



HAL
open science

Simulation du transport de particules dans la structure poreuse d'une membrane de filtration

Quentin Derekx, Damien Veyret, Karl Glucina, Patrice Bacchin, Philippe Moulin

► **To cite this version:**

Quentin Derekx, Damien Veyret, Karl Glucina, Patrice Bacchin, Philippe Moulin. Simulation du transport de particules dans la structure poreuse d'une membrane de filtration. CFM 2009 - 19ème Congrès Français de Mécanique, Aug 2009, Marseille, France. hal-03390810

HAL Id: hal-03390810

<https://hal.science/hal-03390810>

Submitted on 21 Oct 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.

Simulation du transfert de matière dans les membranes à l'échelle microscopique

Q. DEREKX ^(a), D. VEYRET ^(c), K. GLUCINA ^(d), P. BACCHIN ^(a), P. MOULIN ^(b)

^aLaboratoire de Génie Chimique (UMR 5503), Université Paul Sabatier 31062 Toulouse Cedex 9, France

^bUniversité Paul Cézanne Aix Marseille, Laboratoire de Mécanique, Modélisation et Procédés Propres (M2P2 – UMR-CNRS 6181), Europôle de l'Arbois, BP 80, Bâtiment Laennec, Hall C, 13545 Aix en Provence Cedex 04, France

^cPOLYTECH Marseille, (CNRS-UMR 6595) Technopôle de Château-Gombert, 5 rue Enrico Fermi, 13453 Marseille Cedex 3, France

^dSuez Environnement, CIRSEE, Pôle Eau Potable, 38, rue du Président-Wilson, 78230 Le Pecq, France

Résumé :

Actuellement, la description des procédés membranaires est principalement macroscopique, et ainsi, manque de précision. De ce fait, la connaissance de l'écoulement au niveau des pores est de première importance. Toutefois, cette échelle microscopique est difficilement accessible par voie expérimentale et par simulation numérique. Dans cette étude, des milieux poreux tridimensionnels complexes sont générés de façon aléatoire ou bien à partir de visualisations expérimentales obtenues par tomographie par exemple, puis les écoulements sont calculés en prenant en compte la capture des particules par effet stérique ou par adhésion. Le travail suivant s'attache à simuler le comportement d'une suspension passant au travers d'une membrane en reprenant les conditions opératoires d'une microfiltration à pression constante. La membrane modélisée possède les mêmes caractéristiques (porosité, perméabilité, taille des pores) que celle utilisée lors de l'expérience. La granulométrie est répartie en plusieurs classes de particules. La capacité de la suspension à adhérer à la surface membranaire est prise en compte en utilisant la théorie d'Hamaker. Les résultats numériques permettent de suivre l'évolution des caractéristiques de la membrane au cours du temps, notamment la perméabilité, ainsi que le flux de perméat. La comparaison de ces résultats avec les données expérimentales et leur interprétation vis-à-vis des mécanismes de colmatage prédominants (blocages de pores, formation d'un gâteau) est une première finalité. Le second intérêt de cette étude réside en la possibilité de mieux appréhender les mécanismes de colmatage à l'échelle d'un pore, tels que les transitions entre les différents régimes de colmatage ainsi que les moteurs de chaque mécanisme. Cette étude en rupture avec les précédentes études permet ainsi d'affiner les modèles empiriques sur le colmatage.

Abstract:

Currently, the description of membrane separation processes is mainly macroscopic, and has also a lack of accuracy. However, these difficulties results from a complex interplay between physico-chemical properties and hydrodynamics occurring at a microscopic scale where the membrane and the dispersion exhibit complicated properties. In these conditions, it is often difficult to reach reliable data both from experiments and from numerical simulations. Our work concerns the simulation at the microscopic scale of the behavior of particles flowing through the 3D structure of a membrane. These simulations are made to represent an experiment of a bentonite filtration at constant pressure. The three-dimensional porous media is built either randomly (but by keeping the same macro-characteristics - porosity, permeability, pore size - than the membrane) or reconstructed from visual experiments (like 3D tomography). The filtered particles are divided in several classes depending on their size and on the capacity of the suspension to stick to the membrane surface which is considered by using the Hamaker theory. The flow field is solved together with

the particle motion. The effect of captured particles on hydrodynamics is accounted. The results yield the evolution of the membrane characteristics, notably the permeability and the filtration flux, over time. The study allows simulating the different mechanisms of pore clogging and cake formation. The transition between these mechanisms will be analyzed and the dependence to the physico-chemical properties (Hamaker), the hydrodynamics and the 3D structure will be discussed. The comparison of these results with experimental data will be presented and interpreted through predominant fouling mechanisms. The interest of this study stays in the possibilities to have a better understanding of the fouling mechanisms at pore scale, of the transitions between the different fouling rate and of the motors behind each mechanism. This study in break with previous studies allows then an improvement of the empiric models of the fouling.

Mots clefs : microfiltration, colmatage, Simulation numérique

1. Introduction

Depuis de nombreuses années, la microfiltration est utilisée dans l'industrie agroalimentaire et pour le traitement des eaux. L'emploi de ce procédé est toutefois limité, principalement par le colmatage, nécessitant de fréquents lavages. Ce phénomène est principalement composé de deux mécanismes : le colmatage en profondeur et la formation d'un gâteau (dépôt à la surface). Le premier n'a été que peu étudié car la complexité de la structure poreuse rend l'étude plus difficile. Ainsi, la formation d'un gâteau a été majoritairement étudiée. Ces différents travaux ont été réalisés par simulation numérique en se basant sur un assemblage de particules sphériques en prenant la mesure de l'évolution de l'épaisseur comme base de comparaison [1-2]. Lee a ajouté les forces de cisaillement pour le cas de la filtration tangentielle. Cette modélisation permet de visualiser l'influence de différents paramètres que sont la taille des particules, leur concentration, la pression transmembranaire et la vitesse de recirculation. Toutefois, ce modèle ne peut pas prendre en compte des solutions polydisperses. A ce colmatage s'ajoute une couche dite de polarisation résultant du gradient de concentration entre le gâteau et le milieu. Cette zone est dirigée par l'opposition entre la convection et la diffusion pour des particules de taille supérieure ou de l'ordre du micron, cas de la présente étude. Plusieurs modélisations ont été réalisées en incluant la diffusion induite par le cisaillement [3-4]. Ces travaux restent cependant limités par le manque de connaissance du comportement du coefficient de diffusion à forte concentration. Pour éviter cette restriction, Bowen est parti d'un bilan des forces sur une particule [5]. Déjà bien complexe, cette modélisation rigoureuse est réalisée pour une filtration frontale, limitant ainsi sa polyvalence. Connaissant les phénomènes rencontrés et dans un souci de relier simplement le flux à la pression transmembranaire, des modèles plus globaux ont été développés. Il en existe trois principaux qui sont le modèle du film, le modèle du gel et le modèle de la pression osmotique. La principale lacune de ces modèles est la nécessité de connaître la valeur de coefficients uniquement obtenus par l'expérimental, interdisant ainsi de mettre un caractère prédictif à ces modèles. Cependant, le modèle de la pression osmotique est très polyvalent. De plus, Jönsson et Jönsson [6] ont amélioré ce modèle afin qu'il puisse, entre autres, mieux incorporer les interactions électrostatiques. En utilisant cela, la simulation de filtration de particules de latex dans une fibre creuse a pu être réalisée et montre l'importance de l'hydrodynamique dans un procédé de filtration [7]. Toutefois, bien que l'hydrodynamique dans les procédés de filtration semble bien connue, l'écoulement à proximité et dans la membrane demeure difficile à connaître à cause de l'échelle microscopique et de la complexité de la structure poreuse. La description de celle-ci permettrait d'améliorer les modèles macroscopiques.

Cette modélisation en rupture vis-à-vis des précédentes études se positionne clairement à l'échelle microscopique. Dans un premier temps, la variation de plusieurs paramètres permettra de présenter les potentialités de cette étude. L'objectif final sera de simuler la filtration d'une suspension polydispense de bentonite.

2. Matériels et Méthodes

2.1. Modèle

Les simulations ont été réalisées avec le logiciel GeoDict, spécifique à la modélisation de milieux poreux. Le volume créé est un parallélépipède maillé régulièrement en cubes élémentaires, appelés voxels, dont la taille des arêtes est fixée. Ensuite, chaque voxel est considéré comme un élément fluide ou solide selon son taux d'occupation en solide permettant ainsi de représenter la complexité de la structure poreuse. Utilisant la méthode des différences finies, le programme permet de prendre en compte les forces hydrauliques, les interactions électrostatiques et le mouvement brownien. Il traite également une condition d'adhérence avec constante d'Hamaker [8], énergie attractive de la surface, et un coefficient de restitution compris entre 0 et 1 pour prendre en compte la perte d'énergie due au choc. Ainsi, en plus de l'interaction de l'hydrodynamique sur les particules, le mouvement brownien est simulé. De plus, les interactions électrostatiques ont été négligées étant donné que la taille de particules est de l'ordre du micron. Puis, pour la condition d'adhésion à la surface membranaire, la constante d'Hamaker a été fixée à 10^{-20} , valeur obtenue par Novich et Ring [9] pour les argiles.

Le logiciel utilisé permet de générer des milieux poreux de manière aléatoire en imposant une certaine porosité. De cette façon, il a été possible de créer une structure possédant la même porosité, la même épaisseur et la même perméabilité intrinsèque (à 2% près) que la membrane expérimentale. La taille de base du maillage a été fixée à $0,45 \mu\text{m}$. Ainsi, la surface modélisée n'est que de $0,041 \text{ mm}^2$ mais cette limitation s'explique par la taille et le nombre de mailles ($67 \cdot 10^6$). Concernant les conditions limites du modèle, les surfaces fonctionnent par paire de cotés opposés. Sur l'axe de la filtration se trouvent l'entrée de vitesse (imposition du flux de perméation) et la sortie. Sur les deux autres axes, les parois ont des conditions de périodicité : les particules sortant d'un coté, entrent du coté opposé. Ainsi, il est possible d'extrapoler l'échantillon à l'ensemble de la membrane.

En entrée, deux paramètres doivent être fixés : la vitesse et le nombre de particules envoyées. De cette façon, il est nécessaire de travailler par pas de volume pour contrôler la concentration en soluté. Etant donné la faible surface modélisée et la nécessité d'envoyer un échantillon représentatif de particules, ce pas de volume a été fixé à $36,7 \text{ mL}$ et le nombre de particules envoyées à 80.

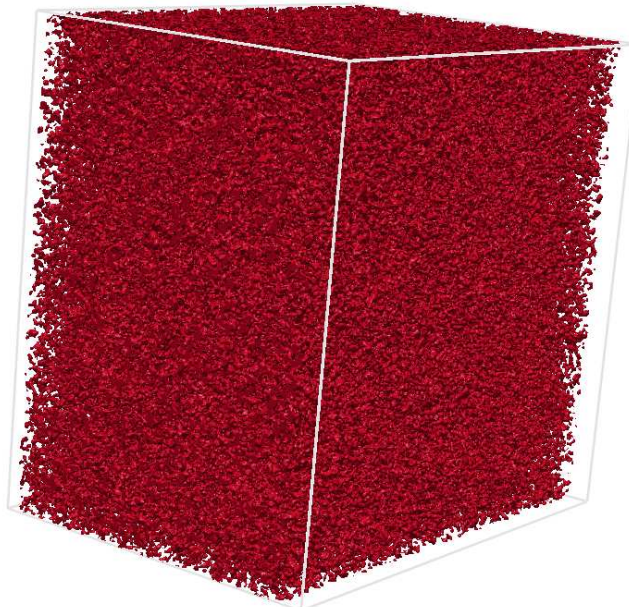


FIG. 1 – Visualisation de la membrane modélisée $450 \times 450 \times 330$

Les premières simulations porteront sur l'étude de l'influence de trois paramètres : la taille des particules, la constante de Hamaker et le coefficient de restitution. Les différentes valeurs testées sont présentées dans le TAB 1.

TAB. 1 – Valeurs des paramètres testées

Paramètres	Plage étudiée
Taille des particules (μm)	[0,5-1]
Constante de Hamaker (J)	$[10^{-21}-10^{-19}]$
Coefficient de restitution (%)	[0-100]

2.2. Conditions opératoires de l'expérience

La cellule de filtration est une cellule Amicon, commercialisée par Millipore, dont la section de filtration circulaire est de 44,5 mm de diamètre. L'aire de membrane effective est de 13,4 cm² et le volume de la cellule est de 50 mL. Cette cellule est alimentée par un réservoir sous pressions. La membrane utilisée, dont les caractéristiques sont données dans le TAB. 2, est en ester de cellulose et commercialisée sous le nom de MF-MilliporeTM par Millipore.

TAB. 2 - Caractéristiques de la membrane utilisée

Diamètre de pore nominal (μm)	Epaisseur (μm)	Perméabilité intrinsèque (m ²)	Porosité (%)
5	135	$1,45 \cdot 10^{-13}$	84

La solution de bentonite utilisée pour la filtration a été obtenue après quatre décantations successives pour éviter tout phénomène de décantation lors de l'expérience. Au final, la solution de bentonite a un diamètre moyen pondéré de 0,51 μm environ comme le montre la FIG 2.

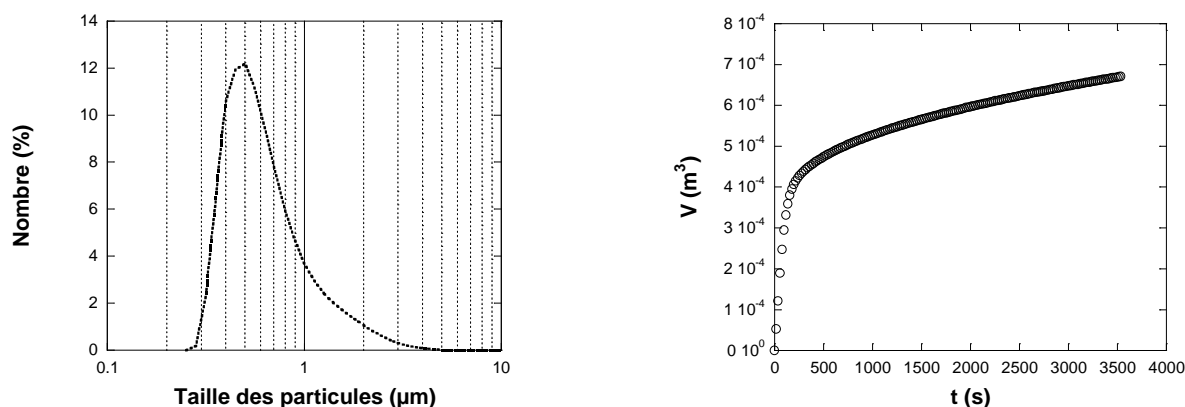


FIG. 2 – Distribution granulométrique et résultats de la filtration

L'expérience a été réalisée à pression transmembranaire constante $PTM = 0,3$ bar et pour une concentration en de bentonite $C_0 = 10^{-2}$ g.L⁻¹. Ces particules sont des plaquettes dont l'ordre de grandeur de la face basale est le micromètre et dont le rapport dimension basale/épaisseur est de 100 environ. Toutefois, dans la modélisation présentée, les particules de bentonite sont considérées comme des sphères compactes polydisperses. Elles sont réparties dans 28 classes de taille possédant chacune une probabilité d'apparition établie selon la FIG 2.

3. Résultats

En premier lieu, des simulations ont donc été réalisées avec des solutions monodisperses. Elles ont pour but de situer les zones où se déposent préférentiellement les particules selon leur taille et ainsi, de caractériser la

membrane modélisée. Les résultats sont présentés sur la FIG 3 pour trois diamètres de particules : 0,5 μm , 1 μm et 2 μm .

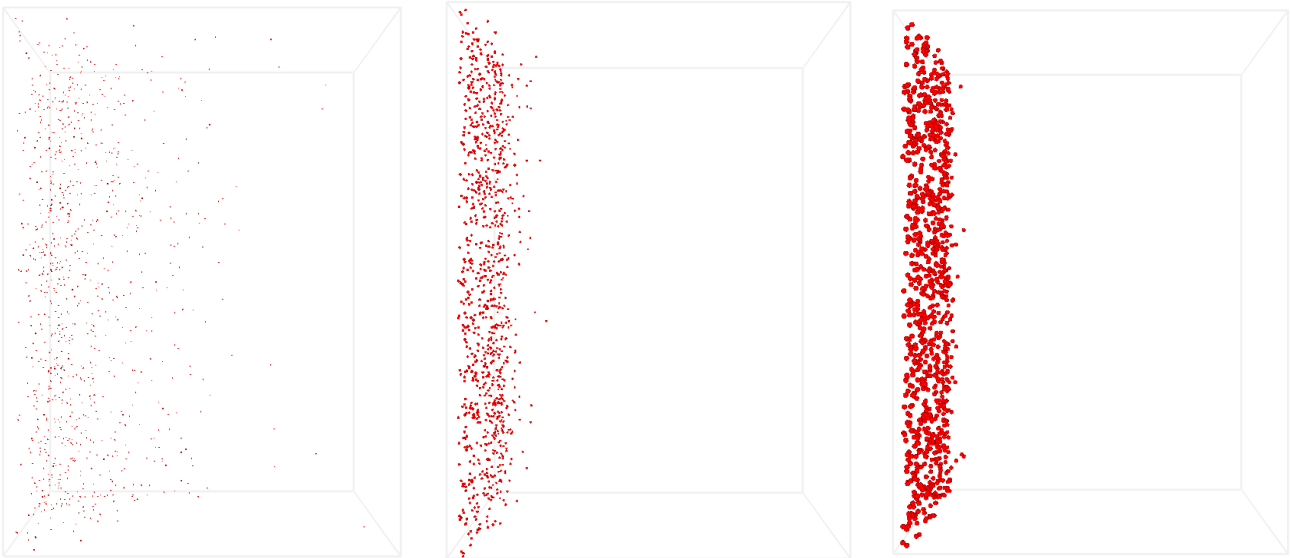


FIG. 3 – Zones de déposition des particules ($d_p = 0,5 - 1 - 2 \mu\text{m}$)

Les visualisations de côté de la FIG 3 permettent de bien observer la pénétration des particules dans la membrane, invisible ici. Pour un diamètre de 0,5 μm , les particules vont se déposer dans toute l'épaisseur de la membrane, bien que la majorité de celle-ci soit concentrée dans la première moitié. Puis, à l'opposé, les particules de 2 μm de diamètre restent à la surface et commencent à former un gâteau. Il est donc possible d'en conclure que pour des particules de diamètre compris entre 0,5 et 2 μm , le colmatage en profondeur est prépondérant. La répartition des particules selon la profondeur a été étudiée et détaillée sur la FIG 4.

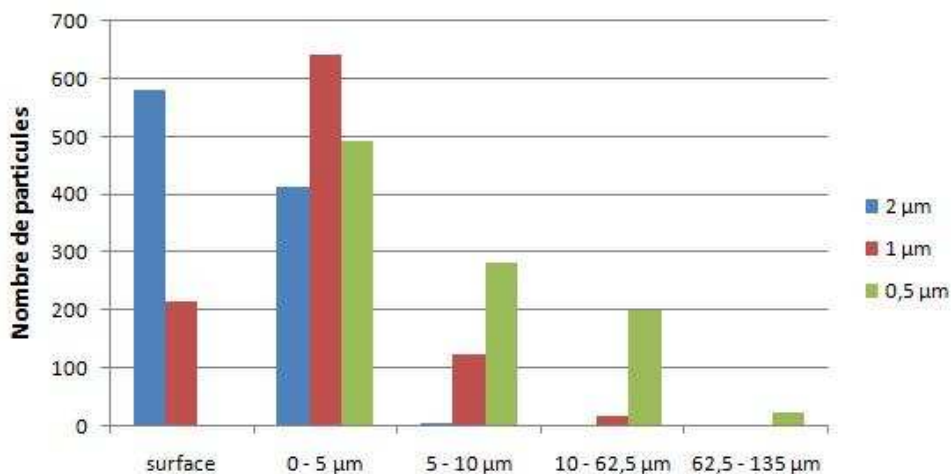


FIG. 4 – Répartition des particules selon l'épaisseur

Ces résultats confirment bien les affirmations faites ci-dessus. Il est également possible de remarquer que quelque soit la taille des particules, seul la première moitié de l'épaisseur (0 – 62,5 μm) est réellement touché par ce dépôt.

4. Conclusion

Le modèle présenté ici montre un grand potentiel pour mieux comprendre les phénomènes se produisant dans et sur la membrane. Il prend en compte la multitude de paramètres que sont l'hydrodynamique, le mouvement brownien, la condition d'adhésion à la structure et la complexité de la géométrie du milieu poreux. Ainsi, des premiers résultats ont permis de décrire l'influence de différents paramètres et ceux concernant la taille des

particules sur la localisation du colmatage pour la membrane modélisée sont présentés ci dessus. Toutefois, la simulation de la filtration de bentonite n'a pas encore pu être bien modélisée. En effet, il existe principalement trois facteurs possédant une forte incertitude : la tortuosité, les paramètres du modèle d'Hamaker et le nombre de pores à la surface de la membrane. De plus, la non-sphéricité de la bentonite ajoute une difficulté supplémentaire. La prise en compte de ces facteurs et l'étude du couplage des différents paramètres de simulation doivent permettre la représentation de l'expérience visée.

References

- [1] Kawakatsu, T. (1995). "Three-dimensional simulation of random packing and pore blocking phenomena during microfiltration." *Desalination* 101: 203-209.
- [2] Lee, Y. (1998). "Modeling of flux decline during crossflow ultrafiltration of colloidal suspensions." *Journal of Membrane Science* 149: 181-202.
- [3] Huang, L. (1999). "Finite element analysis as a tool for crossflow membrane filter simulation." *Journal of Membrane Science* 155: 19-30.
- [4] Wiley, D. E. (2003). "Techniques for computational fluid dynamics modelling of flow in membrane channels." *Journal of Membrane Science* 211: 127-137.
- [5] Bowen, W. R. (1995). "Dynamic ultrafiltration model for charged colloidal dispersions : a Wigner-Seitz cell approach." *Chemical Engineering Science* 50: 1707-1736.
- [6] Jönsson, A.-S. (1996). "Ultrafiltration of colloidal dispersions - A theoretical model of the concentration polarization phenomena." *Journal of Colloid and Interface Science* 180: 504-518.
- [7] Bessiere, Y. (2008). "Numerical simulation of colloid dead-end filtration : Effect of membrane characteristics and operating conditions on matter accumulation." *Journal of Membrane Science* 313: 52-59.
- [8] Hamaker, H. C. (1937). "The London-Van der Waals attraction between spherical particles." *Physica* 4(10): 1058-1072.
- [9] Barringer E. A. (1984). "Determination of colloid stability using photon correlation spectroscopy", *Journal of Colloid and Interface Science* 100: 584-586
- [10] Grenier, A. (2005). *Méthodes pour l'identification et la caractérisation de mécanismes de colmatage en filtration frontale*. Génie des procédés. Toulouse, Université Paul Sabatier.