

# Modélisation mathématique du taux de coagulant dans une station de traitement d'eau

Mathematical modelling  
of optimal coagulant dose  
in water treatment plant

A. BAZER-BACHI<sup>1</sup>, E. PUECH-COSTE<sup>2</sup>, R. BEN AIM<sup>3</sup>, J. L. PROBST<sup>4</sup>

---

## RÉSUMÉ

Les auteurs, après une synthèse bibliographique sur la coagulation, présentent deux modèles mathématiques reliant la dose optimale d'un coagulant, le sulfate d'aluminium, à la qualité de l'eau brute.

Un premier modèle applicable aux eaux dont la turbidité est inférieure à 20 NTU tient compte de quatre variables caractéristiques de l'eau brute qui sont : la turbidité, la résistivité, la température, la teneur en matières organiques.

Le second modèle, utilisable pendant les périodes de crue, intègre un cinquième descripteur : la nature de la suspension minérale.

Des essais effectués sur l'usine de Clairfont, qui alimente la rive gauche de Toulouse, montrent que ces modèles sont parfaitement adaptés pour automatiser l'injection du coagulant.

*Mots clés : coagulation, modélisation, sulfate d'aluminium, turbidité, résistivité, température, matières organiques, titration colloïdale.*

## SUMMARY

When the source of supply of a water treatment plant has a streaming behavior, it is sometimes difficult to adjust correctly the coagulant dose by jar-testing alone.

Following this remark, the municipal water utilities of Toulouse city (France) has decided to conduct a study on the modelisation of coagulant dose as a function of the quality of raw water.

- 
1. Service des eaux de la Ville de Toulouse, Usine de Clairfont, RN 20, 31120 Porter/Garonne, France.
  2. Laboratoire des IMRCP, Université Paul Sabatier, 118, route de Narbonne, 31062 Toulouse Cedex, France.
  3. Laboratoire de Génie Chimique, UA CNRS Chemin de la loge, 31078 Toulouse Cedex, France.
  4. Institut de Géologie, 1, rue Blessig, 67084 Strasbourg Cedex, France.

This study started first by a bibliographic survey to find the main parameters which affect the flocculation mechanisms, followed by a hydrologic study of the upper Garonne river to characterize as well as possible its behavior.

This was followed by a study of the influence of certain parameters on the efficiency of coagulation by aluminium sulfate on synthetic waters having characteristics close to those of the Garonne river (BAZER-BACHI, 1986). This work showed the role of the turbidity, of the resistivity, of the temperature and of the nature of mineral suspension. It also indicated the non-linearity between the optimum coagulant dose and these parameters as well as the interactions between them.

These conclusions led us to use a second degree polynomial model, as :

$$Y = b_0 + \sum_{i=1}^k b_i X_i + \sum_{i=1}^k b_{ii} X_i^2 + \sum_{\substack{i=1 \\ j=2 \\ i \neq j}}^k b_{ij} X_i X_j$$

Data were collected from modified jar-test on water from the Garonne River, characterized by physico-chemical (turbidity, temperature, pH, resistivity, CEC, MES, colloid titration, organic matters) and chemical analyses (mineralisation). As the hydrological study showed that the nature of colloid suspension changed only during storm events, the modelisation was divided in two sub-groups :  
 - a « CALME » model, comprising four variables (turbidity, resistivity, temperature, organic matters), for low turbidity waters (below 20 NTU),  
 - a « CRUES » model, using a fifth parameter representative of the nature of suspension (the ratio between colloid titration and turbidity).

The « CALME » model, which fitted very well, showed the primordial influence of the temperature and organic matters, and then of the turbidity. Removal of resistivity was not advisable, as this parameter showed strong interactions with turbidity and organic matters (fig. 3, 4).

The « CRUES » model showed the primordial role of the turbidity followed by the temperature and then by organic matters. The two other parameters, less significant, should nevertheless be kept if a good quality of forecast is to be maintained with this model. It can be further improved once all the experimental domain has been investigated.

The very good results obtained in full-scale at the Clairfont plant, by adjusting the coagulant feed rate according to the forecast of our models, led us to implement a coagulation automate, in operation in 1989.

**Key-words :** coagulation, modelisation, aluminium sulfate, turbidity, resistivity, organic matters, colloid titration

## 1 - INTRODUCTION

Dans la majorité des stations de traitement d'eau destinée à la consommation, le jar-test reste l'outil le plus utilisé pour déterminer le taux optimum de coagulant. Cependant lorsque la qualité de l'eau brute se modifie rapidement, l'inertie de cette technique peut provoquer soit une détérioration de la qualité de l'eau produite soit une augmentation exagérée du taux de traitement.

Pour pallier ces inconvénients, le Service des Eaux de la Ville de Toulouse a mis en œuvre un programme, qui doit conduire à l'automatisation de l'étape de clarification de ses stations de traitement d'eau.

L'étude des articles publiés sur la coagulation par le sulfate d'aluminium montre que celle-ci met en œuvre des mécanismes fort complexes qui dépendent d'un nombre important de variables. Nous nous bornerons ici, à présenter dans leurs grandes lignes, les principaux axes de recherches dans ce domaine.

MATSON (en 1928) a été l'un des premiers à noter que les sels d'aluminium à certains pH pouvaient provoquer une inversion de la charge électrique des suspensions coagulées. Il suggère alors que ce sont les produits d'hydrolyse de l'aluminium qui sont responsables de ce phénomène. Les différentes étapes de cette hydrolyse ont depuis, intéressé de nombreux chercheurs. Il existe, en effet, de nombreuses espèces intermédiaires entre l'ion  $Al^{3+}$  hydraté et le trihydroxyde d'aluminium. Différentes structures de complexes polynucléaires ont ainsi été proposées par BROSSET *et al.* (1954), MATIJEVIC et STRYKER (1966), HAYDEN et RUBIN (1974), BOTTERO *et al.* (1980) (1982) ainsi que par KAPOL'SKII (1987).

La présence de ces espèces (ainsi que leur charge) dépend du pH du milieu réactionnel. De nombreux diagrammes de stabilité de l'aluminium en fonction du pH, permettant de localiser dans différentes zones du graphe le mode d'action du coagulant, ont successivement été proposés par PACKHAM (1963), STUMM et O'MELIA (1968), MC COOK et WEST (1978), RUBIN et BLOCKSIDGE (1979), AMIRTHARAJAH et MILLS (1982). Ainsi, selon la concentration en aluminium et le pH, l'action du coagulant peut s'effectuer soit par balayage (sweep-coagulation) vers les pH basiques, c'est-à-dire ennoiment des particules à l'intérieur de floc d'hydroxydes d'aluminium plus ou moins chargés, soit par adsorption-déstabilisation à pH plus bas, avec un risque de restabilisation de la suspension floculée à taux élevé.

Selon les travaux publiés, on peut observer des déplacements des frontières entre ces différentes zones. MILLER en 1925, le pressent déjà quand il suggère que ce sont les sels constituant le milieu aqueux et particulièrement les anions qui sont responsables du décalage des zones optimales du pH de coagulation. Depuis MARION et THOMAS (1946), STUMM et MORGAN (1962), PACKHAM (1965), HANNA et RUBIN (1970), de HEK *et al.* (1978), LETTERMAN *et al.* (1977, 1983), ont travaillé sur ce sujet. De leurs études, il ressort que le déplacement ou l'élargissement de la zone optimale du pH de coagulation est principalement lié à l'affinité de l'anion considéré envers les sels d'aluminium présents. Les cations semblent eux n'avoir que peu d'influence, si ce n'est à pH élevé (PACKHAM, 1965).

La température est un facteur limitant. En effet, en dessous d'un certain seuil, les rendements de clarification deviennent médiocres. Pour MOHTADI et RAO (1973) et KOWAL et MACKIEWICZ (1975), cette dégradation est due au pH optimum de coagulation qui croît lorsque la température s'abaisse. DOLEJS (1983, 1984), dans deux études consécutives sur des eaux chargées en matières humiques, montre lui, qu'une agitation plus intense après l'injection du coagulant peut, à faible température, améliorer le rendement d'élimination des colloïdes et que selon l'alcalinité du milieu l'effet de la température peut varier. L'action limitante de la température peut également être atténuée, comme le précisent MORRIS et KNOCKE (1984), en augmentant la concentration des matières en suspension. En 1986, BAZER-BACHI confirme le déplacement

du pH optimum de coagulation avec la température sur des eaux qui ont des caractéristiques physico-chimiques proches de celles de la Garonne. Il montre en outre, qu'à faible minéralisation, la dégradation du rendement peut être atténuée en augmentant le taux de sulfate d'aluminium, ce qui est impossible à forte minéralisation où l'abatement de la turbidité reste médiocre quel que soit le taux appliqué.

L'efficacité de la coagulation dépend également de la nature et de la concentration de la suspension minérale.

Différents critères ont été utilisés pour caractériser ce phénomène. LANGELIER et LUDWIG (1947) puis KIM *et al.* (1965) basent leurs études sur des mesures de capacité d'échange cationique ; STUMM et O'MELIA (1968) définissent des corrélations entre le taux de coagulant et la surface spécifique des suspensions et KAWAMURA (1976) constate le comportement différent du coagulant sur plusieurs types de suspensions floculées. Dans des travaux antérieurs, KAWAMURA *et al.* (1966, 1967) avaient déjà montré que le taux optimum de coagulant était corrélé à la charge colloïdale des suspensions (mesurée par titration colloïdale). BAZER-BACHI (1986) confirme également le rôle de la nature de la suspension minérale ainsi que de la turbidité.

Le pH optimal d'élimination des colloïdes organiques est généralement plus faible que celui nécessaire à l'élimination des colloïdes minéraux (HALL et PACKHAM, 1965 ; EDZWALD *et al.*, 1977 ; AWWA, 1979). La nature ainsi que la concentration des matières organiques doivent également être prises en compte (VIK *et al.*, 1985) et l'on peut noter comme pour l'effet de la température, que l'ajout de matières minérales permet d'améliorer le rendement d'élimination des substances organiques (EDWARD et AMIRTHARAJAH, 1985). HUNDT et O'MELIA (1988) montrent de leur côté qu'une augmentation de la concentration en calcium favorise l'élimination des matières humiques.

Le phénomène de la coagulation est donc complexe car dépendant de nombreux facteurs. A notre connaissance il n'existe que peu de modèles reliant le taux de coagulant à ces variables.

Ceux de KAWAMURA *et al.* (1967) et de VERMA et CHAUDHURY (1978) prennent en compte l'alcalinité et la titration colloïdale. Ils doivent cependant être modulés en fonction de la nature de la suspension colloïdale et de sa concentration. C'est également le cas des modèles de CAYRO et COYLE (1976) obtenus à partir du traitement statistique de données déjà existantes : ils doivent être adaptés en fonction des données climatiques. De même, les constantes des modèles de BRUECK et Mc MULLEN (1978), doivent être modifiées selon la température de l'eau. Ce type de relation prend en compte des descripteurs caractéristiques de l'eau brute mais aussi quelquefois des paramètres de contrôle (qualité de l'eau décantée ou filtrée). Cette technique qui consiste, d'une part à utiliser des données antérieures (non forcément optimales) et d'autre part des paramètres de contrôle, est d'ailleurs souvent utilisée. En 1981, GREGORY présente un tableau récapitulatif des variables prises en compte par différentes équipes pour modéliser le taux de traitement (tableau 1). Cinq descripteurs au maximum, sont utilisés. A la même époque, JANSSENS *et al.* (1981) proposent un algorithme intégrant divers paramètres tels que la turbidité, les doses de sulfate d'aluminium et de silice activée, la

température, la filtrabilité et l'alcalinité. Plus récemment, JACKSON et TOMLINSON (1986), même s'ils développent un modèle mathématique préfère toutefois utiliser un modèle physique (« floccmate »).

Tableau 1 Variables prises en compte pour déterminer des algorithmes de contrôle du taux de traitement (GREGORY, 1981).

Table 1 Coagulant dose controls algorithms.

Références	Coagulant	Turbidité	Couleur	Temp	pH	TAC	Autres
1958 NAUMAN	ALUM	X					
1968 LEWIS	ALUM	X	X			X	
1971 ROJANSKI <i>et al.</i>	ALUM	X			X	X	
1973 MANNING	ALUM	X		X	X	X	
1975 MELBOURNE <i>et al.</i>	ALUM	X	X	X	X	X	
1976 CHIRVAC <i>et al.</i>	ALUM	X					
1976 CAIRO <i>et al.</i>	ALUM	X		X	X		Conductivité
1978 BRUECK <i>et al.</i>	ALUM	X				X	
1978 MUIRA <i>et al.</i>	ALUM/PAC	X		X	X	X	
1980 OVERATH <i>et al.</i>	Sulfate ferrique	X	X		X	X	Oxydabilité M. organiques

En France, les études sont peu nombreuses. A notre connaissance, seuls COLIN *et al.* (1986) et BRODARD *et al.* (1986), abordent le sujet. Les premiers, à partir d'une analyse des correspondances, dégagent des paramètres physico-chimiques représentant l'aptitude d'une eau à la clarification et mettent en évidence l'efficacité du couplage WAC-OZONE. Quant aux seconds, ils proposent un modèle stochastique qui a pour objectif d'être une aide à la décision pour le chef d'usine.

Nous avons pour notre part, procédé à la collecte systématique de données relatives au traitement d'eaux brutes par le sulfate d'aluminium afin de relier par un modèle mathématique le taux optimum de coagulant aux variables caractéristiques de l'eau de la Garonne. Pour que cette modélisation soit la plus fiable possible, nous nous sommes d'abord penchés sur certaines techniques analytiques comme les mesures de titration colloïdale ou de capacité d'échange cationique mais aussi et surtout sur la reproductibilité de nos essais de floculation sur jar-test.

## 2 - MATÉRIEL ET MÉTHODES

Pour acquérir les données, des essais de floculation ont été lancés chaque fois que les caractéristiques de l'eau de la Garonne se modifiaient. Chacun de ces essais a été complété par des analyses physico-chimiques (turbidité, température, résistivité, pH, CEC, MES, titration colloïdale, matières organiques) et chimiques (minéralisation).

Le sulfate d'aluminium (SA) est le principal coagulant utilisé dans les stations du Service des Eaux de la Ville de Toulouse. Livré sous forme aqueuse, le coagulant contient 625 g/l de produit pur  $Al_2(SO_4)_3 \cdot 14,3 H_2O$ . Les résultats sont en produit pur.

Les essais de floculation ont été réalisés sur jar-test Hydrocure FLH6. Tous les résultats étant liés à l'emploi de cet appareil, nous lui avons tout d'abord apporté quelques modifications afin de le fiabiliser en augmentant la répétabilité de ses résultats :

– d'une part, la configuration des béciers et des mobiles d'agitation a été modifiée selon les spécifications d'ANDREU-VILLEGAS *et al.*, (1976). Ceci, afin de connaître la puissance dissipée en fonction de la vitesse de rotation des pales,

– d'autre part, chaque bécier comprenant des chicanes a été muni d'une prise d'échantillon fixe permettant de prélever 300 ml de surageant.

Les mesures de titration colloïdale (TC) ont été effectuées selon un protocole déjà décrit par certains d'entre nous (BAZER-BACHI *et al.*, 1985). La méthode par indicateur coloré a été la technique la plus souvent utilisée.

La détermination de la capacité d'échange cationique (CEC) des suspensions a également été décrite antérieurement (BAZER-BACHI, 1986). Rappelons, simplement, que la technique employée consiste à établir l'isotherme d'adsorption du bleu de méthylène sur l'échantillon (l'eau brute) : cette isotherme présente un palier qui permet de déterminer la concentration maximale adsorbable.

Parmi les nombreuses techniques de dosage global des matières organiques, la spectroscopie ultraviolette à 254 nm a été choisie. Les mesures, après filtration sur membrane millipore 0,45  $\mu m$ , sont effectuées dans des cuves de 5 cm. Les résultats sont ramenés à 1 m de parcours optique.

La turbidité, qui peut varier dans de très fortes proportions dans les eaux de la Garonne, a été mesurée à l'aide d'un turbidimètre HACH 2100 A et la résistivité sur un conductimètre TACUSSEL modèle CD 810.

### 3 - RÉSULTATS ET DISCUSSION

#### 3.1 Introduction

Le but final de cette étude étant l'automatisation de l'étape de clarification des stations de traitement d'eau potable de la Ville de Toulouse, le modèle mathématique devait répondre à deux caractéristiques essentielles :

- être le plus simple possible,
- faire appel aux descripteurs les plus informatifs.

Il fallait pour cela, tout d'abord, adapter les informations bibliographiques, parfois contradictoires, aux caractéristiques particulières de l'eau de la Garonne.

Dans ce but, nous avons d'une part entrepris une étude hydrologique de la Garonne supérieure (PROBST *et al.*, 1983, 1986) et d'autre part estimé l'influence de certains paramètres sur le taux de coagulant. Cette dernière étude a été menée dans un domaine choisi à partir des caractéristiques propres à l'eau de la Garonne (BAZER-BACHI, 1986).

### 3.1.1 Choix des paramètres

L'étude hydrologique a permis d'une part, de caractériser les matériaux transportés par la Garonne (Illites en étiage, Smectites et/ou Illites et Chlorites en période de crues) et d'autre part, au travers d'une analyse factorielle en composantes principales (sur 140 échantillons caractérisés par 11 variables et 3 facteurs), de dégager 6 groupes de variables représentatifs des variations de la qualité de l'eau de la Garonne (BAZER-BACHI, 1986). Ces paramètres sont : la turbidité (ou MES), la résistivité (ou TAC ou TH), la température, les matières organiques, la capacité d'échange cationique des suspensions, le pH.

L'influence de ces variables sur la coagulation devait ensuite être démontrée. Pour rester maître des paramètres, cette recherche s'est effectuée en eaux synthétiques. Hormis les matières organiques qui n'ont pu être synthétisées, l'influence de l'ensemble des autres paramètres a été démontrée (BAZER-BACHI, 1986).

Six paramètres, donc dans l'absolu, devaient être retenus.

En réalité, cinq d'entre eux ont été conservés pour la modélisation. Le sixième, c'est-à-dire le pH, a été abandonné. Ce paramètre a été considéré comme une constante, ce qui nécessite quelques explications.

Cela est réel en périodes de crues où la variation de pH reste minime (pH inférieur à 0,2).

En période d'étiage, il peut, par contre varier dans des proportions non négligeables (pH 8,0 à pH 9,0) lors de journées ensoleillées. Sauf à pH élevé (supérieur à 8,6/8,7), il n'a jamais été observé de variations significatives du rendement des chaînes de clarification de l'usine de traitement d'eau.

La qualité des eaux brutes, en période de basses eaux, ne nécessite généralement que de faibles taux de coagulant. Le pH de l'eau floculée ne s'abaisse donc que modérément et croît jusqu'à atteindre des valeurs proches de pH 8,0, où il influe sur l'efficacité de la coagulation. Cependant, lorsqu'il atteint de telles valeurs, on observe une solubilisation telle de l'aluminium, que l'on dépasse les normes de potabilité. Le seuil se situant autour d'un pH de floculation de 7,6/7,7, il est alors impératif d'abaisser artificiellement le pH en dessous de cette valeur. C'est ce qui est fait en augmentant (au-delà du taux optimum) la dose de coagulant. On retombe alors dans une zone de pH optimal.

C'est donc pour des critères de potabilité, que ce paramètre a été considéré comme une constante. Dans l'absolu, il faudrait cependant, en tenir compte.

Outre le choix des descripteurs, il fallait être capable de les mesurer et en particulier quantifier la nature de la suspension minérale. Des études antérieures (BAZER-BACHI *et al.*, 1985), avaient montré qu'un paramètre, la

titration colloïdale (TC), pouvait jouer ce rôle. Cependant, la TC étant proportionnelle à la quantité de MES, une redondance entre titration colloïdale et turbidité (Tu) était possible. En effet une mesure de titration colloïdale peut donner, sur deux suspensions fondamentalement différentes, des résultats identiques uniquement parce que la quantité de MES est beaucoup plus importante dans un cas que dans l'autre. Pour contourner cet inconvénient, un paramètre, appelé  $\Delta$ , rapport entre la titration colloïdale et la turbidité, a été adopté. Ce descripteur, qui varie entre 0,5 et 8,5 pour les eaux de la Garonne, est, en fait, une mesure de CEC.

### 3.1.2 Choix du modèle

L'étude du graphe (fig. 1) représentant le taux optimum de coagulant en fonction de la turbidité de l'eau brute montre que la corrélation, (non linéaire) bien qu'importante n'est pas suffisante pour décrire le phénomène (à turbidité constante le taux optimum peut doubler).

L'étude en eaux synthétiques a d'autre part laissé entrevoir l'existence d'interaction entre paramètres (celle entre la résistivité et la température, par exemple).

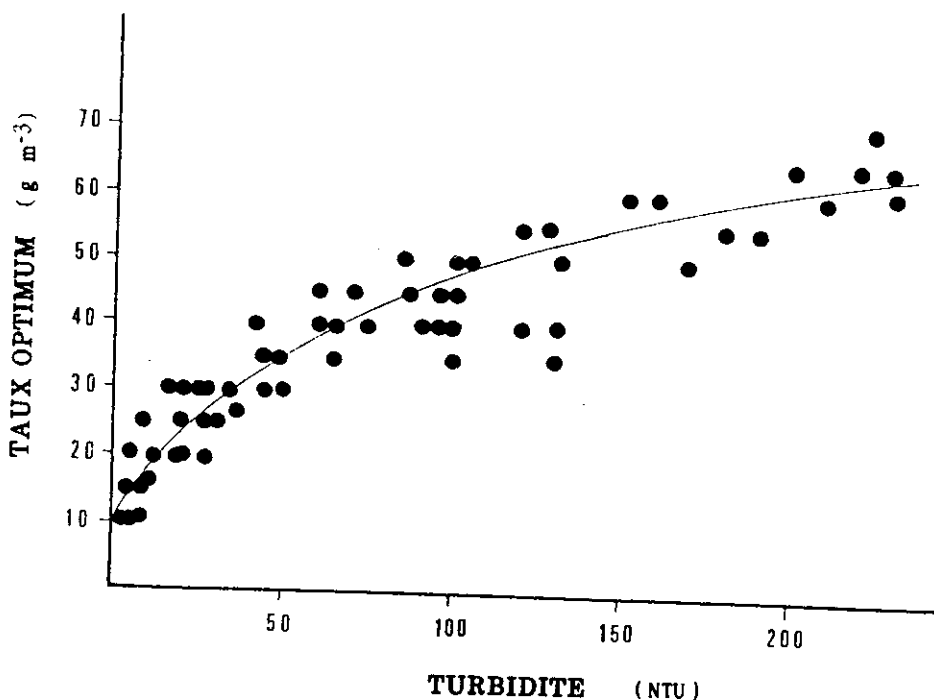


Figure 1 Variation du taux optimum de SA en fonction de la turbidité de l'eau brute.

*Optimal dose of aluminium sulfate versus raw water turbidity.*



Le choix s'est donc porté sur un modèle polynomial de degré 2 de la forme :

$$Y = b_0 + \sum_{i=1}^k b_i X_i + \sum_{i=1}^k b_{ii} X_i^2 + \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^k b_{ij} X_i X_j$$

Y : réponse du modèle

$b_i$  : coefficients du modèle

$X_i$  : variables du modèle

Les variables  $X_i$  sont réduites, c'est-à-dire adimensionnelles et de faible amplitude (elles varient entre  $-1$  et  $+1$ ). Ce choix de codage permet de comparer directement l'influence des descripteurs sur la réponse.

La transformation d'une variable réelle  $U_i$ , en variable codée  $X_i$ , s'obtient à partir de la relation suivante :

$$X_i = \frac{U_i - U_i^0}{\Delta U}$$

Si  $U_{sup}$  et  $U_{inf}$  représentent respectivement les limites supérieures et inférieures de variation d'un descripteur alors :

$$U_i^0 = \frac{U_{sup} + U_{inf}}{2} \quad \text{et} \quad \Delta U = \frac{U_{sup} - U_{inf}}{2}$$

$U_i^0$  représente la variable réelle au centre du domaine expérimental et  $\Delta U$ , l'écart maximal.

Les coefficients du modèle sont calculés par la loi des moindres carrés, à partir d'un logiciel « NEMROD » mis au point par le laboratoire de prospective réactionnelle et d'analyse de l'information de l'Université d'Aix-Marseille.

La qualité de la prévision sera testée par trois critères :

- l'écart-type de l'estimation sur la réponse ( $\sigma_T$ ),
- le coefficient de régression multiple ajusté au carré ( $R^2A$ ),
- les courbes des résidus permettant de visualiser l'écart entre le taux expérimental et le taux calculé à partir du modèle postulé et ceci pour chacun des échantillons.

Lorsque l'étude hydrologique de la Garonne supérieure a été réalisée, nous avons observé que les eaux peu turbides contenaient principalement des illites, alors qu'en périodes de crues, la nature des argiles en suspension se diversifiait (smectites, illites, chlorites).

La nature de la suspension colloïdale étant donc une constante pour les eaux peu turbides, nous avons décidé de développer deux modèles :

- pour les eaux peu turbides (inférieures à 20 NTU), un modèle « CALME » pour lequel le taux optimum ne comprend que quatre descripteurs ( $\Delta$  est une constante) ;
- pour les eaux fortement chargées (turbidité supérieure à 20 NTU), un modèle « CRUES » où interviennent les cinq descripteurs.

### 3.2 Modèle CALME

Rappelons que les descripteurs retenus dans cette modélisation sont les suivants :

- la turbidité (Tu),
- la résistivité ( $\rho$ ),
- la température (T),
- la teneur en matières organiques (MO).

Pour ce modèle, 113 échantillons recueillis entre 1984 et 1987, ont été utilisés. Le tableau 2 présente le domaine de variation des variables réelles.

**Tableau 2** Modèle « CALME » – Répartition statistique des données dans le domaine expérimental étudié.

*Table 2* « CALME » model – Statistical repartition of data.

Variables	Moyenne	E. Type	Mini	Maxi	Centre
Turbidité (NTU)	8,5	5,2	1,8	24	12,9
Résistivité ( $\Omega$ cm à 20 °C)	5 080	880	3 660	7 490	5 575
Température (°C)	14,4	4,2	7,8	23,6	15,7
M. Organiques ( $m^{-1}$ )	4,4	1,2	2,5	8,0	5,25
Taux Optimum ( $G.M^{-3}$ )	15,9	5,2	9,0	35	22

Le calcul a conduit au modèle suivant (exprimé en variables réduites) :

$$\begin{aligned} \text{TAUX} = & 15 + 3,6 \text{ Tu} - 0,4 \rho - 4,8 \text{ T} + 4,2 \text{ MO} \\ & + 3,2 \text{ Tu}^2 + 1,9 \rho^2 + 4,6 \text{ T}^2 + 3,4 \text{ MO}^2 \\ & - 3,2 \text{ Tu} \cdot \rho - 0,5 \text{ Tu} \cdot \text{T} - 4,4 \text{ Tu} \cdot \text{MO} \\ & - 0,01 \rho \cdot \text{T} + 3,1 \rho \cdot \text{MO} - 0,05 \text{ T} \cdot \text{MO} \end{aligned}$$

où

$$\sigma_T = 1,22$$

$$R^2A = 0,944$$

Aussi bien l'écart-type que le coefficient de régression montrent que ce modèle est d'excellente qualité. Ceci est confirmé par la courbe des résidus (fig. 2). En effet seuls deux échantillons s'écartent de plus de 3 g/m<sup>3</sup> du taux expérimental (de plus en surdosage, ce qui est un moindre mal) soit seulement 1,8 % des échantillons et 8 points de plus de 2 g/m<sup>3</sup> soit 7 % des données.

A titre d'exemple, le tableau 3 montre le taux optimum de SA calculé à partir du modèle lorsqu'une variable balaye le domaine expérimental, les autres étant au centre.

La valeur de 14,6 g/m<sup>3</sup>, par exemple, correspond à une eau ayant les caractéristiques suivantes :

- Tu = 1,8 NTU (X1 = -1)
- ρ = 5 575 Ω.cm (X2 = 0)
- T = 15,7 °C (X3 = 0)
- MO = 5,2 m<sup>-1</sup> (X4 = 0)

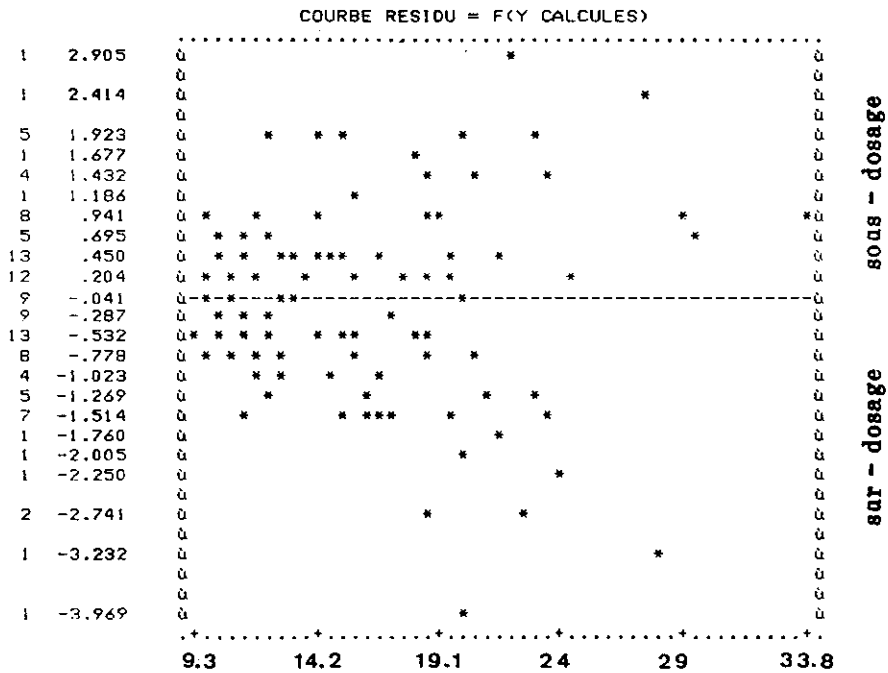


Figure 2 Courbe des résidus (taux expérimental – taux calculé) en fonction du taux calculé à partir du modèle « CALME ».

*Residue curves (experimental dose – calculated dose) versus calculated dose (« CALME » model).*

Tableau 3 Evolution du taux optimum de coagulant (g.m<sup>-3</sup>) en fonction de la position des descripteurs dans le domaine expérimental (modèle « CALME »).

Table 3 *Optimal coagulant dose (g.m<sup>-3</sup>) evolution versus variables position in the experimental domain (« CALME » model).*

	TU	R	T	MO
-1	14,6	17,3	24,4	14,2
0	15	15	15	15
+1	21,8	16,5	14,8	22,6

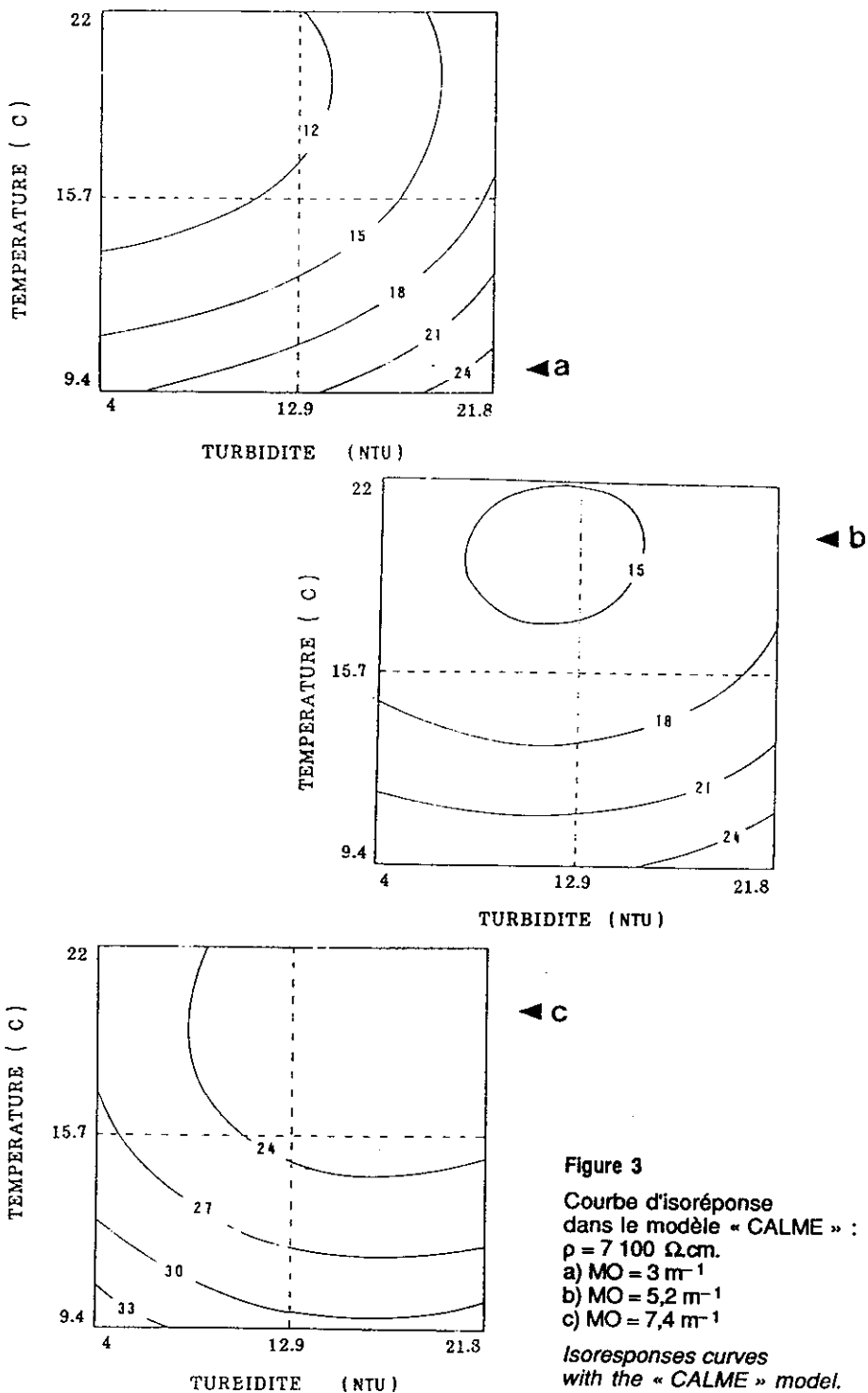


Figure 3

Courbe d'isoréponse  
dans le modèle « CALME » :

$\rho = 7\,100 \Omega \cdot \text{cm}$ .

a)  $MO = 3 \text{ m}^{-1}$

b)  $MO = 5,2 \text{ m}^{-1}$

c)  $MO = 7,4 \text{ m}^{-1}$

Isoréponses curves  
with the « CALME » model.

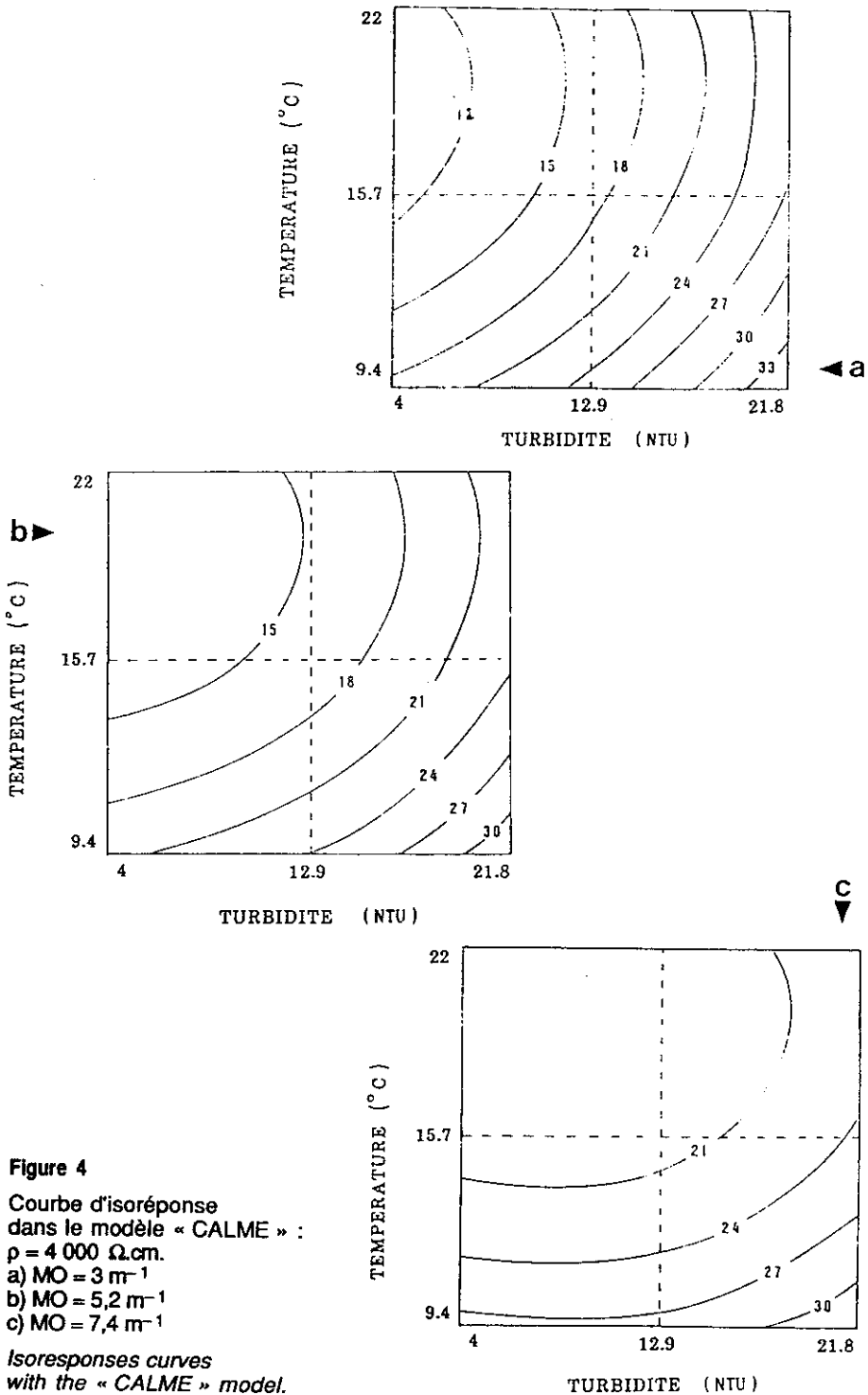


Figure 4

Courbe d'isoreponse dans le modèle « CALME » :

$\rho = 4\ 000\ \Omega.cm.$

a)  $MO = 3\ m^{-1}$

b)  $MO = 5,2\ m^{-1}$

c)  $MO = 7,4\ m^{-1}$

*Isoresponses curves with the « CALME » model.*

Dans ces cas bien précis, le taux de coagulant croît avec la turbidité et les matières organiques et décroît avec la température. Il passe par un minimum près du centre avec la résistivité.

Cependant dans le cas général, l'influence d'un facteur ne peut pas s'interpréter aussi facilement puisqu'il intervient non seulement de manière linéaire et/ou quadratique mais aussi, dans certains cas, par son interaction avec un ou plusieurs autres facteurs.

La complexité de la coagulation est représentée clairement si on utilise la représentation par courbes d'isoreponse (fig. 3 a, b, c). Dans cet exemple, les courbes représentent le taux de traitement optimum dans le plan turbidité-température, les deux autres variables (résistivité et matières organiques) étant fixées.

Ainsi à faible minéralisation ( $\rho = 7\ 100\ \Omega\cdot\text{cm}$ ) le taux croît lorsque la température s'abaisse. L'influence de la turbidité, elle, dépend du taux de matières organiques.

– A faible teneur en MO ( $3\ \text{m}^{-1}$ ), le taux croît avec la turbidité.

– A moyenne teneur ( $5,2\ \text{m}^{-1}$ ), le taux est pratiquement constant quelle que soit la turbidité.

– Lorsque la teneur en MO est élevée ( $7,4\ \text{m}^{-1}$ ), le taux décroît lorsque la turbidité augmente. Une similitude apparaît ici, avec les travaux d'EDWARD et AMIRTHARAJAH (1985) dont il ressort que le rendement d'élimination des colloïdes organiques peut être amélioré par un ajout de matières minérales.

On peut remarquer que pour une résistivité de  $4\ 000\ \Omega\cdot\text{cm}$ , cette inversion du taux n'apparaît pas (fig. 4 a, b, c). Dans ce cas l'influence des MO reste marquée et l'on s'aperçoit que le poids de la turbidité est plus fort sur le taux qu'à  $7\ 100\ \Omega\cdot\text{cm}$ .

Le descripteur le moins influent sur la réponse semble être la résistivité de l'eau. Cette variable a été éliminée et l'effet de cette omission sur la qualité de la précision du modèle a été observée.

$$\begin{aligned} \text{TAUX} = & 15,4 + 3,9 Tu - 5,2 T + 4,1 MO \\ & + 2,0 Tu^2 + 4,9 T^2 + 2,0 MO^2 \\ & - 1,2 Tu.T - 1,8 Tu.MO + 0,5 T.MO \end{aligned}$$

avec

$$\sigma_T = 1,27$$

$$R^2A = 0,939$$

L'analyse de la variance montre que le modèle reste tout à fait acceptable. Cependant le traitement des résidus nous a montré que le nombre de points pour lesquels le taux calculé s'écarte de plus de  $3\ \text{g}/\text{m}^3$  du taux expérimental double.

La résistivité apporte donc un léger mieux dans l'estimation du taux optimum. C'est certainement dû au poids de l'interaction entre ce paramètre et la turbidité ou les MO. Nous avons vu, plus haut, (fig. 3 et 4) de quelle manière la résistivité pouvait intervenir sur le taux optimum.

### 3.3 Modèle CRUES

Dans cette modélisation, un cinquième descripteur appelé  $\Delta$ , a été retenu. Rappelons que celui-ci permet de différencier la nature des argiles en suspension.

La régression multiple a été effectuée sur 98 échantillons appartenant au domaine expérimental reporté dans le tableau 4.

Tableau 4 Modèle « CRUES » – Répartition statistique des données dans le domaine expérimental étudié.

Table 4 « CRUES » model – Statistical repartition of data.

Variables	Moyenne	E. Type	Mini	Maxi	Centre
Turbidité (NTU)	94	78,8	20	480	250
Résistivité ( $\Omega$ cm à 20 °C)	5 010	1 070	3 430	8 110	5 770
Température (°C)	12,2	3,3	6,4	21	13,7
M. Organiques ( $m^{-1}$ )	7,6	3,3	2,2	16,3	9,25
TC/TU	4,4	1,4	0,6	8,2	4,4
Taux Optimum ( $G.M^{-3}$ )	40	14,9	18	90	54

Le modèle obtenu est le suivant (les variables sont toujours sous forme réduite) :

$$\begin{aligned}
 \text{TAUX} = & 66,6 + 40,1 Tu + 0,5 \rho - 17,2 T - 1,2 MO + 4,7 \Delta \\
 & - 3,5 Tu^2 + 1,2 \rho^2 + 0,9 T^2 - 8,4 MO^2 + 3,7 \Delta^2 \\
 & + 5,3 Tu.\rho - 8,6 Tu.T + 1,0 Tu.MO + 1,9 Tu.\Delta \\
 & - 2,0 \rho.T - 9,1 \rho.MO + 5,7 \rho.\Delta \\
 & - 6,2 T.MO + 1,2 T.\Delta + 6,0 MO.\Delta
 \end{aligned}$$

avec

$$\sigma_T = 2,19$$

$$R^2A = 0,978$$

L'analyse de la variance montre ici aussi que le modèle postulé est d'excellente qualité, car la valeur de l'écart-type de l'estimation du taux est très faible au vu du large domaine expérimental (la turbidité par exemple varie entre 20 et 480 NTU).

La figure 5 montre que seuls deux points s'écartent de plus de 4 g/m<sup>3</sup> du taux calculé par le modèle et seulement 13 % des points de plus de 3 g/m<sup>3</sup>. Sur cette figure, la dispersion des points semble plus importante vers la gauche. Ceci est certainement dû à la proportion plus importante d'échantillons pour lesquels la turbidité est en deçà du centre du domaine expérimental (250 NTU).

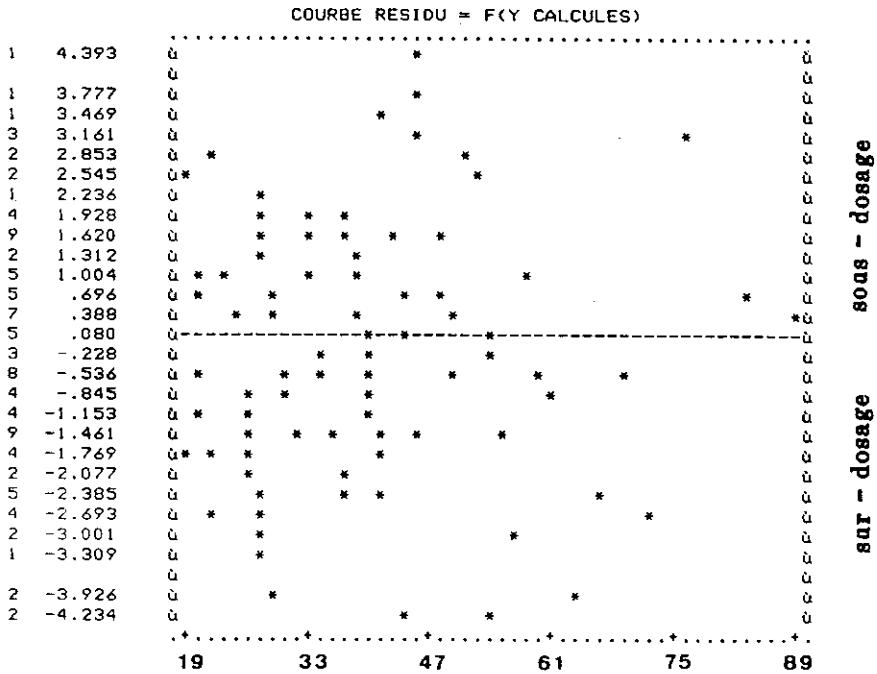


Figure 5 Courbe des résidus (taux expérimental – taux calculé) en fonction du taux calculé à partir du modèle « CRUES ».

*Residue curves (experimental dose – calculated dose) versus calculated dose (« CRUES » model).*

Comme pour le modèle « CALME », nous avons reporté (tableau 5), l'évolution du taux lorsqu'un descripteur parcourt le domaine expérimental alors que les autres sont maintenus au centre de ce domaine.

Tableau 5 Evolution du taux optimum de coagulant (g.m<sup>-3</sup>) en fonction de la position des descripteurs dans le domaine expérimental (modèle « CRUES »).

Table 5 Optimal coagulant dose evolution versus variables position in the experimental domain (« CRUES » model).

	TU	R	T	MO	Δ
-1	23	67,3	84,7	70,6	65,6
0	66,6	66,6	66,6	66,6	66,6
+1	103	68,3	50,3	45,8	75

Rappelons qu'au centre du domaine expérimental, une eau a les caractéristiques suivantes :

Tu = 250 NTU

ρ = 5 770 Ω.cm



$$T = 13,7 \text{ }^{\circ}\text{C}$$

$$MO = 9,2 \text{ m}^{-1}$$

$$\Delta = 4,4$$

La très forte influence de la turbidité sur le taux optimum peut s'expliquer en partie par son très large domaine de variation. Par contre la résistivité, d'abord, puis la nature de la suspension ensuite semblent avoir moins d'influence sur la réponse, bien que certains termes d'interaction intégrant ces paramètres ne soient pas négligeables.

Pourtant deux modèles ont été testés dans lesquels l'un de ces deux paramètres est successivement supprimé.

#### • Elimination de la résistivité

Le modèle obtenu est le suivant :

$$\begin{aligned} \text{TAUX} = & 65,9 + 39,9 Tu - 18,8 T - 1,6 MO + 2,8 \Delta \\ & - 0,04 Tu^2 + 0,95 T^2 - 5 MO^2 + 4,6 \Delta^2 \\ & - 10,4 Tu.T - 6,3 Tu.MO - 1,1 Tu.\Delta \\ & - 8,8 T.MO + 5 T.\Delta + 4,7 MO.\Delta \end{aligned}$$

avec

$$\sigma_T = 2,24$$

$$R^2A = 0,977$$

L'analyse de la variance montre que ce modèle est presque comparable au modèle global, cependant l'analyse des résidus nous a montré que 24 % des points s'écartent de plus de 3 g/m<sup>3</sup> du taux expérimental contre 13 % pour le modèle global.

#### • Elimination de $\Delta$

Le modèle obtenu est le suivant :

$$\begin{aligned} \text{TAUX} = & 65,6 + 39 Tu - 2,1 p - 15 T - 2,1 MO \\ & - 3,6 Tu^2 - 1,1 p^2 + 2 T^2 - 5,3 MO^2 \\ & + 4,3 Tu.p - 6,3 Tu.T - 0,4 Tu.MO \\ & - 2,5 p.T - 11,4 p.MO - 4,3 T.MO \end{aligned}$$

avec

$$\sigma_T = 2,29$$

$$R^2A = 0,976$$

Ici, le modèle, bien que sa qualité reste acceptable, conduit à une analyse des résidus où 20 % des points s'écartent de plus de 3 g/m<sup>3</sup> du taux optimum.

Pour réduire le nombre de descripteurs introduits, il serait donc préférable d'éliminer  $\Delta$  plutôt que la résistivité. L'importance de ce facteur s'explique sans doute par les fortes interactions qui existent entre ce paramètre avec la turbidité ou la teneur en matières organiques.

L'utilisation des cinq variables permet toutefois d'avoir un modèle de qualité supérieure.

### 3.4 Utilisation des modèles

Depuis plusieurs années, ces modèles sont mis à contribution à l'usine de Clairfont qui distribue l'eau sur la rive gauche de Toulouse. Ainsi, à partir de mesures sur l'eau brute, nous avons ajusté, au jour le jour, la dose de coagulant selon les valeurs préconisées par nos modèles : nous n'avons observé aucune anomalie sur le rendement de la chaîne de clarification. Ce contrôle plus rigoureux du taux de coagulant a, au contraire, permis d'améliorer la qualité de l'eau produite et de réduire les coûts de traitement. Ainsi, lorsque l'on compare les bilans des consommations annuelles de coagulant, on s'aperçoit (*fig. 6*) que le taux moyen de coagulant a baissé de près de  $5 \text{ g/m}^3$  entre 1983 et 1987. Ceci a également eu pour effet de réduire la consommation en soude (nécessaire à l'ajustement du pH en fin de traitement) et d'augmenter la durée de vie des filtres (le nombre de lavages par an est passé de 1 100 à 820 durant la même période).

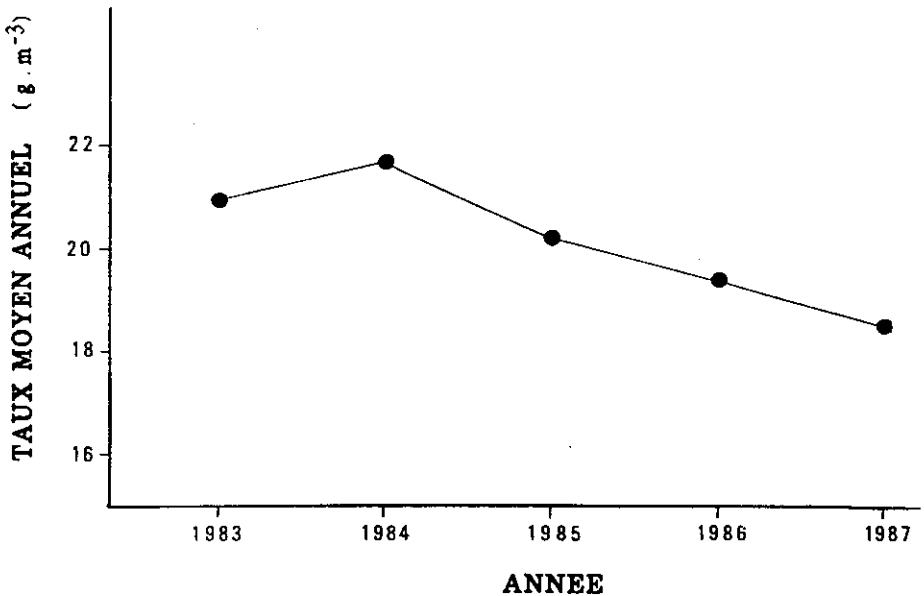


Figure 6 Evolution du taux moyen annuel de sulfate d'aluminium sur l'usine de Clairfont (rive gauche de Toulouse).

*Mean annual dose of aluminium sulfate at the Clairfont plant which supply the left bank in Toulouse (France).*

## 4 - CONCLUSIONS

Les deux modèles descriptifs présentés, développés à partir d'essais de floculation sur l'eau de la Garonne, sont très intéressants puisque pour chaque échantillon testé, le taux calculé est très proche du taux expérimental. Cependant l'intérêt de telles relations ne peut être que dans leur caractère prévisionnel et dans leur adaptation en grandeur nature.

Si le modèle « CALME » semble tout à fait adapté aux variations possibles de la qualité des eaux brutes, le modèle « CRUES » pourra certainement être amélioré lorsque certaines zones du domaine expérimental auront été testées. Nous n'avons pas d'informations par exemple, sur le comportement du sulfate d'aluminium vis-à-vis d'eaux faiblement minéralisées mais chargées en matières organiques ou d'eau chargées en matières organiques contenant des Illites (faible CEC). Ces deux configurations semblent peu probables au vu de notre étude hydrologique mais tous les types d'eau doivent être traités correctement.

L'adaptation de cette modélisation sur l'usine de Clairfont est encourageante, comme le montre l'évolution du taux moyen annuel ces dernières années. La mise en service d'un automate coagulation en 1989 confirmera certainement cette tendance.

En outre, pour rendre nos chaînes de clarification autonomes toute l'année, la modélisation d'un autre coagulant, le WAC, (qui remplace le SA lorsque la température de l'eau brute est inférieure à 9 °C) est quasiment achevée.

Cette modélisation, n'est bien entendu, pas universelle. Cependant, son utilisation sur des eaux aux caractéristiques proches de celles de la Garonne, pourrait être envisagée. De même, sa forme avec quelques modifications, (pour tenir compte de l'invariabilité de certains paramètres ou des variations plus larges de pH) devrait inspirer bon nombre de traiteurs d'eau.

## REMERCIEMENTS

Les auteurs tiennent à remercier Monsieur MATHIEU Didier, du laboratoire de prospective réactionnelle et de l'analyse de l'information (IUT d'Informatique d'Aix-en-Provence) ainsi que la direction du Service des Eaux de la Ville de Toulouse).

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- AMIRTHARAJAH A., MILLS K.M., 1982. Rapid-mix design for mechanism of alum coagulation. *J. Am. Water Works Ass.*, 74 (4) : 210-216.
- AWWA – COMMITTEE REPORT, 1979. Organic removal by coagulation : a review and research needs. *J. Am. Water Works Ass.*, 71 (10) : 588-603.
- ANDREU-VILLEGAS R., LETTERMAN R.D., 1976. Optimizing flocculator power input, *J. Env. Eng. Div.*, 102, EE2 (4) : 251-263.
- BAZER-BACHI A., FONADE H., CROSES M., BEN AIM R., ROQUES H., 1985. Titration colloïdale. Différentes méthodes de mesure. Application au dosage des colloïdes d'eau de surface. *Revue des Sciences de l'Eau*, 4 (2-3) : 223-237.
- BAZER-BACHI A., 1986. Influence de la qualité d'une eau sur l'efficacité de la coagulation par le sulfate d'aluminium. Thèse de doctorat INSAT, Université Paul Sabatier, Toulouse, 246 p.
- BOTTERO J.Y., CAZES J.M., FIESSINGER F., POIRIER J.E., 1980. Studies of hydrolyzed aluminium chloride solution. Nature of species and composition of aqueous solutions. *J. of Phys. Chem.*, 84 : 2933-2939.
- BOTTERO J.Y., TCHOUBAR D., CAZES J.M., FIESSINGER F., 1982. Investigation of the hydrolysis of aqueous solution of Al chloride. 2 – Nature an structure by small angle X-Ray scattering. *J. of Phys. Chem.*, 86 : 3667-3673.
- BRODARD E., LEPRINCE A., FIESSINGER F., 1986. Modélisation stochastique d'une usine de traitement d'eau potable. *Eau et Inf.* : 34-42.
- BROSSET C., BIEDERMANN G., SILLEN L.G., 1954. Studies of the hydrolyse of metal ion – XI. The aluminium ion Al<sup>3+</sup>. *Acta Chem. Scand.*, 8 (10) : 1917-26.
- BRUECK T.M., Mc MULLEN L.D., 1978. Computer control of chemical feed using on optimizing algorithm. *Proc. Ann. Conf. Awwa, Part 1, paper 17-1* : 1-13.
- CAYRO P.R., COYLE J.T., 1976. Algorithm control of coagulant addition. *J. Am. Water Works Ass.*, 68 (7) : 385-390.
- COLIN J.L., DUTOT A.L., BABLON G., VIE LE SAGE R., 1986. Application de l'analyse des correspondances à des résultats d'essais de traitement d'eau de surface. *Water Research*, 20 (6) : 675-684.
- DE HEK H., STOL J.R., BRUYN P.L., 1978. Hydrolysis precipitation studies of Al III solutions 3. The role of sulfate ions. *J. Col. Int. Science*, 64 (1) : 72-89.
- DOLEJS P., 1983. Effect of temperature, coagulant dosage and rapid mixing on particle size distribution. *Env. Prot. Eng.* 9 (1) : 56-66.
- DOLEJS P., 1984. Interaction of temperature, alkalinity and alum dose by coagulation of humic water. Studies in Env. Sci. 23 ER « chemistry for protection on the environmental », Ed By pawlowski, verdier, lacy, elsevier, p. 169-178.
- EDWARD G.A., AMIRTHARAJAH A., 1985. Removing color caused by humic acids. *J. Am. Water Works Ass.*, 77 (3) : 50-57.
- EDZWALD J.K., HOFF J.D., BOAK J.W., 1977. Removal of humic substances from water supplies by coagulation. Ext. of Nat. Env. Eng. Conf., ASCE Nashville, 1977 (07).
- GREGORY R., 1981. Coagulation and clarification control techniques. A review. Wasser Berlin, Spec. Conf. ISWA, paper n° 9.
- HALL E.S., PACKHAM R.F., 1965. Coagulation of organic color with hydrolyzing coagulant. *J. Am. Water Works Ass.*, 57 (9) : 1149-1160.
- HANNA G.P., RUBIN A.J., 1970. Effect of sulfate and other ions in coagulation with Al III. *J. Am. Water Works Ass.*, 62 (5) : 315-321.
- HAYDEN P.L., RUBIN A.J., 1974. Systematic investigation of the hydrolysis and precipitation of Al III. Chap. 9 – Aqueous Env. Chemistry of metal (A.J. rubin ed). Ann. Arbor Sci., Mich.
- HUNDT T.R., O'MELIA C.R., 1988. Aluminium-fulvic acid interaction – Mechanism and application. *J. Am. Water Works Ass.*, 80 (4) : 176-186.
- JACKSON P.J., TOMLINSON E.J., 1986. Automatic coagulation control. Evaluation

- of strategies and techniques. *Water supply*, 4 : 55-67.
- JANSSENS J.G., MERTENS L.J., 1981. Historical-statistical analysis of jar-test results, « The practical theory of flocculation processes », PROC. Seminar of SVW, SEDE, 161-184.
- KAWAMURA S., TANAKA Y., 1966. Applying colloid titration techniques to coagulant dose control. *Water and Sew. Works*, 113 (9) : 348-357.
- KAWAMURA S., HANNA G.P. Jr, SHUMATE K.S., 1967. Application of colloid titration technique to flocculation control. *J. Am. Water Works Ass.*, 59 (8) : 1003-1013.
- KAWAMURA S., 1976. Consideration on improving flocculation. *J. Am. Water Works Ass.*, 68 (6) : 328-336.
- KOWAL A.L., MACKIEWICZ J., 1975. The effect of water temperature on the course of alum coagulation on colloidal particles in water. *Env. Prot. Eng.*, 1 (1) : 63-70.
- KIM W., LUDWIG H.F., BISHOP W.D., 1965. Cation-exchange capacity and pH in the coagulation process. *J. Am. Water Works Ass.*, 57 (3) : 327-348.
- LANGELIER W.F., LUDWIG H.F., 1949. Mechanism of the flocculation in the clarification of turbid waters. *J. Am. Water Works Ass.*, 41 (2) : 163-170.
- LETTERMAN R.D., TABATABAIE M., AMES R.S. Jr, 1979. The effect of bicarbonate ion concentration on flocculation with Al sulfate. *J. Am. Water Works Ass.*, 71 (8) : 467-472.
- LETTERMAN R.D., VANDERBROOK S.G., 1983. Effect of solution chemistry on coagulation with hydrolyzed Al III. Signification of sulfate ion on pH. *Water Research*, 17 : 195-204.
- MARION S.P., THOMAS A.W., 1946. Effect of diverse anions on the pH of maximum precipitation of Aluminium hydroxyde. *J. Col. Sci.*, 1, 221-29.
- MATIJEVIC E., STRYKER L.J., 1966. Coagulation and reversal of charge of lyophobic colloids by hydrolysed metal ions - III Aluminium sulfate. *J. Col. Int. Sci.* 62, 68-77.
- MATTSON S., 1928. Cataphoresis and the electrical neutralisation of colloid material. *J. Phys. Chem.*, 8 (10) : 1917-1926.
- Mc COOK N.J., WEST J.R., 1978. The coagulation of a kaolinite suspension with Al sulfate. *Water Research*, 12 : 793-798.
- MILLER L.B., 1925. A study of the effect of anions upon the properties of alum flocs. *Pub health Rep.*, 40, 351.
- MOHTADI M.F., RAO P.N., 1973. Effect of temperature on flocculation of aqueous dispersions. *Water Research*, 7, 747-767.
- MORRIS J.K., KNOCKE W.R., 1984. Temperature effects on the use of metal ion coagulants for water treatment. *J. Am. Water Works Ass.*, 76 (3) : 74-79.
- PACKHAM R.F., 1963. The coagulation process. A review of some recent investigation. *Proc. Sty. Water Treat. Exam.*, 12 (8) : 15-39.
- PACKHAM R.F., 1965. Some studies on the coagulation of dispersed clays with hydrolyzing salts. *J. Col. Sci.*, 20 : 81-92.
- PROBST J.L., 1983. Hydrologie du bassin de la Garonne - Modèles de mélanges. Bilan de l'érosion - Exportation des phosphates et des nitrates, Thèse 3<sup>e</sup> cycle, Univ. Paul Sabatier, Toulouse, 148 p.
- PROBST J.L., BAZER-BACHI A., 1986. Transport en solution et en suspension par la Garonne supérieure. *Sci. Geol. Bull.*, 39 (1) : 77-98.
- RUBIN A.J., BLOCKSIDGE H., 1979. Coagulation of montmorillonite suspension with aluminium sulfate. *J. Am. Water Works Ass.*, 71 (2) : 102-109.
- STUMM W., MORGAN J.J., 1962. Chemical aspect of coagulation. *J. Am. Water Works Ass.*, 54 (8) : 971-992.
- STUMM W., O'MELIA C.R., 1968. Stoichiometry of coagulation. *J. Am. Water Works Ass.*, 60 (5) : 514-539.
- VERMA S., CHAUDHURY M., 1978. Colloid-chemical parameters for coagulant dose control. *J. Am. Water Works Ass.*, 70 (2) : 102-105.
- VIK E.A., CARLSON D.A., EIKUM A.S., GJESING E.T., 1985. Removing aquatic humus from norwegian lakes. *J. Am. Water Works Ass.*, 77 (3) : 59-66.
- ZAPOL'SKII A.K., 1987. Mechanism of coagulation treatment of water by aluminium sulfate. *SOV J. Water Chem. Techn.*, 9 (3) : 45-51.