

## SOLUÇÃO ANALÍTICA APROXIMADA PARA ESTIMATIVA DA VAZÃO TRANSMEMBRANA EM PROCESSOS DE MICRO E ULTRAFILTRAÇÃO

**Sérgio R. Fontes** - srfontss@fcav.unesp.br  
UNESP/FCAV - Via Prof. Paulo Donato Castellane, s/n  
14870-000 - Jaboticabal, SP, Brasil

**Resumo.** *Muitas investigações são encontradas a respeito do escoamento em processos de micro e ultrafiltração. A complexidade deste escoamento não permite o desenvolvimento de soluções analíticas exatas, porém soluções aproximadas são de grande interesse para o cálculo da vazão transmembrana no processo de concentração de soluções de macromoléculas (Zeman & Zydney, 1996). O escoamento através do módulo composto de tubos permeáveis é modelado a partir da formulação diferencial apresentada por Zydney (1997), reduzida neste trabalho como:  $(1-R^{10}) \frac{\partial W}{\partial X} = \frac{1}{Pe} \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left( R \frac{\partial W}{\partial R} \right)$ . Desta forma o problema torna-se análogo ao de entrada de Graetz, com perfis de velocidade homogêneos e poucos pistonados, e de acordo como o escoamento em regime turbulento. Uma solução analítica é apresentada como funções polinomiais, e os resultados comparados com experimentais da vazão transmembrana provenientes de soluções aguosas de gomas Guar e Xantana.*

**Palavras-chave:** *Modelagem matemática, Filtração tangencial, Transferência de massa, Goma Guar, Goma Xantana.*

### 1. INTRODUÇÃO

A utilização de membranas em processos de separação e concentração de soluções protéicas através de micro e ultrafiltração tem sido de grande importância na indústria de processos. As aplicações do tema incluem a separação e concentração de proteínas de queijo, proteínas de sangue animal, e concentração de sucos de frutas, dentre outras (Zeman & Zydney, 1996). Os processos de filtração tangencial consiste basicamente na circulação de fluido paralela à uma superfície permeável (membrana), sujeita a diferenças de pressão transmembrana maiores que 1 bar. Este processo é classificado como microfiltração, ultrafiltração ou nanofiltração, dependendo do tamanho do soluto a ser separado. Para tal classificação a literatura também se refere a intervalos de pressões transmembrana. No dimensionamento de processos aplicados de micro e ultrafiltração, a estimativa da vazão transmembrana em diversas condições operacionais é muito importante.

O acúmulo de soluto ou partículas na membrana conduz a um efeito conhecido como polarização (Zydney, 1997 e Guell & Davis, 1996), responsável pela diminuição do fluxo transmembrana, quando comparado com o fluxo de um fluido puro. Este fenômeno causa uma redução na força motriz termodinâmica, e o aumento da resistência hidráulica total (camada de polarização) em série com a membrana. Uma característica comum destes processos é a existência de um estado permanente do fluxo transmembrana, que é atingido quando a polarização de concentração alcança sua condição estacionária, podendo ser significativamente reduzida, em condições satisfatórias de efeitos cisalhantes do escoamento.

A literatura apresenta alguns resultados para descrição da vazão transmembrana de suspensões (Tanaka *et al.*, 1997). Para a micro e ultrafiltração, o mecanismo de transporte ao longo da membrana depende do gradiente de concentração junto da superfície, e interações específicas do tipo forças eletrostáticas entre moléculas, e efeitos hidrodinâmicos transmitidos pelo fluido. Este mecanismo é específico do material processado. Neste trabalho foi investigado o processo de concentração em condições de operação de pressão transmembrana para micro e ultrafiltração. Os materiais estudados no processo foram soluções aquosas dos aditivos alimentícios comerciais, goma Guar e goma Xantana (Whistler & BeMiller, 1993). É apresentado um modelo matemático simplificado para estimativa da vazão transmembrana em condições de micro e ultrafiltração. Os resultados teóricos do modelo indicam boa adequação aos experimentais.

## 2. MATERIAIS E MÉTODOS

### 2.1 Investigação experimental

A Fig. 1 apresenta esquematicamente o equipamento utilizado para análise experimental do mecanismo fluidodinâmico no processo de micro e ultrafiltração. A unidade experimental, fabricada pela Netzsch do Brasil, possui dois módulos com membrana tubular cerâmica de 100 cm de comprimento e 7 mm de diâmetro, com área superficial de 0,022 m<sup>2</sup> (indicado por 4 na Fig.1). O fluido de estudo é mantido em circulação a partir do tanque (1, Fig.1), através de uma bomba de deslocamento positivo (2, Fig.1). O retentado que sai do módulo retorna ao tanque de armazenamento, enquanto é medida a vazão transmembrana ou permeado em função do tempo.

A vazão pelo módulo de filtração foi monitorada por um rotâmetro (3, Fig.1), e a pressão transmembrana por manômetros. Foram realizados experimentos do processo de concentração de soluções aquosas de gomas Xantana e Guar (1000 ppm), com comportamento similar a uma solução protéica. Os experimentos foram conduzidos em temperatura constante de 30 ± 0,8 °C. O processo de concentração foi investigado através de medidas da vazão transmembrana durante 75 minutos. A membrana foi selecionada em função do valor nominal de corte do peso molecular, no valor de 5x10<sup>5</sup> daltons (ou 0,6 µm), compatível com o peso molecular dos produtos. O intervalo de velocidade média nos tubos foi correspondente ao regime de escoamento turbulento, com pressão transmembrana entre 3 bar (microfiltração) e 5 bar (ultrafiltração). O mecanismo de formação da camada de polarização específico de soluções de macromoléculas, foi tipicamente observado como na literatura (Bacchin *et al.*, 1995 e Fontes, 1999), apenas para solução de goma Guar.

Entre cada experimento, as membranas foram submetidas ao seguinte procedimento de limpeza: (i) 40 minutos em circulação com solução de detergente neutro a 2% de concentração; (ii) 12 horas em solução estática de detergente enzimático a 2% de concentração.

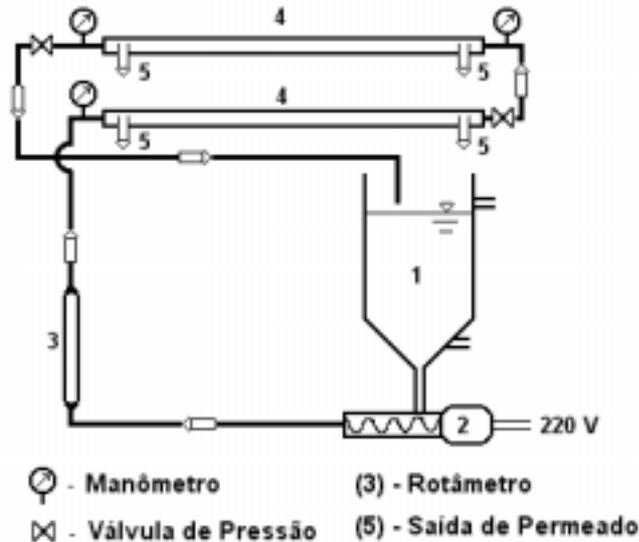


Figura 1 - Figura esquemática do equipamento experimental. (1) tanque de fluido; (2) bomba de deslocamento positivo; (3) rotâmetro; (4) módulo com membrana cerâmica tubular; (5) saída de permeado.

## 2.2. Formulação e modelagem matemática

A equação de conservação em coordenadas cilíndricas, que descreve o escoamento em tubos com superfície permeável, é estabelecida na literatura (Zydney, 1997) como uma formulação fundamental na forma:

$$u \frac{\partial c}{\partial x} + v \frac{\partial c}{\partial r} = \frac{D}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[ r \frac{\partial c}{\partial r} \right] \quad (1)$$

onde “u”, “v” são respectivamente as velocidades do fluido na direção “x” (tangencial) e na direção “r” (radial ou transmembrana); “c” é a concentração local de soluto e “D” é o coeficiente de difusividade do soluto.

A Eq. (1) é resolvida com as condições de contorno para a velocidade na superfície permeável do tubo (composta pela membrana), em regiões dentro e fora da camada limite. A Fig. 2 ilustra as condições de contorno e o transporte convectivo e difusivo de soluto na interface da membrana. Sendo “ $\delta$ ” a espessura da camada limite, as duas condições são escritas como:

$$\text{i) na superfície da membrana: } v = -J; \quad (1.a)$$

ii) continuidade da vazão de filtrado e soluto na interface com a membrana:

$$vc - D \frac{\partial c}{\partial r} = v c_f = -N_s \quad (1.b)$$

As grandezas J e  $N_s$ , são respectivamente os valores da vazão de filtrado e soluto. A vazão de filtrado ou transmembrana é apresentada neste trabalho por unidade de área, tornando um valor específico, com unidade de velocidade (m/s). O sinal negativo na Eq. (1.a) e Eq. (1.b) indica que a velocidade transmembrana tem direção negativa no eixo “r”.

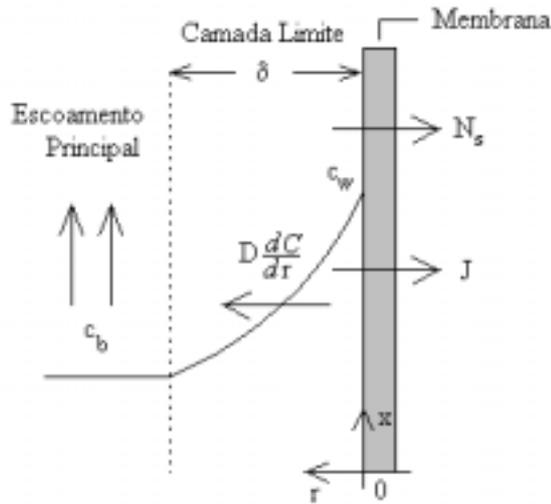


Figura 2 - Perfil de concentração em condições de estado estacionário.

A Eq. (1) é sujeita à seguinte transformação de variáveis, de modo análogo ao realizado no trabalho de Zydny (1997):  $\frac{\partial w}{\partial c} = \frac{1}{(c - c_f)}$ . Sabendo-se que  $c_f$  é a concentração de filtrado e  $c$  é função das variáveis  $x$ ,  $r$  e  $w$ ,  $c(x,r,w)$ , temos:

$$\frac{\partial c}{\partial x} = \frac{\partial c}{\partial w} \frac{\partial w}{\partial x} \quad \text{e} \quad \frac{\partial c}{\partial r} = \frac{\partial c}{\partial w} \frac{\partial w}{\partial r} \quad (2)$$

Substituindo a Eq. (2) na Eq. (1), derivando e simplificando alguns termos da nova equação, e fazendo uso da relação:  $\frac{\partial^2 c}{\partial w^2} = \frac{\partial}{\partial w} \left( \frac{\partial c}{\partial w} \right) = \frac{\partial}{\partial w} (c - c_f) \cong \frac{\partial c}{\partial w}$ , encontramos:

$$u \frac{\partial w}{\partial x} + \left( v - D \frac{\partial w}{\partial r} \right) \frac{\partial w}{\partial r} = \frac{D}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial w}{\partial r} \right) \quad (3)$$

O termo entre parêntese no primeiro membro da Eq. (3) representa a velocidade para o tubo com superfície impermeável,  $v_{\text{não-poroso}}$  ( $v_{np}$ ). Dessa forma:

$$u \frac{\partial w}{\partial x} + v_{np} \frac{\partial w}{\partial r} = \frac{D}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial w}{\partial r} \right) \quad (4)$$

A Eq. (4), é adimensionalizada ficando independente de parâmetros particulares, obtendo-se:

$$U \frac{\partial W}{\partial X} + V_{np} \frac{\partial W}{\partial R} = \frac{1}{Pe} \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left( R \frac{\partial W}{\partial R} \right) \quad (5)$$

Os adimensionais utilizados são:  $U=u/u_o$ ;  $V_{np}=v_{np}/v_w$ ;  $V=v/v_w$ ;  $R=r/R$ ;  $X=(x.v_w)/(u_o.R)$ ;  $Pe=v_w.R/D$ ;  $C=c/c_o$ , sendo  $c_o$  a concentração na entrada do módulo;  $c_f$  a concentração do filtrado;  $c_w$  a concentração na superfície da membrana;  $c_b$  - concentração fora da camada limite ou núcleo potencial (Apud Zydney, 1997 e Ilias *et al.*, 1995). Na Eq. (5) a variável "w" é trocada por "W" apenas para referir-se a variáveis adimensionais com letras maiúsculas.

Como condição de contorno, temos:

$$V_{np} = \left( V - \frac{1}{Pe} \frac{\partial W}{\partial R} \right) = 0 \quad \text{em } r = R. \quad (6)$$

que pode ser escrita como:  $V_{np} = V + J$ . A variável "J" também tem a forma adimensional,

$$J = J/v_w, \text{ representando o vazão específica junto a superfície permeável, } J = \frac{1}{Pe} \cdot \frac{\partial W}{\partial R} \Big|_{R=1}.$$

O escoamento em tubos permeáveis assemelha-se ao escoamento de entrada num tubo comum, porém por causa da transferência de massa junto à superfície, tem-se um constante desenvolvimento dos perfis de velocidades, prevalecendo perfis pouco pistonados, e constantes. Desta forma este trabalho estabelece um perfil de velocidades no tubo acentuadamente homogêneo, na forma:

$U(R, X) = (1 - R^{10})$ , que substituído na Eq. (5), torna-se:

$$(1 - R^{10}) \frac{\partial W}{\partial X} = \frac{1}{Pe} \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left( R \frac{\partial W}{\partial R} \right) \quad (7)$$

A Eq. (7) representa o escoamento com um perfil de velocidades estabelecido, de modo que o modelo deste trabalho considera o escoamento de forma análoga ao problema de Graetz (Cebeci & Brashaw, 1989).

Para solução da Eq. (7), foi utilizado o software MapleV<sup>®</sup> (Waterloo Maple V, 1994), a partir do qual encontramos a seguinte solução em variáveis separadas:

$W(X, R) = F_1(X).F_2(R)$ ; onde:

$$\frac{\partial}{\partial X} F_1(X) = C_1 F_1(X) \quad \text{e} \quad \frac{\partial^2}{\partial R^2} F_2(R) = -F_2(R).(-1 + R^{10}).Pe.C_1 - \frac{1}{R} \cdot \frac{\partial}{\partial R} F_2(R)$$

Para  $F_1(X)$  e  $F_2(R)$ , temos:

$$F_1(X) = C_1 \cdot e^{C_1 X} + C_1'$$

$$F_2(X) = F_2(0) \cdot \left( 1 + \frac{1}{4} Pe.C_1.R^2 + \frac{1}{64} Pe^2.C_1^2.R^4 + \dots \right), \text{ então:}$$

$$W(X, R) = F_1(X).F_2(R) = C_2 \cdot e^{C_1 X} \cdot \left( 1 + \frac{1}{4} Pe.C_1.R^2 + \frac{1}{64} Pe^2.C_1^2.R^4 + \dots \right)$$

Sabemos que:  $\frac{\partial W}{\partial C} = \frac{1}{(C - C_f)}$ , e portanto  $\Rightarrow C = C_f + e^W$ . Utilizando-se das seguintes condições de contorno, encontramos:

i) para  $R=0$  e  $X=0 \Rightarrow C = C_f \Rightarrow e^W = 0 \Rightarrow W = 1 \Rightarrow C_2 = 1$ ; então:

$$W(X, R) = e^{C_1 X} \cdot \left(1 + \frac{1}{4} Pe \cdot C_1 \cdot R^2 + \frac{1}{64} Pe^2 \cdot C_1^2 \cdot R^4 + \dots\right);$$

ii) para  $R=1$  e  $X>0 \Rightarrow \frac{\partial C}{\partial X} = 0 \Rightarrow C = C_f + e^W \Rightarrow \frac{\partial W}{\partial X} \cdot e^W = 0 \Rightarrow \frac{\partial W}{\partial X} = 0 \Rightarrow$

$$0 = C_1 e^{C_1 X} \cdot \left(1 + \frac{1}{4} Pe \cdot C_1 + \frac{1}{64} Pe^2 \cdot C_1^2 + \dots\right) \Rightarrow$$

$$\left(1 + \frac{1}{4} Pe \cdot C_1 + \frac{1}{64} Pe^2 \cdot C_1^2 + \dots\right) = 0; \text{ então: } C_1 = -8 \pm 32 \cdot \sqrt{(1/16 + 1/Pe)}.$$

O fluxo transmembrana é calculado (Zidney, 1997), como:

$$J = \frac{1}{Pe} \cdot \frac{\partial W}{\partial R} \Big|_{R=1} = \frac{1}{Pe} \left( C_2 \cdot e^{C_1 X} \cdot \left( \frac{1}{2} Pe \cdot C_1 + \frac{1}{16} Pe^2 C_1^2 \right) \right) \Rightarrow$$

$$J = e^{C_1 X} \cdot \left( \frac{1}{2} C_1 + \frac{1}{16} Pe \cdot C_1^2 \right), \text{ onde } C_1 = -8 \pm 32 \cdot \sqrt{(1/16 + 1/Pe)} \quad (8)$$

### 3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

A partir da Eq. (8), encontramos as expressões da vazão transmembrana em função da posição axial no módulo tubular. Para isto utilizamos os valores do adimensional de Peclet, calculados para cada solução aquosa. Assim teremos:

$$\text{goma Guar (1000 ppm): } Pe=0,3 \Rightarrow C_1 = -67,0 \Rightarrow J = 50,7 \cdot e^{-67 \cdot X};$$

$$\text{goma Xantana (1000 ppm): } Pe=1,5 \Rightarrow C_1 = -35,3 \Rightarrow J = 99,2 \cdot e^{-35,3 \cdot X}.$$

Na Fig. 3 é apresentado graficamente a vazão transmembrana deste modelo, para os valores de Peclet,  $Pe=0,3$  (goma Guar, 1000 ppm) e  $Pe=1,5$  (goma Xantana, 1000 ppm).

Os valores da vazão transmembrana são estabelecidos neste trabalho, constantes para todo o módulo tubular, e compatível com o modelo matemático que caracteriza o escoamento como desenvolvido (Eq., 7).

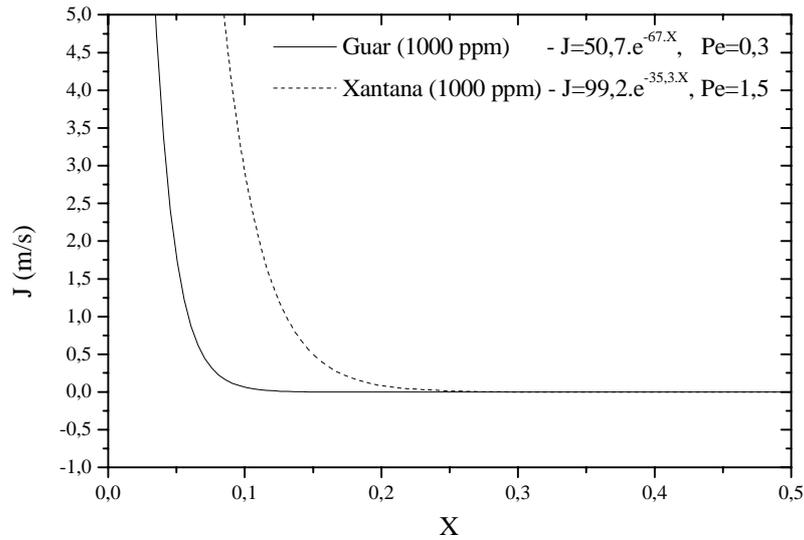


Figura 3 - Fluxo transmembrana específico (J) em função da posição axial adimensional (X).

Na Fig. 4 são apresentados os resultados experimentais da vazão transmembrana em função da pressão transmembrana para soluções de goma Guar e Xantana (1000 ppm). Os resultados da vazão transmembrana obtidos a partir da modelagem matemática são comparados na Fig. 4. Os valores numéricos são representados pelas retas contínuas, e foram calculados para  $Pe=0,3$  e  $Pe=1,5$ ; observa-se um bom ajuste aos resultados experimentais para  $Re=11670$ .

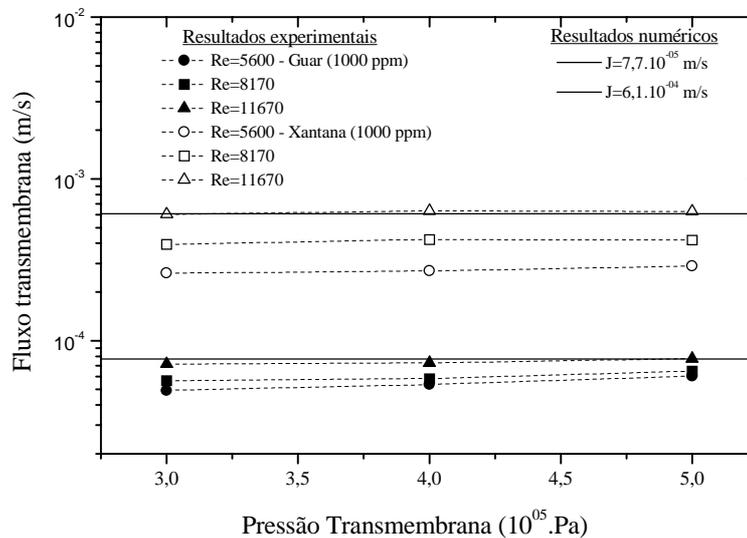


Figura 4 - Vazão transmembrana específica em função da pressão transmembrana. Comparação de valores experimentais do estado estacionário com os da modelagem matemática.

Como os resultados experimentais foram obtidos em regime de escoamento turbulento, fazemos a comparação com um modelo recente da literatura. Huisman & Tragardh (1999) apresentaram uma solução analítica-numérica para o escoamento com transporte de suspensões. Os resultados são adequados na previsão da queda da vazão transmembrana por causa da polarização macromolecular junto a superfície da membrana. O modelo considera os

efeitos de difusão Browniana em condições de escoamento turbulento. Os resultados da vazão transmembrana para soluções macromoleculares de baixa concentração são dados através da seguinte equação:

$$J = 0,545(\tau_w D_{o,Bo}^2 / \mu_o L)^{1/3} \phi_b^{-1/3} \quad (9)$$

Na Fig. 5 são apresentados os resultados do modelo de Huisman & Tragardh (1999), e comparados com os resultados experimentais obtidos para soluções macromoleculares de gomas Guar e Xantana. Os seguintes valores foram utilizados no modelo da literatura:

$\tau_w$  (Tensão de Cisalhamento) = 91,5 N/m<sup>2</sup> (Re=11670); 49,5 (Re=8170); 26,2 (Re=5600), calculados a partir de  $\tau_w = \frac{f}{4} \frac{\rho u^2}{2}$ , sendo  $f=0,029$ ; 0,032; 0,036, valores obtidos respectivamente do Diagrama de Moody;

$D_{o,Bo}$  (coeficiente de difusividade) =  $8,9 \times 10^{-8}$  m<sup>2</sup>/s, calculado a partir da correlação de Young *et al.* (1980);

$\mu_o$  - Viscosidade do Permeado (água), 1 mPa.s;

L - Comprimento do módulo tubular, 1 m;

$\phi_b$  - Fração de partículas do escoamento principal, 0,1 %.

Observa-se na Fig. 5 a aproximação dos resultados experimentais com o modelo da literatura especificamente para a solução de Xantana (1000 ppm). A mesma aproximação não é observada para o caso da goma Guar (1000 ppm). As diferenças podem ser atribuídas a variações nos valores da difusividade, indicados na literatura em até três ordens de grandeza (Zeman & Zydney, 1996), e a complexidade do processo em generalizar resultados teóricos para materiais diferentes.

Também é apresentado na Fig. 5, os resultados da vazão transmembrana do modelo matemático deste trabalho. Fica evidente que a melhor estimativa de vazão do modelo teórico acontece para o maior valor de Reynolds.

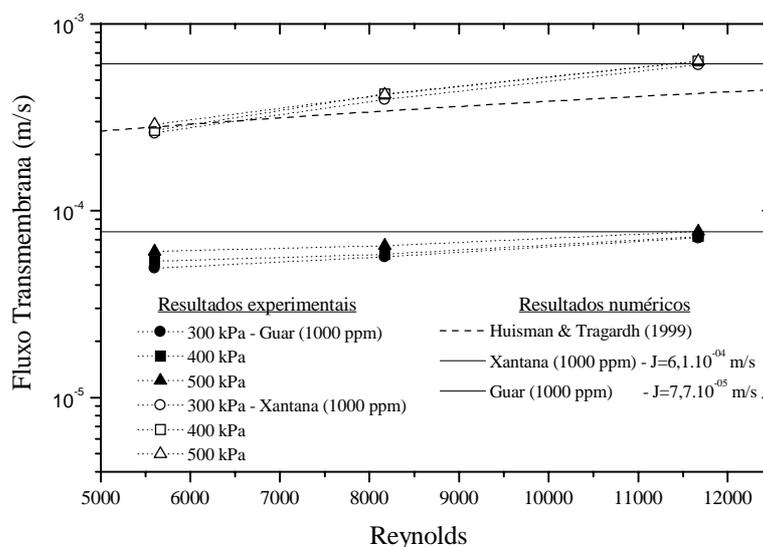


Figura 5 - Vazão transmembrana específica (J) em função de Reynolds. Comparação de valores experimentais com os da modelo matemático de Huisman & Tragardh (1999).

## 4. CONCLUSÕES

A experimentação e a modelagem matemática realizada neste trabalho, indica que os resultados numéricos estão de acordo aos resultados experimentais dos processos de concentração de soluções de gomas Xantana e Guar, relativos a  $Re=11670$ . O modelo é adequado ao caracterizar o escoamento no módulo tubular, como uma região de entrada em constante desenvolvimento, e estabelecida com perfis de velocidades pouco pistonados e constante. Os resultados da literatura (Huisman & Tragardh, 1999) se aproximam deste trabalho apenas para um dos produtos investigados, indicando a complexidade do processo quanto a generalização de resultados teóricos.

### *Agradecimentos*

À FAPESP pelo auxílio financeiro.

## REFERÊNCIAS

- Bacchin, P., Aimar, P. & Sanchez, V., 1995. Model for Colloidal Fouling of Membranes, *AIChE Journal*, vol.41, pp.368-376.
- Bader, M. S. H. & Veenstra, J. N., 1996, Analysis of concentration polarization phenomenon in ultrafiltration under turbulent flow conditions, *Journal of Membrane Science*, vol.114, pp.139-148.
- Cebeci, T., Brashaw, P., 1989. *Physical and Computacional Aspects of Convective Heat Transfer*. Springer-Verlag, New York.
- Fontes, S. R., 1999, Steady state transmembrane flux of macromolecular solution with micro and ultrafiltration conditions, *Anais do Congresso Brasileiro de Engenharia Mecânica*, 15, Dezembro 22-26, Águas de Lindóia, São Paulo.
- Guell, C. & Davis, R. H., 1996 Membrane fouling during microfiltration of protein mixtures, *Journal of Membrane Science*, vol.119, pp.269-284.
- Huisman, I.H. & Tragardh, C., 1999, Particle transport in crossflow microfiltration - I. Effects of hydrodynamics and diffusion, *Chemical Engineering Science*, vol.54, pp.271-280.
- Ilias, S., Schimmel, K.A. & Assey, G.E.J.M., 1995, Effect of viscosity on membrane fluxes in cross-flow ultrafiltration, *Separation Science and Technology*, vol.30, pp.1669-1687.
- Tanaka, T., Tsuneyoshi, S., Kitazawa, W., 1997, Characteristics in crossflow filtration using different yeast suspensions, *Separation Science and Technology*, vol.31, pp. 1885-1899.
- Yuong, M.E., Carroad, P.A. & Bell, R.L., 1980. Estimation of diffusion coefficients of proteins, *Biotechnology & Bioengineering*, vol.22, pp.947-957.
- Zeman, L.J. & Zydney, A. L., 1996, *Microfiltration and Ultrafiltration - Principles and Applications*. Marcel Dekker, New York.
- Zydney, A.L., 1997, Stagnant film model for concentration polarization in membrane systems, *Journal of Membrane Science*, vol.130, pp.275-281.
- Waterloo Maple V<sup>©</sup>, 1981-1994, "Waterloo Maple software and the University of Waterloo". Maple V is registered trademarks of Waterloo Maple software.
- Whistler, R. L. & BeMiller, J. N., 1993, *Industrial gums*, Academic Press, San Diego.

## **ANALYTICAL APPROACH SOLUTION FOR ESTIMATE OF TRANSMEMBRANE FLUX IN CROSSFLOW PROCESSES**

**Abstract:** *Studies have been carried out on micro and ultrafiltration for macromolecular solutions. This complex flow in tubular geometry does not allow accurate analytical solutions to be developed. Approaches to the modelling of crossflow have been numerous highly varied in degree of complexity, and is of great interest in order to design the process and to reach the best transmembrane flux. In this work the fluid flow through a porous tube is modeled from the differential mathematical formulation presented by Zydney (1997), and the equation*

$$(1-R^{10}) \frac{\partial W}{\partial X} = \frac{1}{Pe} \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left( R \frac{\partial W}{\partial R} \right) \text{ it approaches the fluid flow with an established}$$

*velocities profiles, being an entrance region similar to Graetz problem. An analytical solution is presented for polinomial functions, and comparison is carried among experimental rate flux and analytical data, and good agreement is observed.*

**Keywords:** *Mathematical modeling; Crossflow; Mass transfer; Xanthan gum; Guar gum.*