

Simulation d'une filtration liquide en canal poreux fermé à une extrémité avec prise en compte de la formation du dépôt

J. MENDRET^a, C. GUIGU^b, C. CABASSUD^b, P. SCHMITZ^b

a. Université de Toulouse ; INPT, UPS ; Laboratoire de Génie Chimique ; F-31062 Toulouse cedex 09, CNRS ; Laboratoire de Génie Chimique ; F-31062 Toulouse cedex 09, France

b. Université de Toulouse ; INSA, UPS, INP ; LISBP, 135 Avenue de Ranguéil, F-31077 Toulouse, France
INRA, UMR792 Ingénierie des Systèmes Biologiques et des Procédés, F-31400 Toulouse, France
CNRS, UMR5504, F-31400 Toulouse, France

Résumé :

La formation d'un dépôt de filtration ainsi que les performances de filtration associées ont été étudiées par CFD en utilisant un maillage mobile. Des lois expérimentales décrivant la porosité et la perméabilité du dépôt ont été intégrées au modèle. Ces lois ont été obtenues à partir de la mesure d'épaisseur de dépôt in situ par nappe laser. L'effet d'une perméabilité membranaire non uniforme sur la distribution spatiale du dépôt a ensuite été étudié.

Abstract :

Formation of a filtration deposit has been modelled using a moving boundary tool. The model is based on the use of experimental laws describing the deposit structure (porosity and permeability). These laws were obtained by using an optical method in situ. The effect of a non uniform membrane permeability on the deposit distribution has been studied.

Mots clefs : filtration, modélisation, morphologie du dépôt, perméabilité non uniforme

1 Introduction

Actuellement, le procédé d'ultrafiltration membranaire est largement utilisé pour la séparation de particules (production d'eau potable, traitement des eaux usées). Dans le cas d'une filtration frontale en fibre creuse (la totalité du fluide circulant dans une fibre est filtrée par les parois) à pression constante les mécanismes entraînant une chute du flux de perméat dépendent des gradients de pression le long de la fibre et à travers la membrane. Ces gradients sont fonction de la géométrie de la fibre (longueur, diamètre) et des propriétés de la membrane et / ou du système « membrane + dépôt » (épaisseur, perméabilité). Du fait du fort confinement rencontré dans ces géométries, des mesures locales de caractérisation directement dans la fibre sont difficiles à mettre en place. Les méthodes numériques, qui permettent l'étude de l'écoulement dans la fibre, sont ainsi très utilisées pour cette configuration [1]. Actuellement, les modèles de filtration considèrent généralement les propriétés de transfert du dépôt comme constantes au cours du procédé. Pourtant, la plupart des articles traitant de l'utilisation de codes CFD pour l'étude des procédés membranaires soulignent la nécessité de prendre en compte les variations morphologiques du dépôt dans le modèle de filtration afin d'améliorer la simulation du procédé. L'objectif de ce travail est de simuler la croissance d'un dépôt sur une membrane en tenant compte des modifications de l'écoulement et de la géométrie dues à la présence de ce dépôt. Pour intégrer la structure non homogène du dépôt, nous avons utilisé des lois expérimentales de variation de la perméabilité et de la porosité du dépôt en fonction de son épaisseur. Le code de calcul COMSOL Multiphysics, utilisé dans cette étude, est particulièrement adapté pour traiter ce type de problème puisque le couplage du modèle de Navier-Stokes (valable pour le sous-domaine fluide) et du modèle de Darcy-Brinkman (valable pour le sous-domaine poreux) y est implémenté. Cet article présente l'application du modèle à l'étude de l'effet d'une perméabilité non uniforme de membrane sur la croissance d'un dépôt. Ceci pourrait en effet permettre d'expliquer les hétérogénéités spatiales de la répartition de dépôt observées expérimentalement dans les procédés membranaires.

2 Présentation du problème

2.1 Equations de transfert

Nous considérons un écoulement stationnaire, laminaire et incompressible dans un canal rectangulaire (28,2 cm de haut x 2 mm de large et de profondeur) avec une paroi poreuse (Fig. 1). Les équations de Navier-Stokes et Darcy-Brinkman décrivent le transfert de masse et de quantité de mouvement respectivement dans le canal et le milieu poreux. Le modèle de Darcy-Brinkman permet de rendre compte de la capacité de l'écoulement à transmettre une force par le biais de la contrainte visqueuse en introduisant une grandeur effective, μ_{eff} . Cette grandeur traduit, à l'échelle macroscopique, l'effet intégré de la contrainte visqueuse locale. Les propriétés physiques du système (densité, viscosité) sont supposées constantes.

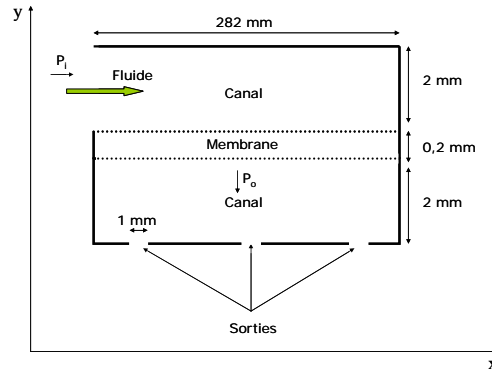


FIG. 1 – Vue schématique du modèle physique et du système de coordonnées

Les équations à résoudre dans le sous-domaine poreux sont :

$$\mu_{\text{eff}} \Delta \vec{v} - \vec{\nabla} P - \frac{\mu}{K} \vec{v} = 0 \quad (1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0 \quad (2)$$

où \vec{v} est la vitesse du perméat, P la pression, K la perméabilité intrinsèque du sous-domaine poreux, μ la viscosité dynamique du fluide et μ_{eff} la viscosité effective égale à μ/ε , ε étant la porosité du sous-domaine poreux. Dans le canal, les équations de Navier-Stokes sont résolues :

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad (3)$$

$$\rho(\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} = -\nabla P + \mu \nabla^2 \vec{v} \quad (4)$$

Les conditions aux limites du problème sont : la pression constante à l'entrée et à la sortie, respectivement P_i et P_o (fig. 1), la continuité de la pression et de la vitesse à l'interface milieu poreux / milieu fluide et des conditions de non glissement pour les autres frontières. Des premières simulations à l'eau pure (sans prise en compte des particules) ont montré que la position des trois sorties de perméat n'avait pas d'effet sur l'écoulement dans le canal de sortie. La géométrie a alors été simplifiée en enlevant le canal de sortie. La condition limite de sortie devient alors : pression constante au bord du milieu poreux.

2.2 Croissance d'un dépôt

Avant d'atteindre la surface de la membrane ou du dépôt, les particules sont transportées dans le canal d'entrée par le fluide. Il est connu que la trajectoire d'une particule dépend de plusieurs forces agissant sur la particule au cours de son trajet [2]. Dans cette étude, nous supposons que les particules suivent exactement les lignes de courant. Pour cela, nous avons vérifié que les phénomènes d'inertie, de diffusion Brownienne et les effets de gravité sont négligeables devant la force d'entraînement du fluide (convection). Sous cette hypothèse, l'accumulation locale des particules à la surface du milieu poreux est simplement proportionnelle à la vitesse locale de filtration (vitesse du fluide à l'interface milieu poreux / milieu fluide). Suite à la capture de particules, un dépôt se forme provoquant une modification géométrique du domaine fluide (l'espace libre diminue à mesure que le dépôt croît). L'écoulement dans le canal est alors modifié du fait de la nouvelle géométrie du domaine libre et de la modification de la vitesse de filtration le long de la membrane. La croissance du dépôt est modélisée en déformant le domaine poreux constitué de la membrane et du dépôt.

L'interface entre le domaine poreux et le domaine fluide, initialement localisée à la surface de la membrane, se déplace au cours du temps du fait de la déformation de maillage. La perméabilité équivalente locale, du domaine poreux constitué de la membrane et du dépôt, est calculée à chaque pas de temps en appliquant le modèle des résistances en séries (résistance de la membrane et du dépôt). Cela suppose que le flux dans le domaine poreux est uniforme, orienté dans la direction y . Ces effets sont pris en compte dans le modèle en supposant une évolution quasi-stationnaire de l'écoulement dans le canal. Cette hypothèse est appuyée par le fait que le temps de trajet d'une particule dans le canal est très inférieur au temps nécessaire pour observer un changement significatif de l'épaisseur locale du dépôt. La vitesse de la frontière mobile est alors obtenue à partir d'un bilan matière :

$$\bar{V}_d(t) = -\frac{dm_d}{dt} \frac{\bar{V}_f(t)}{\rho_p \cdot (1-\varepsilon) \|\bar{V}_f(t)\|} \quad (5)$$

où m_d est la masse cumulée de particules par unité de surface à l'instant t , ρ_p la densité des particules, ε la porosité du dépôt et \bar{V}_f est la vitesse du fluide à la frontière à l'instant t . Comme on suppose que les particules suivent les lignes de courant, dm_d/dt peut s'exprimer ainsi:

$$\frac{dm_d}{dt} = c \cdot \|\bar{V}_f(t)\| \quad (6)$$

c étant la concentration de la suspension. En remplaçant dm_d/dt dans l'équation 5, \bar{V}_d s'exprime finalement ainsi :

$$\bar{V}_d(t) = -\frac{c}{\rho_p \cdot (1-\varepsilon)} \bar{V}_f(t) \quad (7)$$

Le taux de particules qui arrive à la surface est donc proportionnel à la vitesse du fluide. L'épaisseur du dépôt est ensuite calculée ainsi:

$$e_d(t_i) = e_d(t_{i-1}) + \|\bar{V}_d(t_{i-1})\| \times (t_i - t_{i-1}) \quad (8)$$

La porosité du dépôt est donc un paramètre du modèle. Elle a été obtenue à partir d'expériences indépendantes réalisées avec une cellule de filtration présentant la même géométrie que dans le modèle [3,4]. Des lois expérimentales de la perméabilité et de la porosité du dépôt en fonction de son épaisseur sont intégrées au modèle. Elles sont différentes selon le cas étudié, c'est-à-dire selon la pression transmembranaire imposée (Table 1). Ces lois sont applicables pour une épaisseur de dépôt allant de 0 à 50 μm .

Table 1. Lois expérimentales utilisées dans le modèle

PTM (bar)	R_d (m^{-1}) en fonction de e_d (m)	$\varepsilon_{\text{local}}$ en fonction de e_d (m)
0.5	$1,27 \times 10^{26} \cdot e_d^3 - 1,25 \times 10^{22} \cdot e_d^2 + 6,66 \times 10^{17} \cdot e_d$	$-6,69 \times 10^6 \cdot e_d^2 + 8,81 \times 10^3 \cdot e_d$

L'épaisseur est finalement calculée ainsi :

$$e_d(t_n) = \sum_{i=1}^n \frac{c}{\rho_p \cdot (1-\varepsilon(e_d(t_{i-1})))} \|\bar{V}_f(t_{i-1})\| \times (t_i - t_{i-1}) \quad (9)$$

La porosité du dépôt variant avec son épaisseur, l'équation 9 n'est pas linéaire. Cela signifie que, dans ce modèle, l'épaisseur locale du dépôt n'est pas proportionnelle à la vitesse locale de filtration. De la même façon, il est nécessaire de connaître les variations de la perméabilité du dépôt afin d'estimer à chaque pas de temps la perméabilité équivalente du domaine poreux à partir de la loi des résistances en séries :

$$\frac{e_t}{K_t} = \frac{e_d}{K_d} + \frac{e_m}{K_m} \quad (10)$$

où e_t est l'épaisseur du domaine poreux, e_d l'épaisseur du dépôt, e_m l'épaisseur de la membrane, K_t la perméabilité équivalente du domaine poreux, K_d la perméabilité du dépôt et K_m celle de la membrane. Une porosité initiale doit être fixée pour le premier pas de temps puisqu'il s'agit d'un calcul itératif (équation 9). La porosité initiale théorique est de 1 mais ce n'est pas une valeur acceptable mathématiquement (eq. 5). Comme la porosité décrite par la loi polynomiale vaut zéro pour une masse déposée nulle, la valeur initiale choisie est $\varepsilon=0$. Nous avons vérifié que cette valeur n'a pas d'influence sur le reste du calcul, les pas de

temps choisis étant très faibles. Par la suite, la procédure de calcul est la suivante : à $t=0$ l'épaisseur du dépôt et sa porosité sont nulles et $K_t=K_m$. Une vitesse initiale, $\bar{v}_f(0)$, est calculée à l'interface fluide/membrane. Au pas de temps suivant, une épaisseur de dépôt est calculée à partir de $\bar{v}_f(0)$ et de l'équation 9. La porosité et la perméabilité du dépôt sont calculées à partir de la valeur de l'épaisseur du dépôt et des lois polynomiales (Table 1). La perméabilité équivalente est ensuite calculée (eq. 10) ainsi qu'une nouvelle vitesse à l'interface fluide/dépôt, $\bar{v}_f(t)$, (eq. 1 et 2). L'épaisseur du dépôt est ensuite calculée à chaque pas de temps à partir de la vitesse et de la porosité calculée au pas de temps précédent.

Afin d'étudier l'effet d'une perméabilité membranaire non uniforme sur la croissance du dépôt, une fonction sinusoïdale centrée autour de la valeur expérimentale moyenne de la perméabilité ($K_{m0}=10^{-17} \text{ m}^2$) a été choisie. Le type de membrane utilisé expérimentalement (perméabilité moyenne de $180 \text{ l.h}^{-1}.\text{m}^{-2}.\text{bar}^{-1}$, épaisseur de $250 \mu\text{m}$) présentait en effet des variations de perméabilité pour différents morceaux provenant d'une même souche. La fonction choisie permet de décrire ces variations sur la longueur du canal, l . La gamme de perméabilité mesurée sur un même morceau de membrane a été délibérément amplifiée afin d'étudier l'effet de ce paramètre sur la croissance du dépôt.

$$K_m = K_{m0} \left(1 + 0,5 \cdot \sin\left(\frac{2\pi x}{l}\right) \right) \quad (11)$$

3 Résultats : effet d'une perméabilité membranaire non uniforme

De précédents résultats ont montré que, dans le cas d'une perméabilité membranaire uniforme, les effets de pression et de gravité ne justifiaient pas les profils longitudinaux observés expérimentalement. Des variations locales de la perméabilité membranaire pourraient permettre d'expliquer ces profils.

Avant de vérifier cette hypothèse, nous avons dans un premier temps comparé les résultats expérimentaux et numériques. La figure 2 montre le flux de perméat et l'épaisseur du dépôt obtenus numériquement et expérimentalement. Dans l'ensemble, les valeurs sont très proches.

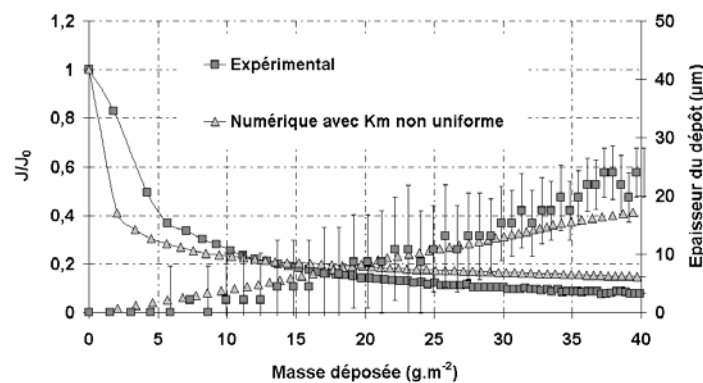


FIG. 2 – Comparaison entre les données expérimentales et numériques (PTM=0,5 bar, $c=1 \text{ g.l}^{-1}$, $K_m=10\text{P}^{17} \text{ m}^2$)

La suite de l'étude concerne les valeurs numériques de la vitesse de filtration et de l'épaisseur du dépôt le long de l'axe x , c'est à dire les profils longitudinaux de vitesse et d'épaisseur. La vitesse de filtration à la surface du dépôt sous une pression de 0,5 bar est représentée sur la figure 3a). A l'instant initial ($t=0$), il y a un profil de vitesse non uniforme le long du canal. Ce profil épouse la forme du profil de perméabilité (un profil sinusoïdal). Ceci est lié au fait que la perte de pression a lieu principalement dans la membrane. Ainsi, le profil de pression le long du canal est pratiquement uniforme à l'interface fluide/membrane. La vitesse de filtration est donc directement proportionnelle à la perméabilité membranaire selon la loi de Darcy. Par la suite, pour $t>0$, un dépôt se forme à la surface de la membrane et le profil de vitesse évolue.

Elle décroît de $3 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$ à $0,2 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$ après 167 minutes de filtration. La décroissance est surtout très marquée durant les deux premières minutes de filtration. A la fin de la filtration, le profil de vitesse est pratiquement plat. L'effet de la perméabilité membranaire non uniforme n'est plus présent. Afin de mieux observer les variations du profil de vitesse, le ratio de la vitesse locale de filtration sur la vitesse moyenne de filtration, $v_f / \langle v_f \rangle$, a été tracé en fonction de la position x et pour différents temps (fig. 3.b). La vitesse moyenne de filtration, $\langle v_f \rangle$, étant définie ainsi :

$$\langle V_f \rangle = \frac{1}{L} \int_0^L V_f dx \quad (12)$$

Comme précédemment, le profil est initialement un profil sinusoïdal. Ce profil est nettement amorti durant les premières minutes de filtration du fait de la formation du dépôt. En fin de filtration le profil est quasi-uniforme. Ceci a déjà été remarqué dans d'autres études pour des conditions similaires [5, 6].

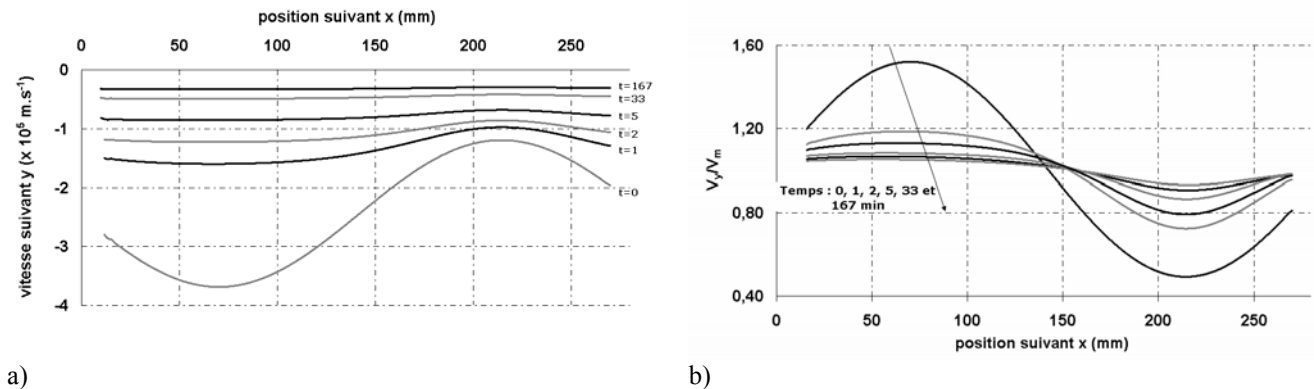


FIG. 3 – a) Vitesse suivant y à la surface du dépôt (PTM=0,5 bar, $c=1 \text{ g.l}^{-1}$) pour différents temps en minutes
 b) Ratio de la vitesse locale de filtration sur la vitesse moyenne en fonction de la position suivant x et pour différents temps (PTM=0,5 bar, $c=1 \text{ g.l}^{-1}$)

Il est ensuite intéressant de voir s'il existe un profil d'épaisseur du dépôt et comment il évolue : s'uniformise t-il, comme le profil de vitesse, ou conserve t-il une « mémoire » du profil initial ?

La variation de l'épaisseur du dépôt en fonction de la position longitudinale est représentée sur la figure 4.a) pour différents temps de filtration. L'épaisseur simulée du dépôt est d'environ $30 \mu\text{m}$ après 238 minutes de filtration (équivalent à 60 g.m^{-2} de quantité de matière déposée). Elle est non uniforme jusqu'à la fin de la filtration. En effet, au début de la filtration un dépôt se forme préférentiellement à l'endroit où la vitesse de filtration est la plus élevée selon l'équation 9 (par exemple à $x=70$). Ainsi, un profil de dépôt ayant la même forme que le profil de vitesse est observé. Au cours des premières minutes de filtration, le dépôt est très fin (quelques micromètres) et il est difficile d'observer un profil. De la même façon que pour la vitesse, nous avons tracé le ratio de l'épaisseur locale du dépôt sur l'épaisseur moyenne du dépôt en fonction de la position longitudinale pour différents temps (fig. 4. b). Nous observons aussi un profil initial sinusoïdal qui s'atténue au cours du temps en particulier à l'entrée du canal où la vitesse de filtration est plus importante. L'atténuation est cependant moins prononcée que pour le profil de vitesse et un profil d'épaisseur assez marqué est toujours présent à la fin de la filtration. Ceci est dû à la non linéarité de l'équation 9 : l'épaisseur du dépôt et la vitesse de filtration ne sont pas proportionnelles.

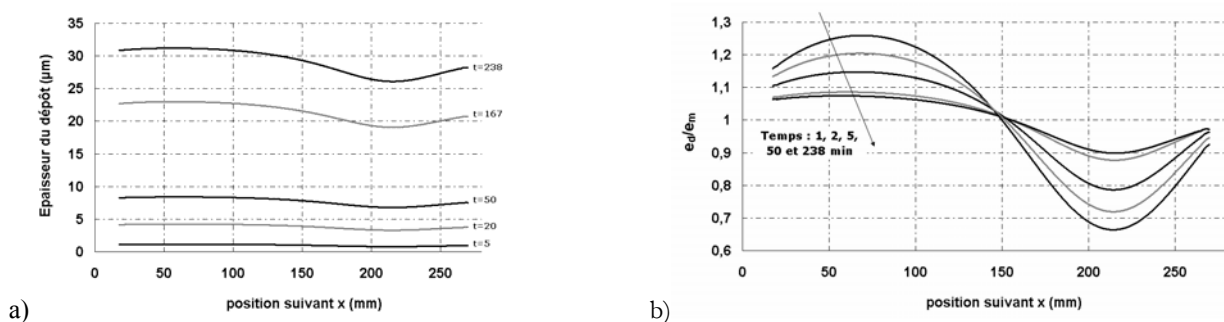


FIG. 4 – a) Epaisseur du dépôt le long du canal (PTM=0,5 bar, $c=1 \text{ g.l}^{-1}$) pour différents temps en minutes
 b) Ratio de l'épaisseur locale de filtration sur l'épaisseur moyenne en fonction de la position suivant x et pour différents temps (PTM=0,5 bar, $c=1 \text{ g.l}^{-1}$)

L'atténuation du profil de vitesse est liée à la formation d'un dépôt ayant une épaisseur plus importante à l'entrée du canal qu'à sa sortie. Cette épaisseur plus importante conduit à une perméabilité de dépôt plus

faible à l'entrée du canal. Ainsi, la résistance équivalente du domaine poreux, qui est la somme de la résistance de la membrane et du dépôt, est pratiquement la même dans les deux régions du canal. Le profil de vitesse est donc quasiment uniforme le long du canal. En outre, le profil de vitesse devient plus rapidement uniforme dans la région de forte perméabilité (à l'entrée du canal, pour $0 < x < 150$) que dans celle de faible perméabilité. En effet, à l'instant t , le dépôt est plus important dans cette première région. Ainsi, la différence par rapport à la perméabilité moyenne diminue plus rapidement par rapport à la deuxième moitié du canal. Ceci est lié au fait que la perte de pression le long du canal est négligeable. La vitesse de filtration est alors directement proportionnelle à l'épaisseur du dépôt et à la perméabilité du milieu poreux.

En résumé, un profil longitudinal de perméabilité membranaire non uniforme conduit à un profil de vitesse initial non uniforme mais qui s'homogénéise dès les premières minutes de filtration. De la même manière, il existe un profil d'épaisseur de dépôt similaire mais celui-ci est toujours présent à la fin de la filtration. Ces profils épousent initialement la forme du profil de perméabilité. Cette forme se modifie ensuite légèrement du fait de l'existence de zones de perméabilité différente. Il semble qu'une perméabilité membranaire non uniforme ne justifie pas les profils de répartition de dépôt observés expérimentalement. Ces profils sont en effet plus marqués expérimentalement (plusieurs dizaines de micromètres) en comparaison de ceux obtenus numériquement dans cette étude (quelques micromètres) [7].

4 Conclusion

L'effet d'une perméabilité membranaire non uniforme sur la construction d'un dépôt dans un canal de filtration a été étudié de manière numérique. Le modèle est basé sur la résolution des équations de Navier-Stokes dans le domaine fluide et Darcy-Brinkman dans le domaine poreux. Des lois expérimentales décrivant la morphologie du dépôt (porosité, perméabilité) ont été ajoutées au modèle. Les résultats numériques sont en bon accord avec les résultats expérimentaux (épaisseur de dépôt, flux) obtenus in situ et de manière non destructive. Une perméabilité membranaire non uniforme conduit à des profils de vitesse de filtration et d'épaisseur de dépôt initialement non uniformes. Le profil de vitesse s'uniformise dès les premières minutes de filtration. Le profil d'épaisseur s'atténue mais reste cependant toujours présent au cours de la filtration. Il semble néanmoins qu'une perméabilité membranaire non uniforme ne permet pas de justifier les profils de répartition de dépôt observés expérimentalement qui sont nettement plus prononcés.

La chute de flux en filtration frontale à pression constante dépend à la fois de la géométrie de la fibre et des propriétés du dépôt. Ces paramètres doivent être pris en compte de façon plus réaliste dans les modèles de filtration afin de mieux comprendre les motifs de répartition des dépôts de filtration. Ceux-ci sont fortement influencés par les variations locales des forces convectives. Seuls les outils numériques permettant l'étude des effets hydrodynamiques dans les systèmes membranaires confinés, les modèles doivent être améliorés en prenant en compte la structure du colmatage. La suite de ce travail concernera l'étude des effets de confinement dans une fibre, couplé aux effets de la perméabilité non uniforme, sur la construction du dépôt.

References

- [1] Ghidossi R, Veyret D., Moulin P., Computational fluid dynamics applied to membranes: state of the art and opportunities, *Chem. Eng. Process.*, 45, 437-454, 2006.
- [2] Song L., M. Elimelech, Particle Deposition onto a Permeable Surface in Laminar Flow, *Journal of Colloid and Interface Science* 173, 165-180, 1995.
- [3] Mendret J., Guigui C, Schmitz P., Cabassud C, Duru P., An optical method for in situ characterization of fouling during filtration, *AIChE*, 53, 2265-2274, 2007.
- [4] Mendret J., Guigui C, Schmitz P., Cabassud C, In situ dynamic characterisation of fouling under different pressure conditions during dead-end filtration: compressibility properties of particle cakes, *Journal of Membrane Science*, sous presse, 2009.
- [5] Dufrêche J., Prat M., Schmitz P., Sherwood J.D., On the apparent permeability of a porous layer backed by a perforated plate, *Chemical Engineering Science*, 57, 2933-2944, 2002.
- [6] Oxarango L., Schmitz P., Quintard M., 3D Macroscopic model for fluid flow and soot deposit in wall flow honeycomb DPF. *Journal of Fuels and lubricants*, 2003-01-0834, 2003
- [7] Mendret J., Guigui C, Cabassud C., Schmitz P., Numerical investigations of the effect of non uniform membrane permeability on deposit formation and filtration process, soumis à *AIChE Journal*