditions hydrodynamiques. L'hypothèse avancée lors de l'étude du démarrage permet là encore d'expliquer ce comportement. En effet, le diamètre moyen de pores de la membrane utilisée est ici beaucoup plus faible. La composante interne du colmatage est donc vraisemblablement négligeable par rapport à sa composante externe.

### V-3 CONCLUSION

Il apparaît clairement que la conduite d'une installation de microfiltration tangentielle est susceptible de conditionner de façon significative les résultats. D'une part, nous avons montré que les toutes premières minutes de la filtration sont déterminantes sur ses performances à long terme. La manière de porter la pression transmembranaire et la vitesse tangentielle à leur valeur de consigne est donc fondamentale. D'autre part, les résultats d'une microfiltration dépendent fortement de l'histoire pression-vitesse qu'a subie la membrane. Une modification identique des conditions opératoires ne se traduit pas du tout par la même variation de densité de flux de filtrat suivant qu'elle est effectuée en début ou après un certain temps de filtration. Ces observations confirment les résultats obtenus par d'autres auteurs [PILLAY *et al.* 1990]. Elles sont probablement corrélées à une certaine irréversibilité du colmatage vis à vis des conditions opératoires qui semble d'autant plus marquée que la pression transmembranaire est élevée.

Contrairement à l'ultrafiltration pour laquelle ces phénomènes semblent moins accentués, le mode de conduite d'une installation de microfiltration doit donc être impérativement pris en compte pour l'optimisation du procédé. Compte tenu de leur capacité à représenter les résultats de filtrations à conditions variables, les réseaux de neurones sont des outils potentiellement très intéressants à ce niveau. En effet, nous avons montré dans le chapitre III, que ces modèles sont capables de prévoir des situations qu'ils n'ont pas apprises. A partir d'un nombre limité de données expérimentales, les réseaux de neurones sont donc potentiellement utilisables pour simuler un grand nombre de stratégies de conduites différentes. Le développement de ces outils pour l'optimisation de la conduite en microfiltration représente donc une des principales perspectives de ce travail.



**CONCLUSION  
GENERALE**

Pour un nouveau couple produit/membrane, nous avons souligné en introduction la difficulté de prévoir l'influence des conditions hydrodynamiques (pression transmembranaire et vitesse tangentielle) sur les résultats de la filtration sans avoir recours à une campagne d'essais sur pilote. Afin de limiter le coût d'une telle étude, il est indispensable de minimiser au mieux le nombre d'essais expérimentaux à effectuer tout en garantissant des prévisions fiables. Dans ce contexte, notre objectif était de proposer quelques outils basés sur l'utilisation de modèles de représentation permettant de rationaliser la recherche des conditions hydrodynamiques optimales.

Nous avons tout d'abord choisi de mettre en œuvre des unités pilotes instrumentées et automatisées garantissant des mesures fiables, une régulation fine et une acquisition en ligne des données. Dans ce cadre, le système avec circulation de filtrat breveté par  $\alpha$ -LAVAL a été adapté sur l'installation pilote ENSIA existante afin notamment d'élargir la gamme de pression transmembranaire disponible. Grâce à ces outils expérimentaux performants, il est possible de maîtriser finement les essais de filtration et d'obtenir une reproductibilité des résultats très satisfaisante.

Pour l'optimisation des conditions hydrodynamiques à un temps de référence, nous avons montré que l'utilisation de plans d'expériences associés à un traitement de données par régression linéaire présente un réel intérêt. En effet, dans deux cas différents, cet outil d'optimisation a permis de déterminer les conditions hydrodynamiques optimales à la suite d'une dizaine d'essais expérimentaux seulement et ce, en intégrant les performances, l'efficacité et la consommation énergétique. Une méthode simple, spécifique à la filtration tangentielle, a été proposée pour orienter le choix du domaine de pression transmembranaire et de vitesse tangentielle à explorer.

Néanmoins, lorsque le colmatage membranaire ne parvient pas à un véritable état d'équilibre, l'élaboration de modèles dynamiques devient indispensable pour une meilleure optimisation du procédé. Dans ce cadre, l'utilisation des réseaux de neurones a été envisagée. Après avoir participé au développement d'un nouvel algorithme d'apprentissage sans calcul de dérivée pour les perceptrons multicouches, nous avons montré que les réseaux de neurones sont bien adaptés à la modélisation dynamique de la filtration tangentielle. Pour des filtrations à conditions hydrodynamiques constantes, ces outils ont permis de représenter de façon très satisfaisante l'évolution de la résistance hydraulique totale au cours du temps en fonction de la pression transmembranaire et de la vitesse tangentielle. Notons que l'influence de la structure cachée du réseau ainsi que l'incidence de la répartition des données sur la qualité de la modélisation ont été abordées à ce niveau. Nous avons ensuite prouvé la capacité des réseaux à modéliser l'évolution de l'intensité du colmatage membranaire durant des filtrations comportant des changements de conditions hydrodynamiques progressifs et brutaux.

Il a donc été clairement établi que les réseaux de neurones présentent de nombreuses potentialités. En particulier, nous avons vérifié que ces outils peuvent être mis en œuvre pour l'optimisation des conditions hydrodynamiques à un temps de référence à la suite d'un nombre très restreint d'essais pilote. L'intérêt de ces modèles pour apprécier l'effet des conditions opératoires sur un domaine continu de pression et de vitesse a également été signalé. Enfin, grâce à ces outils, la pertinence d'une autre méthode d'optimisation a pu être testée sans recourir à l'expérience.

La validation de ces outils d'optimisation a été effectuée dans divers cas réels. Les résultats obtenus nous ont donc permis de tirer quelques conclusions au niveau du procédé. Nous avons ainsi établi l'intérêt du système avec circulation de filtrat en microfiltration sur membrane à gros diamètre de pores. Notre étude a également permis de mieux cerner les possibilités offertes par la micro et ultrafiltration tangentielle pour le traitement des sirops de sucre roux de canne. Enfin, sur les solutions de gomme arabique, la faisabilité de la clarification par microfiltration tangentielle a été démontrée.

Finalement, nous avons montré qu'en microfiltration, les résultats dépendent fortement de l'histoire pression-vitesse qu'a subie la membrane. Ainsi, contrairement à l'ultrafiltration où cette observation est moins marquée, le mode de conduite d'une installation de microfiltration doit être impérativement pris en compte pour l'optimisation du procédé.

Ces divers résultats nous conduisent à proposer quelques perspectives pour la suite de cette étude. Nous avons choisi de reprendre ci-dessous celles qui nous semblent particulièrement dignes d'intérêt.

L'étude prospective effectuée sur les réseaux de neurones avec entrée implicite du temps a montré que ces outils sont prometteurs pour l'optimisation de la conduite de la microfiltration. Afin de le confirmer, il serait néanmoins nécessaire de développer ces réseaux de neurones en mode récurrent. Une fois mis au point, ces modèles dynamiques pourraient être intégrés dans un système de contrôle-commande afin d'optimiser les stratégies de conduite pour maintenir par exemple une densité de flux élevée pendant le plus long temps possible ou encore pour rectifier une déviation de consigne. Notons de plus qu'un apprentissage en ligne est concevable avec ce type de réseau. Elaboré sur site industriel, un tel outil serait capable de bénéficier des filtrations en cours pour s'améliorer constamment.

Les différents outils proposés au cours de ce travail ne sont utilisables que pour un couple produit/membrane donné. Afin d'élargir leurs potentialités, il pourrait être envisagé d'intégrer dans les modèles un paramètre spécifique de la membrane comme par exemple son diamètre moyen de pores. L'introduction dans les modèles d'une ou de plusieurs caractéristiques du produit semble par contre plus délicate. En effet, sur des solutions réelles, il est encore actuellement difficile de définir quels sont les facteurs déterminants sur le colmatage membranaire. Remarquons que cette démarche

nécessiterait avant tout une étude plus approfondie des méthodes de caractérisation des produits filtrés.

Afin de faciliter la gestion des flux, de nombreux utilisateurs industriels préfèrent travailler à densité de flux de filtrat constante plutôt que variable. Pour maintenir la densité de flux à la valeur choisie, il est dans ce cas nécessaire de contrecarrer l'augmentation de la résistance hydraulique au cours de la filtration par une modification des conditions hydrodynamiques. Compte tenu de l'intérêt industriel de cette autre démarche, il serait capital d'adapter les outils que nous avons développés à des filtrations à densité de flux constante.

Au cours de ce travail, nous nous sommes volontairement restreints à l'optimisation des conditions hydrodynamiques lors de filtrations sans concentration. Il apparaît donc indispensable de développer des outils qui permettent d'optimiser conjointement le facteur de concentration volumique pour le traitement d'un nouveau produit.

Comme nous l'avons signalé en introduction, les modèles de connaissance aujourd'hui disponibles permettent de modéliser en partie les phénomènes mis en jeu lors du colmatage membranaire. Il pourrait ainsi être envisagé de coupler les réseaux de neurones à un de ces modèles pour représenter l'information non-expliquée par le modèle de connaissance [THOMPSON et KRAMER 1994]. La quantité d'informations à traiter étant moins importante, cette démarche devrait probablement conduire à de meilleurs résultats.

Dans le but d'affiner l'étude de la rétention membranaire (efficacité), le montage d'un capteur en ligne devrait permettre de mieux suivre l'évolution dans le temps de la qualité du produit filtré. Remarquons que cette adaptation semble a priori aisément réalisable pour les mesures de teneur en matière sèche et de turbidité.

Enfin, afin de vérifier leur applicabilité au niveau industriel, il serait judicieux de tester la robustesse des divers outils présentés sur des installations moins sophistiquées que celles mises en œuvre au cours de ce travail.

Ainsi, cette étude constitue une première étape vers une optimisation plus fiable de la filtration tangentielle. Utilisées comme outils d'aide à la décision, les méthodes proposées devraient en effet permettre de mieux maîtriser le colmatage membranaire et ainsi contribuer au développement des potentialités du procédé à un stade industriel.

**REFERENCES  
BIBLIOGRAPHIQUES**

- ABERG, E. R. et GUSTAVSSON, G. T. 1982. Design and evaluation of modified Simplex methods. *Analytica Chimica Acta*, **144**, 39-53.
- ACUNA, G., LATRILLE, E., BEAL, C. et CORRIEU, G. 1993. Modélisation par réseaux de neurones des cinétiques réactionnelles caractéristiques des fermentations lactiques batch à pH régulé. *Récents Progrès en Génie des Procédés*, **7** (29), 215-220.
- ADRIAN, J. 1993. Le rôle des facteurs technologiques sur les réactions de brunissement non enzymatique. *Industries Agricoles et Alimentaires*, **110** (5), 308-312.
- ALFA-LAVAL 1987. ALFA-LAVAL développe un nouveau procédé par microfiltration pour améliorer la conservation des laits. *Technique Laitière*, **1025**, 49.
- ALFA-LAVAL AKTIEBOLAG 1975a. Procédé de filtration. Brevet d'invention n° 75 38098, France.
- ALFA-LAVAL AKTIEBOLAG 1975b. Procédé pour séparer par filtrage le lait écrémé du lait ou de la crème. Brevet d'invention n° 75 04479, France.
- ANTSAKLIS, P. J. 1990. Neural networks in control systems. *IEEE Control Systems Magazine*, **9** (April), 3-5.
- APOSTOLOS, N. R., ACHILEAS, Z. et GAVIN, F. 1994. Stock performance modeling using neural networks: a comparative study with regression models. *Neural Networks*, **7** (2), 375-388.
- ASTIER, R., BOUVIER, A., COURSOL, J., DENIS, J. B., DERVIN, C., JOLIVET, E., LESQUOY, E., PONS, O., TOMASSONE, R. et VILA, J. P. 1982. GENSTAT : un langage statistique. Publication INRA Biométrie, Versailles.
- ATTIA, H., BENNASAR, M. et TARODO DE LA FUENTE, B. 1988. Ultrafiltration sur membrane minérale de laits acidifiés à divers pH par voie biologique ou chimique et de coagulum lactique. *Le Lait*, **68**, 13-32.
- BAFFES, P. T., SHELTON, R. O. et PHILLIPS, T. A. 1991. NETS: a Neural Network Development Tool. Software Technology Branch-Lyndon B. Johnson Space Center, Houston (TX, USA).
- BALI, R. 1991. Microfiltration en flux tangentiel: applications et intérêts dans le procédé technologique de transformation de l'orange. Thèse, Université de Montpellier I.
- BASSAL, A. 1993. Etude de l'activité de l'eau dans les aliments au dessus de 100 °C. Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires, Massy.
- BELFORT, G. 1984. Synthetic Membrane Processes; Fundamentals and Water Applications. Academic Press, Orlando (FL, USA).
- BELLEVILLE, M. P. 1991. Etude du colmatage d'une membrane minérale de microfiltration tangentielle par les constituants macromoléculaires du vin. Thèse, Université de Montpellier II.
- BEN MESSAOUD, E. 1990. Techniques de décoloration des sirops de sucre roux: échange d'ions et microfiltration tangentielle. DEA, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- BENNASAR, M. 1984. Etude de l'ultrafiltration sur membranes minérales; application au lait. Thèse es Science, Université de Montpellier II.
- BENNASAR, M. et TARODO DE LA FUENTE, B. 1987. Model of the fouling mechanism and of the working of a mineral membrane in tangential filtration. *Sciences des Aliments*, **7** (4), 647-655.

- BENNASAR, M. et TARODO DE LA FUENTE, B. 1989. Conception et dimensionnement d'installations industrielles de filtration tangentielle pour la concentration ou la clarification de produits biologiques. *Industries Agricoles et Alimentaires*, **106** (1-2), 43-49.
- BERSINI, H. 1993. Méthodes FUNNY: logique floue et réseaux de neurones, appliquées à la commande adaptative. *Science Technique Technologie*, **25**, 28-32.
- BHAT, N. V., MINDERMAN, P. A., McAVOY, T. et WANG, N. S. 1990. Modeling chemical process systems via neural computation. *IEEE Control Systems Magazine*, April, 24-30.
- BILLINGS, S. A., JAMALUDDIN, H. B. et CHEN, S. 1992. Properties of neural networks with applications to modelling non-linear dynamical systems. *International Journal of Control*, **55** (1), 193-224.
- BISHOP, C. M. 1994. Neural networks and their applications. *Revue of Scientific Instruments*, **65** (6), 1803-1832.
- BOCHEREAU, L. 1991. Conception et interprétation des réseaux connexionnistes multicouches. Thèse, Université Paris VI.
- BOURRET, P., REGGIA, J. et SAMUELIDES, M. 1991. Les réseaux multicouche à rétropropagation de l'erreur. Dans *Réseaux Neuronaux: une Approche Connexionniste de l'Intelligence Artificielle*, p. 189-212, Teknea, Toulouse.
- BOUSSICAUD, A. 1983. Calcul des Pertes de Charge. Les Editions Parisiennes Chaud Froid Plomberie, Paris.
- BOX, G. E. P. et HUNTER, J. S. 1957. Multi-factor experimental designs for exploring response surfaces. *Annals of Mathematical Statistics*, **28**, 195-241.
- BOX, G. E. P., HUNTER, W. G. et HUNTER, J. S. 1978. Response surface methods. Dans *Statistics for Experimenters: an Introduction to Design, Data Analysis and Model Building*, p. 510-539, John Wiley & Sons, New York.
- BRUN, J. P. 1989. Procédés de Séparation par Membranes: Transport, Techniques Membranaires, Applications. Masson, Paris.
- CAROL, L. L., CHERYAN, M. et DEVOR, R. E. 1980. A response surface methodology approach to the optimization of whipping properties of an ultrafiltered soy product. *Journal of Food Science*, **45**, 1720-1726.
- CARREL-BILLIARD, M. 1992. Modèles connexionnistes; une introduction aux réseaux de neurones en intelligence artificielle. *Publications Scientifiques et Techniques d'IBM France*, **3**, 39-90.
- CHERYAN, M. 1986. Ultrafiltration Handbook. Technomic publishing Company, Lancaster (PN, USA).
- CHERYAN, M. 1991. Membranes in food processing. Dans *Effective Industrial Membrane Processes* (TURNER, M. K. Ed.), p. 157-180, Elsevier Applied Science, Londres.
- CHERYAN, M. 1992. Membrane technology in food and bioprocessing. Dans *Advances in Food Engineering* (SINGH, R. P. et WIRAKARTAKUSUMAH, M. A. Ed.), p. 165-179, CRC Press, Boca Raton (FL, USA).
- CLIFFORD, C. H. 1992. Turbidity standards. Bulletin technique n° 7012, Société HACH.
- COHEN-MAUREL, E. 1990. L'utilisation de la microfiltration tangentielle dans le traitement des liquides alimentaires. *Process*, **1054**, 42-49.

- COLLIGNAN, A. et RAOULT WACK, A. L. 1992. Dewatering through immersion in sugar/salt concentrated solutions at low temperature. An interesting alternative for animal foodstuffs stabilisation. Dans *Drying'92* (MÚJUMDAR, A. S. Ed.), p. 1887-1896, Elsevier Science Publishers B. V., Londres.
- COLLIGNAN, A. et RAOULT-WACK, A. L. 1994. Dewatering and salting of cod by immersion in concentrated sugar/salt solutions. *Lebensmittel Wissenschaft und Technologie*, **27**, 259-264.
- COLMAN, D. A. et MURTON, C. D. 1991. Enhanced mass transfer with ultrafiltration and microfiltration membranes. Dans *Effective Industrial Membrane Processes: Benefits and Opportunities* (TURNER, M. K. Ed.), p. 33-46, Elsevier Applied Science, Londres.
- COMOLET, R. 1982. Mécanique Expérimentale des Fluides. Tome II: Dynamique des Fluides Réels, Turbomachines. Masson, Paris.
- COT, L., GUIZARD, C. et LARBOT, A. 1988. Des membranes d'aujourd'hui aux membranes céramiques de demain. *L'Industrie Céramique*, **2** (824), 84-87.
- COURTOIS, T. 1992. Etude de la formation de la couche de polarisation de concentration en microfiltration tangentielle. Thèse, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- CRULL, A. 1991. Prospects for the inorganic membrane business. *International Conference on Inorganic Membranes*, 1-4 Juillet, Montpellier, 279-288.
- DECLoux, M., BEN MESSAOUD, E. et LAMELOISE, M. L. 1992. Etude du couplage microfiltration tangentielle/échange d'ions en raffinerie de sucre de canne. *Industries Agricoles et Alimentaires*, **109** (7-8), 495-502.
- DEVILLIERS, P. 1974. Ash. Dans Report of the Proceedings of the 16th Session of ICUMSA, p. 213-223, International Commission for Uniform Methods of Sugar Analysis, Peterborough (GB).
- DIRION, J. L., CABASSUD, M., LE LANN, M. V. et CASAMATTA, G. 1993. Contrôle thermique d'un réacteur discontinu par un réseau de neurones. *Récents Progrès en Génie des Procédés*, **7** (29), 227-232.
- DÖEHLERT, D. H. 1970. Uniform shell designs. *Applied Statistics*, **19**, 231-239.
- DUMENIL, G., MATTEI, G., SERGENT, M., BERTRAND, J. C., LAGET, M. et PHAN-TAN-LUU, R. 1988. Application of a Döehlert experimental design to the optimization of microbial degradation of crude oil in sea water by continuous culture. *Applied Microbiology and Biotechnology*, **27** (4), 405-409.
- EVANS, E. W. et GLOVER, F. A. 1974. Basic principles of reverse osmosis and ultrafiltration. *Journal Soc. Dairy Technol.*, **27** (3), 111-120.
- FAHLMAN, S. E. 1988. Faster-learning variations on back-propagation: an empirical study. *Connectionist Models Summer School*, San Mateo (CA, USA), 38-51.
- FANE, A. G. 1983. Factors affecting flux and rejection in ultrafiltration. *Journal Separ. Proc. Technol.*, **4** (1), 15-23.
- FLINN, J. E. 1970. Membrane Science and Technology, Industrial, Biological and Waste Treatment Processes. Plenum Press, New York.
- FREDENSLUND, A., GMEHLING, J. et RASMUSSEN, P. 1977. Vapor-Liquid Equilibria Using UNIFAC. A Group-Contribution Method. Elsevier Scientific Publish., New York.



- FREUND, P. et RIOS, G. M. 1992. Mécanismes de colmatage et performances comparées de quatre membranes d'alumine : cas de l'ultrafiltration de gélatine. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, **70** (April), 250-257.
- FUNAHASHI, K. I. 1989. On the approximate realization of continuous mappings by neural networks. *Neural Networks*, **2**, 183-192.
- FUTSELAAR, H., REITH, T. et RACZ, I. G. 1992. The transverse flow microfiltration module : a process technical and economical evaluation. *Récents Progrès en Génie des Procédés*, **6** (22), 239-244.
- GADDIS, J. L. 1992. Effects of pressure and crossflow velocity on ultrafiltration flux. *Chemical Engineering Communications*, **116**, 153-169.
- GARROTE, R. L., COUTAZ, V. R., SILVA, E. R. et BERTONE, R. A. 1994. Determining process conditions for chemical peeling of asparagus. *Lebensmittel Wissenschaft und Technologie*, **27** (1), 19-22.
- GERBAUDO, Y., BENNASAR, M. et DORNIER, M. 1993. Filtration tangentielle du vin de palme sur membranes minérales. *Récents Progrès en Génie des Procédés*, **7** (30), 303-308.
- GESAN, G. 1993. Microfiltration tangentielle de lactosérum doux prétraité : mécanismes et conduite opératoire. Thèse, Université de Rennes I.
- GESAN, G., MERIN, U., DAUFIN, G. et MAUGAS, J. J. 1991. Performance of an industrial microfiltration plant for defatting rennet whey. *International Conference on Inorganic Membranes*, 1-4 Juillet, Montpellier, 307-312.
- GILLOT, J. et GARCERA, D. 1984. Nouveaux médias filtrants céramiques pour microfiltration tangentielle et ultrafiltration. *6<sup>ème</sup> Congrès et Exposition de la Filtration et des Techniques Séparatives*, 2-3-4 Octobre, Paris, 161-172
- GIOVANNI, M. 1983. Response surface methodology and product optimization. *Food Technology*, **37** (11), 41-45.
- GLICKSMAN, M. et SAND, R. E. 1973. Gum arabic. Dans *Industrial Gums* (WHISTLER, R. L. et BEMILLER, J. N. Ed.), p. 197-254, Academic Press, New-York.
- GRATIUS, I. 1994. Analyse des refontes de sucre roux en vue de caractériser l'efficacité de la microfiltration tangentielle. DEA, Institut polytechnique de Toulouse.
- GROMKOVSKII, A. I. et KHAMMUD, F. 1991. Viscosity of factory sugar solutions (en russe). *Sakharnaya Svekla*, **6**, 48-51.
- GRONDIN, B., DEFAYE, G., CARALP, L. et VIDAL, C. 1993. Modélisation dynamique des réacteurs par réseaux de neurones. *Récents Progrès en Génie des Procédés*, **7** (29), 221-226.
- GUNST, R. F. et MASON, R. L. 1980. Stepwise selection methods. Dans *Regression Analysis and its Applications: a Data-Oriented Approach* (OWEN, D. B. Ed.), p. 278-286, Marcel Dekker, New York.
- GUZMAN-MALDONADO, H., PAREDES-LOPEZ, O. et DOMINGUEZ, J. 1993. Optimization of enzymatic procedure for the hydrolytic depolymerization of Amaranth starch by response surface method. *Lebensmittel Wissenschaft und Technologie*, **26** (1), 28-33.
- HANSENS, T. R., VAN NISPEN, J. G. M., KOERTS, K. et DE NIE, L. H. 1984. Ultrafiltration as an alternative for raw juice purification in the beet sugar industry. *Zuckerindustrie*, **109** (2), 152-156.

- HEBB, S. 1949. *The Organization Behaviour*. Wiley & Sons, New York. Cité par BOURRET *et al.* 1991.
- HENIKA, R. G. 1972. Simple and effective system for use with response surface methodology. *Cereal Science Today*, **17** (10), 309-314 et 334.
- HENIKA, R. G. 1982. Use of response-surface methodology in sensory evaluation. *Food Technology*, **36** (11), 96-101.
- HEYD, B. 1991. Contribution de l'automatique en métrologie et formulation sensorielle. Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires, Massy.
- HEYD, B. 1994. Le logiciel NEUREX: programmation et développements en cours. Rapport interne, Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires.
- HOYNAK, P. X. et BOLLENBACK, G. N. 1966. *This Is Liquid Sugar*. Refined Sirops & Sugars, CPC International, Yonkers (NY, USA).
- HUANG, B. et MUJUMDAR, A. S. 1993. Use of neural network to predict industrial dryer performance. *Drying Technology*, **11** (3), 525-541.
- IMESON, A. 1992. Exudate gums. Dans *Thickening and Gelling Agents for Food* (IMESON, A. P. Ed.), p. 66-73, Blackie Academic & Professional, Londres.
- IRIS 1988. Institut de Recherche de l'Industrie Sucrière: Méthodes d'Analyses. Editions SEP, Paris.
- ITOUA-GASSAYE, S. 1990. Etude de la rétention de constituants à caractères organoleptiques au cours de la filtration tangentielle du jus d'ananas. Thèse, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- JACOBS, R. A. 1988. Increased rates of convergence through learning rate adaptation. *Neural Networks*, **1**, 295-307.
- JAFFRIN, M. Y., GUPTA, B. B. et CHAIBI, A. 1993. Effect of physical parameters on the microfiltration of wine on a flat polymeric membrane. *Chemical Engineering and Processing*, **32**, 379-387.
- JIOKAP NONO, Y. 1992. Caractérisation de l'influence des paramètres physico-chimiques et hydrodynamiques sur l'efficacité de l'épuration bactérienne du lait par microfiltration tangentielle. DEA, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy.
- KEEFER, D. L. 1973. Simpat: self-bounding direct search method for optimization. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Develop.*, **12** (1), 92-99.
- KESSLER, H. G. 1988. Ultrafiltration - Umkehrosiose - Elektrodialyse. Dans *Lebensmittel und Bioverfahrenstechnik; Molkereitechnologie*, p. 69-111, Verlag A. Kessler, Freising (Allemagne).
- KOHONEN, T. 1988. An introduction to neural computing. *Neural Networks*, **1**, 3-16.
- KUO, K. P. et CHERYAN, M. 1983. Ultrafiltration of acid whey in a spiral-wound unit: effect of operating parameters on membrane fouling. *Journal of Food Science*, **48**, 1113-1118.
- LATRILLE, E., CORRIEU, G. et THIBAULT, J. 1992. Modélisation par réseaux de neurones; application à des fermentations lactiques batch. *Journée d'étude AFCET-GFGP*, Obernai.

- LE CUN, Y. 1986. Learning process in an assymetric threshold network. Dans *Disordered Systems and Biological Organizations* (BIENENSTOCK, E. *et al.* Ed.), NATO-ASI Series, Springer Verlag, Berlin. Cité par BOURRET *et al.* 1991.
- LEBERT, A. 1994. Optimisation non linéaire: principaux algorithmes. Cours, Ecole Nationale supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires, Département Génie Industriel Alimentaire, Massy.
- LEBERT, A. et RICHON, D. 1984. Infinite dilution activity coefficients of n-alcohols as a function of dextrin concentration in water-dextrin systems. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, **32**, 1156-1161.
- LIANG, H. et FLOROS, J. D. 1991. Multiresponse system optimization by a normalized function approach. *8th World Congress of Food Science and Technology*, 30 Sep.-4 Oct., Toronto (Canada).
- LIAO, T. W. et CHEN, L. J. 1994. A neural network approach for grinding processes: modelling and optimization. *International Journal of Machine Tools and Manufacture*, **34** (7), 919-937.
- LIBERGE, R. 1993. Etude du colmatage et modélisation du transfert de matière lors de la microfiltration tangentielle de levures sur membranes minérales. Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- LIBERGE, R., COLINARD, P., FESSIER, P. et RENON, H. 1994. Data and model for progressive fouling in crossflow microfiltration of yeast on three industrial membranes. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, **33** (5), 1310-1318.
- LINKO, P. et ZHU, Y. H. 1992. Neural network modelling for real-time variable estimation and prediction in the control of glucoamylase fermentation. *Process Biochemistry*, **27**, 275-283.
- LIPPMANN, R. P. 1987. An introduction to computing with neural nets. *IEEE ASSP Magazine*, April, 4-22.
- LOJKINE, M. H., FIELD, R. W. et HOWELL, J. A. 1992. Crossflow microfiltration of cell suspensions: a review of models with emphasis on particle size effects. *TransIChemE*, **70**, 149-164.
- LOZANO, Y., HEICH, O., BENNASAR, M. et TARODO DE LA FUENTE, B. 1986. Transformation des écarts de triage de kiwifruits par microfiltration sur membrane minérale. *Industries Agricoles et Alimentaires*, **103** (11), 1139-1148.
- MAFARD, P. et BELIARD, E. 1993. Génie Industriel Alimentaire. Tome II: Techniques Séparatives. Technique et Documentation Lavoisier, Paris.
- MALMBERG, R. et HOLM, S. 1988. Low-bacteria skim milk by microfiltration. *North European Food and Dairy Journal*, **1**, 75-78.
- MASSON, M. H. 1992. Contribution à l'élaboration d'une méthode de décision avec rejet par réseaux de neurones. Application au diagnostic de systèmes. Thèse, Université de Technologie de Compiègne.
- MAUBOIS, J. L. et BRULE, G. 1982. Utilisation de techniques à membranes pour la séparation, la purification et la fragmentation des protéines laitières. *Le Lait*, **62**, 484-510.
- MAUREL, A. 1993. Techniques séparatives à membrane: osmose inverse, nanofiltration, ultrafiltration, microfiltration tangentielle - considérations théoriques. *Les Techniques de l'Ingénieur*, **J 2** (790), 1-24.

- McCLELLAND, J. L. et RUMELHART, D. E. 1988. Explorations in Parallel Distributed Processing; a Handbook of Models, Programs and Exercises. FELDMAN, J. A., HAYES, P. J. et RUMELHART, D. E. Ed., MIT Press, Cambridge (MA, USA).
- McCULLOCH, W. et PITTS, W. 1943. A logical calculus of the ideas immanent in nervous activity. *Bulletin of Mathematical Biophysics*, **5**, 115-133. Cité par BOURRET *et al.* 1991.
- MIDOUX, N. 1985. Mécanique et Rhéologie des Fluides en Génie Chimique. Technique et Documentation, Lavoisier, Paris.
- MIETTON-PEUCHOT, M. 1992. Répartition des marchés en fonction des applications. *Séminaire Applications Industrielles des Techniques à Membrane*, 14-15 Octobre, Foulayronnes.
- MORGAN, S. L. et DEMING, S. N. 1974. Simplex optimization of analytical chemical methods. *Analytical Chemistry*, **46** (9), 1170-1181.
- MULDER, M. 1991. Basic Principles of Membrane Technology. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (Pays-Bas).
- MULLEN, K. et ENNIS, D. M. 1979. Rotatable designs in product development. *Food Technology*, **33** (7), 74-80.
- NAKAI, S. 1981. Comparison of optimization techniques for application to food product and process development. *Journal of Food Science*, **47**, 144-176.
- NELDER, J. A. et MEAD, R. 1965. A Simplex method for function minimization. *Computer Journal*, **7**, 308-313.
- NOVELECT 1993. Les Applications Innovantes des Techniques Membranaires dans l'Industrie. Réseau NOVELECT-EDF, Paris.
- OISHI, K., TOMINAGA, M., KAWATO, A. et IMAYASU, S. 1992. Analysis of the state characteristics of sake brewing with a neural network. *Journal of Fermentation and Bioengineering*, **73** (2), 153-158.
- OUSMAN, M. 1992. Etudes des transferts d'eau et de suspension d'amidon sur membranes minérales en fonction des diamètres de pores et des conditions opératoires. Thèse, Université Cheikh Anta Diop, Dakar, Sénégal.
- OUSMAN, M. 1993. Caractérisation des membranes MEMBRALOX par microscopie électronique à balayage. Communication personnelle.
- OUZIAUX, R. et PERRIER, J. 1978. Mécanique des Fluides Appliquée. Dunod Université, Paris.
- PADILLA-ZAKOUR, O. et McLELLAN, M. R. 1993. Optimization and modeling of apple juice cross-flow microfiltration with a ceramic membrane. *Journal of Food Science*, **58** (2), 369-374.
- PARKER, D. B. 1987. Optimal algorithms for adaptive networks: second order backpropagation, second order direct propagation and second order hebbian learning. *First International Conference on Neural Networks*, San Diego (CA, USA), 593-600.
- PERI, C., RIVA, M. et DECIO, P. 1988. Crossflow membrane filtration of wines : comparison of performance of ultrafiltration, microfiltration, and intermediate cut-off membranes. *American Journal of Enology and Viticulture*, **39** (2), 162-168.
- PILLAY, V. L., JENSON, V. G. et BUCKLEY, C. A. 1990. Operational path dependence of permeate flux in cross-flow microfiltration systems. *Vth World Filtration Congress*, Nice, Vol. 3, 213-217.

- PIOT, M., VACHOT, J. C., VEAUX, M., MAUBOIS, J. L. et BRINKMAN, G. E. 1987. Ecrémage et épuration bactérienne du lait entier cru par microfiltration sur membrane en flux tangentiel. *Technique Laitière & Marketing*, **1016**, 42-46.
- PLETT, E. A. 1989. The constant pressure difference method for microfiltration. *International Conference on Fouling and Cleaning in Food Processing*, Prien (Allemagne), 283-292.
- PORTE, C., DEBREUILLE, W. et DELACROIX, A. 1986. Le Simplex. Deuxième partie: méthodes dérivées. *L'actualité Chimique*, Juin-Juillet, 1-11.
- PUNIDADAS, P. 1990. Microfiltration tangentielle sur membrane minérale de produits sucrés. Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires, Massy.
- PUNIDADAS, P., DECLoux, M. et TRYSTRAM, G. 1990. Microfiltration tangentielle sur membrane minérale en céramique; application au traitement du sucre roux. *Industries Agricoles et Alimentaires*, **107** (7-8), 615-623.
- PUNIDADAS, P., DECLoux, M. et TRYSTRAM, G. 1991. Computer control of a crossflow microfiltration pilot plant. *Food Control*, **7**, 152-161.
- RENE, F. et DELPLACE, F. 1993. Modélisation de la résistance hydraulique en microfiltration tangentielle d'une suspension de levures. *Entropie*, **178**, 43-51.
- RENE, F. et MAINGONNAT, J. F. 1993. Microfiltration tangentielle de la bière; revue bibliographique. *Industries Alimentaires et Agricoles*, **110** (10), 721-729.
- RENOU, C. 1993. Application de la modélisation par réseaux de neurones à la microfiltration tangentielle de levures. DEA, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- ROCHA MIER, T. 1993. Influence des prétraitements et des conditions de séchage sur la couleur et l'arôme de la menthe (*Mentha spicata* Huds.) et du basilic (*Ocimum basilicum*). Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires, Massy.
- ROSEIRO, J. C., CONCEIÇÃO, A. C. et AMARAL-COLLAÇO, M. T. 1993. Membrane concentration of fungal cellulases. *Bioresource Technology*, **43** (2), 155-160.
- ROSENBLATT, F. 1958. The perceptron: a probabilistic model for information storage and organization in the brain. *Psychoanalytic Review*, **65**, 386-408. Cité par KOHONEN 1988.
- ROUSSEAU, A. et BERRECHID, S. 1991. Application de la microfiltration tangentielle sur membrane minérale en raffinerie de sucre de canne. Rapport interne, Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires, Massy.
- RUMELHART, D. et ZIPSNER, D. 1985. Feature discovering by competitive learning. *Cognitive Science*, **9**, 75-112. Cité par BOURRET *et al.* 1991.
- SAINT-DONAS, J., BHAT, N. et MAC AVOY, T. J. 1991. Neural net based model predictive control. *Int. J. Control*, **54** (6), 1453-1468.
- SCHNEIDER, F. 1979. Sugar Analysis: ICUMSA Methods. International Commission for Uniform Methods of Sugar Analysis, Peterborough (GB).
- SHORT, J. L. et SKELTON, R. 1991. Crossflow microfiltration in the food industry. Dans *Effective Industrial Membrane Processes* (TURNER, M. K. Ed.), p. 181-189, Elsevier Applied Science, Londres.
- SOLLA, S. A., LEVIN, E. et FLEISHER, M. 1988. Accelerated learning in layered neural networks. *Complex Systems*, **2**, 625-640.

- SONTAG, E. D. et SUSSMANN, H. J. 1989. Backpropagation can rise to spurious minima even for networks without hidden layers. *Complex Systems*, **3**, 91-106.
- SPENDLEY, W., HEXT, G. R. et HIMSWORTH, F. R. 1962. Sequential application of Simplex designs in optimisation and evolutionary operation. *Technometrics*, **4** (4), 441-461.
- STRATHMANN, H. 1992. Industrial utilization of membranes and membranes processes. *Récents Progrès en Génie des Procédés*, **6** (21), 17-26.
- SUBRAHMANYAM, M. B. 1989. An extension of the Simplex method to constrained nonlinear optimization. *Journal of Optimization Theory and Applications*, **62** (2), 311-319.
- SUREL, O. 1993. Lipides et microfiltration: contribution à la compréhension des mécanismes de transfert. Thèse, Ecole Nationale Supérieure Agronomique de Rennes.
- SZANIAWSKI, A. R. et SPENCER, H. G. 1991. Microfiltration of pectin solutions by a titanium dioxide membrane. *International Conference on Inorganic Membranes*, 1-4 Juillet, Montpellier, 243-248.
- TADDEI, C. 1986. Mécanismes influençant le transfert de matière lors de l'ultrafiltration de lactosérum. Thèse, Université Paul Sabatier, Toulouse.
- TANAKA, T., KAMIMURA, R., ITOH, K. et NAKANISHI, K. 1993. Factors affecting the performance of crossflow filtration of yeast cell suspension. *Biotechnology and Bioengineering*, **41** (6), 617-624.
- TARLETON, E. S. et WAKEMAN, R. J. 1993. Understanding flux decline in crossflow microfiltration. Part I: effects of particle and pore size. *Chemical Engineering Research and Design*, **71** (4), 399-410.
- TARLETON, E. S. et WAKEMAN, R. J. 1994. Understanding flux decline in crossflow microfiltration. Part II: effects of process parameters. *Chemical Engineering Research and Design*, **72** (3), 431-440.
- TARODO DE LA FUENTE, B., TEISSEDRE, P. L., FREUND, P. et BENNASAR, M. 1989a. Essais de nouvelles membranes minérales d'ultrafiltration pour l'industrie alimentaire. Partie 1 : application au lait écrémé et au caillé lactique. *Industries Alimentaires et Agricoles*, **106** (4), 287-292.
- TARODO DE LA FUENTE, B., TEISSEDRE, P. L., FREUND, P. et BENNASAR, M. 1989b. Essais de nouvelles membranes minérales d'ultrafiltration pour l'industrie alimentaire. Partie 2: application aux lactosérums doux et acide. Partie 3 : application aux moûts de pomme et de raisin. *Industries Alimentaires et Agricoles*, **106** (6), 479-489.
- THEMELIN, A. 1994. Optimisation des procédés combinés de déshydratation-imprégnation par immersion (dans des solutions concentrées) et de séchage par entraînement à l'air chaud. Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires, Massy.
- THOMPSON, M. L. et KRAMER, M. A. 1994. Modeling chemical processes using prior knowledge and neural networks. *AIChE Journal*, **40** (8), 1328-1340.
- UMEDA, T. 1969. Optimal design of an absorber-stripper system; application of the Complex method. *Ind. Eng. Chem. Process Design Develop.*, **8** (3), 308-317.
- VAN BOXTEL, A. J. B. 1991. Strategies For Optimal Control of Membrane Fouling. Reverse Osmosis of Cheese Whey: a Case Study. Ponsen and Looyen, Wageningen (Pays-Bas).

- VAN DER HORST, H. C., TIMMER, M. et PIERSMA, I. 1994. Cross-flow microfiltration of skim milk. *International Conference on Inorganic Membranes*, 10-14 Juillet, Worcester (MA, USA),
- VIGNESWARAN, S. et KIAT, W. Y. 1988. Detailed investigation of effects of operating parameters of ultrafiltration using laboratory-scale ultrafiltration unit. *Desalination*, **70**, 299-316.
- WIDROW, B. et LEHR, M. A. 1990. 30 years of adaptive neural networks : Perceptron, Madaline and Backpropagation. *Proceedings of the IEEE*, **78** (9), 1415-1442.
- WILKINSON, L., HILL, M. et VANG, E. 1992. SYSTAT; statistics, Version 5.2. SYSTAT, Inc., Evanston (IL, USA).
- WU, M. L., ZALL, R. R. et TZENG, W. C. 1990. Microfiltration and ultrafiltration comparison for apple juice clarification. *Journal of Food Science*, **55**, 1162-1163.
- ZALDIVAR, J. M., HERNANDEZ, H. et PANETSOS, F. 1992. Control of batch reactors using neural networks. *Chemical Engineering and Processing*, **31** (3), 173-180.
- ZURADA, J. M. 1992. Introduction to Artificial Neural Systems. West Publishing Co., St Paul (MN, USA).

# ANNEXE



ELEMENTS		SYMBOLE	
VANNES	De sectionnement		
	3 voies		
	De réglage		
	Type de commande	manuelle	T
		électrique	
		électropneumatique	
Purge	d'air		
	liquide		
Soupape			
POMPES	Volumétrique		
	Centrifuge	à vitesse de rotation constante	
		à vitesse de rotation variable	

CAPTEURS		SYMBOLE
TEMPERATURE	Tout type	
PRESSION	Manomètre relatif mécanique	
	Transmetteur de pression relative	
	Transmetteur de pression différentielle	
DEBIT	Rotamètre	
	Débitmètre électromagnétique	

Légende utilisée pour les schémas des installations pilote.