

# Traitement des eaux usées industrielles par congélation sur paroi froide : modélisation de la convection naturelle

Thouaïba HTIRA-EZZI<sup>1\*</sup>, Claudia COGNE<sup>1</sup>, Emilie GAGNIERE<sup>1</sup>, Denis MANGIN<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés (LAGEP)  
(UMR-CNRS 5007, 43 Boulevard du 11 Novembre 1918, 69622 Villeurbanne Cedex)

\* (auteur correspondant : [htira@lagep.univ-lyon1.fr](mailto:htira@lagep.univ-lyon1.fr))

**Résumé-** Dans le cadre d'une étude portant sur le traitement d'eaux usées par congélation sur paroi froide, nous avons développé avec le logiciel COMSOL un modèle de transferts thermiques d'une solution aqueuse comprise dans un espace annulaire pour favoriser la compréhension des phénomènes et le changement d'échelle. Un écart de température ( $\Delta T$ ) entre la paroi interne de la solution et sa paroi externe est généré, favorisant des mouvements de convection naturelle. Le modèle proposé tient compte des propriétés thermophysiques de la solution, des conditions opératoires du procédé ( $\Delta T$ ) et des courants de convection. Nous avons mis en évidence l'influence du nombre de Rayleigh sur le transfert thermique ainsi que sur le champ dynamique et nous avons proposé des corrélations donnant le nombre de Nusselt moyen au niveau de la paroi froide latérale extérieure.

## Nomenclature

$C_p$	capacité calorifique, $J/(kg.K)$	$T_h$	température de la double enveloppe côté solution, $K$
$F$	force volumique, $N/m^3$	$u$	vecteur vitesse, $(m/s)$
$g$	pesanteur, $m/s^2$	<i>Symboles grecs</i>	
$H$	distance entre les deux plaques, $m$	$\beta$	coefficient de dilatation thermique $K^{-1}$
Nu	nombre de Nusselt	$\lambda$	conductivité thermique, $W/(m.K)$
$p$	pression, $Pa$	$\kappa$	diffusivité thermique, $m^2/s$
$Q$	flux de chaleur apporté au fluide, $W/m^2$	$\mu$	viscosité dynamique, $Pa.s$
$T_c$	Température à l'interface, $K$	$\rho$	masse volumique, $kg/m^3$

## 1. Introduction

Le traitement de l'eau par congélation est un procédé peu exploré [1]. Il lui est en effet généralement reproché de produire une glace de faible pureté. Cependant plusieurs travaux ont permis de remettre sensiblement en cause ce résultat [2,3]. Une étude menée dans notre laboratoire sur le dessalement de l'eau de mer par congélation a également montré qu'une conduite optimisée du procédé permettait d'obtenir des puretés de glace très correctes [4,5]. Ces travaux relancent la recherche dans le domaine du traitement des effluents par congélation avec un double intérêt environnemental : d'une part concentrer les polluants dans la saumure permettant ainsi de limiter la consommation énergétique lors de leur incinération, d'autre part récupérer un effluent aqueux conforme aux normes en vigueur.

Dans ce domaine, la modélisation n'a été que très peu approfondie. De plus, dans la littérature, peu de chercheurs se sont penchés sur cette approche. C'est une des raisons pour laquelle nous avons développé un modèle de changement de phase solide liquide de solutions modèles à l'aide du logiciel de simulation COMSOL. L'objectif à terme est d'optimiser la conduite du procédé pour obtenir une glace de pureté conforme aux normes de rejet en un seul étage de congélation.

Le modèle s'articule autour de deux approches bien distinctes :

- d'une part, la modélisation du changement de phase liquide/solide avec une épaisseur de glace croissante au cours du temps ;
- d'autre part, la modélisation des transferts thermiques de la solution comprise dans un espace annulaire à deux températures de parois différentes.

Lors de l'étude sur le dessalement de l'eau de mer sur le même pilote [4,5], des mouvements de convection ont été mis en évidence lors des expériences. En effet, le fluide se trouve dans une cavité différentiellement chauffée entre une paroi froide et une autre chaude, ce qui entraîne son mouvement sous forme de boucle de convection. Ces mouvements sont importants en congélation puisqu'ils permettent une régénération de la solution à l'interface liquide/solide, augmentant ainsi la pureté de la glace à la fin du procédé.

Dans ce papier, nous présentons une étude préliminaire au modèle complet, la mise en évidence des phénomènes de convection naturelle en régime stationnaire pour une solution d'eau. L'objectif de cette étude est à terme de mettre en évidence l'influence du nombre de Rayleigh sur le transfert thermique et sur le champ dynamique ainsi que de proposer des corrélations donnant le nombre de Nusselt moyen au niveau de la paroi du réacteur pour la solution étudiée. Après une présentation du pilote de congélation, puis la description de ce modèle numérique simplifié réalisé sous COMSOL, nous déterminerons les conditions opératoires favorisant les phénomènes de convection naturelle.

## 2. Présentation du système

Le montage expérimental (Figure 1) est composé d'une cuve cylindrique double enveloppée en verre dans laquelle est plongé un doigt de gant en acier inoxydable. On peut comparer le dispositif à un échangeur faisceau-calandre mono faisceau. Deux bains thermostatés sont utilisés pour ajuster la température des fluides frigoporteurs circulant respectivement dans le doigt de gant et dans la double enveloppe de la cuve. Les diamètres du tube cylindrique et de la cuve sont respectivement de 2 et 4 cm et conduisent à un espace annulaire de 1cm d'épaisseur dans lequel la glace va croître. La hauteur du tube couverte par la glace est de 34 cm. L'extrémité inférieure du tube est recouverte de ruban téflon afin d'éviter une cristallisation prématurée dans cette zone. Une caméra vidéo équipée d'un vidéo zoom est fixée horizontalement à quelques centimètres de l'installation, pour le suivi de la croissance de la glace dans l'espace annulaire.

Le système peut fonctionner selon deux modes, mode statique (solution stagnante dans le réacteur) ou mode dynamique (grâce à une boucle de recirculation externe). Dans cette étude, nous nous intéresserons uniquement au mode statique.

Afin de garantir une croissance homogène de la glace en condition statique, il convient de maîtriser les conditions opératoires du procédé notamment les gradients de températures imposés coté doigt de gant (zone 1, Figure 1) et coté double enveloppe (zone 2, Figure 1). Dans la suite de l'étude, nous nous sommes focalisés sur la compréhension des phénomènes de convection naturelle dans la solution (zone 3, Figure 1) induits par le gradient de température entre l'interface liquide/solide (zone 4, Figure 1) et la paroi double enveloppée de la cuve (zone 2, Figure 1).

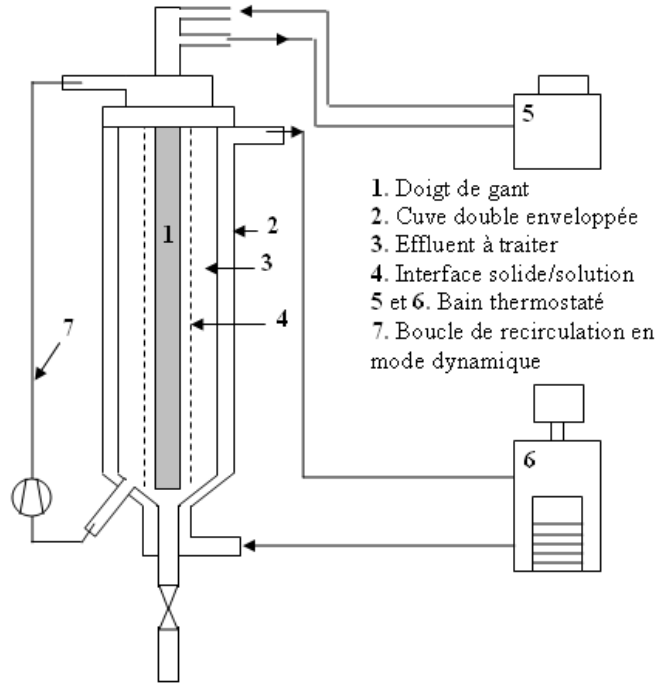


Figure 1 : schéma du dispositif expérimental.

### 3. Description du modèle numérique

#### 3.1. Présentation du modèle

Dans cette étude, nous nous sommes placés en régime stationnaire (l'épaisseur de glace est donc constante tout au long du problème), avec une couche de glace d'épaisseur négligeable (ce qui correspond à l'état de la glace au début du procédé de congélation). La solution étudiée a les propriétés thermophysiques de l'eau pure. En considérant qu'à l'interface solide-liquide l'équilibre thermodynamique est établi, la température d'interface est donc la température d'équilibre notée  $T_c$ , soit 273,15K pour cette étude.

Côté paroi externe latérale, on appelle  $T_h$  la température de la solution côté double enveloppe et on note  $\Delta T$  la différence de température imposée entre les deux parois latérales de la solution :

$$\Delta T = T_h - T_c \quad (1)$$

La solution contenue dans l'espace annulaire est maillée en 2D axi-symétrique afin d'alléger le temps de calcul, ce qui réduit l'espace annulaire au schéma suivant (Figure 2).

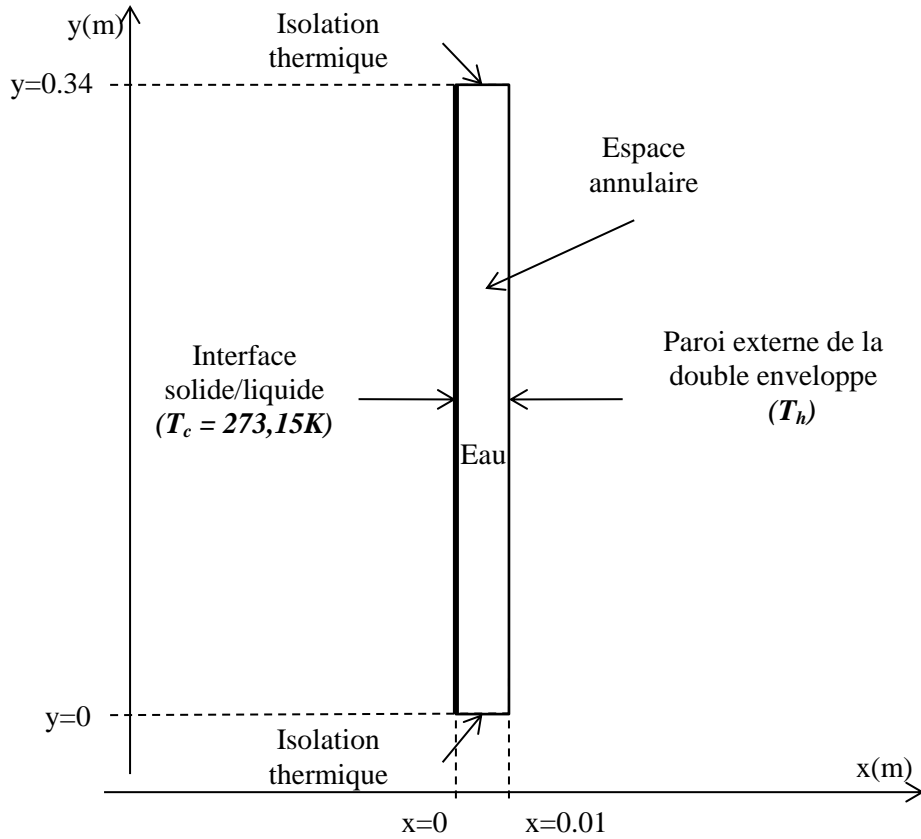


Figure 2 : géométrie et conditions aux limites du modèle de simulation.

### 3.2. Présentation des paramètres et expressions utilisées

Le gradient de température existant entre les deux parois renfermant la solution engendre une variation de la masse volumique du fluide. Cette variation provoque des mouvements de convection au sein de la solution. Pour modéliser ce phénomène, nous utilisons l'équation de Navier-Stokes. En effet, celle-ci contient un terme qui prend en compte la variation de la masse volumique du fluide. Nous rappelons son expression en stationnaire :

$$\begin{cases} \rho(u \cdot \nabla)u = -\nabla p + \nabla \cdot \mu(\nabla u + (\nabla \cdot u)^T) - \frac{2}{3}\nabla(\mu(\nabla \cdot u)) + \rho g \\ \text{div}(u) = 0 \end{cases} \quad (2)$$

Cette expression traduit la conservation de la quantité de mouvement à laquelle nous devons coupler l'équation de bilan thermique (en stationnaire):

$$\rho C_p u \cdot \nabla T - \nabla \cdot (\lambda \nabla T) = 0 \quad (3)$$

Nous supposons que l'influence de la variation n'est prise en compte que par l'intermédiaire des forces de volume agissant sur le système, l'eau étant considérée comme un fluide newtonien et incompressible. La masse volumique de la solution, dans le terme des forces de volume, varie donc linéairement avec la température, proportionnellement au coefficient de dilation thermique ( $\beta$ ) :

$$\rho = \rho_0[1 - \beta(T - T_0)] \quad (4)$$

Avec ces deux équations ainsi que les conditions aux limites (indiquées sur la Figure 2), nous pouvons modéliser le système à l'aide du logiciel COMSOL pour différents gradients de température.

La réponse du système nous permet d'avoir le champ de température et de vitesse dans la solution, mais aussi le flux de chaleur ( $Q$ ) transporté par le fluide sur la hauteur de la paroi ( $H = 34\text{cm}$ ).

Ces résultats permettent d'en déduire, en fonction du gradient de température  $\Delta T$ , l'évolution des nombres adimensionnels tels que :

- le nombre de Nusselt local qui s'exprime à partir du flux pariétal :

$$Nu = \frac{H}{\Delta T} \left( \frac{dT}{dx} \right)_p \quad (5)$$

- le nombre de Nusselt global à la paroi:

$$Nu = \frac{QH}{\lambda \Delta T} \quad (6)$$

- le nombre de Rayleigh

$$Ra = \frac{g\rho\beta\Delta TH^3}{\kappa\mu} \quad (7)$$

L'influence du nombre de Prandtl (caractéristique du fluide) et de la longueur adimensionnelle caractéristique de la géométrie n'est pas étudiée.

## 4. Résultats et discussions

### 4.1. Profil de température

Les résultats simulés montrent que plus l'écart de température entre les deux parois est important, plus le profil de température dans l'espace annulaire devient non linéaire.

En effet, pour de faible gradient thermique (Figure 3), le transfert thermique s'effectue essentiellement par conduction.

Pour un gradient de température intermédiaire de  $1^\circ\text{C}$  (Figure 4), à la même hauteur  $y = 0,03\text{m}$  (le choix de la hauteur est arbitraire), on note une rupture de pente dans le profil de température entre l'interface et la double enveloppe.

Enfin, pour de forts gradients thermiques (Figure 5), la variation de la masse volumique du fluide est telle que des mouvements de convection apparaissent dans la solution et modifient le profil de température. On note une croissance quasi linéaire quand on s'éloigne de la paroi froide ( $0 < x < 0,03$ ) et quand on s'approche de la paroi chaude ( $0,08 < x < 0,01$ ). Entre les deux abscisses, la solution a atteint sa température de cœur (environ  $275\text{K}$ ). Cette tendance est d'autant plus marquée que  $y$  est grand. Elle est due à un entrainement vers le haut (côté chaud) de solutions plus froides provenant des couches inférieures. Cette eau plus froide est « éjectée » de l'extérieur de la couche limite où elle redescend pour rejoindre son isotherme (présence d'un mouvement descendant).

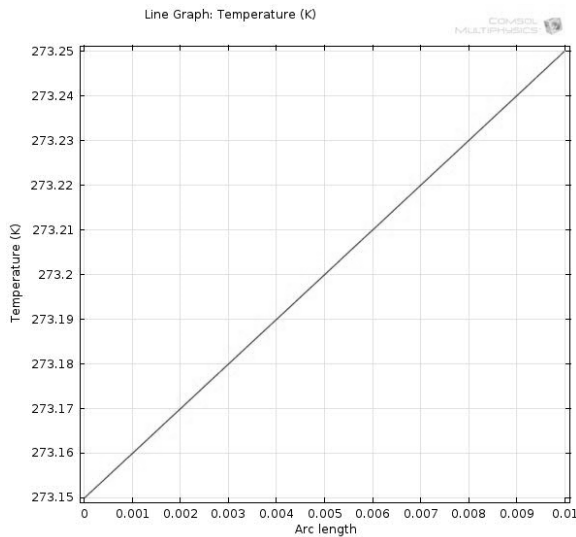


Figure 3 : profil de température ( $y=0,03m$ ) pour  $\Delta T=0,1K$

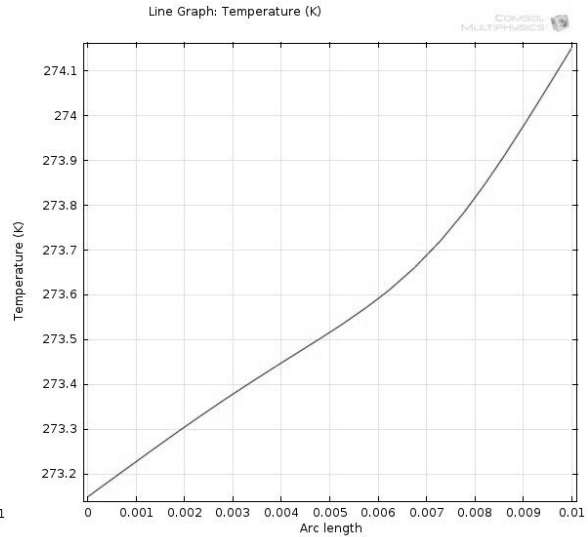


Figure 4 : profil de température ( $y=0,03m$ ) pour  $\Delta T=1K$

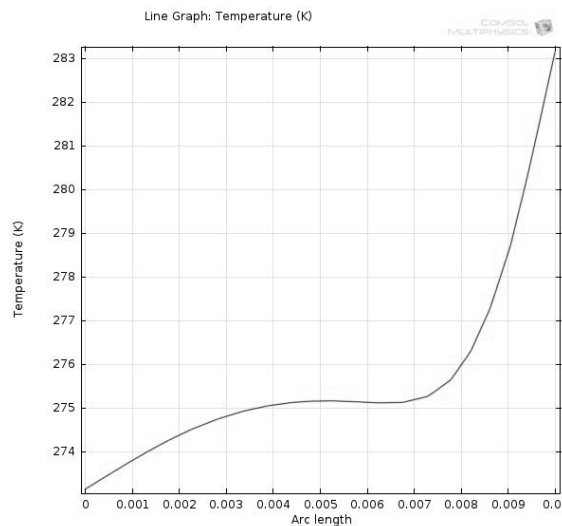


Figure 5 : profil de température ( $y=0,03m$ ) pour  $\Delta T=10K$

## 4.2. Champ de vitesse

Le tracé des champs de vitesse sur l'ensemble du domaine, illustré sur les figures 6 et 7, nous montre que le gradient de température provoque la mise en mouvement du fluide et que, les vitesses les plus importantes sont localisées au niveau des parois latérales. En traçant les vecteurs vitesses nous observons une boucle de convection sur l'ensemble du système, ascendante côté paroi chaude et descendante à l'interface glace/solution.

Notons que ces vitesses restent faibles, l'ordre de grandeur est  $10^{-3}$  m/s pour les vitesses les plus élevées correspondant au gradient thermique le plus importante ( $\Delta T=10K$ ) et un maximum  $10^{-6}$  m/s pour  $\Delta T=0, 1K$ . Nous avons choisi de zoomer sur le haut du dispositif afin de représenter la boucle de convection (Figure 6).

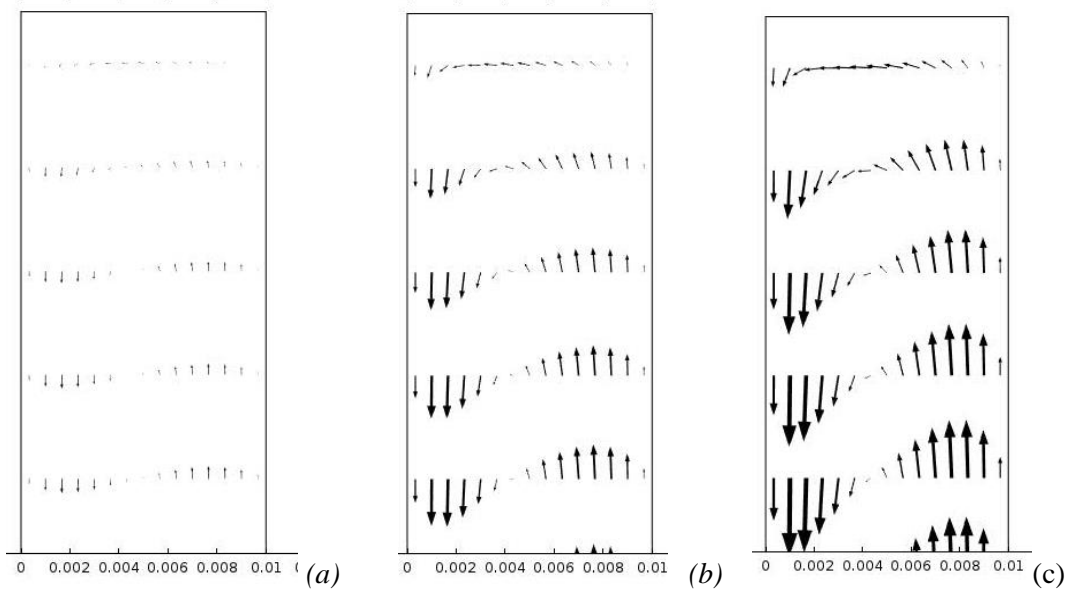


Figure 6 : Profil de vitesse du fluide. (a)  $\Delta T=0,1K$  ; (b)  $\Delta T=5K$  ; (c)  $\Delta T=10K$ .

### 4.3. Transfert de chaleur pariétal

Dans ce paragraphe, on s'intéresse aux transferts thermiques entre la solution et la paroi verticale de la double enveloppe pour trois gradients de température ( $\Delta T = 0,1K$  ;  $\Delta T = 1K$  ;  $\Delta T = 10K$ ).

Le tableau 1 présente le Nusselt global calculé avec la relation (6). On note une faible augmentation des nombres de Nusselt globaux en fonction des gradients de température.

$\Delta T$ (K)	$Nu_{global}$
0,1	0,99
1	1,16
10	2,5

Tableau 1 : Nombre de Nusselt global en fonction du gradient de température.

La figure 7 représente l'évolution du nombre de Nusselt local estimé à partir de la relation (5) en fonction de la cote  $y$ . Nous pouvons observer que lorsque le gradient de température  $\Delta T$  imposé est petit, le profil de température est linéaire et ce sur l'ensemble du système excepté les effets de bords. Ainsi le flux de chaleur apporté au fluide est constant entre le haut et le bas du système et donc le nombre de Nusselt l'est également. En revanche, lorsque  $\Delta T$  augmente, le profil du nombre de Nusselt,  $Nu(y)$  révèle un changement de régime non représenté par le nombre de Nusselt global. De ce fait, l'échange convectif est plus important en haut du dispositif d'étude.

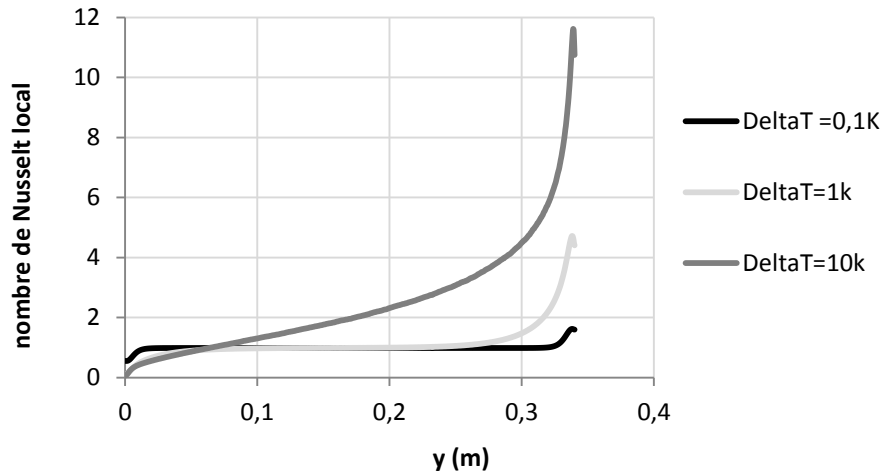


Figure 7 : Evolution du nombre de Nusselt à la paroi.

#### 4.4. Détermination du nombre de Rayleigh critique

Le nombre de Rayleigh critique est caractéristique du changement de régime. Nous avons tracé l'évolution du nombre de Nusselt en fonction du nombre de Rayleigh en coordonnées logarithmiques (Figure 8). Ce graphique montre que pour une valeur de Ra inférieure à  $10^3$  correspondant à un gradient de température de  $0,5^\circ\text{C}$ , le régime est purement conductif. Au-delà de  $10^3$ , le nombre de Nusselt est proportionnel à  $Ra^{0,13}$ .

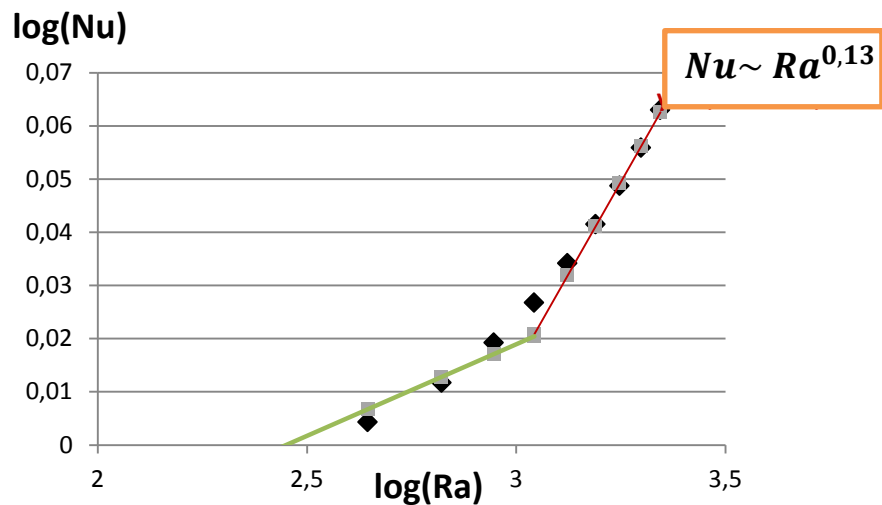


Figure 8 : Evolution du nombre de Nusselt pour différents nombre de Rayleigh.

Pour des configurations similaires, les valeurs trouvées dans la littérature de la puissance du nombre de Rayleigh sont de l'ordre de 0,25 [6]. La différence avec notre valeur (0,13) peut s'expliquer d'une part par un coefficient d'élanement  $H/L=34$  élevé dans notre cas, et d'autre part par des valeurs du nombre de Prandtl faibles ( $Pr \approx 13$ ) comparées à celles des travaux présentés par Lallemand ( $Pr = 50$ ) [6].

## 5. Conclusion et perspectives

Nous avons pu, dans un cas simplifié, montrer l'influence des mouvements de convection au sein d'une solution idéale grâce à la résolution du bilan thermique et du bilan de quantité de mouvement. Face aux contraintes appliquées, le fluide reste immobile où se met en mouvement, d'où l'intérêt de maîtriser les conditions opératoires.



Par la suite, il conviendra de valider expérimentalement les résultats obtenus en mettant en évidence les boucles de convection naturelle à l'aide de traceurs colorés.

De plus, le but désiré étant de modéliser le procédé complet de congélation afin de maîtriser la qualité, il faudra d'une part coupler au modèle présent les transferts de masse pour des solutions binaires (type eau/acétone) et d'autre part développer un modèle de croissance cristalline avec interface liquide/solide mobile.

### Références

- [1] Halde, R., 1980, Water Research 14, 6.
- [2] Wakisaka M., Y. Shirai, S. Sakashita, 2000, Chemical Engineering and Processing 40, 3.
- [3] Lorain O., P. Thiebaud, E. Badorc, Y. Aurelle, 2000, Water research 35, 2.
- [4] Rich A. *et al.*, 2012, Seawater desalination by dynamic layer melt crystallization: parametric study of the freezing and sweating steps, Journal of Crystal Growth, 342(1), 110-116.
- [5] Mandri Y. *et al.*, 2011, Parametric study of the sweating step in the seawater desalination process by indirect freezing, Desalination, 269(1-3), 142-147.
- [6] Lallemand M., Transfert en changement de phase, Techniques de l'ingénieur (2005).