



**HAL**  
open science

## Détermination du flux critique : un outil pour la maîtrise du colmatage ?

Benjamin Espinasse, Patrice Bacchin, Pierre Aimar

► **To cite this version:**

Benjamin Espinasse, Patrice Bacchin, Pierre Aimar. Détermination du flux critique : un outil pour la maîtrise du colmatage ?. *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 2003, 89, pp.483-490. hal-00201551

**HAL Id: hal-00201551**

**<https://hal.science/hal-00201551>**

Submitted on 31 Dec 2007

**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.

# Détermination du flux critique : un outil pour la maîtrise du colmatage ?

**Benjamin Espinasse\*<sup>1</sup>, Patrice Bacchin<sup>1</sup> et Pierre Aimar<sup>1</sup>**

<sup>1</sup>*Laboratoire de Génie Chimique, Université Paul Sabatier, 118 route de Narbonne, 31062, Toulouse, Cedex, France Tel. +33 (5) 61 557 350; Fax+33 (5) 61 556 139*

\**espinasse@chimie.ups-tlse.fr*

**Résumé.** L'étude présentée ici repose sur la détermination expérimentale du flux critique en ultrafiltration de suspension colloïdales, la caractérisation macroscopique des suspensions colloïdales et l'utilisation d'un modèle alimenté par ces caractéristiques. Une méthode précise de mesure de flux critique est présentée permettant de savoir si une diminution de flux est due à une accumulation de matière réversible ou irréversible. La pression osmotique est la mesure qui a été privilégiée pour caractériser une suspension de latex PVC qui a servi de base à cette étude. En effet, la variation de pression osmotique avec la fraction volumique reflète bien la résistance d'une suspension de particules à la compression ; les mesures expérimentales mettent en évidence une pression osmotique critique autour de 60% volumique en particules traduisant l'agrégation des particules qui sera responsable de la formation d'un dépôt irréversible lors de la filtration. Le modèle de calcul de flux utilisé est basé sur un bilan de matière et est alimenté avec des mesures expérimentales de pression osmotique et de viscosité. L'hydrodynamique du système est intégrée par le biais du facteur de friction. De cette façon, le modèle est entièrement basé sur des données acquises par des méthodes indépendantes. Les calculs de flux critiques sont comparés avec les résultats du banc de détection de flux critique. Le modèle donne des profils de concentrations à la surface de la membrane ce qui permet de déterminer le flux critique. Il apparaît que la simulation donne des résultats du même ordre de grandeur que l'expérience. La surestimation par le modèle est discutée.

## INTRODUCTION

De nos jours, avec l'avènement et l'utilisation de plus en plus importante des membranes dans de nombreux procédés, le prix des membranes diminue déplaçant ainsi lentement la problématique des coûts : de l'investissement vers les coûts fonctionnement. Or, une des parties les plus importantes des coûts de fonctionnement de la filtration par membranes est liée au colmatage.

Ce coût apparaît de deux façons différentes : une directe due à la diminution du flux de perméation et une indirecte due au nettoyage des membranes. En fonction du fluide traité, le nettoyage devra être soit mécanique (rétro-lavage) soit chimique ce qui entraîne nécessairement un arrêt du procédé. La diminution de ces coûts par une meilleure maîtrise du colmatage permettrait donc aux techniques membranaires de pénétrer de nouveaux marchés.

Il est donc important d'adapter les conditions de filtration pour réduire le colmatage. Le flux critique peut être un paramètre clef de ce contrôle étant donné qu'il est à la fois fonction de l'hydrodynamique (balayage tangentiel) et de la physico-chimie (interactions membrane soluté). En effet, il est défini comme le flux au delà duquel un colmatage irréversible apparaît sur la membrane, ce qui permet par conséquent de définir deux zones de conditions opératoires distinctes. Une zone dans laquelle le procédé peut fonctionner sans colmatage ou avec un colmatage très limité, limitant le nombre de nettoyages, et une zone dans laquelle des nettoyages fréquents seront nécessaires.

L'approche utilisée dans cette étude repose sur le triptyque : expérience de filtration et détermination de flux critique, caractérisation macroscopique des suspensions et simulation du procédé. Son objectif est de relier ces différentes

données afin de fournir à l'ingénieur des outils lui permettant de prévoir et donc de maîtriser le colmatage.

Actuellement, la prédiction du flux critique pour des solutions industrielles complexes à partir des propriétés physico chimiques microscopiques (i.e. : taille, charge des particules, composition ionique du milieu etc...) est encore impossible : la théorie relatant les interactions de surfaces n'étant pas applicable aux fluides complexes. Il est possible par contre de mesurer certains paramètres macroscopiques des solutions comme la rhéologie, le coefficient de sédimentation ou la pression osmotique, représentant respectivement la résistance de la suspension à l'écoulement, à la force de traînée et à la compression. Ces caractérisations des suspensions sont dans cette étude comparées à des déterminations expérimentales du flux critique via un modèle de simulation adapté présenté sur la figure 1.

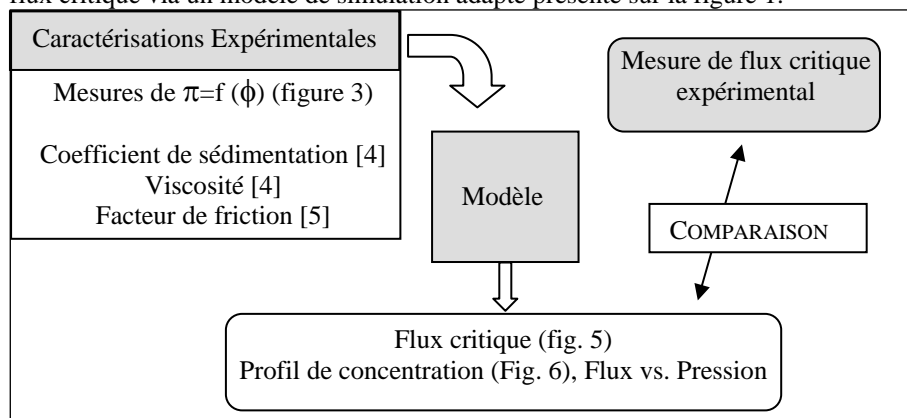


Figure 1. Présentation générale de l'approche du modèle.

## BASES THEORIQUES

### 1. Résistance à la perméation

En filtration, le flux de perméation est décrit en fonction de la pression transmembranaire. Il est nécessaire de définir les différentes résistances opposées au flux :

$$J = \frac{\Delta P - \Delta \pi}{\mu(R_m + R_c)} \quad (1)$$

Où  $\Delta P$  est la pression transmembranaire appliquée et  $\Delta \pi$  est la pression osmotique opposée à la pression,  $\mu$  est la viscosité du perméat,  $R_m$  et  $R_c$  sont respectivement les résistances de la membrane et du colmatage.

### 2. Pression osmotique

La pression osmotique est une grandeur thermodynamique directement mesurable dont la détermination présente des intérêts multiples permettant de déterminer à la fois :

- la réduction du flux de solvant (équation 1)

- l'accumulation de matière à la membrane : le coefficient de diffusion est théoriquement relié à la dérivée de la pression osmotique par rapport à la fraction volumique [1]
- la transition entre une concentration de polarisation réversible et une concentration de polarisation irréversible (dépôt) [2].

De façon très générale, la pression osmotique traduit la résistance à la concentration et à la compression d'une suspension et apparaît ainsi comme le seul moyen de mesurer de façon directe l'effet de la diffusion et des interactions interparticulaires qui relatent la stabilité des suspensions.

### 3. Flux critique

Dès lors que la séparation a lieu sur la membrane, une accumulation de matière apparaît à la surface de la membrane. Le flux critique est défini comme le flux de perméat au delà duquel un colmatage de surface irréversible apparaît. Le flux critique ne doit pas être confondu avec le flux limite qui est le flux maximum qui peut être atteint lors d'une filtration.

D'un point de vue physique, le flux critique traduit le fait qu'au delà d'un certain flux, la force de traînée due à la perméation surpasse les forces d'interaction de surface conduisant ainsi à la formation d'un dépôt. Le flux critique peut s'écrire [3] :

$$J_{crit} = \frac{D}{\delta} \ln\left(\frac{V_B}{\delta}\right) \quad (2)$$

où il est fonction des interactions interparticulaires (le terme  $V_B$ , lié à la théorie des interactions de surface, traduit une barrière de répulsion), de l'hydrodynamique du système (via l'épaisseur de la couche limite de diffusion,  $\delta$ ) et du coefficient de diffusion,  $D$ .

Il faut noter qu'en filtration tangentielle l'épaisseur de la couche limite croît le long d'un module de filtration. Dans ces conditions, et avec de faibles pertes de charges le long de la membrane, le flux critique est plus faible en sortie de module (équation 2). Le premier dépôt commence donc à se former en sortie du module. Au dessus du flux critique, une nouvelle augmentation de pression entraîne la propagation du dépôt vers l'entrée du module. Ainsi le flux limite est atteint lorsque le flux critique a été dépassé sur toute la membrane.

### 4. Simulation de la filtration tangentielle

Le modèle utilisé pour simuler le colmatage en filtration tangentielle est basé sur des bilans de matière bidimensionnels [4]. Ce modèle ne comporte pas de paramètres ajustables mais est alimenté par des mesures macroscopiques de la suspension (pression osmotique, coefficient de sédimentation, rhéologie). Le facteur de friction sur la paroi de membrane nécessaire à la description de l'hydrodynamique du module est déterminé à partir de résultats expérimentaux obtenus sur des membranes Carbosep [5]. Ce modèle simule en régime permanent les profils de concentration et les flux de perméation sur toute la longueur de la membrane et permet donc de relier théoriquement des mesures de pression osmotique à des valeurs de flux critique en filtration tangentielle.

## MATERIEL ET METHODE

### 1. Suspension

Le latex utilisé est un latex PVC, stabilisé avec des tensioactifs (Atofina) ; son diamètre est de 114nm avec un écart type de 21. La fraction massique dans la solution mère est de 0,41 et de 0,6% soit ( $0,7\text{g.L}^{-1}$ ) dans la boucle de filtration. Pour chaque expérience, le pH a été mesuré au début et à la fin de la filtration. Le pH est compris dans une gamme de 6,4 à 7,1. Pour ce pH, le potentiel zêta est de -74mV (zêtasizer 4 Malvern, Orsay, France) et sa concentration critique de coagulation (c.c.c.) est comprise entre 0,1 et 0,3M. Les expériences présentées dans cette étude sont réalisées à  $10^{-2}\text{M}$  en KCl évitant tout risque de création d'agrégats en solution.

### 2. Banc de filtration

Le banc d'ultrafiltration [6] utilisé comporte une boucle de filtration classique composée d'un réservoir de suspension, d'une pompe, d'une membrane et d'un débitmètre (Endress-Hausser Promag A) avec une précision de 3%. Le perméat est pesé avec une balance (Adventurer Ohaus) relié à un ordinateur. La pression est contrôlée par une électrovanne (CPT, Rosemount de précision 0.02Bar) via un régulateur PID. La température du fluide est régulée par un cryostat dont la sonde est intégrée au circuit (précision du contrôle  $0,5^{\circ}\text{C}$ ). Le module d'ultrafiltration contient une membrane tubulaire commerciale en carbone avec une peau interne (Carbosep, Orelis, Miribel, France). La couche active de la membrane est en  $\text{ZrO}_2$  et  $\text{TiO}_2$  et a un seuil de coupure de 15kDa. La surface de la membrane est de  $0.0226\text{m}^2$ , son diamètre hydraulique est de 6mm et la vitesse de circulation peut varier de  $0,29\text{m.s}^{-1}$  à  $1,28\text{m.s}^{-1}$  (respectivement  $30\text{L.h}^{-1}$  à  $130\text{L.h}^{-1}$ , et  $\text{Re} : 1952$  à  $8458$ )

### 3. Méthode de détermination de flux critique

La procédure de mesure de flux critique [6] consiste à alterner des changements de pressions positifs et négatifs, comme présentés sur la figure 2.

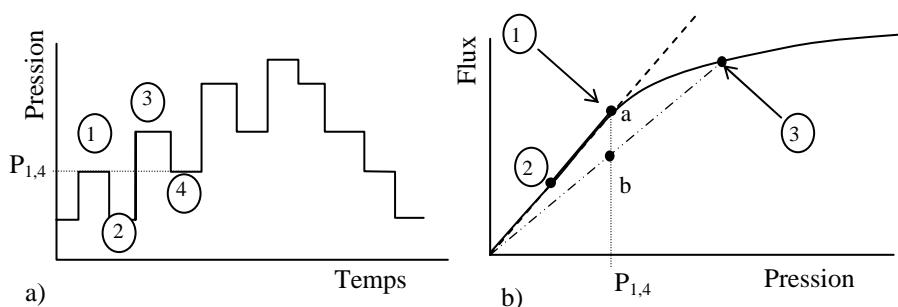


Figure 2. a) Pression vs. Temps, échelons de pressions utilisés pour mesurer le flux critique. b) Flux vs. pression ; les pointillés correspondent au flux à l'eau et la courbe pleine au flux de perméation, la position du flux pour l'échelon  $\nabla$ , situé sur le segment a-b, renseigne sur la réversibilité du colmatage observé à l'échelon  $\angle$ .

Après chaque changement de pression, le flux est mesuré, et le passage à l'échelon de pression suivant n'a lieu que lorsque le flux est stabilisé. Lorsqu'une

diminution de flux par rapport au flux à l'eau est observée (échelon  $\angle$  figure 2), il est possible de déduire si la nature de l'accumulation de matière est réversible ou irréversible (dépôt) en comparant le flux obtenu sur les échelons  $\epsilon$  et  $\nabla$ . Si le flux à l'échelon  $\nabla$  est sur le point a, le dépôt est entièrement réversible et si il est sur le point b, la réduction de flux observée en  $\angle$  est due à un colmatage irréversible. Une telle procédure rend possible la différenciation entre un colmatage réversible (essentiellement du à une pression osmotique limitante) et un dépôt.

Cette technique peut donc être considéré comme une amélioration des techniques précédemment développées [7-8] pour chercher le flux critique étant donné que le retour de pression permet de déterminer l'irréversibilité du colmatage pour chaque nouvel échelon de pression.

#### 4. Mesure de pression osmotique

Les mesures de pressions osmotiques sont effectuées suivant une méthode de compression chimique développée par C. Bonnet Gonnet [9]. Ces mesures consistent à plonger des sacs de dialyse semi perméable remplis de latex (représentés sur la figure 3 par le compartiment II) dans une solution de polymères de pression osmotique connue (compartiment I). Un flux de solvant apparaît sous le gradient de potentiel chimique jusqu'à l'équilibre de pressions dans chaque compartiment. Lorsque l'équilibre est atteint, la pression osmotique est la même à l'intérieur du sac et à l'extérieur. La fraction volumique à l'intérieur (en particules) est déterminée par une mesure d'extrait sec, il est alors possible de tracer des courbes pressions osmotique en fonction de la fraction volumique des particules.

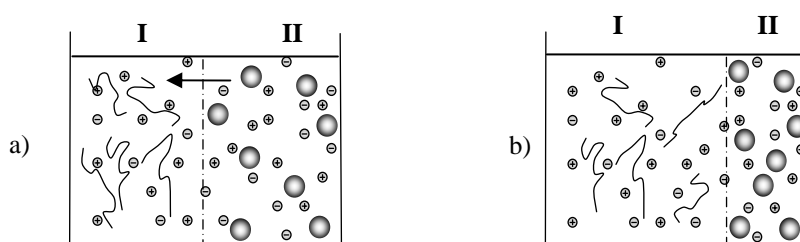


Figure 3. Méthode de compression osmotique, a) état initial  $\pi_I > \pi_{II}$ , transfert de solvant de II vers I ; b) à l'équilibre,  $\pi_I = \pi_{II}$

### RESULTATS ET DISCUSSION

La figure 4 présente la variation de la pression osmotique avec la fraction volumique,  $\phi$ , des particules de latex. A partir d'une certaine fraction volumique (symboles pleins), les particules sont agrégées par la compression. Cette valeur de la fraction volumique critique (autour de 60%) est importante car elle permet de savoir à quelle fraction volumique un dépôt irréversible va commencer à se former sur la surface de la membrane.

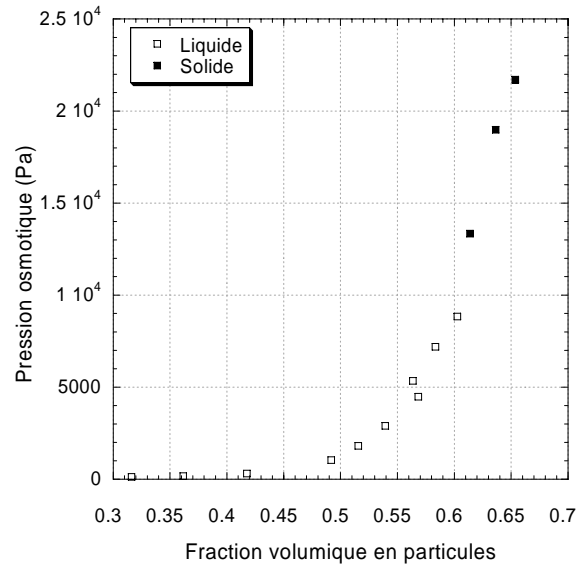


Figure 4. Pression osmotique en fonction de la fraction volumique en particules de latex PVC.

Des expériences de mesure de flux critique ont été effectuées à différentes vitesses de circulation ( $0.58$  et  $1.28 \text{ m.s}^{-1}$ ). Les mesures de flux critique pour les différentes valeurs de débits de circulation sont présentées sur la figure 5.

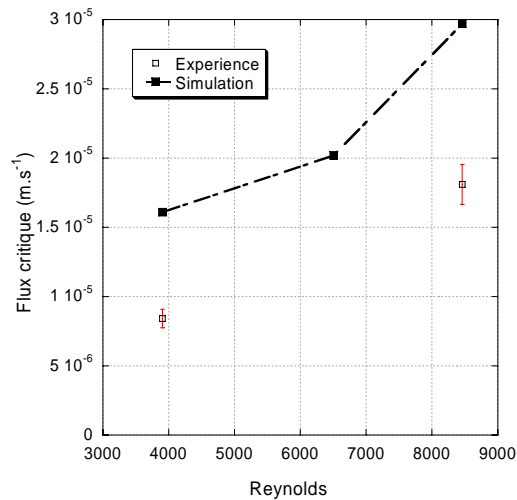


Figure 5. Comparaison du flux critique expérimental et simulé avec le modèle pour des particules de latex PVC (potentiel  $\zeta = -74 \text{ mV}$ , taille  $114 \text{ nm}$ ) ; avec  $10^5 \text{ m.s}^{-1} = 36 \text{ L/(h.m}^2)$

On note une augmentation classique du flux critique lorsque la vitesse tangentielle croît (figure 5).

Les résultats de simulation obtenus à partir de la courbe de pression osmotique sont présentés sur la figure 5. La figure 6 porte les profils de concentration en fonction de la distance à la membrane pour deux valeurs de flux autour du flux critique. On peut noter que la concentration augmente logiquement à proximité de la membrane. Lorsque le flux atteint le flux critique, la fraction volumique critique est atteinte à la surface de la membrane amenant le modèle à conclure à la formation d'un dépôt. La formation du dépôt est donc modélisée comme la conséquence directe de l'évolution de la concentration de polarisation. Cette constatation accentue l'intérêt des mesures de pression osmotique, propriétés de la suspension régissant la polarisation de concentration.

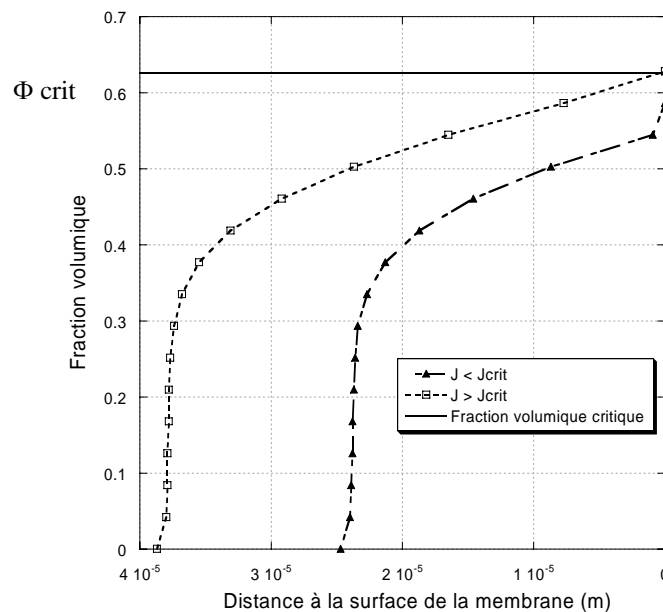


Figure 6. Comparaison du profil de concentration simulé en fonction de la distance à la surface de la membrane en sortie de module, pour deux valeurs de flux autour du flux critique.

Sur la figure 5, il apparaît que les flux critiques expérimentaux et simulés suivent la même courbe de tendance, cependant la simulation surestime le flux critique. Plusieurs éléments peuvent être la cause de cette sur estimation. L'une des causes peut être la distribution de taille des particules. En effet, les particules de grosses tailles, étant ici moins stables que les petites, auront tendance à créer un dépôt pour un flux plus faible que les petites. D'autre part, des flux localement plus importants que le flux moyen (dus à une inhomogénéité de la membrane) peuvent entraîner un colmatage qui ne serait pas observé avec une membrane de perméabilité homogène. Sur la figure 7, on voit une importante différence d'épaisseur locale de la couche active qui entraîne une croissance du dépôt différente.



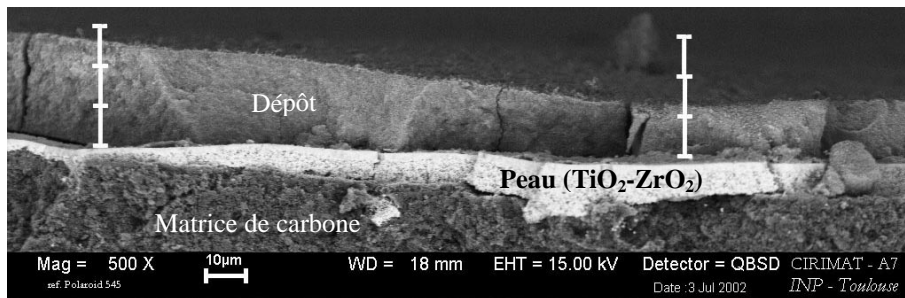


Figure 7. Photo MEB (en coupe) de la membrane sur laquelle est déposé un dépôt de particules de latex ; on observe de bas en haut la matrice, la peau active, et le dépôt.

## CONCLUSIONS

Il a été présenté une méthode et un banc de filtration qui, associé à un traitement de données adapté, permet de déterminer expérimentalement de façon précise le flux critique. Cette méthode peut être utilisée afin de connaître la filtrabilité d'une suspension vis-à-vis d'une membrane donc de choisir soit un couple membrane fluide le plus adapté pour filtrer une solution, ou des conditions opératoires permettant de limiter le nettoyage de la membrane. D'autre part une méthode de caractérisation macroscopique (par le biais de la pression osmotique) permet d'alimenter un modèle basé sur un bilan de matière bidimensionnel. La comparaison montre que le flux critique simulé à partir des mesures de  $\pi=f(\phi)$  et l'expérience sont du même ordre de grandeur et suivent une même tendance. Cependant le modèle surestime les flux critiques mesurés expérimentalement. Il paraît actuellement important d'exploiter et d'intégrer dans les simulations la possibilité qu'il existe une distribution de flux critique provenant de réalités physiques : l'existence d'une distribution de taille sur une population de particules monodisperse et des différences locales de perméabilités dans les membranes.

## REFERENCES

- [1] Einstein, A. (1956). In R. Furth (Ed.), New York: Dover Publications.
- [2] Jönsson, A. S., & Jönsson, B., Journal of Colloid Interface Science, 180, (1996)
- [3] Bacchin, P., Aïmar, P., & Sanchez, V. (1995), A.I.Ch.E. Journal, 41(2), 368-376.
- [4] Bacchin P, Si-Hassen D., Starov V., Clifton M.J., Aïmar P., Chemical Engineering Science, 57 (2002), 77-91.
- [5] Rene F, Lalonde M., Journal of Membrane Science, 56 (1991), 29-48.
- [6] Espinasse B, Bacchin P., Aïmar P., Desalination, 146 (2002), 91-96.
- [7] Chen V, Fane A.G., Madaeni S., Wenten I.G., Journal of Membrane Science, 125 (1997), 109-122.
- [8] Wu DX, Howell J.A., Field R.W., Journal of Membrane Science, 152 (1999), 89-98.
- [9] Bonnet-Gonnet C, Belloni L., Cabane B., Langmuir, 10 (1994), 4012-4021.