

# **Étude expérimentale et numérique de l'écoulement gaz-solide-liquide dans un TBR utilisé pour la méthanation bio- logique**

**Romain Schmickrath**



**Mémoire de master présenté sous la direction de:  
Haut Benoît**

**Sous la co-supervision de :  
Spreutels Laurent**

**Pour obtenir le diplôme de :  
Master en bioingénieur en sciences et  
technologies de l'environnement**

**Année académique  
2023-2024**

I hereby confirm that this thesis was written independently by myself without the use of any sources beyond those cited, and all passages and ideas taken from other sources are cited accordingly.

The author(s) gives (give) permission to make this master dissertation available for consultation and to copy parts of this master dissertation for personal use. In all cases of other use, the copyright terms have to be respected, in particular with regard to the obligation to state explicitly the source when quoting results from this master dissertation.

The author(s) transfers (transfer) to the project owner(s) any and all rights to this master dissertation, code and all contribution to the project without any limitation in time nor space.

10/06/2024

---

**Titre: Étude expérimentale et numérique de l'écoulement gaz-solide liquide dans un TBR utilisé pour méthanation biologique.**

Autheur: Romain Schmickrath

Master en Bioingénieur en sciences et technologies de l'environnement.

Année académique: 2023-2024

---

## Résumé

Ce mémoire présente une étude expérimentale et numérique des écoulements gaz-solide-liquide dans un trickle bed reactor (TBR) utilisé pour les processus de méthanation. L'étude se concentre sur l'hydrodynamique au sein du réacteur et les phénomènes de transfert de matière associés dans des conditions abiotiques, simulant des configurations comme celles utilisées à l'IEP au Canada. À travers des expérimentations et de la modélisation, nous avons amélioré notre compréhension des processus de transfert de matière au sein du réacteur. Un système abiotique ressemblant le plus fidèlement possible à celui de l'IEP a été conçu et mis en œuvre, nous permettant de mener diverses expériences. Celles-ci incluaient le développement d'un protocole pour mesurer les proportions de phases dans le réacteur et la réalisation d'expériences instrumentées pour déterminer les coefficients de transfert de matière, révélant que des débits de gaz plus élevés améliorent significativement les taux de transfert de matière, tandis que les débits de liquide ont un impact moindre. De plus, notre modèle, alimenté par des données expérimentales telles que les proportions de phase et les coefficients de transfert, met en exergue l'influence prédominante du débit de gaz sur les profils de concentration et les fractions molaires à différentes hauteurs du réacteur. Nous avons également découvert que le transfert de matière initial dans les sections supérieures du réacteur se fait du liquide vers le gaz, une dynamique qui souligne un aspect fondamental du fonctionnement du réacteur pouvant influencer considérablement les stratégies futures de conception et d'optimisation.

**Mots-clés :** Trickle Bed Reactor (TBR), Hydrodynamique, Écoulements multi-phasiques, Coefficients de transfert de matière, Modèle, Simulation numérique.

---

**Title: Experimental and numerical study of hydrodynamics flow rate in TBR.**

Author: Romain Schmickrath

Master in science of Engineer orientation bioengineer in science and technology of environment.

Academic year: 2023-2024

---

## Abstract

This master's thesis presents an experimental and numerical study of gas-solid-liquid flows in a Trickle Bed Reactor (TBR) used for methanation processes. The study focuses on the hydrodynamics within the reactor and the associated material transfer phenomena under abiotic conditions, simulating setups similar to those at IEP facilities in Canada. Through experimentation and modelling, we have improved our understanding of material transport processes within the reactor. An abiotic system resembling the operational Canadian model was designed and implemented, allowing us to conduct various experiments. These included developing a protocol to measure phase proportions within the reactor and conducting instrumented experiments to determine material transfer coefficients, revealing that higher gas flow rates significantly enhance material transfer rates, whereas liquid flow rates have a lesser impact. Additionally, our model, powered by experimental data such as phase proportions and transfer coefficients, elucidates the predominant influence of gas flow on concentration profiles and molar fractions across different reactor heights. We also discovered that material transfer at the upper column sections occurs from liquid to gas, a dynamic underscoring a fundamental aspect of reactor operation that could significantly influence future design and optimization strategies.

**Keywords:** Trickle Bed Reactor (TBR), Hydrodynamics, Multiphase Flows, Mass Transfer Coefficients, Model, Numerical Simulation.

---

**Titel: Experimentell an numeresch Studie vum Gas-Fest-Flëssegkeetsfloss an engem TBR, deen fir biologesch Methanatioun benutzt gëtt.**

Auteur: Romain Schmickrath

Master an Bioengineering an Ëmweltwëssenschaften an Technologien.

Année académique: 2023-2024

---

## Résumé

Dës Masterarbecht stellt eng experimentell an numeresch Studie vum Gas-Fest-Flëssegkeetsfloss an engem Trickle Bed Reactor (TBR) fir Methanatiounsprozesser vir. D'Studie konzentriert sech op d'Hydrodynamik am Reakter an d'assozierter Materialtransfer-Phänomenerënner abiotesche Bedéngungen, mat Setups déi ähnlech wéi déi an IEP-Ariichtungen a Kanada simuléiert ginn. Duerch Experimenter a Modeller hu mir eist Verständnis vu Materialtransportprozesser am Reakter verbessert. En abiotesche System, deen dem operationelle kanadesche Modell gläicht, gouf entworf an émgesat, wat eis erlaabt verschidde Experimenter ze maachen. Dës enthalten d'Entwicklung vun engem Protokoll fir d'Phaseproportionen am Reakter ze moassen an instrumentéiert Experimenter auszeféieren, fir Materialtransferkoeffizienten ze bestëmmen, déi weisen, datt méi héich Gasstroumraten d'Materialtransferraten wesenlech verbesseren, während Flëssegkeetsstroumraten e manneren Impakt hunn. Zousätzlech beliicht eise Modell, ugedriwwen duerch experimentell Donnéeën wéi Phaseproportionen an Transfertkoeffizienten, den predominant Afloss vum Gasfluss op Konzentratiounsprofiler a molar Fraktiounen iwwer verschidden Reakterhéichten. Mir hunn och entdeckt, datt den Materialtransfert an den ieweschten Kollonsektionen vun der Flëssegkeet zum Gas geschitt, wat en dynameschen Aspekt vun der Reakteroperatioun énnersträicht, dee zukünfteg Design- an Optimisatiounsstrategien bedeitend beaflosse kéint.

**Schlésselwieder:** Trickle Bed Reactor (TBR), Hydrodynamik, Multiphasefloss, Massentransferkoeffizienten, Modell, numeresch Simulatioun.

# Remerciements

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers le Professeur Benoît Haut pour sa précieuse assistance tout au long de l'élaboration de mon mémoire, qui a grandement contribué à enrichir ma compréhension du sujet.

Je suis également reconnaissant envers le Docteur Laurent Spreutels pour sa co-supervision attentive de ce travail, son soutien constant dans la recherche et ses conseils avisés qui ont guidé mes expériences.

Mes remerciements vont également à Hervé Baudine, dont l'aide précieuse dans la construction du Trickle Bed Reactor a été d'une importance capitale pour la réussite de ce projet.

Je souhaite exprimer ma reconnaissance envers l'ingénieur Claude Delforge pour ses conseils éclairés sur certaines méthodes de calcul, ainsi que pour son soutien indéfectible tout au long de mon aventure académique.

Je remercie le Docteur Clément Rigaud et à la Professeure Sigrid Flahaut pour leur aide précieuse dans la réalisation de la partie expérimentale de ce projet. Leur générosité en fournissant le matériel nécessaire et leurs explications détaillées ont été essentielles à mon travail.

Je tiens à remercier ma famille et mes amis, qui m'ont permis d'avoir un regard extérieur sur le sujet et de prendre du recul sur mon travail afin d'avancer plus sereinement et me soutenir dans ce projet.

# Table des matières

|   |             |
|---|-------------|
| <b>Préface</b>  | <b>I</b>    |
| Résumé . . . . .  | I           |
| Abstract . . . . .  | II          |
| Résumé . . . . .  | III         |
| <b>Remerciements</b>  | <b>IV</b>   |
| <b>Table des matières</b>   | <b>VII</b>  |
| <b>Liste des figures</b>  | <b>X</b>    |
| <b>Liste des tableaux</b>   | <b>XI</b>   |
| <b>Liste des espèces chimiques et des abréviations</b>  | <b>XII</b>  |
| <b>Liste des symboles</b>   | <b>XIII</b> |
| <b>1 Introduction</b>   | <b>1</b>    |
| 1.1 Contexte . . . . .  | 1           |
| 1.2 Motivations . . . . .   | 3           |
| 1.3 La méthanation biologique . . . . .   | 4           |
| 1.4 Les Trickle Bed Reactors . . . . .  | 5           |
| 1.5 État de l'art . . . . .   | 6           |
| 1.5.1 Le choix du support ou des éléments de garnissage . . . . .                                       | 6           |
| 1.5.2 Évaluation des paramètres clés de l'hydrodynamique . . . . .                                      | 7           |
| 1.5.3 Évaluation des transferts de masse . . . . .  | 9           |
| 1.5.4 Perte de charge . . . . .   | 10          |
| 1.5.5 Évaluation des aspects pour le scale-up/scale-down . . . . .                                      | 11          |
| 1.5.6 Modélisation . . . . .  | 11          |
| 1.6 Énoncé du problème . . . . .  | 13          |
| <b>2 Objectifs du mémoire</b>   | <b>14</b>   |
| <b>3 Matériels et méthodes</b>  | <b>15</b>   |
| 3.1 Le Trickle Bed Reactor . . . . .  | 15          |
| 3.1.1 Configuration et conception du trickle Bed Reactor (TBR) . . .                                    | 15          |
| 3.1.2 Fonctionnement de notre TBR . . . . .   | 16          |
| 3.1.3 Chronologie des améliorations apportées au TBR . . . . .  | 17          |
| 3.2 Protocoles expérimentaux . . . . .  | 19          |
| 3.2.1 Mesure de proportion de phases dans le réacteur . . . . .   | 19          |
| 3.2.2 Mesure de pression . . . . .  | 21          |
| 3.2.3 Mesure du transfert de matière avec l'oxygène ( $O_2$ ) . . . . .                                 | 22          |
| 3.2.4 Caractérisation de l'écoulement gazeux . . . . .  | 24          |
| <b>4 Modélisation et simulation de l'écoulement gaz-liquide et du transfert de matières dans le TBR</b> | <b>25</b>   |
| 4.1 Modélisation . . . . .  | 25          |

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| 4.1.1    | Schéma de principe et notations . . . . .   | 25        |
| 4.1.2    | Hypothèses . . . . .  | 26        |
| 4.1.3    | Établissement des équations . . . . .   | 27        |
| 4.1.4    | Système d'équations finales . . . . .   | 29        |
| 4.2      | Simulation . . . . .  | 30        |
| 4.2.1    | Résolution numérique du système d'équation . . . . .  | 30        |
| <b>5</b> | <b>Résultats et discussion</b>  | <b>32</b> |
| 5.1      | Mesure de proportion de phase pour les deux types d'éléments de garnissage . . . . .                      | 32        |
| 5.1.1    | Proportion de phase solide et porosité dans le réacteur . . . . .   | 32        |
| 5.1.2    | Résultats sans éléments de garnissage . . . . .   | 33        |
| 5.1.3    | Proportion de phase liquide et gazeuse . . . . .  | 33        |
| 5.1.4    | Calcul du $k_L A_p$ sur base du volume de liquide dans le réacteur . . . . .                              | 37        |
| 5.1.5    | Limitations . . . . .   | 39        |
| 5.2      | Mesure de pression . . . . .  | 40        |
| 5.3      | Mesure de la concentration en O <sub>2</sub> et calcul des coefficients de transfert de matière . . . . . | 41        |
| 5.3.1    | Discussion des résultats . . . . .  | 41        |
| 5.3.2    | Limitations . . . . .   | 43        |
| 5.4      | Comparaison des $k_L A_p$ . . . . .   | 45        |
| 5.5      | Suivi de la concentration en O <sub>2</sub> dans le gaz . . . . .   | 48        |
| 5.6      | Discussion des résultats obtenus avec le modèle . . . . .   | 51        |
| 5.6.1    | Écoulement du liquide et du gaz dans différentes conditions opératoires . . . . .                         | 51        |
| 5.6.2    | Analyse des transferts de matière . . . . .   | 58        |
| 5.6.3    | Limitations . . . . .   | 60        |
| <b>6</b> | <b>Travaux futurs</b>   | <b>61</b> |
| 6.1      | Travaux à court terme . . . . .   | 61        |
| 6.1.1    | Amélioration des systèmes de mesure . . . . .   | 61        |
| 6.1.2    | Amélioration du modèle . . . . .  | 61        |
| 6.2      | Travaux à long terme . . . . .  | 62        |
| <b>7</b> | <b>Conclusions</b>  | <b>63</b> |

## Bibliographie

|  |           |
|--|-----------|
| <b>Annexes</b>   | <b>i</b>  |
| <b>A Matériel et méthode</b>   | <b>i</b>  |
| A.1 TBR . . . . .  | i         |
| A.2 Mesure Pression . . . . .  | v         |
| <b>B Résultats de laboratoire</b>  | <b>vi</b> |
| B.1 Résultats proportion de phase . . . . .                                  | vi        |
| B.1.1 Calcul du volume dans les tuyaux de recirculation du liquide . . . . . | vi        |
| B.1.2 Tableaux récapitulatifs des résultats expérimentaux . . . . .          | vii       |
| B.1.3 Tableaux détaillés des mesures de proportion de phases . . . . .       | ix        |

|          |   |             |
|----------|---|-------------|
| B.1.4    | Tableau détaillé des résultats de calcul de $k_L A_p$ sur base des mesures de proportion de phase . . . . . | xvi         |
| B.1.5    | ANOVA . . . . .   | xvii        |
| B.2      | Mesure de la concentration en O <sub>2</sub> et calcul de $k_L a$ . . . . .                                 | xxi         |
| B.2.1    | Figures de la concentration en oxygène O <sub>2</sub> en fonction du temps                                  | xxi         |
| B.2.2    | Hill Flow rings 25-7 . . . . .  | xxiv        |
| B.2.3    | RFK 25L . . . . .   | xxvi        |
| B.2.4    | ANOVA . . . . .   | xxviii      |
| <b>C</b> | <b>Modèle</b>   | <b>xxix</b> |
| C.1      | Calcul de $k_L A_p$ pour le dioxyde de carbone (CO <sub>2</sub> ) et l'hydrogène (H <sub>2</sub> ) .        | xxix        |
| C.2      | Code Wolfram Mathematica . . . . .  | xxix        |

# Liste des figures

|      |   |    |
|------|---|----|
| 1.1  | Le Power-to-Methane offre une capacité de stockage suffisante et des temps de décharge longs pour répondre aux futures demandes d'énergie à l'échelle du réseau énergétique mondial [36]. . . . .   | 2  |
| 1.2  | Image de l'idée de production de biométhane à partir de biogaz et d'hydrogène renouvelable [31]. . . . .  | 3  |
| 1.3  | Schéma des différentes voies de digestion anaérobie utilisées pour la production de biogaz [36]. . . . .  | 3  |
| 1.4  | Production de méthane ( $\text{CH}_4$ ) dans le film liquide des éléments de garnissage d'un TBR [36]. . . . .  | 5  |
| 1.5  | Illustration d'un TBR fonctionnant dans divers modes opératoires [48]. . . . .  | 5  |
| 1.6  | Différents régimes d'écoulement dans un TBR [41]. . . . .   | 7  |
| 1.7  | Comportement de mouillage des particules dans un TBR [41]. . . . .  | 8  |
| 1.8  | Maldistribution de l'écoulement liquide dans une colonne [50]. . . . .  | 8  |
| 1.9  | Théorie des films [30]. . . . .   | 10 |
| 1.10 | Récapitulatif de la création d'un modèle [10]. . . . .  | 12 |
| 3.1  | Diagramme schématique du TBR au Transfers, Interfaces & Processes (TIPs) (Schéma non proportionnel). 1. Pompe ; 2. Vanne ; 3. Diffuseur liquide ("douche") ; 4. Éléments de garnissage ; 5. Débitmètre liquide ; 6. Débitmètre gazeux ; 7. Serpentin en cuivre ; 8. Bassin de refroidissement ; 9. grille de séparation ; 10. Sonde température ; 11. Pastille mesure concentration en $\text{O}_2$ . . . . . | 18 |
| 3.2  | Schéma de la connexion de la sonde de pression à l'Arduino Uno [45]. . . . .  | 21 |
| 3.3  | Capteur de Pression [4]. . . . .  | 21 |
| 4.1  | Schéma de principe du réacteur. . . . .   | 26 |
| 4.2  | Axe discrétré en n intervals. . . . .   | 30 |
| 5.1  | Proportion de liquide dans le réacteur en fonction du débit pour les éléments de garnissage Hill Flow 25-7. . . . .   | 35 |
| 5.2  | Proportion de liquide dans le réacteur en fonction du débit pour les éléments de garnissage RFK 25L. . . . .  | 35 |
| 5.3  | Proportion de gaz (air) dans le réacteur en fonction du débit pour les éléments de garnissage Hill Flow 25-7. . . . .   | 36 |
| 5.4  | Proportion de gaz (air) dans le réacteur en fonction du débit pour les éléments de garnissage RFK 25L. . . . .  | 36 |
| 5.5  | Figures de valeur de $k_L A_p$ pour différentes combinaisons de débits. . . . .   | 38 |
| 5.6  | Valeurs de $k_L A_p$ pour différentes combinaisons de débits. . . . .   | 42 |
| 5.7  | Valeurs de $k_L A_p$ pour différentes combinaisons de débits. . . . .   | 46 |
| 5.8  | Variation du pourcentage d'oxygène (% $\text{O}_2$ ) en fonction du temps dans la colonne remplie avec les éléments de garnissage Hill flow rings 25-7. . . . .   | 48 |
| 5.9  | Variation du pourcentage d'oxygène (% $\text{O}_2$ ) en fonction du temps dans la colonne remplie avec les éléments de garnissage RFK 25L. . . . .  | 48 |

|   |       |
|---|-------|
| 5.10 Variation du pourcentage d'oxygène (% O <sub>2</sub> ) en fonction du temps dans la colonne remplie avec les éléments de garnissage RFK 25L. . . . .   | 49    |
| 5.11 Profil de concentration standardisée dans le liquide en fonction de la hauteur et du temps pour le CO <sub>2</sub> et l'H <sub>2</sub> pour Q <sub>G</sub> =50mL min <sup>-1</sup> et Q <sub>L</sub> =3.5L min <sup>-1</sup> . . . . .   | 52    |
| 5.12 Profil de fraction molaire dans le gaz en fonction de la hauteur et du temps pour le CO <sub>2</sub> et l'H <sub>2</sub> pour Q <sub>G</sub> =50mL min <sup>-1</sup> et Q <sub>L</sub> =3.5L min <sup>-1</sup> . . . . .   | 52    |
| 5.13 Profil de concentration standardisée et fraction molaire en fonction de la hauteur et du temps pour le CO <sub>2</sub> et l'H <sub>2</sub> pour Q <sub>G</sub> =50mL min <sup>-1</sup> et Q <sub>L</sub> =7.0L min <sup>-1</sup> . . . . .   | 53    |
| 5.14 Profil de concentration standardisée dans le liquide en fonction de la hauteur et du temps pour le CO <sub>2</sub> et l'H <sub>2</sub> pour Q <sub>G</sub> =500mL min <sup>-1</sup> et Q <sub>L</sub> =3.5L min <sup>-1</sup> . . . . .  | 54    |
| 5.15 Profil de fraction molaire dans le gaz en fonction de la hauteur et du temps pour le CO <sub>2</sub> et l'H <sub>2</sub> pour Q <sub>G</sub> =500mL min <sup>-1</sup> et Q <sub>L</sub> =3.5L min <sup>-1</sup> . . . . .  | 55    |
| 5.16 Profil de concentration standardisée et fraction molaire en fonction de la hauteur et du temps pour le CO <sub>2</sub> et l'H <sub>2</sub> pour Q <sub>G</sub> =50mL min <sup>-1</sup> et Q <sub>L</sub> =3.5L min <sup>-1</sup> et pour les éléments de garnissage RFK 25L. . . . . | 55    |
| 5.17 Profil de concentration standardisée et fraction molaire en fonction de la hauteur et du temps pour le CO <sub>2</sub> et l'H <sub>2</sub> pour Q <sub>G</sub> =50mL min <sup>-1</sup> et Q <sub>L</sub> =3.5L min <sup>-1</sup> . . . . .   | 56    |
| 5.18 Profil de concentration standardisée et fraction molaire en fonction de la hauteur et du temps pour le CO <sub>2</sub> et l'H <sub>2</sub> pour Q <sub>G</sub> =50mL min <sup>-1</sup> et Q <sub>L</sub> =3.5L min <sup>-1</sup> . . . . .   | 57    |
| 5.19 Évolution du transfert en mol m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> pour différentes conditions opératoires. . . . .   | 59    |
| 5.20 Évolution du transfert en mol m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> pour les Hill flow ring 25-7 au débit Q <sub>G</sub> =500 mL min <sup>-1</sup> et Q <sub>L</sub> =3.5 L min <sup>-1</sup> lorsque le terme de réaction est nul. . . . .  | 60    |
| A.1 TBR de Bruxelles. . . . .   | i     |
| A.2 Système d'écoulement du liquide sur les éléments de garnissage. . . . .   | ii    |
| A.3 Image du bas de la colonne. . . . .   | ii    |
| A.4 Débitmètre de gaz. . . . .  | iii   |
| A.5 Débitmètre liquide. . . . .   | iii   |
| A.6 Éléments de garnissage Hill flow ring 25-7 et RFK 25L. . . . .  | iv    |
| A.7 Image de l'intérieur de la colonne. . . . .   | iv    |
| A.8 scale=0.1 . . . . .   | v     |
| B.1 Résultats de l'ANOVA réalisé avec la librairie statsmodels sur python pour les éléments de garnissage Hill flow ring 25-7. . . . .  | xvii  |
| B.2 Résultats de l'ANOVA réalisé avec la librairie statsmodels sur python pour les éléments de garnissage RFK 25L. . . . .  | xviii |
| B.3 Résultats de l'ANOVA réalisé avec la librairie statsmodels sur python pour la combinaison des deux types d'éléments de garnissage. . . . .  | xix   |
| B.4 Résultats de l'ANOVA réalisé avec la librairie statsmodels sur python pour les k <sub>L</sub> A <sub>p</sub> calculés à partir des mesures de volumes de liquides mesurés. . . . .  | xx    |

|   |        |
|---|--------|
| B.5 Expériences Hill 1 et 2 de la mesure de la concentration en O <sub>2</sub> en fonction du temps. . . . .                      | xxi    |
| B.6 Expériences Hill 3 et 4 de la mesure de la concentration en O <sub>2</sub> en fonction du temps. . . . .                      | xxi    |
| B.7 Expériences Hill 5 et 6 de la mesure de la concentration en O <sub>2</sub> en fonction du temps. . . . .                      | xxii   |
| B.8 Expériences Hill 7 et 8 de la mesure de la concentration en O <sub>2</sub> en fonction du temps. . . . .                      | xxii   |
| B.9 Expériences RFK 1 et 2 de la mesure de la concentration en O <sub>2</sub> en fonction du temps. . . . .                       | xxii   |
| B.10 Expériences RFK 3 et 4 de la mesure de la concentration en O <sub>2</sub> en fonction du temps. . . . .                      | xxiii  |
| B.11 Expériences RFK 5 et 6 de la mesure de la concentration en O <sub>2</sub> en fonction du temps. . . . .                      | xxiii  |
| B.12 Expériences RFK 7 et 8 de la mesure de la concentration en O <sub>2</sub> en fonction du temps. . . . .                      | xxiii  |
| B.13 Calcul de $k_{La}$ pour les expériences Hill 1 et 2 avec $Q_L=7.0\text{L min}^{-1}$ et $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$ . . . . . | xxiv   |
| B.14 Calcul de $k_{La}$ pour les expériences Hill 3 et 4 avec $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$ et $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$ . . . . . | xxiv   |
| B.15 Calcul de $k_{La}$ pour les expériences Hill 5 et 6 avec $Q_L=7.0\text{L min}^{-1}$ et $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$ . . . . .  | xxv    |
| B.16 Calcul de $k_{La}$ pour les expériences Hill 7 et 8 avec $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$ et $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$ . . . . .  | xxv    |
| B.17 Calcul de $k_{La}$ pour les expériences RFK 1 et 2 avec $Q_L=7.0\text{L min}^{-1}$ et $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$ . . . . .  | xxvi   |
| B.18 Calcul de $k_{La}$ pour les expériences RFK 3 et 4 avec $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$ et $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$ . . . . .  | xxvi   |
| B.19 Calcul de $k_{La}$ pour les expériences RFK 5 et 6 avec $Q_L=7.0\text{L min}^{-1}$ et $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$ . . . . .   | xxvii  |
| B.20 Calcul de $k_{La}$ pour les expériences RFK 7 et 8 avec $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$ et $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$ . . . . .   | xxvii  |
| B.21 Code de l'ANOVA effectuée sur le tableau 5.7. . . . .  | xxviii |

# Liste des tableaux

|      |  |       |
|------|--|-------|
| 1.1  | Avantages et inconvénients des TBRs comparés à d'autres types de réacteurs dans l'industrie chimique [32] . . . . .  | 6     |
| 1.2  | Exemples de corrélations pour le calcul de coefficients de transfert de masse dans la phase liquide avec les garnissages disposés en vrac [49] . .   | 10    |
| 5.1  | Tableau de résultats des mesures de volumes et de portion de phase solide pour les éléments de garnissage Hill Flow rings 25-7 . . . . .   | 32    |
| 5.2  | Tableau de résultats des mesures de Volumes et de portion de phase solide pour les éléments de garnissage RFK 25L . . . . .  | 33    |
| 5.3  | Tableau de mesure de différence de hauteur d'eau dans le réservoir du réacteur, $\Delta_h$ , sans élément de garnissage dans le réacteur . . . . .   | 34    |
| 5.4  | Tableau des calculs de $k_L A_p$ pour différentes combinaisons de débits . .   | 38    |
| 5.5  | Tableau des moyennes des mesures de pression pour différents débits .  | 40    |
| 5.6  | Tableau de valeur de $k_L a$ pour différentes combinaisons de débits . .   | 41    |
| 5.7  | Tableau de valeur de $k_L A_p$ pour différentes combinaisons de débits . .   | 41    |
| 5.8  | Comparaison des différentes valeurs de $k_L A_p$ obtenues expérimentalement et à partir de la littérature pour différents débits gazeux et liquides ainsi que pour différents types d'éléments de garnissage . . . . . | 45    |
| B.1  | Tableau de résultats du volume de liquide dans les tuyaux . . . . .  | vi    |
| B.2  | Tableau des résultats de mesure de $\epsilon_l$ , $\epsilon_g$ et $\epsilon_s$ pour les éléments de garnissage Hill Flow rings 25-7 . . . . .  | vii   |
| B.3  | Tableau des résultats de mesure de $\epsilon_l$ , $\epsilon_g$ et $\epsilon_s$ pour les éléments de garnissage RFK25L . . . . .  | viii  |
| B.4  | Hill flow ring 25-7, test n°1 . . . . .  | ix    |
| B.5  | Hill flow ring 25-7, test n°2 . . . . .  | x     |
| B.6  | Hill flow ring 25-7, test n°3 . . . . .  | xi    |
| B.7  | RFK 25L, test n°1 . . . . .  | xii   |
| B.8  | RFK 25L, test n°2 . . . . .  | xiii  |
| B.9  | RFK 25L, test n°3 . . . . .  | xiv   |
| B.10 | RFK 25L, test n°4 . . . . .  | xv    |
| B.11 | Tableau des calculs de $k_L A_p$ pour différentes combinaisons de débits .   | xvi   |
| C.1  | Comparaison des différentes valeurs de $k_L A_p$ obtenues expérimentalement et à partir de la littérature pour différents débits gazeux et liquides ainsi que pour différents types d'éléments de garnissage. . . . .  | .xxix |

# Liste des espèces chimiques et des abréviations

|                                      |   |
|--------------------------------------|---|
| CH <sub>4</sub>                      | méthane   |
| CO <sub>2</sub>                      | dioxide de carbone  |
| CO                                   | monoxide de carbone   |
| CaCl <sub>2</sub> .2H <sub>2</sub> O | chlorure de calcium dihydrate                                     |
| C                                    | carbone   |
| H <sub>2</sub> O                     | eau   |
| H <sub>2</sub> S                     | sulfure d'hydrogène   |
| H <sub>2</sub>                       | hydrogène   |
| K <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>       | phosphate de potassium  |
| MgCl <sub>2</sub> .6H <sub>2</sub> O | chlorure de magnésium hexahydrate                                 |
| NH <sub>3</sub>                      | ammoniac  |
| NH <sub>4</sub> Cl                   | chlorure d'ammonium   |
| NH <sub>4</sub>                      | ammonium  |
| N <sub>2</sub>                       | azote   |
| NaCl                                 | chlorure de sodium  |
| Na <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>     | phosphate de sodium   |
| Na <sub>2</sub> SO <sub>3</sub>      | sulfite de sodium   |
| O <sub>2</sub>                       | oxygène   |
| X                                    | biomasse  |
| Bubble column                        | colonnes à bulles   |
| CNRC                                 | conseil national de recherches Canada                             |
| DO                                   | oxygène dissout   |
| EGR                                  | exhaust Gas Recirculation   |
| GNS                                  | gaz naturel de synthèse   |
| HEV                                  | hybrid Electric Vehicle   |
| I2C                                  | Inter-Integrated Circuit  |
| IEP                                  | centre de recherche sur les innovations dans les énergies propres |
| Membrane reactors                    | réacteurs à membranes   |
| PFTR                                 | réacteur à flux piston  |
| PVC                                  | chlorure de polyvinyle  |
| Re                                   | nombre de Reynold   |
| Sc                                   | nombre de Schmid  |
| Sh                                   | nombre de Sherwood  |
| Stirred-tank reactors                | bioréacteurs à cuve agitée  |
| TBR                                  | trickle Bed Reactor   |
| TIPs                                 | Transfers, Interfaces & Processes                                 |
| VSS                                  | suspension solide volatile  |

# Liste des symboles

|                         |   |                                    |
|-------------------------|---|------------------------------------|
| $A_G$                   | Surface totale des éléments de garnissage                                       | $\text{m}^2$                       |
| $A_p$                   | Surface spécifique d'échange gaz-liquide par volume de liquide dans le réacteur | $\text{m}^2 \text{ m}^{-3}$        |
| $C$                     | Concentration   | $\text{mol m}^{-3}$                |
| $D$                     | Coefficient de diffusion  | $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$        |
| $E$                     | Facteur d'accélération  | -                                  |
| $F_G$                   | Débit molaire de gaz dans le réacteur   | $\text{mol s}^{-1}$                |
| $F_i$                   | Accélération de gravité   | $\text{N m}^{-1}$                  |
| $J_A$                   | Flux molaire  | $\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ |
| $K_{g,l}$               | Résistance en série des deux films  | $\text{s}^{-1}$                    |
| $K$                     | Constante de Henry  | $\text{m}^3 \text{ Pa mol}^{-1}$   |
| $L$                     | Longueur caractéristique  | $\text{m}$                         |
| $P_A$                   | Pression partielle du composé a   | $\text{Pa}$                        |
| $P$                     | Pression  | $\text{Pa}$                        |
| $Q_G$                   | Débit de gaz dans le réacteur   | $\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$        |
| $Q_L$                   | Débit de liquide dans le réacteur   | $\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$        |
| $R^2$                   | Coefficient de détermination  | -                                  |
| $R_i$                   | Tenseur des contraintes de pseudo-turbulence                                    | -                                  |
| $Rg$                    | Constante gaz parfait   | $\text{J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$ |
| $S$                     | Saturation  | -                                  |
| $T$                     | Température   | $\text{K}$                         |
| $V$                     | Volume  | $\text{m}^3$                       |
| $\Delta_G$              | Énergie libre de Gibbs  | $\text{kJ mol}^{-1}$               |
| $\Delta_h$              | Différence de hauteur d'eau dans le réservoir du réacteur                       | $\text{m}$                         |
| $\Delta z$              | Tranche du réacteur   | $\text{m}$                         |
| $\Omega$                | Surface transversale de la colonne  | $\text{m}^2$                       |
| $\Phi$                  | Mort de la biomasse   | -                                  |
| $\Upsilon$              | Quantité de matière transférée  | $\text{mol s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ |
| $\Xi$                   | Taux de réaction  | $\text{mol s}^{-1}$                |
| $\alpha$                | Rapport du volume de réacteur par volume de liquide total dans le système       | $\text{m}^3 \text{ m}^{-3}$        |
| $\delta$                | Epaisseur du film liquide autour des éléments de garnissage                     | $\text{m}$                         |
| $\epsilon$              | Proportion de phases  | $\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ |
| $\mu$                   | Viscosité dynamique   | $\text{Pas}$                       |
| $\nu_c$                 | Viscosité cinématique   | $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$        |
| $\nu$                   | Coefficient stœchiométrique   | -                                  |
| $\pi$                   | Constante mathématique  | -                                  |
| $\rho$                  | Masse volumique   | $\text{kg m}^{-3}$                 |
| $\tau_c$                | Temps lié à la convection   | $\text{s}$                         |
| $\tau_d$                | Temps lié à la diffusion numérique  | $\text{s}$                         |
| $\tau_i$                | Tenseur des contraintes visqueuses moyenné sur le volume                        | -                                  |
| $\tau_{\text{moyen,g}}$ | Temps de séjour moyen du gaz dans le réacteur                                   | $\text{s}$                         |

|                   |  |                                    |
|-------------------|--|------------------------------------|
| $a$               | Surface spécifique d'échange gaz liquide par volume de liquide total dans le système | $\text{m}^2 \text{ m}^{-3}$        |
| $dp$              | Diamètre des éléments de garnissage  | m                                  |
| $d$               | Diamètre de colonne  | m                                  |
| $gz$              | Accélération de gravité  | $\text{ms}^{-2}$                   |
| $h$               | Hauteur  | m                                  |
| $k_{LA_p}$        | coefficent de transfert de masse intrinsèque au réacteur                             | sec                                |
| $k_{La}$          | Coefficient de transfert de masse  | sec                                |
| $k_g$             | Coefficient de transfert de masse dans le gaz  | $\text{ms}^{-1}$                   |
| $k_l$             | Coefficient de transfert de masse dans le liquide                                    | $\text{ms}^{-1}$                   |
| $k_{ma}$          | Coefficient de transfert de masse  | $\text{s}^{-1}$                    |
| $k$               | Taux de réaction constant  | $\text{s}^{-1}$                    |
| $p_G$             | Pression gaz   | Pa                                 |
| $p_L$             | Pression liquide   | Pa                                 |
| $p_c$             | Pression capillaire  | Pa                                 |
| $p_i$             | Pression statique  | Pa                                 |
| $r_i$             | Réaction i   | -                                  |
| $r_{\text{CO}_2}$ | Taux de consommation de dioxyde de carbone par les microorganismes                   | $\text{mol m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ |
| $r_{\text{H}_2}$  | Taux de consommation d'hydrogène par les microorganismes                             | $\text{mol m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ |
| $r_{\text{VSS}}$  | Taux de consommation par gramme de suspension solide volatile                        | $\text{mol m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ |
| $t$               | Temps  | s                                  |
| $u$               | Vitesse superficielle  | $\text{ms}^{-1}$                   |
| $v_{s,g}$         | Vitesse superficielle du gaz   | $\text{ms}^{-1}$                   |
| $v_{s,l}$         | Vitesse superficielle du liquide   | $\text{ms}^{-1}$                   |
| $v$               | Vitesse de l'écoulement  | $\text{ms}^{-1}$                   |
| $y$               | Fraction molaire   | $r_i$                              |

# Chapitre 1

## Introduction

### 1.1 Contexte

La lutte contre le réchauffement climatique est devenue une priorité mondiale, alors que des événements climatiques extrêmes se multiplient à travers le monde, mettant en péril nos sociétés et notre environnement. Pour répondre à cette urgence, de plus en plus de pays se tournent vers les énergies renouvelables, telles que l'énergie éolienne et solaire. Cependant, leur caractère intermittent pose un défi majeur en termes de gestion de l'offre et de la demande énergétiques. Cela signifie qu'il est primordial de trouver des solutions pour pouvoir stocker ces énergies renouvelables. Les avancées rapides dans le domaine des biotechnologies, ainsi que dans la conception des bioréacteurs, offrent de nouvelles solutions pour relever ces défis énergétiques. En particulier, le méthane se révèle être une molécule très prometteuse dans ce contexte [17].

Le méthane ( $\text{CH}_4$ ), tout comme certaines molécules présentes dans le pétrole, est un hydrocarbure dont la thermodynamique de combustion est bien établie. Cependant, les avantages du méthane par rapport au pétrole se manifestent principalement au niveau de sa production et de sa combustion. En effet, le pétrole, composé de molécules carbonées plus longues, génère souvent des composés indésirables lors d'une combustion incomplète. La combustion de carburants composés de molécules de taille et de poids moléculaires plus faibles, comme le méthane, entraîne la formation de quantités réduites de dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ ), de monoxyde de carbone (monoxyde de carbone ( $\text{CO}$ )) et de particules, et ce, pour une même quantité d'énergie produite qu'avec du pétrole, ce qui est particulièrement avantageux pour les applications automobiles [35]. De plus, le faible rapport C :H du  $\text{CH}_4$  signifie qu'en cas de combustion, il peut fournir une quantité d'énergie beaucoup plus importante par molécule de  $\text{CO}_2$  libérée que le pétrole (rapport approximatif, CH<sub>2</sub>) ou le charbon (rapport approximatif, CH) [14].

L'intérêt des bioréacteurs, tels que celui étudié au centre de recherche sur les innovations dans les énergies propres (IEP), dans la crise énergétique, réside dans leur capacité à produire et à stocker efficacement de l'énergie sous forme de molécules hydrocarbonées, riches en énergie dans leurs liaisons chimiques. La méthanation biologique offre de nombreux avantages par rapport aux autres méthodes de stockage d'énergie, ce qui est représenté à la figure 1.1 [43]. La méthanation biologique est un moyen très efficace de conversion de l'électricité renouvelable en gaz, en particulier pour stocker l'énergie sous forme d'hydrocarbures dans les régions disposant de réseaux de gaz naturel [40]. Le méthane présente plusieurs avantages par rapport à l'hydrogène ( $\text{H}_2$ ), notamment en termes de limitations réglementaires et de nécessités techniques moindres. L'eau étant le seul sous-produit lors de la production de méthane, cela permet une intégration facile dans les réseaux de gaz naturel, sans besoin d'autres étapes de purification ou de distillation. [46] [40]. En outre, le  $\text{CH}_4$  possède une densité plus importante que l' $\text{H}_2$ , ce qui envisage des solutions plus économiques pour le transport et le stockage. La faible densité de l' $\text{H}_2$  impose nécessairement des grands volumes de stockage et à l'inverse plus les molécules seront denses plus

le volume de stockage sera diminué (voir figure 1.1) [36]. Cependant, il est tout de même important de noter que l’H<sub>2</sub> reste une molécule très intéressante pour certaines propriétés chimiques et physiques comme la densité énergétique, l’énergie minimale d’inflammation, etc [16] [20].

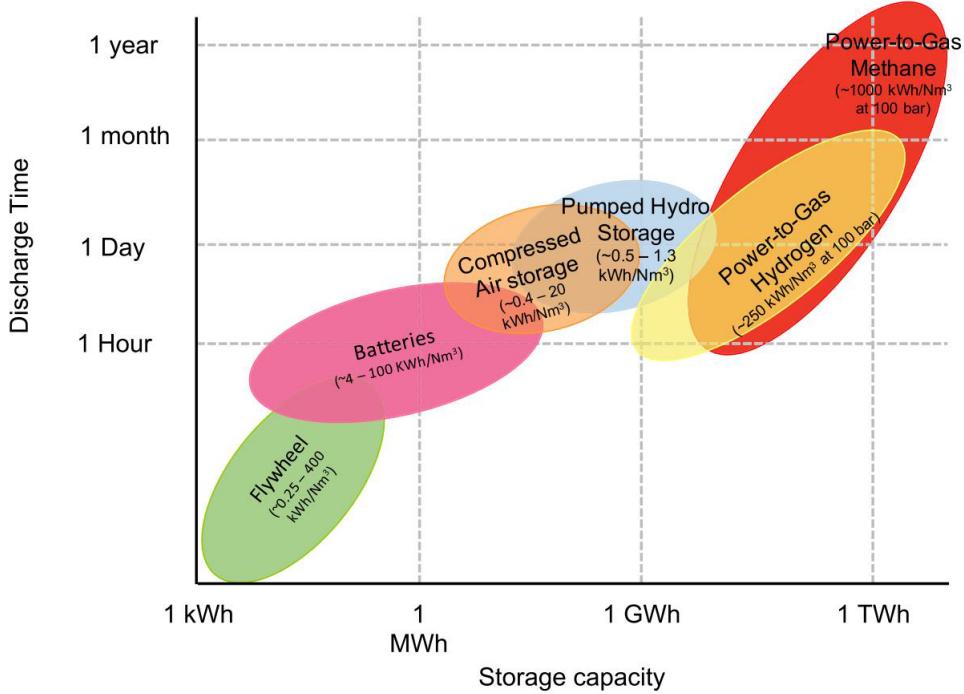


FIGURE 1.1 – Le Power-to-Methane offre une capacité de stockage suffisante et des temps de décharge longs pour répondre aux futures demandes d’énergie à l’échelle du réseau énergétique mondial [36].

L’approche de la méthanation biologique ouvre également de nouvelles perspectives dans le domaine du traitement des déchets, offrant des solutions durables pour réduire les émissions de CO<sub>2</sub> et atténuer les risques liés au changement climatique. Des synergies prometteuses entre les installations de méthanation biologique et les infrastructures de production d’énergie renouvelable, telles que les parcs éoliens et solaires, ainsi que les infrastructures de traitement des déchets, ont déjà été démontrées, soulignant le potentiel de cette approche pour une transition énergétique réussie [36]. Cette synergie entre la consommation de CO<sub>2</sub> provenant de déchet organique et la production d’H<sub>2</sub> par les énergies renouvelables est présentée à la Figure 1.2.

La source de CO<sub>2</sub> pour la méthanation biologique peut provenir de différentes émissions. Il peut s’agir d’émissions provenant des installations de traitement du biogaz ou des eaux usées [44]. Cependant, toutes les installations émettant du CO<sub>2</sub> pourraient être exploitées comme sources de carbone (C) pour la méthanation biologique. Ce couplage de réactions de dégradation anaérobique à partir de déchets organiques pour l’obtention de biogaz est illustré dans la Figure 1.3 ci-dessous [36]. Des étapes de purification du CO<sub>2</sub> sont nécessaires afin d’assurer la qualité et l’homogénéité du gaz utilisé [9].

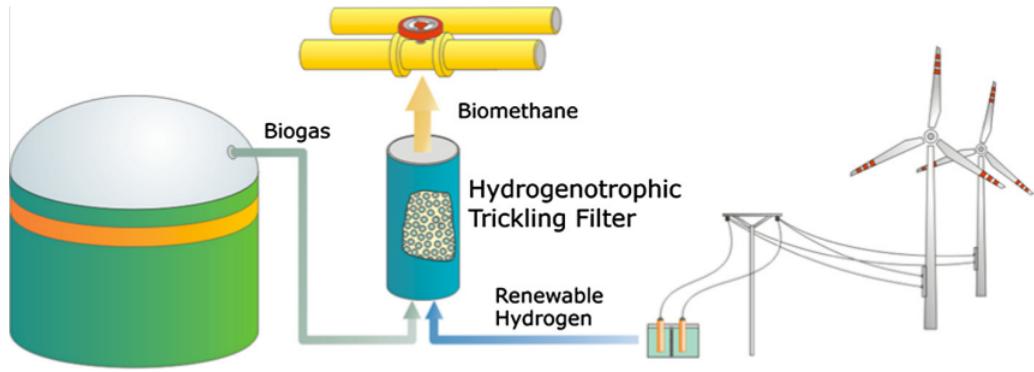


FIGURE 1.2 – Image de l'idée de production de biométhane à partir de biogaz et d'hydrogène renouvelable [31].

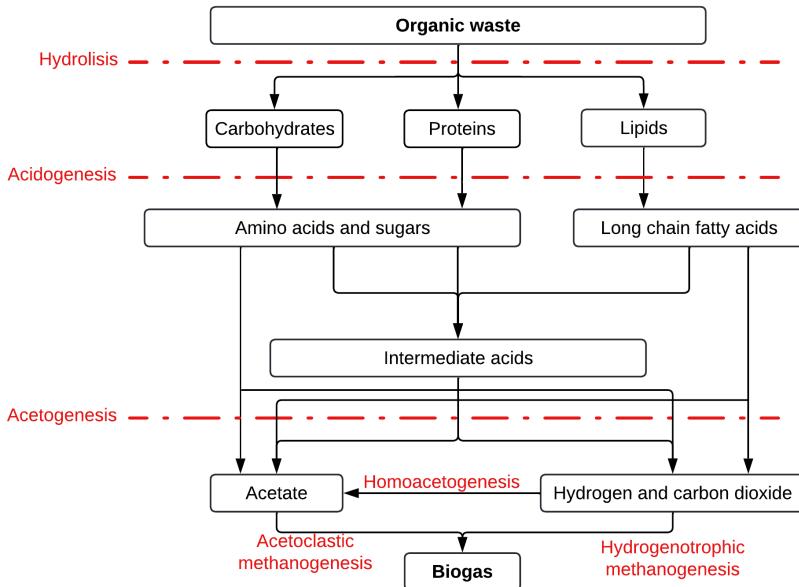


FIGURE 1.3 – Schéma des différentes voies de digestion anaérobiose utilisées pour la production de biogaz [36].

## 1.2 Motivations

Plusieurs configurations de bioréacteurs ont été expérimentées, et les trickle bed reactors (TBRs) se révèlent particulièrement prometteurs pour la méthanation biologique en raison de leur grande surface d'échange gaz-liquide [42] [43]. L'étude des écoulements gaz-solide-liquide dans ces TBRs est essentielle pour l'amélioration des processus industriels liés à la production de biométhane. Cette recherche se concentre sur l'optimisation des paramètres opérationnels des TBRs afin de maximiser la production de biométhane, exploitant efficacement les processus métaboliques des microorganismes. Une optimisation réussie pourrait significativement contribuer à la durabilité environnementale et à la viabilité économique des bioénergies. En outre, les défis associés au transfert gaz-liquide d'hydrogène, souvent un facteur limitant dans la production de méthane dans les bioréacteurs, nécessitent une attention particulière en termes d'optimisation et de conception des réacteurs (voir section 1.5).

Ce mémoire est réalisé en partenariat avec l'IEP faisant partie du conseil national de recherches Canada (CNRC). Le réacteur principal se situe dans ce centre de recherche au Canada et un modèle abiotique de ce réacteur est construit au laboratoire TIPs pour étudier son hydrodynamique, élément clé pour comprendre et améliorer son fonctionnement. Ce dernier est présenté à la section 3.1.

### 1.3 La méthanation biologique

La méthanation peut être réalisée principalement par deux méthodes : la voie thermodynamique ou catalytique et la voie biologique. Dans le cadre de notre étude, qui utilise un bioréacteur, nous nous concentrons exclusivement sur la méthanation biologique. La méthanisation biologique présente plusieurs avantages par rapport aux procédés catalytiques et thermochimiques traditionnels. Elle opère à des températures plus modérées et présente une meilleure résistance aux contaminations gazeuses telles que le sulfure d'hydrogène ( $H_2S$ ), les acides organiques et l'ammonium ( $NH_4$ ) [31].

La méthanation biologique est une fermentation, impliquant donc des microorganismes qui transforment de l' $H_2$  et du  $CO_2$  en  $CH_4$ . La réaction bilan régissant ce phénomène est la suivante :



L'énergie libre de Gibbs associée à cette réaction est de  $\Delta_G = -165 \text{ kJ mol}^{-1}$ , le  $\Delta_G$  négatif signifie que la réaction libère de l'énergie [40] [28]. Elle est schématiquement représentée dans un TBR à la Figure 1.4 où l'on voit l'entrée du gaz dans la colonne suivi de son transfert dans le film liquide puis la réaction dans ce même film et finalement l'échappement du gaz vers le haut de la colonne. Les processus métaboliques impliqués se déroulent dans des conditions strictement anaérobies et dans un environnement aqueux. De plus, la proportion de  $CH_4$  dans les gaz de sortie montre des taux de conversion très élevés [39]. La dynamique de consommation et de production au sein du réacteur est complexe, reflétant la diversité des réactions chimiques qui s'y déroulent. Certaines de ces réactions génèrent du dioxyde de carbone ( $CO_2$ ), comme illustré par la réaction suivante :



Trois principaux groupes physiologiques de microorganismes jouent un rôle fondamental dans la production de  $CH_4$  : les bactéries fermentaires, les bactéries oxydantes d'acides organiques, et les archées méthanogènes. Ces microorganismes dégradent la matière organique à travers des cascades de conversions biochimiques qui produisent du  $CH_4$  et du  $CO_2$ . Les interactions syntropiques, où des organismes dépendent étroitement les uns des autres pour survivre, sont vitales dans ce processus. Les producteurs d' $H_2$  (acétogènes) et les consommateurs d' $H_2$  (homoacétogènes, méthanogènes hydrogénotrophes, etc.) illustrent bien ces relations d'interdépendance cruciales pour la méthanation efficace [6].

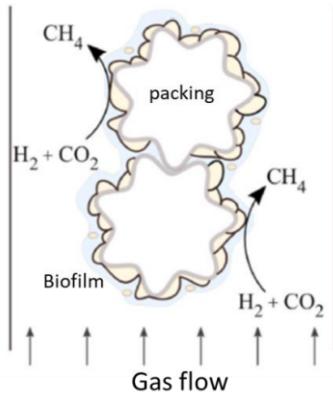


FIGURE 1.4 – Production de  $\text{CH}_4$  dans le film liquide des éléments de garnissage d'un TBR [36].

## 1.4 Les Trickle Bed Reactors

Les TBRs sont des colonnes dans lesquelles le liquide s'écoule verticalement, tandis que le gaz peut circuler soit vers le haut, soit vers le bas à travers un lit de garnissage disposé en vrac ou en agencement structuré (packed bed), comme illustré à la figure 1.5. Ces réacteurs servent de dispositifs de contact solide-gaz-liquide, assurant un contact continu entre le flux gaz-liquide et le garnissage [33].

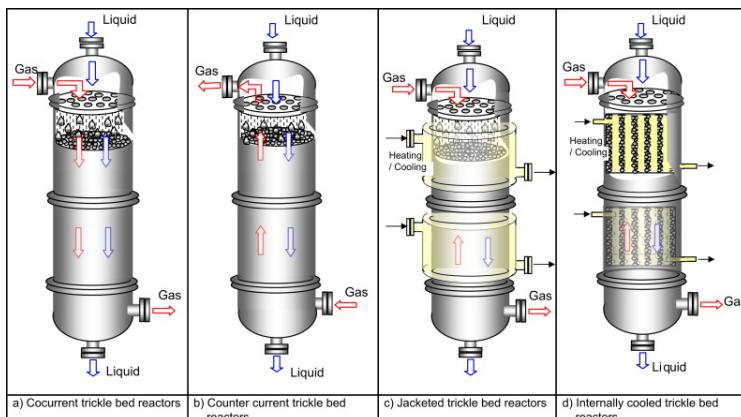


FIGURE 1.5 – Illustration d'un TBR fonctionnant dans divers modes opératoires [48].

Les facteurs déterminants de l'efficacité des TBRs incluent la forme, la porosité, la disposition et le type de matériau des éléments de garnissage. En outre, la distribution non uniforme de l'écoulement, le taux de mouillage, les transferts de masse, les cinétiques de réaction et les échanges thermiques, en particulier pour les réactions exothermiques, sont des aspects cruciaux qui impactent la performance des réacteurs [48]. Un récapitulatif des avantages et des inconvénients de ces réacteurs est présenté dans le Tableau 1.1.

Dans les recherches concernant ces réacteurs, l'objectif principal est de caractériser chaque facteur qui pourrait limiter leur efficacité opérationnelle. Les études se concentrent généralement sur des méthodologies empiriques ou expérimentales. Cette préférence s'explique principalement par la complexité de la dynamique des fluides dans ces systèmes, qui est due à l'écoulement hétérogène des différentes phases au sein du réacteur.

Les TBRs sont largement utilisés dans l'industrie chimique, trouvant des applications étendues dans divers secteurs. Ils sont principalement retrouvés dans les processus pétrochimiques et de raffinage, notamment dans l'hydrodésulfuration et l'hydrogénéation, ainsi que dans l'oxydation de la biomasse et des composés organiques présents dans les eaux usées. De plus, ils jouent un rôle dans la réduction des composés organiques volatils pour le contrôle de la pollution atmosphérique, les réactions enzymatiques, la bio-méthanation et l'oxydation des sucres comme le glucose [33]. Dans notre cas, l'intérêt se porte sur la production de méthane par des microorganismes à partir de mélanges de gaz et de liquides d'entrées variées. Ces mélanges de gaz peuvent être simplement composés d'hydrogène et de dioxyde de carbone, tandis que d'autres peuvent présenter de l'hydrogène, de l'azote, du monoxyde de carbone et du dioxyde de carbone. Les mélanges de liquides utilisés à l'IEP sont généralement composés d'eau et de sels (phosphate de potassium ( $K_2PO_4$ ), phosphate de sodium ( $Na_2HPO_4$ ), chlorure d'ammonium ( $NH_4Cl$ ), chlorure de sodium ( $NaCl$ ), chlorure de magnésium hexahydrate ( $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ), chlorure de calcium dihydrate ( $CaCl_2 \cdot 2H_2O$ )).

TABLEAU 1.1 – Avantages et inconvénients des TBRs comparés à d'autres types de réacteurs dans l'industrie chimique [32]

| Avantages  | Inconvénients                               |
|--|---|
| Écoulement en piston                               | Faible efficacité comparée à une suspension |
| Rapport catalyseur/liquide élevé                   | Faible transfert de chaleur et de masse     |
| Large gamme de débit                               | Durée de vie du catalyseur longue souhaitée |
| Faible dissipation de puissance                    | Incapacité à manipuler une suspension       |
| Facilité de séparation du catalyseur et du liquide | Risque de mauvaise répartition du liquide   |
| Flexibilité du mode de fonctionnement              | Risque de réaction incontrôlée du réacteur  |
| Coût d'investissement et d'exploitation plus bas   |   |

## 1.5 État de l'art

Chaque réacteur ou bioréacteur possède ses propres caractéristiques, et leur conception nécessite de passer par plusieurs étapes fondamentales. Les TBRs sont des réacteurs particuliers dont la conception suit des étapes spécifiques. Ces étapes sont mentionnées et discutées en détail dans l'ouvrage de Gunjal Prashant R. et al. [48].

### 1.5.1 Le choix du support ou des éléments de garnissage

La sélection des éléments de garnissage représente un critère primordial, car elle influence directement les proportions de phase et la surface disponible pour la croissance du biofilm. Une surface de garnissage étendue est souhaitée pour maximiser le contact entre les microorganismes et les substrats dissous dans le liquide, favorisant ainsi l'efficacité du processus biologique [43]. Dans l'étude de Sposób et al. (2024), différents éléments de garnissage, variant en longueur, diamètre, et surface, ont été évalués. Les conclusions de cette recherche indiquent que même si les dimensions des éléments de garnissage affectent leurs fonctionnalités, les effets ne sont pas toujours prédictibles. La forme des éléments s'avère plus déterminante que leurs dimensions spécifiques. Il a été observé que les structures légèrement plus ouvertes, offrant plus d'espace entre les éléments et moins de surface protégée,

créent un environnement plus favorable au développement des méthanogènes hydrogénotrophes [43].

### 1.5.2 Évaluation des paramètres clés de l'hydrodynamique

La première étape dans l'évaluation des paramètres hydrodynamiques est de déterminer les régimes d'écoulement prédominants dans le réacteur illustrés à la Figure 1.6, qui incluent : trickle flow regime (régime d'écoulement par ruissellement), pulse flow regime (régime d'écoulement par impulsions), spray regime (régime par pulvérisation) et bubbly regime (régime par bulles). De nombreuses corrélations existent pour définir ces régimes d'écoulement et les transitions entre eux. La perte de charge est un indicateur clé des interactions au sein du système et est fréquemment utilisée pour corrélérer d'autres paramètres de conception, tels que les coefficients de transfert de masse gaz-liquide et liquide-solide, l'efficacité de mouillage et le coefficient de transfert de chaleur. Le taux de mouillage est le pourcentage du garnissage qui est recouvert par le film liquide. Estimer ce taux peut s'avérer particulièrement difficile en raison de la distribution inégale du liquide sur les éléments de garnissage comme représenté sur la Figure 1.7. Les variations de ce taux peuvent entraîner des variations du niveau de mouillage qui influencent directement les performances du réacteur, surtout lorsque la réaction est limitée par la phase liquide. Cette hétérogénéité peut réduire le taux de réaction proportionnellement au degré de mouillage, qui dépend des conditions opératoires du réacteur.

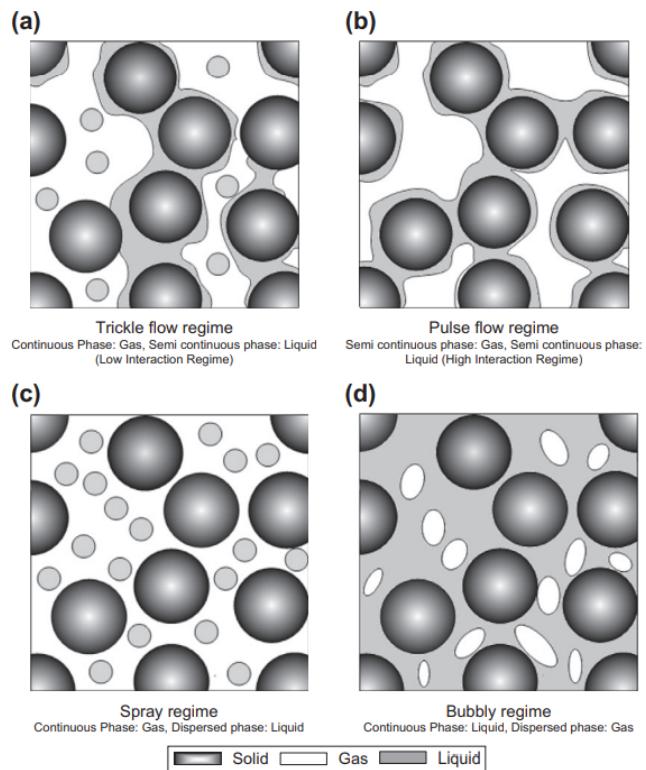


FIGURE 1.6 – Différents régimes d'écoulement dans un TBR [41].

Les paramètres influençant le taux de mouillage incluent les diamètres du lit et des éléments de garnissage, ainsi que la distribution du liquide. Les proportions de phases, telles que le "gas hold-up" (fraction de vide) et le "liquid hold-up", sont également critiques pour

la productivité de la fermentation. Le "gas hold-up" est le ratio entre le volume de gaz et le volume total du réacteur [21], tandis que le "liquid hold-up", qui peut se diviser en dynamique et statique, dépend principalement des dimensions du réacteur et des éléments de garnissage [41].

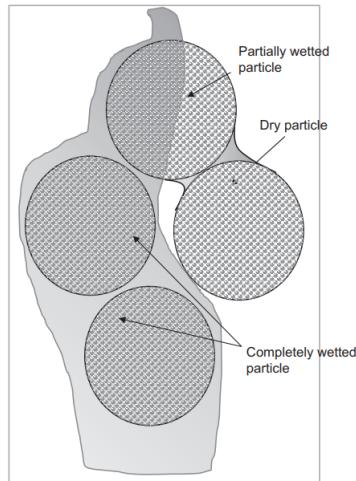


FIGURE 1.7 – Comportement de mouillage des particules dans un TBR [41].

La distribution du liquide est l'écoulement du liquide sur les éléments de garnissage. Lorsque cette distribution est hétérogène, on parle alors de maldistribution, ce qui est illustrée à la Figure 1.8 et peut être influencée par divers facteurs. Ceux-ci incluent le rapport entre le diamètre du réacteur et celui des particules de catalyseur (éléments de garnissage), les propriétés physico-chimiques du liquide (densité, viscosité, tension de surface), ainsi que les débits de liquide et de gaz. La forme et l'orientation des particules de catalyseur, le type de matériau de garnissage, la vitesse du gaz, le design du distributeur de liquide, et les effets de paroi jouent également un rôle [8]. La précision dans la caractérisation de la maldistribution est essentielle puisqu'elle limite l'interaction efficace entre les phases gaz-liquide, entraînant des zones sèches et une utilisation réduite du volume réactionnel [29].

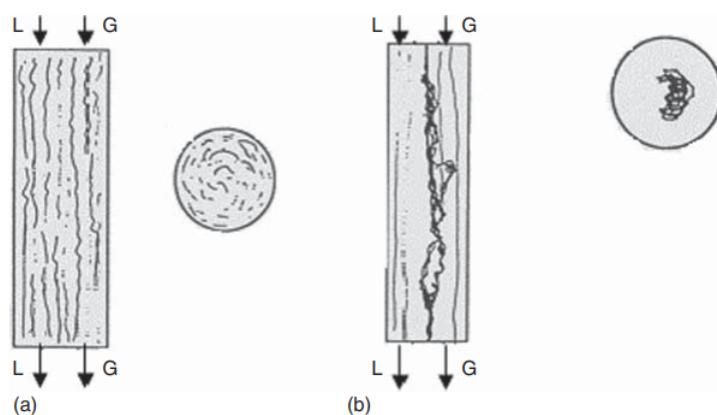


FIGURE 1.8 – Maldistribution de l'écoulement liquide dans une colonne [50].

Certaines études tendent à montrer que la distribution du liquide sur la région en vrac du lit d'éléments de garnissage devenait plus uniforme à mesure que le débit de gaz augmentait, à condition que la distribution initiale du gaz soit uniforme. La longueur de développement nécessaire au liquide pour atteindre le motif d'écoulement entièrement développé dépend du débit de gaz [50] [27]. Dans l'étude de Kouri, R., Sohlo, J. [27], il est également démontré qu'une certaine hauteur minimale est nécessaire pour obtenir un écoulement établi s'il n'y a pas de flux gazeux dans la colonne.

Il est possible de créer des modèles afin de prédire l'écoulement du liquide dans les colonnes à garnissage [50]. L'article d'Atta, Arnab, et al. [8] présente un modèle conçu pour prédire et comprendre la répartition inégale du liquide à l'intérieur du réacteur. Il permet de simuler le flux gaz-liquide à travers un milieu poreux pseudo-homogène, ce qui permet de représenter la complexité des flux tout en rendant ces phénomènes plus faciles à appréhender.

### 1.5.3 Évaluation des transferts de masse

Les transferts de masse dans un réacteur impliquent la convection et la diffusion d'espèces chimiques entre différentes phases. La force motrice derrière ces transferts est la différence de potentiel chimique, généralement entre les phases liquide et gazeuse, orientant le mouvement des molécules du potentiel le plus élevé vers le plus faible. Les paramètres critiques tels que la diffusivité des espèces et les flux de phase influencent significativement ces transferts [3].

Les principaux mécanismes de transfert de masse, régis par la loi de Fick pour la diffusion et la loi de Newton pour la convection, sont exprimés respectivement comme suit :

$$J_A = -D_{AB} \cdot \frac{dC_A}{dx} \quad (\text{Loi de Fick}) \quad (1.3)$$

$$J_A = k_{ma} \cdot (C_{A,1} - C_{A,2}) \quad (\text{Loi de Newton}) \quad (1.4)$$

Les échanges de matières entre gaz et liquide ou entre plusieurs fluides, de manière générale, sont également décrits par la théorie du film. Cette théorie considère que la résistance au transfert de masse dans une phase fluide turbulente donnée est présente dans une fine couche adjacente à l'interface, appelée film. Dans cette théorie, il peut y avoir un ou deux films selon les cas étudiés, comme représenté à la Figure 1.9 [30]. Le transfert du gaz se fait d'abord par un transfert du volume de gaz vers le film de gaz et ensuite de ce film de gaz vers le film liquide et finalement vers le volume liquide. Les deux films sont caractérisés respectivement par un  $k_g$  et  $k_l$  respectivement coefficient de transfert de masse dans le gaz et le liquide ( $\text{m s}^{-1} \text{Pa}^{-1}$  et  $\text{m s}^{-1}$ ). Ainsi, il est possible de reformuler le transfert de la manière suivante :

$$J_A = K_{g,l} \cdot (P_A - KC_{A,l}) \quad (1.5)$$

Où  $K_{g,l} = \left( \frac{1}{k_g} + \frac{1}{k_l} \right)^{-1}$  représente la résistance en série des deux films et  $J_A$  est le flux molaire en  $\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ . À ce modèle, il est commun de rajouter un facteur d'accélération  $E \geq 1$ , afin de tenir compte des réactions se produisant dans le liquide [15]. Le terme de résistance au transfert dans le film gazeux peut dans certains cas être négligé, par exemple lorsque la valeur de la constante de Henry,  $K$ , est élevée (comme pour le  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2$  et  $\text{O}_2$ ).

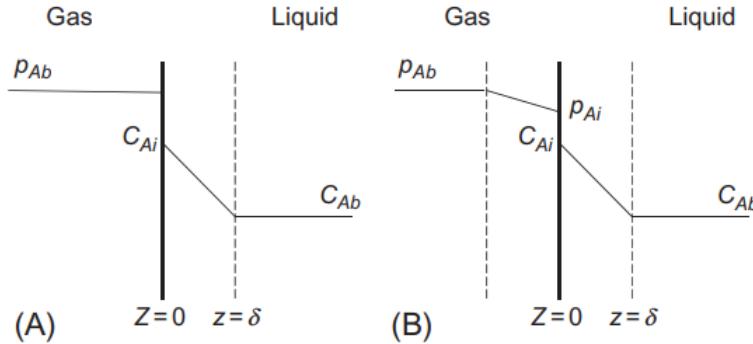


FIGURE 1.9 – Théorie des films [30].

Le coefficient de transfert de masse dépend fortement de la géométrie du système, des conditions d'agitation, des dimensions et des propriétés physiques des fluides telles que la viscosité et la densité [15]. La prédiction des coefficients de transfert de masse volumique dans des milieux de viscosités variables peut être particulièrement complexe, comme l'a montré l'étude de Petricek et al. (2017). Cette prédiction nécessite l'utilisation de corrélations fiables basées sur des données expérimentales pour optimiser la conception et l'échelle des bioréacteurs [38]. Ces corrélations sont généralement formulées en termes de nombres adimensionnels tels que Reynolds (nombre de Reynold (Re)), Schmidt (nombre de Schmid (Sc)) et Sherwood (nombre de Sherwood (Sh)) [24]. Elles permettent de prédire le comportement hydrodynamique et les performances de transfert de masse en fonction des conditions opératoires [24] [12]. L'article de Wang et al. (2005) recense plusieurs corrélations pour des coefficients de transfert de masse dans la phase liquide pour divers systèmes présentées dans le Tableau 1.2 [49].

TABLEAU 1.2 – Exemples de corrélations pour le calcul de coefficients de transfert de masse dans la phase liquide avec les garnissages disposés en vrac [49]

| Auteur (PI)                 | Corrélation  |
|-----------------------------|--|
| Sherwood and Holloway       | $k_L = m \left( \frac{D_L}{a_e} \right) \left( \frac{\rho_L u_L}{\mu_L} \right)^{1-n} Sc_L^{0.5}$  |
| Van Krevelen and Hofstijzer | $k_l = 0.015 \frac{D_L}{(\mu_L / (\rho_L^2 g z))^{1/3}} \left( \frac{\rho_L u_L}{a_e \mu_L} \right)^{2/3} Sc_L^{1/3}$  |
| Onda et al. Bravo and Fair  | $k_l = \frac{0.0051}{(\frac{a_p}{d_p})^{-0.4}} \left( \frac{\mu_L g z}{\rho_L} \right)^{1/3} \left( \frac{\rho_L u_L}{a_e \mu_L} \right)^{2/3} Sc_L^{-0.5}$            |
| Zech and Mersmann           | $k_L = K_L \sqrt{\frac{6 D_L}{\pi d_{pe}}} \left( \frac{\rho_L g z}{\sigma_L} \frac{d_{pe}^2}{\sigma_L} \right)^{-0.15} \left( \frac{u_L g z}{3} d_{pe} \right)^{1/6}$ |

La plupart des paramètres cités dans cette section peuvent généralement être évalués de manière empirique.

#### 1.5.4 Perte de charge

La perte de charge dans un réacteur quantifie l'énergie perdue lorsque les fluides traversent le lit de garnissage du réacteur. Elle est essentielle pour évaluer les pertes d'énergie et dimensionner l'équipement de compression. Elle affecte également la rétention de liquide, l'efficacité du contact entre phases, et les coefficients de transfert de masse [5]. Des mesures de variations de pression peuvent indiquer des zones de colmatage ou d'accumulation de liquide, des zones de stagnation ou des problèmes d'écoulement, et même des risques de

formation de mousse dans certaines configurations, bien que notre usage d'eau et d'air réduise ce dernier risque [51].

### 1.5.5 Évaluation des aspects pour le scale-up/scale-down

Le terme "scale-up" est le processus d'augmentation de la taille ou de la capacité d'un réacteur ou d'un processus chimique, passant d'une échelle de laboratoire ou pilote à une échelle industrielle plus grande. Inversement, le "scale-down" est le processus consistant à réduire la taille pour obtenir un système intermédiaire entre l'échelle industrielle et l'échelle de laboratoire. Ces opérations présentent de nombreux défis, notamment en raison des interactions complexes entre l'hydrodynamique, le transfert de masse, et les réactions chimiques [13]. Pour extrapoler avec succès du laboratoire à l'échelle commerciale et industrialiser une technologie nouvellement développée, le scale-up est essentiel.

Les simulations numériques sont fondamentales pour le scale-up, car elles permettent de prédire le comportement des bioréacteurs et d'optimiser leur conception [36]. Un défi majeur dans l'élaboration d'une méthodologie robuste pour le scale-up est de mesurer et de modéliser les interactions complexes entre les phases gaz-liquide, gaz-solide, et liquide-solide, ainsi que leur interaction avec la géométrie du catalyseur, qui dépend de la taille, de la forme, et de la disposition des particules dans le lit [13].

### 1.5.6 Modélisation

La modélisation joue un rôle fondamental dans l'étude et la conception de réacteurs. Elle peut intervenir à différents niveaux, particulièrement pour modéliser les écoulements, les transferts de matière, les réactions chimiques et le scale-up. Un modèle est composé de relations mathématiques qui lient les variables clés décrivant le comportement d'un système. Selon l'objectif visé, les modèles peuvent varier en complexité et leur simulation offre des représentations plus ou moins simplifiée de la réalité. Il est généralement reconnu que quatre types de modèles principaux existent [10] :

- **Modèles théoriques**, basés sur des théories et des principes fondamentaux tels que la conservation de la masse.
- **Modèles empiriques**, qui s'appuient sur des données expérimentales, comme l'équation de Monod.
- **Modèles phénoménologiques**, qui décrivent des phénomènes particuliers tels que certaines réactions chimiques et peuvent être théoriques ou empiriques.
- **Modèles de boîtes noires, blanches et grises**, où les boîtes noires n'ont aucune interprétation physique, les blanches en ont, et les grises se situent entre les deux.

Les modèles en génie chimique décrivent les écoulements multiphasiques à travers un lit d'éléments de garnissage en utilisant des équations de continuité (conservation de la masse) et de quantité de mouvement pour chaque phase fluide, complétées par des conditions de fermeture appropriées. Ces modèles sont souvent simplifiés par des hypothèses qui réduisent leur complexité. Des exemples courants de telles hypothèses incluent l'incompressibilité des fluides, un régime permanent, ainsi qu'une porosité uniforme et constante [25]. Cette approche des modèles en génie chimiques est très réductrice, car il existe de nombreux autres types de modèles qui capturent différentes dimensions de ces phénomènes complexes.

La Figure 1.10 décrit le récapitulatif général de la création d'un modèle, débutant par la définition des objectifs basés sur la connaissance préalable du système, qui oriente toutes les étapes suivantes.

Une base de données expérimentale est ensuite conçue pour collecter des données essentielles à la robustesse du modèle.

La structure du modèle est choisie en fonction des données et des objectifs.

Vient ensuite, la sélection d'un critère d'identification pour ajuster les paramètres du modèle. La minimisation de la fonction de coût affine le modèle, qui est ensuite évalué pour s'assurer qu'il répond aux critères de performance préétablis. Si des ajustements sont nécessaires, le processus peut revenir à des étapes antérieures pour des révisions. Cette approche itérative garantit que le modèle final est non seulement aligné avec les objectifs initiaux mais aussi optimisé pour une performance maximale dans des conditions réelles.

La validation constitue l'étape finale du développement du modèle, elle se fait par validation directe, où les prédictions du modèle sont comparées aux données expérimentales via des analyses graphiques ou le calcul du coefficient de détermination ( $R^2$ ), et par cross-validation, qui évalue la capacité du modèle à prédire précisément des données non utilisées lors de l'estimation des paramètres, fournissant ainsi une mesure robuste de ses capacités prédictives [10].

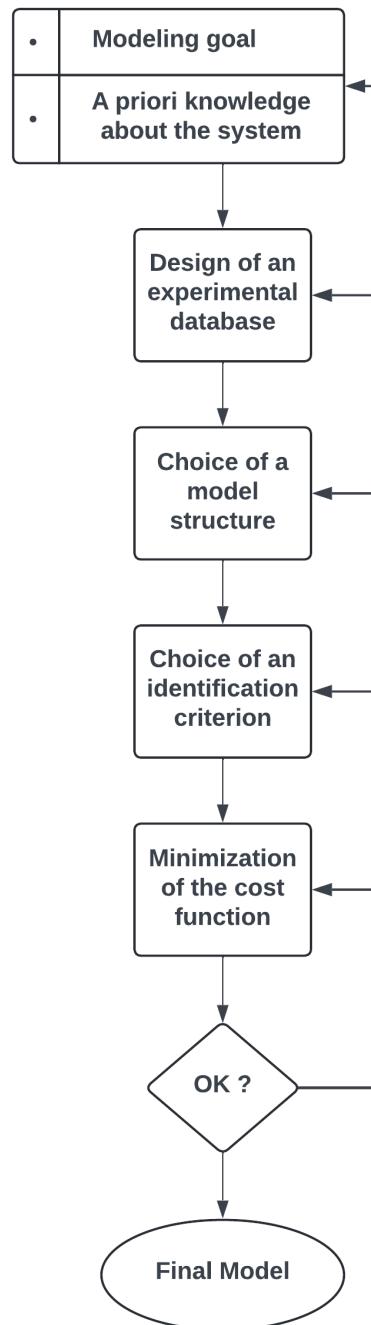


FIGURE 1.10 – Récapitulatif de la création d'un modèle [10].

## 1.6 Énoncé du problème

La conception d'un bioréacteur de type TBR représente un défi complexe en raison de la multitude de paramètres interdépendants. Comme souligné précédemment, cette complexité exige une attention méticuleuse à chaque étape de la conception et de l'opération. Les paramètres tels que la géométrie du réacteur, les propriétés physiques des fluides, les conditions d'opération (débits, températures, pressions) et les caractéristiques des éléments de garnissage influencent significativement les performances du réacteur. L'écoulement complexe et hétérogène des phases liquide et gazeuse ainsi que les transferts de matière varient considérablement d'un réacteur à l'autre en fonction de ces paramètres, rendant chaque réacteur unique et compliquant la prédiction et le contrôle des performances. Une compréhension précise des interactions entre les phases et leur influence sur les processus de transfert est primordiale pour la conception et l'optimisation de ces bioréacteurs TBR.

Ce mémoire vise à fournir des informations précieuses sur les transferts de matière dans un modèle simplifié d'un TBR utilisé pour la méthanation biologique. En outre, il souligne l'importance d'une approche systématique pour aborder la complexité de la conception d'un TBR et pour atteindre des performances optimales dans ce cadre contrôlé.

Il convient de noter que cette étude ne prend pas en compte les aspects liés aux microorganismes et aux réactions biochimiques spécifiques. Cependant, des recherches futures sur ces deux sujets sont essentielles afin de fournir une compréhension plus complète des mécanismes opérant dans le réacteur.

# Chapitre 2

## Objectifs du mémoire

Ce mémoire vise à reconstruire, de manière abiotique, une réplique aussi fidèle que possible du trickle bed reactor utilisé à l'IEP au Canada. Au sein de ce TBR, nous caractériserons les écoulements des phases liquide et gazeuse, tout en étudiant les phénomènes de transfert de matière qui s'y manifestent. À noter que cette étude n'aborde pas certains aspects mentionnés dans la section 1.5, tels que le choix des éléments de garnissage, la maldistribution du liquide et le scale-up.

Afin de réaliser nos objectifs, les étapes clés suivantes sont mises en œuvre :

- Calcul des fractions volumiques des phases (solide, liquide, gazeuse), notées  $\epsilon_i$ , dans le réacteur. L'analyse comprend des mesures effectuées sous diverses conditions opératoires, telles que les variations des débits liquide et gazeux, ainsi que l'utilisation de deux types d'éléments de garnissage. Ces données seront utilisées pour calculer les temps de séjour, en particulier pour la phase liquide, ce qui permettra ensuite d'estimer l'épaisseur moyenne des films liquides autour des éléments de garnissage et de déduire les coefficients de transfert de matière.
- Analyse de la perte de charge linéique,  $P(z)$ , à travers des mesures de pression réalisées à diverses hauteurs du réacteur sous différentes conditions opératoires.
- Calcul des coefficients de transfert de matière,  $k_{La}$ . En mesurant la concentration en oxygène dans le liquide, les  $k_{La}$  peuvent être déterminés graphiquement. Nous testons différentes conditions opératoires, telles que les variations du débit de liquide et de gaz, ainsi que l'utilisation de deux types d'éléments de garnissage, pour analyser leur impact sur les valeurs des coefficients de transfert. Les mesures d'oxygène sont privilégiées en raison des limitations pratiques et des contraintes de sécurité qui empêchent l'utilisation du CO<sub>2</sub> et de l'H<sub>2</sub>. Nous postulons que le coefficient  $k_{La}$  de l'O<sub>2</sub> peut être extrapolé pour estimer les  $k_{La}$  du CO<sub>2</sub> et de l'H<sub>2</sub> en utilisant les coefficients de diffusion spécifiques de ces gaz.
- Caractérisation de la dispersion. Elle se fait au travers de la mesure du pourcentage d'oxygène en haut de la colonne dans le gaz circulant à travers le lit de garnissage. Cette mesure est essentielle pour caractériser le suivi de l'écoulement du gaz dans le réacteur et pour détecter la présence de phénomènes tels que la dispersion, les turbulences, le mélange, etc.
- Établissement d'un modèle alimenté par les résultats expérimentaux. Ces paramètres expérimentaux sont les fractions volumiques de phase,  $\epsilon_i$ , les temps de convection,  $\tau_c$ , et les coefficients de transfert de matière adaptés pour les espèces chimiques concernées,  $k_{La}$ . La simulation est indispensable pour analyser le comportement du réacteur, en particulier pour mettre en évidence les écoulements des phases liquide et gazeuse à l'intérieur de celui-ci. Ce modèle intègre un terme de transfert de matière ainsi que la consommation de celle-ci par des microorganismes, offrant ainsi une compréhension enrichie des interactions complexes au sein du système.

# Chapitre 3

## Matériels et méthodes

### 3.1 Le Trickle Bed Reactor

Des images détaillées des éléments du réacteur sont présentées dans l'annexe A.1.

#### 3.1.1 Configuration et conception du TBR

- Colonne de chlorure de polyvinyle (PVC) de 135cm de hauteur et 18 cm de diamètre.
- Mass Flow Controller GFC, AALBORG, model : GFC17.
- Débitmètre Burkert, Type 8611 - eCONTROL - Universal controller.
- Débitmètre à air Rota Oeflingen [12L/h-200L/h].
- Pompe Gardena 3000/4 Jet.
- Vannes pour la mesure de pression et le contrôle du débit liquide.
- Dispositif d'entrée de liquide, conçu sur mesure : une structure de type "douche" en PVC, réalisée pour distribuer uniformément le liquide sur le lit de garnissage.
- Tuyaux métalliques utilisés pour la recirculation du liquide, adaptés aux spécifications du réacteur pour assurer une gestion efficace du flux et le bon fonctionnement du débitmètre liquide.
- Bassin de refroidissement, 0.3m<sup>3</sup>

La construction de notre TBR au laboratoire TIPs nécessite de respecter le cahier des charges imposé par l'IEP. En effet, notre objectif étant de reproduire un système déjà existant, certains paramètres, tels que les dimensions, le choix des éléments de garnissage, les entrées de liquide et de gaz, etc., sont imposés pour représenter plus fidèlement possible le système de l'IEP. Ce système, schématiquement illustré à la figure 3.1, a été soigneusement planifiée pour une étude approfondie de l'hydrodynamique au sein du trickle bed reactor. La colonne principale, en PVC transparent, mesure 18 cm de diamètre, légèrement inférieure aux 20 cm de la colonne utilisée dans le laboratoire au Canada. Cette différence, bien que notable, est jugée non problématique en termes de budget et d'objectifs du projet. L'intérêt d'une colonne en PVC est qu'elle permet de visualiser directement l'écoulement des fluides, ce qui est impossible avec des colonnes en acier inoxydable.

Le système est monté sur un support amovible, offrant la flexibilité nécessaire pour ajuster facilement sa position en fonction des besoins expérimentaux, tels que les connexions aux sources d'eau, de gaz, et d'alimentation électrique nécessaires au fonctionnement de la pompe, des débitmètres et du compresseur. La stabilité est garantie par un montage solide sur ce support, avec deux couvercles amovibles qui facilitent les interventions et les modifications.

La conception modulaire du réacteur est illustrée par la facilité avec laquelle le couvercle supérieur peut être retiré, permettant des changements rapides des éléments de garnissage. Cela est essentiel pour adapter le réacteur à différentes configurations expérimentales, et

pour observer l'impact de ces variations sur l'hydrodynamique du système. Le dispositif d'entrée du liquide, installé au sommet de la colonne, est une "douche" faite d'une plaque de PVC circulaire de 15 cm de diamètre, percée de trous en forme d'étoile pour optimiser et homogénéiser la distribution du liquide sur les éléments de garnissage. Cette distribution uniforme est cruciale pour simuler fidèlement les conditions opérationnelles du TBR et permettre une étude détaillée de l'interaction entre les phases liquide et gazeuse.

La colonne de notre trickle bed reactor est structurée en trois segments principaux pour faciliter les différents aspects de son fonctionnement. La partie inférieure, le réservoir, permet le remplissage et la vidange, intégrant une connexion directe à la pompe pour la recirculation du liquide vers le haut de la colonne. La partie intermédiaire, le réacteur, mesure 99 cm de hauteur et est composée des différents éléments de garnissage, il s'agit donc de l'endroit où la méthanation biologique prend place. Ces éléments de garnissage sont disposés en vrac et sur toute la hauteur et non pas dans 3 sacs grillés comme c'est le cas dans le réacteur principal à l'IEP. La partie supérieure, quant à elle, permet d'évacuer le gaz entrant dans la colonne et d'amener le liquide dans la partie intermédiaire de manière homogène, d'où l'importance d'espacer la "douche" des éléments de garnissage.

### 3.1.2 Fonctionnement de notre TBR

Notre trickle bed reactor opère selon le principe standard des TBR, caractérisé par un écoulement de gaz vers le haut et de liquide vers le bas en contre-courant, une méthode efficace pour maximiser le transfert de masse entre les phases. L'entrée de gaz est stratégiquement placée sous la grille qui supporte les éléments de garnissage, permettant au gaz de s'élever à travers le lit avant de s'échapper par une ouverture au sommet de la colonne. Les éléments de garnissage utilisés sont des petits cylindres de quelques centimètres conçus pour supporter la croissance de biofilm, tout en étant spécialement construits pour offrir une surface d'échange gaz-liquide optimale (voir figure A.6). Dans ce mémoire, deux types d'éléments de garnissage sont utilisés, chacun présentant des spécificités propres telles que la surface spécifique et la densité.

Au-dessus de la colonne, le liquide est distribué uniformément grâce à un système de douche conçu pour assurer une couverture complète des éléments de garnissage. Ce liquide percole à travers le lit de garnissage, captant les gaz montants, avant de s'accumuler dans le réservoir situé à la base. Durant le fonctionnement actif, une pompe recircule ce liquide du réservoir au sommet de la colonne, passant par un serpentin dans un bassin de refroidissement. Ce dispositif de refroidissement est essentiel pour contrôler la température du système.

La régulation des débits de gaz et de liquide est nécessaire pour l'ajustement précis des conditions opératoires et est facilitée par l'usage de débitmètres dédiés. Ces ajustements permettent une optimisation continue des performances du réacteur, adaptant le système aux différentes exigences des processus étudiés. Lorsque le réacteur n'est pas en fonctionnement, un conduit d'évacuation permet de drainer le liquide accumulé vers l'égout.

### 3.1.3 Chronologie des améliorations apportées au TBR

Le réacteur, conçu au début de ce projet, a été initialement assemblé à partir de composants disponibles dans notre laboratoire. Au fur et à mesure des expérimentations, des modifications ont été nécessaires pour répondre aux exigences spécifiques des différentes études. Par exemple, nous avons installé une nouvelle entrée pour l'injection de gaz, optimisant ainsi le bullage à l'azote, et ajouté un second orifice en bas de la colonne pour placer une sonde de température, augmentant ainsi la précision des mesures.

Nous avons testé trois pompes différentes ; la première, une Gardena 3000/4 Jet, avec un débit maximal de  $50 \text{ L min}^{-1}$  et une capacité de montée à 35 m pour une puissance de 600 W, engendrait une élévation considérable de la température du liquide et était sujette à des phénomènes de cavitation lors de variations de débit. Compte tenu de la configuration de notre système, 2-3 m de tuyaux, trois coudes, et une vanne de précision, les pertes de charge auraient dû être faible (équivalent à quelques mètres de hauteur d'eau), et donc une pompe moins puissante pourrait convenir. Nous avons d'abord opté pour la pompe ZYIY moins puissante (100 W), avec un débit maximum de  $20 \text{ L min}^{-1}$  et une hauteur maximale de 10 m. Cependant, cette pompe ne permettait pas de dépasser un débit de  $2 \text{ L min}^{-1}$ , alors que la capacité de variation du débit liquide est un paramètre crucial pour nos expériences. Pour remédier à cela, nous avons remplacé la vanne de précision par une vanne plus simple, réduisant ainsi considérablement les pertes de charge et augmentant le débit maximal de la pompe ZYIY. Néanmoins, cette solution entraînait encore une augmentation notable de la température du fluide lié au travail de la pompe nous obligeant à modifier le système avec l'ajout d'un serpentin dans un bassin de refroidissement. Cette dernière option induisant une perte de charge significative, nous avons donc finalement opté pour une autre pompe, similaire à la Gardena 3000/4 Jet, mais légèrement plus puissante, ce qui nous permet de manipuler une plus grande plage de débits liquides, un paramètre essentiel pour mesurer le coefficient de transfert d'oxygène ( $k_{La}$ ), comme discuté dans la section 3.2.3.

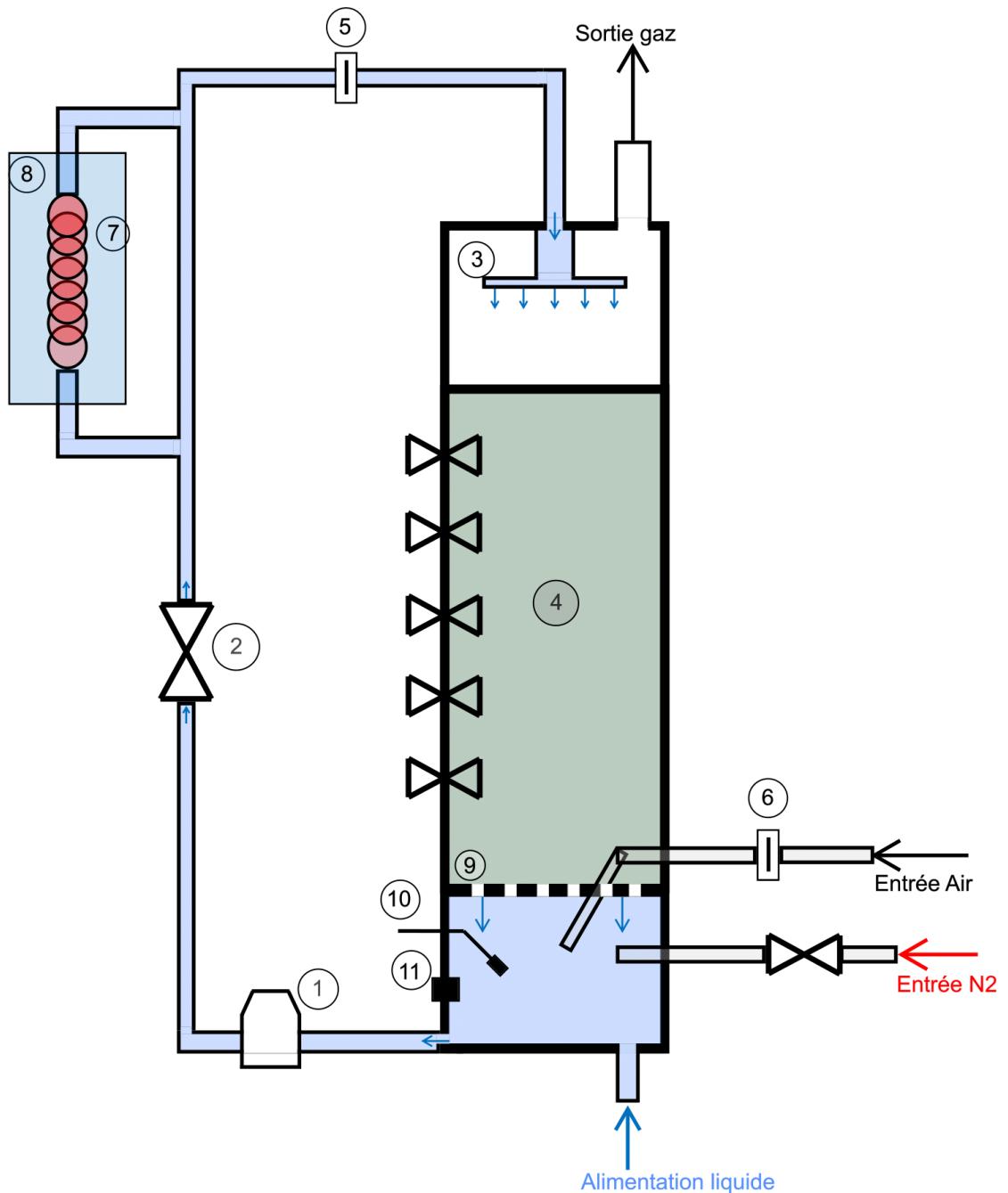


FIGURE 3.1 – Diagramme schématique du TBR au TIPs (Schéma non proportionnel). 1. Pompe ; 2. Vanne ; 3. Diffuseur liquide ("douche") ; 4. Éléments de garnissage ; 5. Débitmètre liquide ; 6. Débitmètre gazeux ; 7. Serpentin en cuivre ; 8. Bassin de refroidissement ; 9. grille de séparation ; 10. Sonde température ; 11. Pastille mesure concentration en O<sub>2</sub>.

## 3.2 Protocoles expérimentaux

### Liste des sondes et des dispositifs expérimentaux

- Élément de garnissage 1, Hill flow rings 25-7 [2].
- Élément de garnissage 2, RFK 25 L [1].
- Sonde  $O_2$ , PreSens' Featured System for Oxygen Ingress Measurements. Fibox 4 trace + Polymer Optical Fiber POF + Oxygen Sensor Spot SP-PSt3.
- Board Mount Pressure Sensors ELVH 100 MBAR DIFF RR LID DIP COMMERCIAL NO COATING I2C 3.3V.
- Arduino Uno.
- Board + câbles.

#### 3.2.1 Mesure de proportion de phases dans le réacteur

La phase solide est mesurée distinctement des phases liquide et gazeuse, étant donné que le volume de la phase solide reste constant lors des expériences impliquant des variations du débit. La proportion de phase solide,  $\epsilon_s$ , est exprimée selon l'équation 3.1 :

$$\epsilon_s = \frac{V_{\text{solide}}}{V_{\text{reacteur}}} \quad (3.1)$$

De manière similaire, les proportions de phase liquide,  $\epsilon_l$ , et gazeuse,  $\epsilon_g$ , sont exprimées respectivement selon les équations 3.2 et 3.3 :

$$\epsilon_l = \frac{V_{\text{liquide}}}{V_{\text{reacteur}}} \quad (3.2)$$

$$\epsilon_g = \frac{V_{\text{gaz}}}{V_{\text{reacteur}}} \quad (3.3)$$

Dans ces équations,  $V_{\text{reacteur}}$  représente le volume du réacteur en  $\text{m}^3$ , représenté en vert sur la figure 3.1. Dans le réacteur, la somme des proportions des différentes phases remplit intégralement le volume du réacteur :

$$\epsilon_s + \epsilon_l + \epsilon_g = 1 \quad (3.4)$$

#### 1. Plan d'expérience de mesure de phase solide

##### Objectif :

Mesurer la proportion de solide dans le TBR.

##### Variables à étudier :

Type d'éléments de garnissage : Hill flow rings 25-7, RFK 25L.

##### Protocole expérimental :

Un bêcher de grande capacité est utilisé pour cette expérimentation. Les éléments de garnissage y sont disposés en vrac et secoués pour améliorer la compression. Ensuite, un volume d'eau est ajouté jusqu'à ce que le récipient soit plein. Ce volume d'eau ajouté représente la porosité (proportion de vide) du bêcher. Afin de minimiser tout

biais dû à l'arrangement aléatoire des éléments de garnissage, plusieurs tests sont effectués.

#### **Analyse des données :**

La différence entre le volume total du bêcher et le volume d'eau ajouté donne le volume des solides présents dans le bêcher. Cette méthode permet de déterminer la proportion de solides, conformément à l'équation 3.1, qui est ensuite extrapolée pour estimer la proportion de solides dans le réacteur. Les dimensions connues du réacteur, notamment sa hauteur et son diamètre, permettent de calculer précisément le volume de solides pour une hauteur de réacteur spécifiée.

## **2. Plan d'expérience de mesure de phase liquide et gazeuse**

#### **Objectif :**

Mesurer la proportion des phases gazeuse et liquide lors de variation du débit de gaz et de liquide.

#### **Variables à étudier :**

- Type d'éléments de garnissage : Hill flow rings 25-7, RFK 25L.
- Débit liquide ( $L \text{ min}^{-1}$ ) : 2.5, 3.5, 4.5 (Régime de travail), 5.5, 6.5.
- Débit gazeux ( $mL \text{ min}^{-1}$ ) : 25, 50 (Régime de travail), 100, 250, 500.

#### **Protocole expérimental :**

Remplir le réservoir du réacteur à 5 L et ensuite pour chaque débit de gaz, faire varier le débit de liquide. Après être arrivé à l'équilibre, mesurer la différence de hauteur dans le réservoir en dessous du réacteur pour connaître le volume dans les tuyaux et dans le réacteur. Cette mesure se fait avec un papier millimétré pour limiter les erreurs de mesures.

#### **Analyse des données :**

Pour le liquide, il faut transformer les variations de volume dans le réservoir en termes de proportion de phase. Et pour le gaz, étant donné l'équation 3.4 et que chaque terme est connu, la dernière inconnue est calculée. Ensuite, des graphiques de proportion de phase en fonction du débit sont réalisés avec l'ajout de barres d'erreurs représentant les écarts-types (STDEV) calculés à l'aide d'Excel.

#### **Interprétation des résultats :**

Comparer l'influence respective et combinée des débits sur les valeurs de proportions de phase. Trouver ensuite des indications sur la taille du film de liquide autour des éléments de garnissage et sur des valeurs théoriques de  $k_L A_p$  à comparer avec d'autres expériences et la littérature. Plusieurs hypothèses sont donc posées : le mouillage complet des éléments de garnissage et la surface d'échange gaz-liquide participent entièrement au transfert.

### 3.2.2 Mesure de pression

Des vannes ont été disposées à différentes hauteurs de réacteur dans le but de caractériser la perte de charge linéaire au sein du réacteur, dû à la dissipation d'énergie lors de l'écoulement des fluides. C'est-à-dire mesurer  $P(z)$  où  $P$  est la pression et  $z$  est la coordonnée de la hauteur du réacteur. Les vannes sont situées à 5, 20, 40, 60 et 80 cm au-dessus de la base du réacteur.

Les mesures de pression sont effectuées à l'aide d'un Capteur de pression monté sur une "board". Ce capteur utilise un bus Inter-Integrated Circuit (I2C) afin de communiquer. Le schéma de câblage ainsi que la sonde sont présentés dans la figure 3.2.

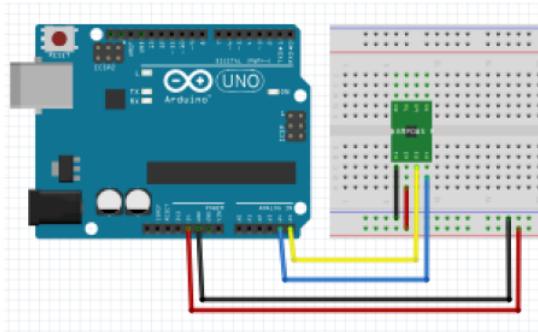


FIGURE 3.2 – Schéma de la connexion de la sonde de pression à l'Arduino Uno [45].

Le câblage assure l'alimentation du capteur avec une tension de 3,5 V et connecte les sorties du bus aux entrées correspondantes de l'Arduino Uno. Cet Arduino, utilisé pour l'acquisition des données, est connecté à un ordinateur équipé du logiciel Arduino IDE, qui permet d'afficher les mesures. Pour acquérir les données, il est nécessaire de programmer un code spécifique, détaillé dans l'annexe A.2.

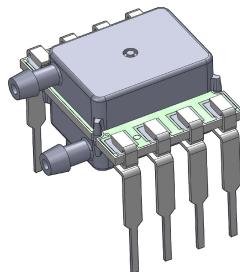


FIGURE 3.3 – Capteur de Pression [4].

La sonde de pression réalise des mesures différentielles entre ses deux sorties, comme illustré dans la figure 3.3. Une sortie est reliée à un tube s'étendant jusqu'à la colonne pour mesurer la pression à différentes hauteurs. La seconde sortie évalue la différence de pression par rapport à la pression ambiante. Pour tester le capteur, des mesures ont été prises avec les deux sorties positionnées à la même hauteur, montrant des valeurs proches de zéro, indiquant l'absence de différence de pression. La plage de détection du capteur s'étend jusqu'à  $\pm 250$  Pa et il ne nécessite aucune calibration préalable à son utilisation.

### 3.2.3 Mesure du transfert de matière avec l’O<sub>2</sub>

#### Méthodes pour déterminer le $k_{La}$

Il existe de nombreuses méthodes pour les mesures de coefficient de transfert de masse. Le principe est de créer des cycles de dé-oxygénation et oxygénation de l'eau avec de l'air. Ces cycles vont permettre de suivre l'évolution de la concentration d'O<sub>2</sub> dans l'eau à différents débits liquide et gazeux [47] [34]. Trois techniques sont envisagées pour éliminer l'oxygène dissous de l'eau dans le contexte de notre étude : la méthode avec des sulfites, le bullage à l'azote et l'évaporation de l'eau à 1 atm [7].

La méthode des sulfites se base sur une réaction chimique utilisant du sulfite de sodium pour réagir avec l'oxygène, formant du sulfate [18]. Le désavantage de cette méthode est qu'elle nécessite une quantification précise de l'oxygène pour doser correctement le réactif ajouté au réacteur. Elle requiert également l'utilisation d'un catalyseur pour accélérer la réaction, rendant la mise en œuvre plus complexe et augmentant le coût de l'expérience.

La méthode d'évaporation de l'eau à 100°C impose une augmentation accrue de la température afin de diminuer la solubilité de l'oxygène dans l'eau [23]. Bien que cette technique puisse être avantageuse dans certaines situations, elle ne convient pas au cas actuel en raison de la nécessité de travailler à température constante et à des températures similaires à celles des conditions opératoires du réacteur de IEP.

La méthode du bullage à l'azote, qui consiste à purger l'eau d'oxygène en laissant passer un débit continu d'azote [22]. Cette méthode est choisie pour sa simplicité et sa capacité à fonctionner sans interruption. Cette caractéristique la rend particulièrement adaptée pour maintenir le fonctionnement continu du réacteur entre chaque cycle de mesure [7].

#### Équation de transfert de masse

L'équation suivante nous permet de quantifier la vitesse à laquelle l'oxygène dissous dans le liquide s'approche de son état d'équilibre avec la fraction molaire d'oxygène dans la phase gazeuse :

$$\frac{dC}{dt} = k_{La} \cdot (C^* - C) \quad [52] \quad (3.5)$$

Dans cette équation  $C^*$  est la concentration d'oxygène en phase liquide à l'équilibre avec la fraction molaire en phase gazeuse, calculée par la loi de Henry [26].  $C$  est la concentration en oxygène dissous à l'instant  $t$ . Lorsque la concentration  $C$  atteint la valeur à l'équilibre  $C^*$ , le transfert est arrêté. Dans la situation de l'équation 3.5, aucun terme de consommation d'oxygène n'est inclus, car les mesures sont effectuées dans le système abiotique, cependant il est courant de retrouver ce terme dans les équations de transfert de masse, sous la forme d'un facteur d'accélération, généralement noté  $E$ . Le terme  $k_{La}$  en  $s^{-1}$  est le produit du coefficient de transfert de masse dans la phase liquide ( $k_l$  en  $m s^{-1}$ ) et la surface d'échange gaz liquide ( $a$  en  $m^2$  d'interface gaz-liquide par  $m^3$  de liquide dans le système). L'intégration de cette équation donne :

$$\int_{C_i}^C \frac{1}{(C^* - C)} dC = k_{La} \int_{t_i}^t dt \quad (3.6)$$

$$-\ln \left( \frac{C^* - C}{C^* - C_i} \right) = k_L a(t - t_i) \quad (3.7)$$

### Mesure O<sub>2</sub> dans le trickle bed reactor

La mesure de l'oxygène se fait dans le réservoir en dessous de la partie du réacteur remplie par les éléments de garnissage. La mesure est réalisée grâce à une sonde de chez Presens composée d'une Fibox 4 trace, d'un senseur Spot SP-PSt3 et d'une fibre optique en polymère. La sonde mesure de manière optique la quantité d'oxygène présente dans le liquide, ici de l'eau, qui est analysée. La Fibox envoie des signaux luminescents par la fibre optique à travers une pastille collée à la paroi intérieure de la colonne. La Fibox mesure une valeur de phase qui permet directement de mesurer la concentration en oxygène. Le principe est basé sur l'effet de l'extinction dynamique de la luminescence par l'oxygène moléculaire. Cela signifie que la Fibox mesure le temps de décroissance de la luminescence du lumophore immobilisé en tant que paramètre dépendant de l'oxygène. Ce délai correspond à l'angle de phase entre le signal d'excitation et le signal émis. Cet angle de phase est décalé en fonction de la concentration en oxygène.

### Calibration de la sonde O<sub>2</sub>

La calibration des pastilles se fait via deux points : le premier par la mesure d'une eau sans oxygène créée par une réaction avec des sulfites ou par bullage à l'azote et le deuxième par une mesure d'une eau saturée en oxygène. Le capteur d'oxygène doit être réétalonné tous les 100 000 points de mesure. La limite de détection du senseur est de 15 ppb et la résolution est de  $\pm 0.045 \text{ mg/L}$  à  $9.059 \text{ mg/L}$  [19].

### Plan d'expérience

#### Objectif :

Déterminer le coefficient de transfert de masse,  $k_L a$ , sous différentes conditions opératoires, afin d'analyser l'effet de différentes variables sur ce transfert [47] [34].

#### Variables à étudier :

- Type de gaz : O<sub>2</sub>, azote (N<sub>2</sub>).
- Type d'éléments de garnissage : Hill flow rings 25-7, RFK 25L.
- Débit liquide ( $\text{L min}^{-1}$ ) : 3.5 (Faible), 7.0 (Élevé).
- Débit gazeux ( $\text{mL min}^{-1}$ ) : 50 (Fonctionnement), 500 (Élevé).

#### Conduite de l'expérience :

Effectuer des cycles d'oxygénation et dé-oxygénation dans le réacteur avec les différents couples de paramètres spécifiés. Pour chaque combinaison de niveaux de variables, mesurer la concentration du gaz dans le milieu à différents intervalles de temps. Enregistrer les données de concentration du gaz et les paramètres de fonctionnement du TBR pour chaque essai.

#### Analyse des données :

Grâce à l'équation 3.7, calculer les différentes valeurs de  $k_L a$  à partir des mesures de concentrations en oxygène en fonction du temps.

### **Interprétation des résultats :**

Analyser l'impact des différentes variables sur les valeurs de  $kLa$ . Identifier les conditions qui augmentent ce transfert de masse. Discuter des implications des résultats et des recommandations pour l'amélioration des performances du TBR.

#### **3.2.4 Caractérisation de l'écoulement gazeux**

Ces mesures sont réalisées avec la même sonde que celle utilisée pour le transfert de matière (voir section : 3.2.3).

#### **Plan d'expérience**

##### **Objectif :**

Suivre la variation du pourcentage d' $O_2$  dans le gaz dans le haut de la colonne afin d'analyser la dynamique de l'écoulement dans le réacteur sous différentes conditions.

##### **Variables à étudier :**

- Type de gaz :  $O_2$ ,  $N_2$ .
- Type d'éléments de garnissage : Hill flow rings 25-7, RFK 25L.
- Débit liquide ( $L \text{ min}^{-1}$ ) : 0, 7.5.

##### **Conduite de l'expérience :**

La mesure de la concentration d'oxygène se fait en haut de la colonne juste après le lit de garnissage. Un flux élevé d' $N_2$  est ensuite introduit pour réaliser une désoxygénation, éliminant l'oxygène présent et réduisant ainsi sa concentration à presque  $0 \text{ mg L}^{-1}$ . Une fois la colonne entièrement désoxygénée, l'apport d'azote est stoppé et l'alimentation en air reprise, lançant le processus de réoxygénéation. La concentration d'oxygène est alors continuellement mesurée pour observer la rapidité et la manière dont elle augmente.

##### **Analyse et interprétation des résultats :**

L'analyse qualitative des données permet d'évaluer l'effet des différents paramètres sur l'écoulement gazeux.

## Chapitre 4

# Modélisation et simulation de l'écoulement gaz-liquide et du transfert de matières dans le TBR

### 4.1 Modélisation

#### 4.1.1 Schéma de principe et notations

Le modèle commence par faire un bilan global du gaz et du liquide sur le réacteur suivi, d'un bilan sur une tranche  $\Delta z$  de ce réacteur. Ce bilan sur une tranche de réacteur de dimension  $\Delta z \cdot \Omega$  est défini comme :

$$IN + TRANSFER = OUT + ACCUMULATION + REACTION \quad (4.1)$$

La Figure 4.1 nous indique que le modèle 1D à un axe z vertical où  $z=0$  est l'entrée de gaz par le bas du réacteur et  $z=L$  est l'entrée de liquide par le haut du réacteur. La température au sein du réacteur est de  $T_{in} = 25$  °C et la pression vaut  $P_{in} = 101325$  Pa, ces deux paramètres sont considérés constants et homogènes dans le réacteur. Les concentrations et les fractions molaires à l'entrée et à la sortie du réacteur sont respectivement définies comme :

$$\begin{aligned} C_i(z = 0, t) &= C_i^f(t) \quad \text{et} \quad y_i(z = 0, t) = y_i^0(t) \\ C_i(z = L, t) &= C_i^0(t) \quad \text{et} \quad y_i(z = L, t) = y_i^f(t) \end{aligned}$$

Avec i=[CO<sub>2</sub>,H<sub>2</sub>].

Ensuite, le débit molaire est défini en mol s<sup>-1</sup> à partir du débit volumique et de l'application de la loi des gaz parfaits :

$$F_G(z, t) = Q_G(z, t) \cdot \frac{P_{in}}{Rg \cdot T_{in}} \quad (4.2)$$

La quantité de matière transférée exprimée en mol s<sup>-1</sup> m<sup>-2</sup> (l'unité m<sup>2</sup> signifie des mètres carrés d'interface gaz-liquide) est notée ;

$$\Upsilon_i = k_{l,i} \cdot (C_{sat,i} - C_i(z, t)) \quad (4.3)$$

Dans cette équation,  $C_{sat,i} = K_i \cdot P_{in} \cdot y_i(z, t)$  est la concentration à saturation dans le liquide en fonction la fraction molaire de l'espèce i dans gaz,  $y_i(z, t)$ .  $K_i$  est la constante de Henry de l'espèce i et  $k_{l,i}$  est le coefficient de transfert de l'espèce i en phase liquide.

La surface spécifique d'échange gaz-liquide est noté  $A_p$  et est exprimée en m<sup>2</sup> d'interface G-L par m<sup>3</sup> de réacteur.

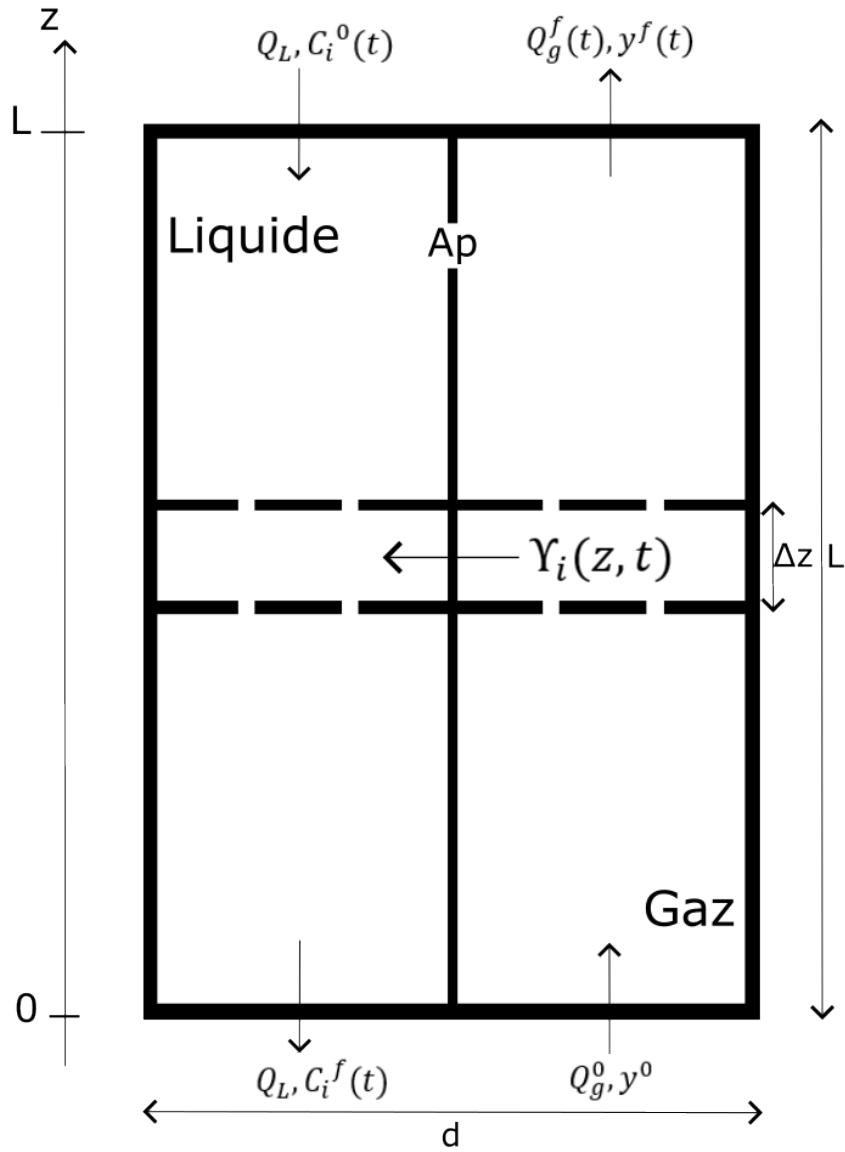


FIGURE 4.1 – Schéma de principe du réacteur.

#### 4.1.2 Hypothèses

Plusieurs hypothèses sont initialement posées afin d'écrire le système d'équations :

- L'écoulement des deux phases est considéré comme étant piston, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de dispersion axiale significative et la concentration est uniforme sur une section transversale de la colonne.
- L'eau entrant dans le réacteur ne contient initialement ni  $\text{CO}_2$ , ni  $\text{H}_2$ , donc  $C_i(z = L, t = 0) = 0 \text{ mol m}^{-3}$ .
- Le transfert de masse entre les phases liquide et gazeuse est gouverné par les lois de l'équilibre thermodynamique local.

- Le débit de liquide est constant :  $Q_L(z = 0) = Q_L(z = L)$  en  $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$
- Les proportions de phase liquide,  $\epsilon_l$ , et gazeuse,  $\epsilon_g$  sont considérées indépendantes de  $z$ , avec vérification à posteriori. Et le volume de solide est par définition constant.
- La pression est constante et est connue à tout moment  $t$  et en tout point  $z$  de la colonne. Cette hypothèse est justifiée par les résultats expérimentaux de mesure présentés dans la section 5.2.
- La température est constante et connue à chaque instant  $t$  et est supposée homogène en tout point  $z$  de la colonne. Ce qui est vérifié dans les expériences, par des mesures avec le système Fibox4 pour garantir sa stabilité.
- Les réactions chimiques sont considérées comme irréversibles et sont caractérisées par des cinétiques bien établies. Une concentration minimale en substrat est requise pour initier la conversion du substrat en produits.

#### 4.1.3 Établissement des équations

##### Expression du bilan pour une espèce dissoute dans le liquide.

L'expression du bilan sur une tranche mène à l'établissement de l'équation suivante :

$$Q_L \cdot C_i(z + \Delta z, t) + \Omega \cdot \Delta z \cdot A_p \cdot \Upsilon_i(z, t) = Q_L \cdot C_i(z, t) + \Omega \cdot \Delta z \cdot \epsilon_l \cdot \frac{\partial C_i(z, t)}{\partial t} \quad (4.4)$$

Il convient de noter que le terme de réaction sera introduit ultérieurement dans cette section. En se basant sur la définition formelle de la dérivée et sachant que le terme  $\frac{Q_L}{\Omega} = v_{s,l}$ , la vitesse superficielle du liquide en  $\text{m s}^{-1}$ .

L'équation 4.4 peut être reformulée :

$$\Leftrightarrow \epsilon_l \cdot \frac{\partial C_i(z, t)}{\partial t} = v_{s,l} \cdot \frac{\partial C_i(z, t)}{\partial z} + A_p \cdot \Upsilon_i|_{(z,t)} \quad (4.5)$$

##### Expression du bilan pour le gaz

Le même bilan que celui du liquide est déduit pour le gaz, en supposant initialement que  $F_G$  est indépendant de  $z$  :

$$F_G \cdot y_i(z, t) = F_G \cdot y_i(z + \Delta z, t) + \Omega \cdot \Delta z \cdot A_p \cdot \Upsilon_i(z, t) + \Omega \cdot \Delta z \cdot \epsilon_g \cdot \frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot \frac{dy_i(z, t)}{dt} \quad (4.6)$$

La définition formelle de la dérivée permet de reformuler l'équation 4.6 :

$$\Leftrightarrow \epsilon_g \cdot \frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot \frac{dy_i(z, t)}{dt} = \frac{-F_G}{\Omega} \cdot \frac{y_i(z, t)}{\partial z} - A_p \cdot \Upsilon_i|_{(z,t)} \quad (4.7)$$

Le terme  $\frac{-F_G}{\Omega}$  peut ensuite exprimé comme étant  $\frac{-Q_G \cdot \frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}}}{\Omega}$  ce qui revient à  $-\frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot v_{s,g}$ . Ce qui permet finalement d'écrire l'équation 4.7 :

$$\Leftrightarrow \epsilon_g \cdot \frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot \frac{dy_i(z, t)}{dt} = -\frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot v_{s,g} \cdot \frac{y_i(z, t)}{\partial z} - A_p \cdot \Upsilon_i|_{(z,t)} \quad (4.8)$$

### Variation du débit de gaz

Afin d'ajouter la variation du débit de gaz dans le bilan, le terme  $F_G$  est remplacé par  $F_G(z,t)$  dans l'équation de bilan de gaz 4.6 :

$$F_G(z,t) \cdot y_i(z,t) = F_G(z+\Delta z,t) \cdot y_i(z+\Delta z,t) + \Omega \cdot \Delta z \cdot A_p \cdot \Upsilon_i(z,t) + \Omega \cdot \Delta z \cdot \epsilon_g \cdot \frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot \frac{dy_i(z,t)}{dt} \quad (4.9)$$

La définition formelle de la dérivée pour  $F_G(z,t)$  et  $y_i(z,t)$  permet de reformuler L'équation 4.9 suit :

$$\Leftrightarrow \epsilon_g \cdot \frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot \frac{dy_i(z,t)}{dt} = \frac{-1}{\Omega} \cdot \frac{\partial (F_G(z,t) \cdot y_i(z,t))}{\partial z} - A_p \cdot \Upsilon_i(z,t) \quad (4.10)$$

En exprimant la dérivée du produit  $F_G(z,t) \cdot y_i(z,t)$ , l'équation 4.10 est finalement réécrite :

$$\Leftrightarrow \epsilon_g \cdot \frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot \frac{dy_i(z,t)}{dt} = \frac{-1}{\Omega} \cdot \left( F_G(z,t) \cdot \frac{\partial y_i(z,t)}{\partial z} + y_i(z,t) \cdot \frac{\partial F_G(z,t)}{\partial z} \right) - A_p \cdot \Upsilon_i(z,t) \quad (4.11)$$

### Terme de réaction

Le terme de réaction est considéré comme constant donnant une équation d'ordre 0. Afin d'éviter des concentrations négatives dans le modèle, un seuil minimal de concentration est établi. En dessous de ce seuil, le terme de réaction est considéré comme nul pour prévenir l'apparition de concentrations négatives, ce qui serait irréaliste. La valeur de ce seuil est déterminée en fonction du taux de consommation pour garantir que les concentrations ne deviennent pas négatives.

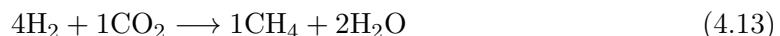
#### Calcul du taux de consommation :

Des données fournies par les partenaires de l'IEP concernant la consommation d'hydrogène révèlent que cette dernière varie en fonction de la population microbienne présente. Il a été établi que la consommation moyenne,  $r_{\text{VSS}}$ , est de 20 mmoles d' $\text{H}_2$  par gramme de suspension solide volatile (VSS) par jour. De plus, il est important de noter que la concentration moyenne de VSS dans le réacteur est de 7,2 g par litre de lit de garnissage. De ce fait, sachant que la proportion de liquide dans le réacteur est mesurée et calculée à la section 5.1.3, il est ainsi possible de déterminer le taux de consommation dans les unités appropriées pour le modèle :

$$r_{\text{H}_2} = \frac{r_{\text{VSS}} \cdot C_{\text{VSS}}}{\epsilon_l \cdot 24 \cdot 3600} \quad (4.12)$$

où  $r_{\text{H}_2}$  est la consommation d' $\text{H}_2$  valant  $3.88 \times 10^{-5} \text{ mol m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ .

En considérant le cas simple où la réaction est uniquement :



Selon cette équation, pour produire une mole de  $\text{CH}_4$  il faut consommer 4 moles de  $\text{H}_2$  et seulement 1 mole de  $\text{CO}_2$ . Le taux de consommation de  $\text{CO}_2$ ,  $r_{\text{CO}_2}$ , est donc 4× plus faible que celui de  $\text{H}_2$  et vaut donc  $9.69 \times 10^{-6} \text{ mol m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ .

#### 4.1.4 Système d'équations finales

$$\left\{ \begin{array}{l} \epsilon_l \cdot \frac{\partial C_{\text{CO}_2}(z,t)}{\partial t} = v_{s,l} \cdot \frac{\partial C_{\text{CO}_2}(z,t)}{\partial z} + A_p \cdot \Upsilon_{\text{CO}_2}|_{(z,t)} - r_{\text{CO}_2} \\ \epsilon_l \cdot \frac{\partial C_{\text{H}_2}(z,t)}{\partial t} = -v_{s,l} \cdot \frac{\partial C_{\text{H}_2}(z,t)}{\partial z} + A_p \cdot \Upsilon_{\text{H}_2}|_{(z,t)} - r_{\text{H}_2} \\ \epsilon_g \cdot \frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot \frac{dy_{\text{CO}_2}(z,t)}{dt} = \frac{-1}{\Omega} \cdot \left( F_G(z,t) \cdot \frac{\partial y_{\text{CO}_2}(z,t)}{\partial z} + y_{\text{CO}_2}(z,t) \cdot \frac{\partial F_G(z,t)}{\partial z} \right) - A_p \cdot \Upsilon_{\text{CO}_2}|_{(z,t)} \\ \epsilon_g \cdot \frac{P_{\text{in}}}{Rg \cdot T_{\text{in}}} \cdot \frac{dy_{\text{H}_2}(z,t)}{dt} = \frac{-1}{\Omega} \cdot \left( F_G(z,t) \cdot \frac{\partial y_{\text{H}_2}(z,t)}{\partial z} + y_{\text{H}_2}(z,t) \cdot \frac{\partial F_G(z,t)}{\partial z} \right) - A_p \cdot \Upsilon_{\text{H}_2}|_{(z,t)} \\ \frac{\partial F_G(z,t)}{\partial z} = -A_p \cdot \Omega \cdot \left( \Upsilon_{\text{CO}_2}|_{(z,t)} + \Upsilon_{\text{H}_2}|_{(z,t)} \right) \end{array} \right. \quad (4.14)$$

## 4.2 Simulation

### 4.2.1 Résolution numérique du système d'équation

Pour résoudre numériquement ce système d'équation du type :  $\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial z}$ , il est nécessaire de faire une première discréétisation des équations. La discréétisation la plus simple est de le faire en  $z$ , en divisant cet axe en  $n+1$  points. Cet axe comporte donc  $n$  intervalles et la taille d'un intervalle est  $\Delta = L/n$ , cet axe est représenté à la Figure 4.2. L'axe unitaire  $\tilde{z} = \frac{z}{L}$  où  $L$  est la hauteur du réacteur. Nous définissons  $\tau_c$  comme le temps caractéristique de transit, donné par la relation suivante :  $\tau_c = \frac{L}{u}$ .

On peut donc réécrire l'équation avec cette nouvelle variable unitaire :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{1}{\tau_c} \frac{\partial C}{\partial \tilde{z}} \quad (4.15)$$

On peut également écrire  $C(\tilde{z} = k\Delta, t) = C_k(t)$ . On trouve alors :

$$\frac{dC_k}{dt} + \frac{1}{\tau_c} \cdot \frac{C_k(t) - C_{k-1}(t)}{\Delta} = A \quad (4.16)$$

Dans l'équation 4.16, le terme  $A$  correspond au transfert du système d'équation.

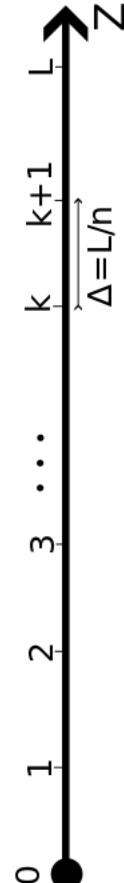


FIGURE 4.2 – Axe discréétisé en  $n$  intervalles.

Pour résoudre efficacement un système d'équations dynamiques, il est nécessaire d'incorporer un terme de dispersion numérique. Ce terme garantit la stabilité et la précision des résultats. Sans lui, les schémas numériques peuvent devenir instables, compromettant la validité des solutions. L'ajout d'un terme de dispersion numérique approprié réduit les risques d'oscillations indésirables ou d'erreurs numériques, assurant des résultats fiables et significatifs. Toutefois, ce terme peut induire un délai dans la résolution, nécessitant une analyse des compromis entre stabilité, précision et efficacité. Ainsi, l'ajout réfléchi d'un terme de dispersion numérique est essentiel pour résoudre précisément et de manière robuste les systèmes d'équations dynamiques. Le terme à ajouter est donc :  $\frac{1}{\tau_d} \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial \tilde{z}^2}$  avec  $\tau_d = 1000 \tau_c$ . La discréétisation de la dérivée seconde de la concentration en fonction de  $\tilde{z}$  est :

$$\frac{\partial^2 C}{\partial^2} \approx \frac{C_{k+1} - 2C_k + C_{k-1}}{\Delta^2} \quad (4.17)$$

L'équation 4.16 est alors réécrit comme étant :

$$\frac{dC_k}{dt} \approx \frac{-1}{\tau_c} \cdot \frac{C_k(t) - C_{k-1}(t)}{\Delta} + \frac{1}{\tau_d} \cdot \frac{C_{k+1} - 2C_k + C_{k-1}}{\Delta^2} + A \quad (4.18)$$

Plusieurs tests sont réalisés, visant à assurer que les résultats obtenus sont indépendants de la taille du pas de discrétisation.

# Chapitre 5

## Résultats et discussion

### 5.1 Mesure de proportion de phase pour les deux types d'éléments de garnissage

#### 5.1.1 Proportion de phase solide et porosité dans le réacteur

Cinq expériences sont conduites pour chacun des deux types d'éléments de garnissage. Pour chaque expérience, les paramètres sont identifiés par un numéro de test. Les résultats initiaux concernent les éléments de garnissage "Hill Flow 25-7". Le volume du bêcher utilisé pour ces expérimentations est de  $V_{\text{becher}}=2 \text{ L}$ .

Le volume de solide dans le bêcher de 2 L se calcule selon l'équation suivante :

$$V_{s,j} = V_{\text{becher}} - L_j \quad (5.1)$$

Où  $L_j$  est le volume d'eau ajouté dans le bêcher pour arriver au volume de 2 L. Le calcul de la proportion de phase solide se fait selon l'équation suivante :

$$\epsilon_{s,j} = \frac{V_{s,j}}{V_{\text{becher}}} \quad (5.2)$$

TABLEAU 5.1 – Tableau de résultats des mesures de volumes et de portion de phase solide pour les éléments de garnissage Hill Flow rings 25-7

| j | $L_j$ [mL] | $V_{s,j}$ [mL] | $\epsilon_{s,j}$ [%] |
|---|------------|----------------|----------------------|
| 1 | 1800       | 200            | 0.075                |
| 2 | 1850       | 150            | 0.1                  |
| 3 | 1825       | 175            | 0.0875               |
| 4 | 1875       | 125            | 0.0625               |
| 5 | 1815       | 185            | 0.0925               |

La proportion de solide moyenne pour les éléments de garnissage Hill Flow rings 25-7 est calculée par la moyenne arithmétique des 5 tests effectués :

$$\epsilon_{s,\text{Hill}} = \frac{\epsilon_1 + \epsilon_2 + \epsilon_3 + \epsilon_4 + \epsilon_5}{5} = 0.086 = 8.6\% \quad (5.3)$$

La porosité dans le réacteur est donc le complément de cette valeur et est donc de **91.4%** et est composé de la proportion de gaz et de liquide qui sont présentées dans la section suivante (5.1.3).

La proportion de solide moyenne pour les éléments de garnissage RFK 25L est calculée par la moyenne arithmétique des 5 tests effectués :

$$\epsilon_{s,\text{RFK}} = \frac{\epsilon_1 + \epsilon_2 + \epsilon_3 + \epsilon_4 + \epsilon_5}{5} = 0.044 = 4.4\% \quad (5.4)$$

TABLEAU 5.2 – Tableau de résultats des mesures de Volumes et de portion de phase solide pour les éléments de garnissage RFK 25L

| j | $L_j$ [mL] | $V_{sj}$ [mL] | $\epsilon_j$ [%] |
|---|------------|---------------|------------------|
| 1 | 1925       | 75            | 0.0375           |
| 2 | 1900       | 100           | 0.05             |
| 3 | 1900       | 105           | 0.05             |
| 4 | 1910       | 90            | 0.045            |
| 5 | 1925       | 75            | 0.0375           |

La porosité dans le réacteur est donc de **95.6%**

Les éléments de garnissage RFK 25L occupent un volume plus faible dans le réacteur par rapport aux éléments de garnissage Hill Flow Rings 25-7, et ce, pour le même volume de réacteur. Il est pertinent de remarquer que les valeurs de proportion de solide mesurées de 8.6% et donc de porosité de 91.4% s'alignent à 2% près avec les données fournies par les fabricants des éléments garnissages RFK 25L, qui spécifient une fraction de vide de 90% (<https://www.rvtpe.com/global/en/products/random-packings/hiflow-ringsource>). Cette cohérence indique que, malgré les limitations intrinsèques des méthodologies de mesure, les résultats obtenus offrent une représentation fiable des caractéristiques de la porosité du lit. Ces limitations sont liées à l'impossibilité de remplir le bêcher exactement jusqu'à la ligne des 2 L avec les éléments de garnissage de manière identique pour chaque expérience.

### 5.1.2 Résultats sans éléments de garnissage

Plusieurs tests sont effectués sans les éléments de garnissage, afin de servir d'expérience de contrôle.

Les résultats, sans les éléments de garnissage, présentés dans le Tableau 5.3, montrent que l'augmentation du débit liquide ne modifie pas la hauteur d'eau dans le réservoir. La seule variation de volume d'eau, observée lors de la première mesure à  $Q_G = 50\text{ mL min}^{-1}$ , est vraisemblablement causée par la présence initiale d'air dans les tuyaux, un phénomène qui ne s'est pas reproduit lors des mesures suivantes. Ces observations confirment que la présence d'éléments de garnissage est responsable de la rétention d'eau dans le réacteur. La hauteur d'eau reste constante à des débits de liquide élevé (environ  $7\text{ L min}^{-1}$ ) et faible (environ  $1\text{ L min}^{-1}$ ). Bien que des gouttes d'eau s'accumulent sur les parois de la colonne aient été visuellement observées, leur quantité était trop faible pour influencer significativement les résultats.

### 5.1.3 Proportion de phase liquide et gazeuse

La proportion de liquide est déterminée par la mesure de différence de hauteur d'eau dans le réservoir,  $\Delta_h$ . Il est essentiel de connaître le volume initial de l'eau, fixé à  $V_{\text{ini}} = 5\text{ L}$ , et le volume dans les tuyaux de recirculation, qui est connu grâce aux dimensions des tuyaux, soit  $V_{\text{tuyaux}} = 0.71\text{ L}$  (voir section B.1.1).

TABLEAU 5.3 – Tableau de mesure de différence de hauteur d'eau dans le réservoir du réacteur,  $\Delta_h$ , sans élément de garnissage dans le réacteur

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | $\Delta_h$ (m) | Veau (L) |
|-------------------------------|------------------------------|----------------|----------|
| 50                            | 0.0                          | /              | 0        |
|                               | 1.0                          | 0.017          | 0.43     |
|                               | 7.2                          | 0.021          | 0.52     |
| 500                           | 0.0                          | 0.007          | 0.18     |
|                               | 1.0                          | 0.021          | 0.53     |
|                               | 7.1                          | 0.021          | 0.53     |
| 500                           | 0.0                          | 0.007          | 0.16     |
|                               | 1.0                          | 0.021          | 0.53     |
|                               | 6.8                          | 0.021          | 0.53     |
| 500                           | 0.0                          | 0.008          | 0.19     |
|                               | 1.0                          | 0.022          | 0.55     |
|                               | 6.7                          | 0.022          | 0.55     |
| 50                            | 0.0                          | 0.007          | 0.18     |
|                               | 1.0                          | 0.022          | 0.56     |
|                               | 7.1                          | 0.022          | 0.56     |
| 50                            | 0.0                          | 0.007          | 0.18     |
|                               | 1.0                          | 0.021          | 0.52     |
|                               | 7.2                          | 0.021          | 0.52     |

Le volume du réacteur est calculé comme étant le volume d'un cylindre de 99 cm de hauteur, et de diamètre de 18 cm :

$$V_{\text{reacteur}} = h_{\text{reacteur}} \times \pi \times \left(\frac{d_{\text{colonne}}}{2}\right)^2 = 25.19 \text{ L} \quad (5.5)$$

La différence de hauteur dans le réservoir,  $\Delta_{h,j}$ , est calculée pour chaque couple de débit gaz et liquide différents. Cette hauteur sert ensuite à déterminer le volume total dans le système, incluant le volume dans le réacteur ainsi que celui des tuyaux. En soustrayant le volume d'eau contenu dans les tuyaux du volume total, nous obtenons le volume de liquide dans le réacteur, noté  $V_{f,j}$ . Sachant que la hauteur de la colonne,  $h_{\text{colonne}}$  est supérieure à la hauteur du lit de garnissage,  $h_{\text{reacteur}}$ , il est nécessaire d'en tenir compte dans le calcul de  $V_{f,j}$  :

$$V_{f,j} = (V_{\text{tot},j} - V_{\text{tuyau}}) \times \frac{h_{\text{reacteur}}}{h_{\text{colonne}}} \quad (5.6)$$

La proportion de liquide est calculée comme étant le rapport du volume de liquide dans le réacteur et le volume du réacteur :

$$\epsilon_{l,j} = \frac{V_{f,j}}{V_{\text{reacteur}}} \quad (5.7)$$

Les données relatives aux valeurs de proportion volumique de la phase liquide sont représentées graphiquement en fonction du débit volumique de liquide dans la Figure 5.1 pour le garnissage Hill et 5.2 pour le garnissage RFK. Les tableaux reprenant les différentes valeurs de proportions de phases pour chaque débit liquide et gazeux et types d'éléments de garnissage se trouvent dans l'annexe B.1.2.

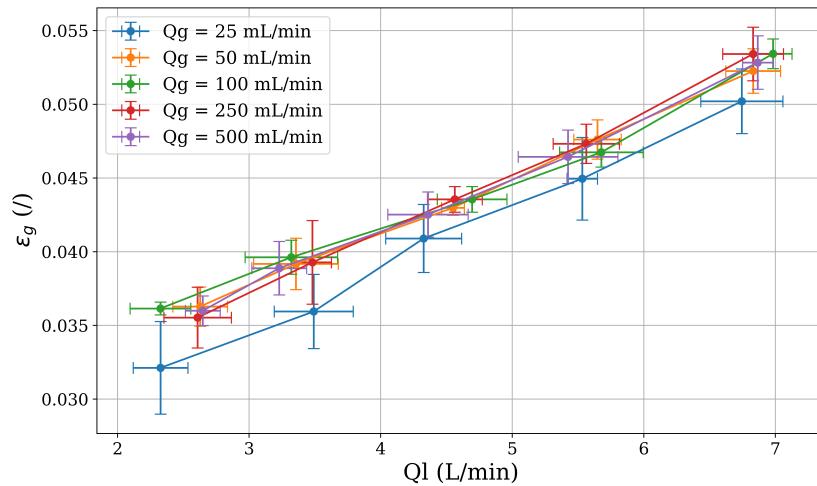


FIGURE 5.1 – Proportion de liquide dans le réacteur en fonction du débit pour les éléments de garnissage Hill Flow 25-7.

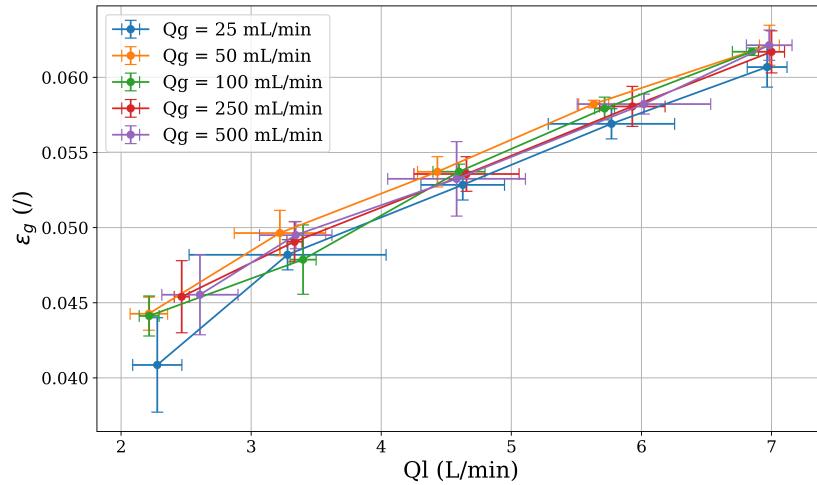


FIGURE 5.2 – Proportion de liquide dans le réacteur en fonction du débit pour les éléments de garnissage RFK 25L.

Le volume de gaz est calculé comme étant le volume du réacteur moins le volume de liquide et le volume d'élément de garnissage, ceci pour chaque débit testé à la sous-section précédente :

$$V_{\text{gaz},j} = V_{\text{réacteur}} - V_{f,j} - V_{\text{solide}} \quad (5.8)$$

La proportion de gaz est calculée de la même manière que les autres phases :

$$\epsilon_{g,j} = \frac{V_{\text{gaz},j}}{V_{\text{réacteur}}} \quad (5.9)$$

Les Figures 5.3 et 5.4 illustrent les courbes des proportions volumiques de la phase gazeuse, tracées en fonction du débit volumique pour les garnissages Hill et RFK, respectivement.

L'analyse des données expérimentales et des graphiques : 5.1, 5.2, 5.3 et 5.4, révèle une corrélation significative entre le débit de liquide et les proportions de phase, indiquant

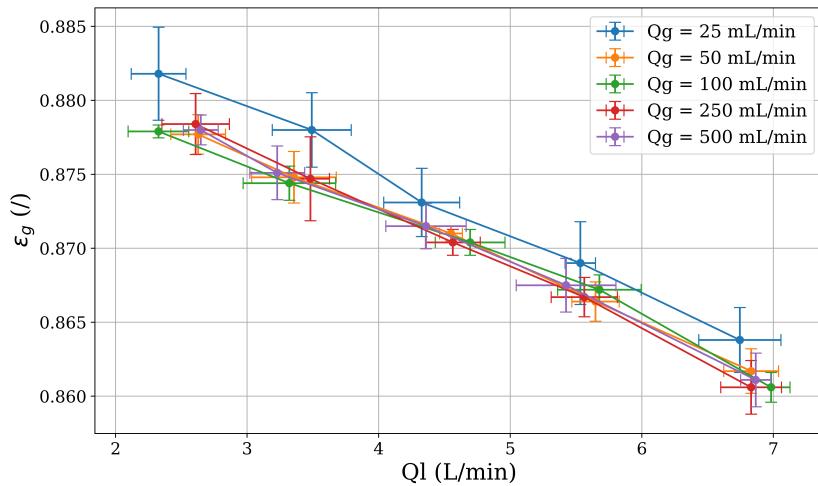


FIGURE 5.3 – Proportion de gaz (air) dans le réacteur en fonction du débit pour les éléments de garnissage Hill Flow 25-7.

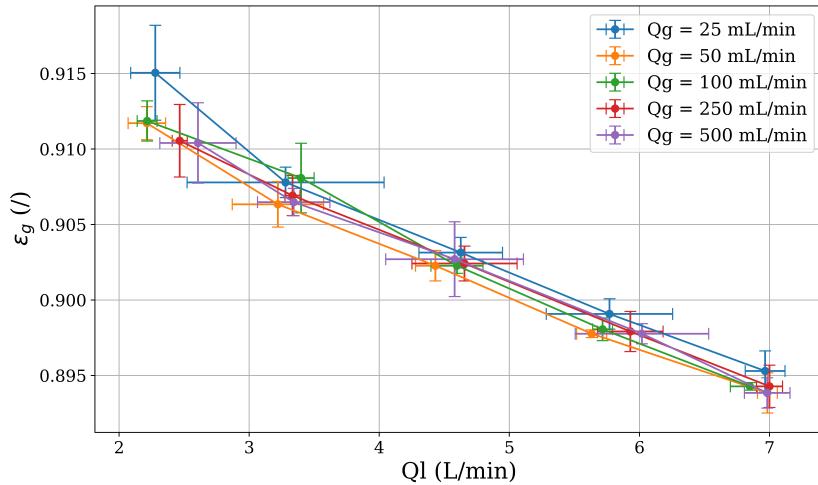


FIGURE 5.4 – Proportion de gaz (air) dans le réacteur en fonction du débit pour les éléments de garnissage RFK 25L.

une tendance linéaire de l'augmentation de la proportion de liquide et de la diminution concomitante de la proportion de gaz. Cette observation suggère que l'augmentation du débit de liquide entraîne une augmentation de la quantité de liquide au sein du milieu poreux, diminuant naturellement le volume disponible pour la phase gazeuse. Cela affecte directement la dynamique du réacteur, les transferts de masse et les réactions chimiques se produisant entre ou dans chaque phase, puisque la disponibilité et la distribution des deux phases influencent directement ces processus.

En outre, il convient de souligner que sous les conditions de débit de gaz les plus faibles, spécifiquement à  $Q_G=25 \text{ mL min}^{-1}$ , les mesures indiquent des proportions de phase liquide légèrement inférieures pour les éléments de garnissage Hill flow ring 25-7 par rapport aux autres débits testés. Cette observation suggère l'existence d'un comportement non linéaire dans des conditions de faible aération, comportement qui pourrait résulter d'une variété de facteurs, incluant l'hétérogénéité du milieu poreux et les interactions dynamiques entre les

phases. Ces aspects méritent une exploration plus détaillée et la répétition des expériences à faible débit pour confirmer l'absence de problèmes et assurer la validité des résultats. Cependant, il est probable que les différences observées dans les proportions de phase pour les débits de gaz les plus faibles résultent de variations dans le protocole expérimental. Une analyse minutieuse des résultats, en particulier le test numéro deux avec les éléments de garnissage Hill flow rings 25-7 (voir Tableau B.5), révèle une baisse considérable dans la moyenne des valeurs de  $\epsilon_l$  et, par conséquent, une augmentation de  $\epsilon_g$ . Il est plausible qu'une erreur de manipulation ait entraîné une réduction inadéquate de la quantité de liquide, une hypothèse renforcée par les défis inhérents à l'expérimentation. En effet, la complexité de l'expérience est accentuée par la nécessité de vider et de sécher les éléments de garnissage de la colonne entre chaque test pour mesurer avec précision la quantité de liquide retenu dans le lit.

Une ANOVA a été réalisée sur Python avec la librairie “*statsmodels*” afin de quantifier l'impact des différents paramètres sur nos mesures. Les résultats de cette ANOVA pour les éléments de garnissage Hill flow ring 25-7 (B.1) et RFK 25L (B.2) montrent que  $Q_L$  a un effet statistiquement significatif sur les proportions de phase gazeuse,  $\epsilon_g$ , et liquide,  $\epsilon_l$ . Pour les éléments de garnissage Hill flow ring 25-7, les p-values respectives sont de  $1.891435 \times 10^{-9}$  et  $2.482717 \times 10^{-17}$ , et pour les éléments de garnissage RFK 25L, les p-values sont de  $9.873035 \times 10^{-10}$  et  $1.268154 \times 10^{-15}$ , toutes bien inférieures au seuil de 0.05. En revanche,  $Q_G$  n'a pas d'effet statistiquement significatif sur  $\epsilon_g$  (avec des p-values de 0.634660 pour Hill flow ring 25-7 et 0.521079 pour RFK 25L) et sur  $\epsilon_l$  (avec des p-values de 0.059954 pour Hill flow ring 25-7 et 0.485399 pour RFK 25L), bien que ce dernier soit proche du seuil de significativité pour Hill flow ring 25-7. De plus, l'interaction entre le débit de gaz et le débit de liquide ( $Q_G \times Q_L$ ) n'a pas d'effet statistiquement significatif sur  $\epsilon_g$  (avec des p-values de 0.513324 pour Hill flow ring 25-7 et 0.688392 pour RFK 25L) et  $\epsilon_l$  (avec des p-values de 0.753096 pour Hill flow ring 25-7 et 0.193458 pour RFK 25L). Ces résultats suggèrent que, pour les deux types d'éléments de garnissage, le débit de liquide est le facteur clé influençant les proportions de phases du système, tandis que le débit de gaz et son interaction avec le débit de liquide ont des effets négligeables.

Les résultats de l'ANOVA combinés de ces deux tableaux (B.3) ont permis de démontrer que le type d'élément de garnissage a un impact statistiquement significatif sur  $\epsilon_g$  et  $\epsilon_l$  (p-value= $1.193458 \times 10^{-32}$  et p-value= $6.323151 \times 10^{-31}$ ). Les interactions entre le type de garnissage et les débits de gaz et de liquide ne sont pas significatives, comme en témoignent les p-values bien supérieures à 0.05 pour toutes les interactions testées. Ceci suggère donc que l'effet principal du type de garnissage sur  $\epsilon_g$  et  $\epsilon_l$  est indépendant des variations des débits de gaz et de liquide.

#### 5.1.4 Calcul du $k_L A_p$ sur base du volume de liquide dans le réacteur

Le calcul se base sur l'hypothèse que la surface des éléments de garnissage,  $A_G$  [2] [1], est entièrement mouillée et qu'elle participe entièrement au transfert de matière. Sachant également que la taille du film de liquide autour des éléments de garnissage,  $\delta$ , peut être exprimée comme étant le ratio du volume de liquide dans le réacteur,  $V_{l,\text{colonne}}$ , sur  $A_G$ .

Le coefficient de transfert dans la phase liquide en  $\text{m min}^{-1}$  est donc défini comme :

$$k_l = \frac{D}{\delta} = \frac{D A_G}{V_{l,\text{colonne}}} \quad (5.10)$$

À partir de cette équation, il est possible de retrouver  $k_L A_p$  sachant que :

$$A_p = \frac{A_G}{V_{l,\text{colonne}}} \quad (5.11)$$

Il en découle finalement :

$$k_L A_p = D \left( \frac{A_G}{V_{l,\text{colonne}}} \right)^2 \quad (5.12)$$

Les Tableaux B.11 et 5.4 reprennent les différentes valeurs de  $k_L A_p$  pour l'oxygène et pour les combinaisons de débits gazeux et liquide :

TABLEAU 5.4 – Tableau des calculs de  $k_L A_p$  pour différentes combinaisons de débits

| $Q_G(\text{mL min}^{-1})$ | Hill flow rings 25-7      |                             | RFK 25L                   |                             |
|---------------------------|---------------------------|-----------------------------|---------------------------|-----------------------------|
|                           | $Q_L (\text{L min}^{-1})$ | $k_L A_p (\text{min}^{-1})$ | $Q_L (\text{L min}^{-1})$ | $k_L A_p (\text{min}^{-1})$ |
| 50                        | 2.6                       | 0.038                       | 2.2                       | 0.026                       |
|                           | 3.4                       | 0.033                       | 3.2                       | 0.021                       |
|                           | 4.6                       | 0.027                       | 4.4                       | 0.018                       |
|                           | 5.7                       | 0.022                       | 5.6                       | 0.015                       |
|                           | 6.8                       | 0.019                       | 7.0                       | 0.013                       |
| 500                       | 2.6                       | 0.039                       | 2.6                       | 0.024                       |
|                           | 3.4                       | 0.033                       | 3.4                       | 0.021                       |
|                           | 4.6                       | 0.028                       | 4.6                       | 0.018                       |
|                           | 6.0                       | 0.023                       | 6.0                       | 0.015                       |
|                           | 7.0                       | 0.018                       | 7.0                       | 0.013                       |

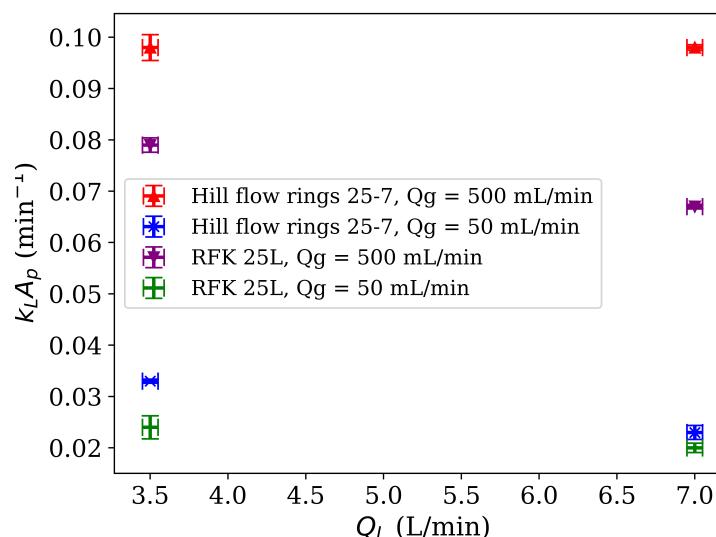


FIGURE 5.5 – Figures de valeur de  $k_L A_p$  pour différentes combinaisons de débits.

Nous observons que  $k_L A_p$  tend à diminuer à mesure que le débit liquide augmente pour un débit gazeux donné. Les valeurs de  $k_L A_p$  sont généralement plus élevées pour les Hill flow rings 25-7 que pour les RFK 25L dans les mêmes conditions de débit gazeux et liquide. Par exemple, pour un débit gazeux de  $50 \text{ mL min}^{-1}$ , le  $k_L A_p$  pour les Hill flow rings 25-7 passe de  $0.038 \text{ min}^{-1}$  à  $0.019 \text{ min}^{-1}$  lorsque le débit liquide augmente de  $2.6$  à  $6.8 \text{ L min}^{-1}$ , tandis que pour les RFK 25L, le  $k_L A_p$  passe de  $0.026 \text{ min}^{-1}$  à  $0.013 \text{ min}^{-1}$  pour des débits liquides similaires. De même, pour un débit gazeux de  $500 \text{ mL min}^{-1}$ ,  $k_L A_p$  des Hill flow rings 25-7 varie de  $0.039 \text{ min}^{-1}$  à  $0.018 \text{ min}^{-1}$  et pour les RFK 25L, de  $0.024 \text{ min}^{-1}$  à  $0.013 \text{ min}^{-1}$  avec l'augmentation du débit liquide. Les Hill flow rings 25-7 ont des transferts de masse plus élevés que les RFK 25L dans chacune des conditions testées. Pour les deux types d'éléments de garnissage, les valeurs de  $k_L A_p$  montrent une certaine constance pour des débits liquides similaires lorsque le débit gazeux augmente, mais avec une légère tendance à augmenter pour les débits gazeux plus élevés.

Les résultats de l'ANOVA, voir Figure B.4, montrent que le type d'élément de garnissage a un effet statistiquement significatif sur les valeurs de  $k_L A_p$ , avec une p-value de  $1.589158 \times 10^{-21}$ . De même, le débit de liquide a également un effet significatif, avec une p-value de  $8.703095 \times 10^{-25}$ . L'interaction entre le débit de liquide et le type de garnissage est significative (p-value de  $9.737325 \times 10^{-8}$ ), indiquant que l'effet du débit de liquide sur les valeurs de  $k_L A_p$  dépend du type de garnissage utilisé. En revanche, le débit de gaz, ainsi que ses interactions avec le type de garnissage et le débit de liquide, n'ont pas d'effet statistiquement significatif sur les valeurs de  $k_L A_p$ , avec des p-values de  $0.3109465$ ,  $0.8706759$  et  $0.1266415$  respectivement. L'interaction entre le débit de gaz, le débit de liquide et le type de garnissage n'est pas non plus significative, avec une p-value de  $0.6310196$ . Ces résultats suggèrent que, dans notre système, les variations des valeurs de  $k_L A_p$  sont principalement influencées par le type de garnissage et le débit de liquide, tandis que le débit de gaz et ses interactions n'ont pas d'impact notable.

### 5.1.5 Limitations

Les limitations de cette expérience résident sur deux points principaux. Tout d'abord, il existe une marge d'erreur importante en raison de la complexité des mesures. La précision des mesures de différence de hauteur d'eau dans le réservoir est limitée, et la quantification du volume d'eau présent dans les tuyaux peut ne pas être exacte. Pour améliorer la précision des mesures, il serait nécessaire de vider la colonne et de sécher complètement les éléments de garnissage entre chaque expérience afin d'éliminer toute trace d'eau retenue. Bien que nous ayons fait de notre mieux pour y parvenir, il est possible qu'un petit volume d'eau soit resté dans les éléments de garnissage en raison de leur quantité et du temps considérable nécessaire pour garantir leur séchage complet.

Ensuite, il y a une légère augmentation de la température due au fonctionnement prolongé de la pompe. Cette variation de température, bien que limitée à quelques degrés en raison de la courte durée de l'expérience, n'a pas été prise en compte. De plus, au moment de l'expérience, le système n'était pas encore équipé du dispositif de refroidissement utilisé dans les expériences de mesure d' $\text{O}_2$  (5.3). Cette absence de contrôle de la température pourrait affecter les résultats obtenus, notamment en influençant les propriétés physiques du liquide.

## 5.2 Mesure de pression

Les mesures de pression ont été réalisées pour différentes combinaisons de débits liquide et gazeux. Le tableau ci-dessous présente un résumé de ces mesures.

TABLEAU 5.5 – Tableau des moyennes des mesures de pression pour différents débits

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | dP (mbar) |
|-------------------------------|------------------------------|-----------|
| 50                            | 0.0                          | 0.12      |
|                               | 1.0                          | 0.19      |
|                               | 7.2                          | 0.44      |
| 500                           | 0.0                          | 0.34      |
|                               | 1.0                          | 0.16      |
|                               | 7.1                          | 0.21      |

Les mesures réalisées avec le capteur de pression indiquent que les variations de pression motrice, nécessaires pour générer l'écoulement gazeux, correspondent à la pression atmosphérique, et ce, quel que soit le débit de liquide et de gaz. De plus, ces variations de pression restent inférieures à la limite de détection des capteurs, soit  $\pm 2,5$  mbar [4]. Il est donc tout à fait justifiable de supposer que le réacteur fonctionne à la pression atmosphérique dans toutes les conditions opératoires de débit gazeux et liquide. Cette observation vient ainsi confirmer l'hypothèse énoncée dans la section 4.1.2.

### 5.3 Mesure de la concentration en O<sub>2</sub> et calcul des coefficients de transfert de matière

La Sonde O<sub>2</sub> de Presens permet de mesurer la concentration en oxygène en fonction du temps, ces graphiques sont présentés dans l'annexe B.2. Lors de ces mesures, la température a été maintenue dans une gamme de 23 à 25 °C, tandis que la pression atmosphérique est restée constante à 101 325 Pa.

À partir des équations détaillées dans la section 3.2.3, les données ont été traitées pour calculer la valeur de  $k_{La}$  pour différentes conditions opératoires. Il est important de rappeler que les unités de  $a$  correspondent aux mètres carrés d'interface gaz-liquide par mètre cube de liquide total dans le système. Pour assurer la fiabilité des résultats, chaque configuration expérimentale a été répétée à deux reprises. Cette approche permet de s'assurer de l'absence d'erreurs de manipulation ou de problèmes techniques susceptibles d'affecter la validité des expériences.

Les graphiques présentés à l'annexe B.2.1 permettent d'obtenir les résultats présentés dans le tableau et l'image récapitulatifs ci-dessous :

TABLEAU 5.6 – Tableau de valeur de  $k_{La}$  pour différentes combinaisons de débits

| Hill flow rings 25-7          |                              |                               | RFK 25L                       |                              |                               |
|-------------------------------|------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|------------------------------|-------------------------------|
| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | $k_{La}$ (min <sup>-1</sup> ) | $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | $k_{La}$ (min <sup>-1</sup> ) |
| 50                            | 3.5                          | 0.0061                        | 50                            | 3.5                          | 0.0061                        |
|                               | 7.0                          | 0.0062                        |                               | 7.0                          | 0.0064                        |
| 500                           | 3.5                          | 0.0191                        | 500                           | 3.5                          | 0.0200                        |
|                               | 7.0                          | 0.0261                        |                               | 7.0                          | 0.0210                        |

#### 5.3.1 Discussion des résultats

Le calcul du  $k_{La}$  nécessite une attention particulière concernant les unités de la surface spécifique,  $a$ , qui sont exprimées en m<sup>2</sup> d'interface gaz-liquide par m<sup>3</sup> de volume total de liquide dans le système. Pour adapter ces mesures à celles spécifiques au réacteur, la surface spécifique doit être ajustée de  $\frac{m_{G-L}^2}{m_{l,tot}^3}$  en  $\frac{m_{G-L}^2}{m_{l,colonne}^3}$ , en divisant  $a$  par  $\epsilon_l$  (le rapport de volume liquide total sur le volume du réacteur) et  $\alpha$  (le rapport du volume du réacteur sur le volume liquide total fixé à 5 L). Les valeurs de  $k_{LA_p}$  sont donc recalculées à partir des données présentées dans les Tableaux 5.6, B.2 et B.3 et sont présentées dans le tableau ci-dessous :

TABLEAU 5.7 – Tableau de valeur de  $k_{LA_p}$  pour différentes combinaisons de débits

| Hill flow rings 25-7          |                              |                                 | RFK 25L                       |                              |                                 |
|-------------------------------|------------------------------|---------------------------------|-------------------------------|------------------------------|---------------------------------|
| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | $k_{LA_p}$ (min <sup>-1</sup> ) | $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | $k_{LA_p}$ (min <sup>-1</sup> ) |
| 50                            | 3.5                          | 0.033                           | 50                            | 3.5                          | 0.024                           |
|                               | 7.0                          | 0.023                           |                               | 7.0                          | 0.020                           |
| 500                           | 3.5                          | 0.098                           | 500                           | 3.5                          | 0.079                           |
|                               | 7.0                          | 0.098                           |                               | 7.0                          | 0.067                           |

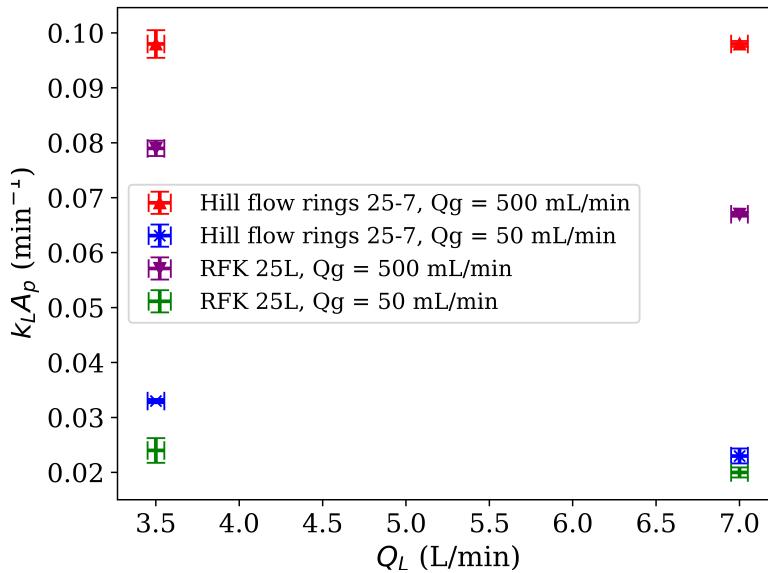


FIGURE 5.6 – Valeurs de  $k_L A_p$  pour différentes combinaisons de débits.

Les valeurs calculées dans ce dernier Tableau 5.7 sont toutes supérieures à celles du tableau précédent 5.6. Cela est dû au fait que nous avons réduit le volume total de liquide à considérer et que la surface d'échange gaz-liquide est resté presque constante. En effet, le volume de liquide passe de 5 L à une gamme de [0.88 ; 1.54] L, selon le débit de liquide et les éléments de garnissage utilisés. La surface d'échange, quant à elle, passe de 0.49 à 0.47 m<sup>2</sup> et 0.37 à 0.35 m<sup>2</sup> respectivement pour les Hill flow rings 25-7 et RFK 25L [2] [1]. Cette variation est due à l'ajout d'un échange au niveau du réservoir d'eau en bas de la colonne possédant une surface transversale identique à la surface transversale de la colonne,  $\Omega=0.0254$  m<sup>2</sup>. La variation du volume étant plus importante que la variation de la surface d'échange, il est donc logique d'observer une augmentation globale des valeurs de  $k_L A_p$ .

Les résultats présentés dans les Tableaux 5.6 et 5.7 et la Figure 5.6 nous indiquent premièrement qu'au plus le débit de gaz est élevé, au plus le coefficient de transfert est important, et ce, pour les deux types d'éléments de garnissage.

De manière générale, les éléments de garnissage Hill Flow Rings 25-7 possèdent des valeurs plus importantes de coefficient de transfert de matière que les éléments de garnissage RFK 25L. Ceci s'explique en partie par une augmentation de 16 à 34 % de rétention de liquide pour les éléments de garnissage RFK 25L par rapport aux Hill flow rings. Ceci impact directement la valeur du  $k_L A_p$  étant donné que cela induit une augmentation de la quantité de liquide. Une autre explication serait une combinaison de surface spécifique plus élevée, une meilleure géométrie, une création de turbulence accrue, et des propriétés de mouillage favorables. Les Hill Flow Rings 25-7 sont donc plus efficaces pour améliorer le transfert de masse dans le réacteur, particulièrement à des débits gazeux élevés.

Le Tableau 5.6 montre que l'augmentation du débit liquide induit une augmentation du  $k_L a$ , mais cette augmentation est moins significative comparée à celle due au débit gazeux. Dans le Tableau 5.7 et la Figure 5.6, l'impact du débit liquide est inverse à celui observé

dans le Tableau 5.6. Cela est dû au fait que les valeurs intrinsèques du réacteur ont été transformées et augmentées, et que l'importance de la proportion de phase liquide,  $\epsilon_l$ , doit être prise en compte. Ainsi, les valeurs au débit de  $7.0 \text{ L min}^{-1}$  sont supérieures à celles au débit de  $3.5 \text{ L min}^{-1}$ . Il est apparent que l'impact du débit de gaz sur le transfert de matière est toujours plus important que celui du débit de liquide. De plus, les données montrent que plus le débit de gaz diminue, moins l'importance du débit liquide devient significative, ce qui est visualisé de manière plus évidente dans la Figure 5.6.

Il est important de remarquer que les valeurs de  $k_{La}$  pour les Hill flow rings à  $Q_G=500 \text{ mL min}^{-1}$ , présentées dans le Tableau 5.6, montrent une augmentation notable en fonction du débit liquide comparée aux autres conditions. Cette observation pourrait suggérer que le  $k_{La}$  augmente plus significativement à un débit gazeux élevé. Cependant, il est possible que cette variation soit due à une erreur de manipulation expérimentale, d'autant plus que le coefficient de détermination  $R^2$  est légèrement inférieur par rapport à toutes les autres manipulations. Il serait donc prudent de répéter ces expériences afin de confirmer ou d'infirmer ces résultats.

L'impact du débit de gaz et de liquide peut être quantifié en réalisant une ANOVA sur Python avec la librairie “*statsmodels*” (voir B.21). L'analyse de variance révèle que le débit gazeux,  $Q_G$ , a un effet significatif sur le  $k_L A_p$  avec une p-value de 0.0022, indiquant que l'augmentation du débit gazeux améliore significativement le transfert de masse. Le débit liquide,  $Q_L$ , bien qu'ayant un effet observable, n'est pas statistiquement significatif, p-value = 0.3668, dans cette analyse, suggérant que son influence est moindre comparée à celle du débit gazeux. Le type de garnissage (Hill Flow Rings 25-7 vs RFK 25L) montre un effet légèrement non significatif, p-value = 0.0855, ce qui suggère une tendance vers une meilleure efficacité des Hill Flow Rings 25-7 pour le transfert de masse, bien que cela ne soit pas statistiquement prouvé au niveau de confiance de 95%. Enfin, l'interaction entre  $Q_G$  et  $Q_L$  n'est pas significative (p-value = 0.9401), indiquant que leurs effets combinés ne sont pas plus importants que leurs effets individuels.

Il est important de noter que dans nos expériences, la variation du débit de gaz est plus significative que celle du débit de liquide. En effet, les deux débits de gaz diffèrent d'un facteur 10, tandis que les deux débits de liquide ne varient que d'un facteur d'environ 2. Cette différence pourrait jouer un rôle important dans l'influence relative des différents débits sur les résultats. Ainsi, il est logique d'observer un impact plus important pour le débit de gaz lorsqu'il est multiplié par 10, par rapport au débit de liquide qui n'est augmenté que d'un facteur de 2.

### 5.3.2 Limitations

La principale limitation de cette expérience réside dans le fait que la mesure de la concentration en  $O_2$  est fortement impactée par la température. Ce paramètre est très difficile à contrôler dans notre système, étant donné les limitations du matériel à disposition. De plus, la durée des expériences, 2 à 4 h, entraîne un fonctionnement prolongé de la pompe, ce qui provoque des augmentations de température significatives, pouvant aller jusqu'à +20 °C sans l'utilisation du système de refroidissement. À titre de comparaison, lors de l'expérience de mesure de proportion de phase, l'augmentation de température n'était que de quelques degrés.

Pour atténuer cet effet, nous avons installé un système de refroidissement, ce qui a permis de réduire l'élévation de température de manière drastique. Cependant, malgré ce système, la température restait fluctuante pendant nos mesures, ajoutant ainsi un biais important dans la comparaison de chaque expérience. Nous avons tout de même réussi à maintenir le système à une température comprise entre 23 et 25 °C.

Malgré ces défis, l'objectif principal de cette expérience était de comparer les différentes valeurs de  $k_L A_p$  entre les diverses conditions expérimentales. Par conséquent, bien que les fluctuations de température aient introduit un biais, nous avons pu obtenir des résultats comparatifs valables entre les différentes expériences.

## 5.4 Comparaison des $k_L A_p$

Dans cette section, les  $k_L A_p$  obtenus grâce aux expériences de calcul de proportions de phases, appelés  $k_L A_{p,\text{EPS}}$  et ceux calculés à partir de l'expérience de mesure de concentration en O<sub>2</sub>, appelés  $k_L A_{p,\text{O}_2}$ , sont comparés avec différentes valeurs obtenues dans la littérature. Les  $k_L A_{p,\text{ORGILL}}$  sont obtenues par l'article de Orgill et al. (2013), qui compare les valeurs de coefficient de transfert de masse pour différents débits gazeux et liquides dans un TBR [37]. Les  $k_l,\text{WANG1}$  et  $k_l,\text{WANG2}$  proviennent de l'article de Wang et al. (2005) recensant plusieurs corrélations pour des coefficients de transferts en phase liquide provenant de plusieurs articles différents et donc de systèmes différents. [49]. Il faut ensuite multiplier ces deux termes par  $A_p$ , la surface d'échange gaz-liquide par volume de liquide dans le réacteur, afin d'obtenir les  $k_L A_{p,\text{WANG1}}$  et  $k_L A_{p,\text{WANG2}}$ .

La première corrélation permet de calculer  $k_l,\text{WANG1}$  :

$$k_l,\text{WANG1} = 0.015 \frac{D_L}{(\mu_L / (\rho_L^2 g z))^{1/3}} \left( \frac{\rho_L u_L}{a_e \mu_L} \right)^{2/3} \text{Sc}_L^{1/3} 60 \quad [49] \quad (5.13)$$

La deuxième corrélation permet de calculer  $k_l,\text{WANG2}$  :

$$k_l,\text{WANG2} = \frac{0.0051}{\left( \frac{a_p}{d_p} \right)^{-0.4}} \left( \frac{\mu_L g z}{\rho_L} \right)^{1/3} \left( \frac{\rho_L u_L}{a_e \mu_L} \right)^{2/3} \text{Sc}_L^{-0.5} 60 \quad [11] \quad [49] \quad (5.14)$$

Dans ces équations,  $d_p$  est le diamètre de chaque élément défini comme  $d_p = \frac{6 \epsilon_s}{a_p}$  en m,  $\mu_L$  est la viscosité du liquide kg m<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup>,  $g z$  est l'accélération de gravité en m s<sup>-2</sup>,  $\rho_L$  est la masse volumique de l'eau en kg m<sup>-3</sup>,  $u_L$  est la vitesse superficielle du liquide en m s<sup>-1</sup>,  $a_e$  est la surface interfaciale spécifique effective en m<sup>-1</sup>,  $\text{Sc}_L$  est le nombre de Schmidt (adimensionnel) exprimé par  $\text{Sc}_L = \frac{\mu_L}{\rho_L D_L}$  et  $D_L$  est le coefficient de diffusion de l'oxygène dans l'eau en m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>.

TABLEAU 5.8 – Comparaison des différentes valeurs de  $k_L A_p$  obtenues expérimentalement et à partir de la littérature pour différents débits gazeux et liquides ainsi que pour différents types d'éléments de garnissage

| $Q_G$<br>(mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$<br>(L min <sup>-1</sup> ) | $k_L A_{p,\text{EPS}}$<br>(min <sup>-1</sup> ) | $k_L A_{p,\text{O}_2}$<br>(min <sup>-1</sup> ) | $k_L A_{p,\text{ORG}}$<br>(min <sup>-1</sup> ) | $k_L A_{p,\text{WANG1}}$<br>(min <sup>-1</sup> ) | $k_L A_{p,\text{WANG2}}$<br>(min <sup>-1</sup> ) |
|----------------------------------|---------------------------------|--|--|--|--|--|
| <b>Hill flow rings</b>           |                                 |  |  |  |  |  |
| 50                               | 3.5                             | 0.033  | 0.033  | 0.004  | 0.088  | 0.282  |
|                                  | 7.0                             | 0.019  | 0.023  | 0.004  | 0.140  | 0.448  |
| 500                              | 3.5                             | 0.033  | 0.098  | 0.011  | 0.088  | 0.282  |
|                                  | 7.0                             | 0.018  | 0.098  | 0.011  | 0.140  | 0.448  |
| <b>RFK</b>                       |                                 |  |  |  |  |  |
| 50                               | 3.5                             | 0.021  | 0.024  | 0.004  | 0.100  | 0.246  |
|                                  | 7.0                             | 0.013  | 0.020  | 0.004  | 0.159  | 0.390  |
| 500                              | 3.5                             | 0.021  | 0.079  | 0.011  | 0.100  | 0.246  |
|                                  | 7.0                             | 0.013  | 0.067  | 0.011  | 0.159  | 0.390  |

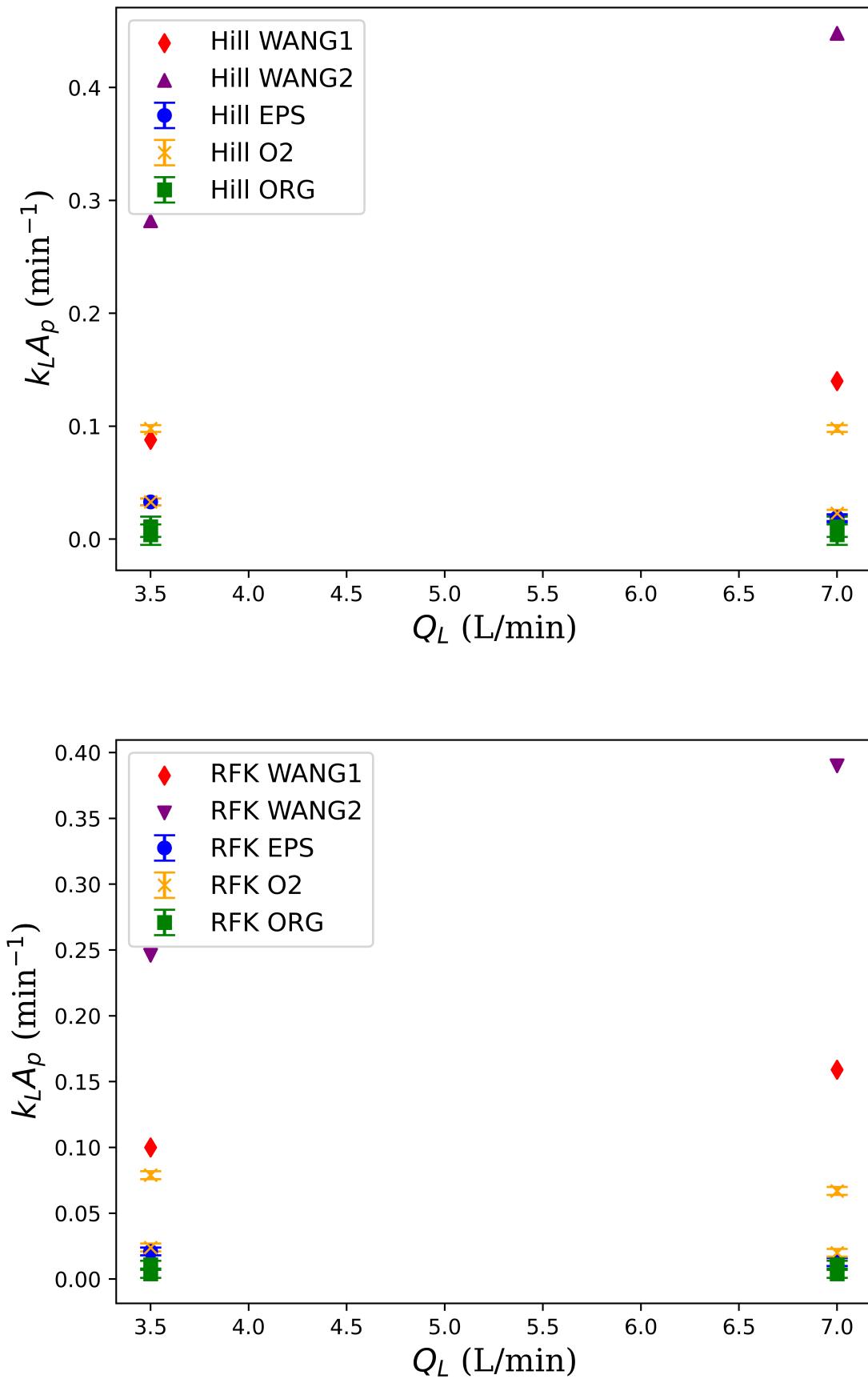


FIGURE 5.7 – Valeurs de  $k_L A_p$  pour différentes combinaisons de débits.

Les résultats entre les deux valeurs calculées à partir de nos mesures sont du même ordre de grandeur, confortant ainsi leur véracité. Cependant, les variations de  $k_L A_{p,O2}$  par rapport aux débits sont inverses par rapport à celles de  $k_L A_{p,EPS}$ . En effet, nous observons une augmentation de  $k_L A_{p,O2}$  avec le débit de gaz et une légère diminution avec le débit liquide. Pour  $k_L A_{p,EPS}$ , le débit de gaz n'induit pas de variation, mais le débit liquide induit une légère diminution comme pour  $k_L A_{p,O2}$ . Ces observations sont valables aussi bien pour les Hill flow rings que les RFK. Les ANOVA respectives montrent que  $k_L A_{p,EPS}$  est dépendant du débit liquide tandis que  $k_L A_{p,O2}$  est fortement dépendant du débit gazeux. Pour les valeurs obtenues de la littérature, nous observons que  $k_L A_{p,ORG}$  varient uniquement avec le débit liquide et non le débit gazeux. Tandis que  $k_L A_{p,WANG1}$  et  $k_L A_{p,WANG2}$  ne dépendent que du débit gazeux et non du débit liquide, et l'impact du type de garnissage fait également varier ces valeurs.

Les valeurs expérimentales de  $k_L A_{p,EPS}$  et  $k_L A_{p,O2}$  à tous débits gazeux et liquides se trouvent entre les valeurs de la littérature avec comme borne inférieure  $k_L A_{p,ORGILL}$  et comme borne supérieure  $k_L A_{p,WANG2}$ . À nouveau, ceci est valable pour les deux types d'éléments de garnissage

De manière générale, le débit de gaz plus élevé permet d'obtenir des transferts plus importants et les Hill flow rings mettent en évidence des performances légèrement supérieures aux RFK, bien que les différences ne soient pas drastiques.

Il existe des écarts notables entre les corrélations et les résultats expérimentaux, bien que ces différences ne dépassent généralement pas un ordre de grandeur. Ceci accentue l'importance de générer nos propres données pour une quantification précise des transferts de matière dans notre réacteur. La production de ces données est nécessaire pour leur intégration dans nos simulations et pour l'optimisation des conditions opératoires du TBR. Il est également pertinent de noter que les valeurs rapportées dans la littérature varient considérablement, une diversité principalement attribuable aux différences de géométrie et de dimensions des systèmes étudiés, ainsi qu'à d'autres paramètres. Par conséquent, les résultats expérimentaux doivent être interprétés avec prudence, car les comparaisons directes avec la littérature peuvent induire en erreur. Il serait donc judicieux de développer nos propres corrélations par des expériences additionnelles pour simuler les transferts de matière sous différentes conditions opérationnelles. En outre, conduire des expérimentations supplémentaires contribuerait à garantir la fiabilité de nos résultats et à confirmer nos conclusions.

## 5.5 Suivi de la concentration en O<sub>2</sub> dans le gaz

Les figures ci-dessous présentent l'évolution du pourcentage d'oxygène dans le TBR, mesurée au sommet du réacteur au fil du temps avec la sonde O<sub>2</sub> de Presens. Elles sont destinées à montrer comment le pourcentage d'oxygène varie en réponse à différentes conditions opératoires. Sur ces graphiques, nous avons représenté en rouge le temps de séjour moyen du gaz dans le réacteur,  $\tau_{moyen,g}$ .

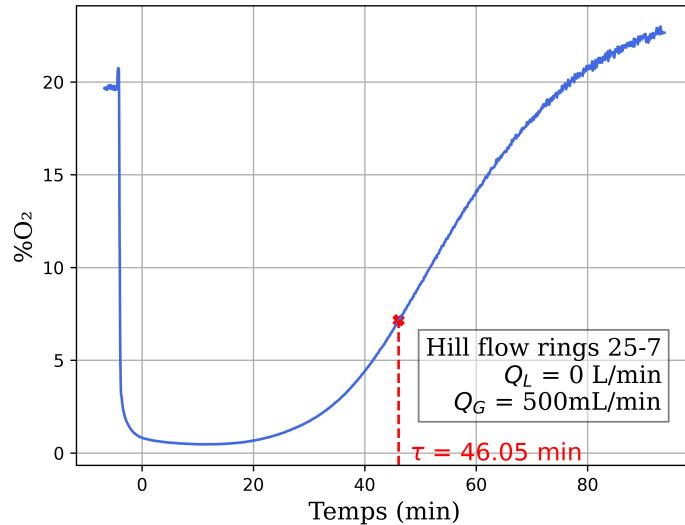


FIGURE 5.8 – Variation du pourcentage d'oxygène (% O<sub>2</sub>) en fonction du temps dans la colonne remplie avec les éléments de garnissage Hill flow rings 25-7.

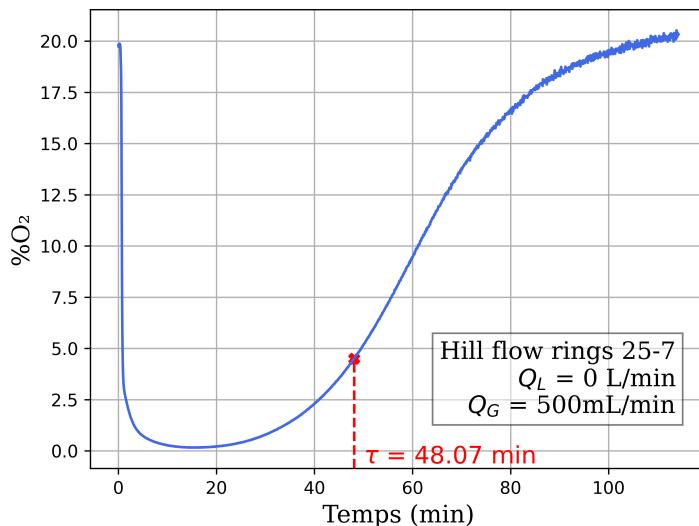


FIGURE 5.9 – Variation du pourcentage d'oxygène (% O<sub>2</sub>) en fonction du temps dans la colonne remplie avec les éléments de garnissage RFK 25L.

L'analyse des profils de concentration en O<sub>2</sub> en fonction du temps permet de suivre l'écoulement de gaz du bas vers le haut dans le réacteur. Le principal problème lié à ces résultats

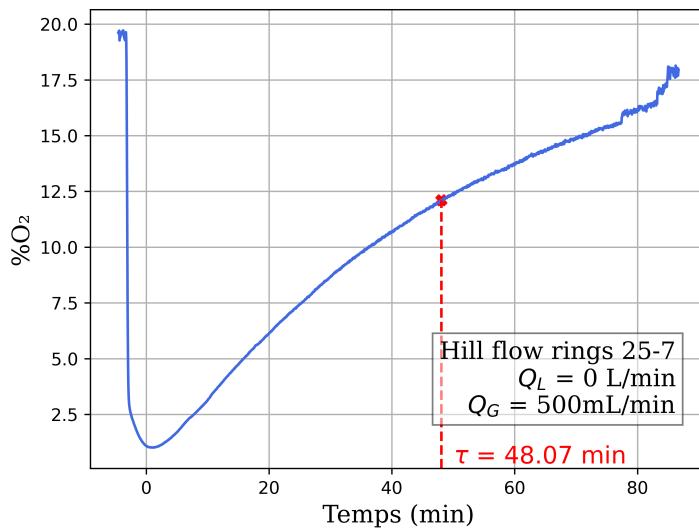


FIGURE 5.10 – Variation du pourcentage d’oxygène (% O<sub>2</sub>) en fonction du temps dans la colonne remplie avec les éléments de garnissage RFK 25L.

réside dans l'impossibilité d'analyser en termes de valeurs absolues, car le calibrage de la sonde n'a pas pu être réalisé en raison de contraintes techniques. Toutefois, il reste possible de procéder à une comparaison qualitative des différents résultats et d'analyser les tendances temporelles de chaque donnée. Les mesures sont effectuées pour différentes conditions opératoires afin de comprendre le comportement de l'écoulement du gaz dans le réacteur.

Les Figures 5.8, 5.9 et 5.10 montrent pour chacune des différentes conditions opératoires une transition nette entre l'air et l'azote, suggérant un comportement de piston avec une très faible dispersion axiale. Le débit d'azote n'est pas mesuré, car ce gaz est injecté directement dans le bas de la colonne via une vanne reliée à une bouteille de gaz, cependant ce débit est bien plus élevé que celui de l'air dans les conditions opératoires. L'air, qui s'écoule à un débit considérablement plus faible, montre une augmentation graduelle du pourcentage d'oxygène, indiquant un certain degré de recirculation/mélange et de dispersion axiale, ce qui suggère un écoulement ne correspondant pas à un piston.

Il convient de noter que, sur ces graphiques, le temps 0 est défini comme celui à partir duquel l'alimentation en gaz passe de l'azote à l'air. Cette précision est nécessaire pour continuer la discussion, car il était difficile d'effectuer un temps de bullage exactement constant.

Avec les débits et dimensions de réacteur connus, il est possible de calculer le temps de séjour moyen du gaz, noté  $\tau_{moyen,g}$  et indiqué en rouge sur les Figures 5.8, 5.9 et 5.10. Ce calcul permet de déterminer si le gaz atteint la sortie du réacteur avant ou après ce temps moyen, révélant soit un court-circuit (by-pass) s'il arrive plus tôt, soit la présence de mélange et de dispersion axiale s'il arrive plus tard. Le temps de séjour moyen est calculé selon la formule suivante :

$$\tau_{moyen,g} = \frac{V_{réacteur}}{Q_G \cdot \epsilon_g} \quad (5.15)$$

L'analyse des profils de concentration en O<sub>2</sub> en fonction du temps indique qu'à un débit  $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$  et sans débit liquide, le type d'élément de garnissage n'est pas impactant sur l'écoulement du gaz dans le réacteur. En effet, les allures de courbes sont assez similaires et avec une même augmentation de la concentration en O<sub>2</sub> après le bullage à l'azote et un même temps pour revenir à une saturation en O<sub>2</sub> dans l'air. Les Hill Flow Rings 25-7 ont un temps caractéristiques,  $\tau_{\text{moyen,g}}$ , plus courts que celui des RFK 25L, cependant aucune variation qualitative n'est observée entre le graphique 5.8 et 5.9.

En comparant les Figures 5.8 et 5.9 à la Figure 5.10, nous constatons que le débit liquide contribue à une recirculation plus rapide de l'air dans la colonne. Cela s'explique probablement par un transfert d'oxygène du liquide vers le gaz en haut du réacteur, car après bullage, la proportion d'oxygène dans le gaz au sommet est de 0 %. Grâce à ce transfert, l'augmentation de la concentration en O<sub>2</sub> en haut du réacteur est plus rapide qu'en l'absence de flux liquide. Cette hypothèse est développée et justifiée dans la section 5.6.2.

Bien que les résultats actuels révèlent des informations sur l'impact du débit gazeux et du type de garnissage sur la concentration d'oxygène dans le réacteur, l'étude pourrait être enrichie par des tests supplémentaires. Explorer différentes configurations de  $Q_G$  et  $Q_L$  permettrait d'obtenir une compréhension plus détaillée des dynamiques d'écoulement de l'air dans le réacteur.

## 5.6 Discussion des résultats obtenus avec le modèle

Dans cette section, nous allons nous intéresser aux résultats produits par la simulation de notre modèle dans le but de comprendre l'écoulement des différentes phases dans notre réacteur. Bien que ce modèle puisse générer de nombreux résultats, nous devons nous concentrer sur les objectifs de ce mémoire, à savoir l'étude de l'écoulement du liquide et du gaz ainsi que les transferts de matière.

Nous allons d'abord produire et analyser des graphiques de profils de concentration et fraction molaire en fonction du temps et de la hauteur pour différents paramètres : le type d'élément de garnissage, le débit liquide ( $Q_L$ ) et le débit gazeux ( $Q_G$ ). Ensuite, nous nous intéresserons au transfert pour ces mêmes conditions afin de mieux comprendre ce qu'il se passe dans le réacteur.

Pour cela, nous utilisons des valeurs obtenues expérimentalement telles que les proportions de phases solides, liquides et gazeuses ( $\epsilon_s$ ,  $\epsilon_l$  et  $\epsilon_g$ ) et les coefficients de transfert de matière ( $k_L A_p$ ) à transformer pour le CO<sub>2</sub> et l'H<sub>2</sub>. Sachant que :

$$k_L A_{p,O_2} = \frac{D_{O_2}}{\delta} \quad (5.16)$$

On peut donc trouver les  $k_L A_{p,CO_2}$  et  $k_L A_{p,H_2}$  en considérant le rapport des coefficients de diffusions pour chaque espèce tel que :

$$\begin{cases} k_L A_{p,CO_2} = k_L A_{p,O_2} \frac{D_{CO_2}}{D_{O_2}} \\ k_L A_{p,H_2} = k_L A_{p,O_2} \frac{D_{H_2}}{D_{O_2}} \end{cases} \quad (5.17)$$

Les valeurs de  $k_L A_p$  sont repris dans un tableau à l'annexe C.1.

### 5.6.1 Écoulement du liquide et du gaz dans différentes conditions opératoires

Les profils sont analysés à deux hauteurs : la première, légendée "Bas du réacteur" sur les graphiques, représente une hauteur de 10 cm de réacteur, tandis que la seconde, légendée "Haut du réacteur", représente une hauteur de 90 cm de réacteur. La composition molaire du gaz en entrée est  $y_{CO_2} = 0.2$  et  $y_{H_2} = 0.8$ .

#### Simulation dans les conditions de référence

Cette analyse servira de conditions de référence par rapport aux variations des paramètres ( $\epsilon_s$ ,  $\epsilon_g$ ,  $\epsilon_l$ ,  $A_p$  et  $k_L A_p$ ).

L'analyse de Figure 5.11 montre que pour les deux espèces, le CO<sub>2</sub> et l'H<sub>2</sub>, nous observons une augmentation rapide des concentrations dans le liquide du réacteur jusqu'à environ 40 000 secondes, période après laquelle les concentrations atteignent leur saturation à 6.8 mol m<sup>-3</sup> pour le CO<sub>2</sub> et 0.624 mol m<sup>-3</sup> pour l'H<sub>2</sub>, correspondant à la capacité maximale de dissolution des gaz dans ces conditions. La ligne verticale sur ces graphiques met en évidence le temps nécessaire pour arriver à la moitié de la saturation. Nous observons tout de même que la concentration en H<sub>2</sub> augmente plus rapidement que celle en CO<sub>2</sub>, s'expliquant par un  $k_L A_{p,H_2}$  supérieur à  $k_L A_{p,CO_2}$ . Les courbes de concentration en bas

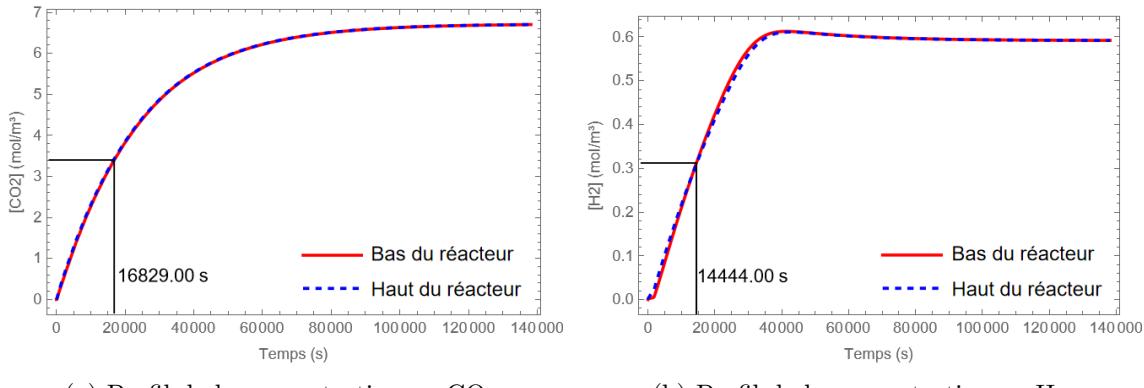


FIGURE 5.11 – Profil de concentration standardisée dans le liquide en fonction de la hauteur et du temps pour le  $\text{CO}_2$  et l' $\text{H}_2$  pour  $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$  et  $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$ .

et en haut du réacteur montrent une superposition presque parfaite pour les deux espèces, indiquant une excellente homogénéité dans la distribution du liquide, probablement due à un débit élevé et à un circuit de recirculation efficace au sein duquel le liquide est continuellement pompé du bas vers le haut. L'entrée de gaz située au bas de la colonne permet aux concentrations de liquide en bas et en haut d'être très proches, minimisant ainsi les gradients de concentration le long du réacteur. Initialement, il n'y a pas de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{H}_2$  au sein du TBR, ces graphiques témoignent donc de la capacité du système à dissoudre et à distribuer uniformément les gaz, maintenant des conditions réactionnelles constantes et contrôlées au sein du réacteur. Bien que le  $\text{CO}_2$  et le  $\text{H}_2$  participent à la même réaction chimique dans le système, la constante de réaction pour l' $\text{H}_2$  est quatre fois supérieure à celle du  $\text{CO}_2$ . Cette différence dans les constantes de réaction explique la raison pour laquelle, après la saturation, la concentration de  $\text{H}_2$  montre une légère diminution et ne reste pas à saturation, tandis que celle du  $\text{CO}_2$  reste relativement stable.

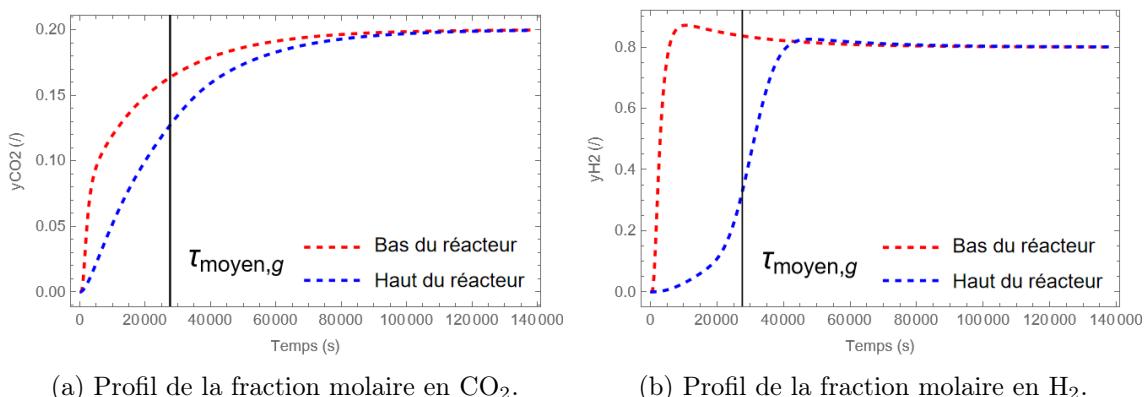


FIGURE 5.12 – Profil de fraction molaire dans le gaz en fonction de la hauteur et du temps pour le  $\text{CO}_2$  et l' $\text{H}_2$  pour  $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$  et  $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$ .

L'analyse des fractions molaires de  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2$ , voir Figure 5.12, montre que ces dernières augmentent progressivement jusqu'à atteindre leurs valeurs maximales respectives de 0,2 pour le  $\text{CO}_2$  et de 0,8 pour l' $\text{H}_2$ , ces saturations se produisant respectivement aux environs de 80 000 secondes pour le  $\text{CO}_2$  et 40 000 secondes pour l' $\text{H}_2$ . L'allure de ces deux courbes montre que le transfert du  $\text{CO}_2$  est plus lent que le transfert du  $\text{H}_2$ . Ceci est lo-

gique étant donné que les valeurs de  $k_L A_{p,H_2}$  sont plus élevées que les valeurs de  $k_L A_{p,CO_2}$  (voir annexe C.1). Cette observation est cohérente avec la manière dont ces deux termes sont calculés (voir système d'équation 5.17), basés sur le coefficient de dispersion. Celui-ci étant supérieur pour l' $H_2$  par rapport au  $CO_2$ . Les courbes représentant le bas et le haut du réacteur révèlent un décalage temporel. Expliqué par l'implémentation dans l'entrée du gaz à la hauteur 0 du réacteur et des valeurs nulles de fraction molaire en  $CO_2$  et  $H_2$  à toutes autres hauteurs du réacteur en  $t=0s$ . Nous pouvons également remarquer via les courbes du graphique 5.12b que le terme de dispersion utilisée est très impactant, il est donc primordial d'alimenter notre modèle avec une valeur expérimentale de la dispersion au sein du TBR. De plus, une fraction molaire significative de  $CO_2$  et d' $H_2$  est observée en haut du réacteur bien avant le temps de résidence moyen.

### Impact du débit de liquide

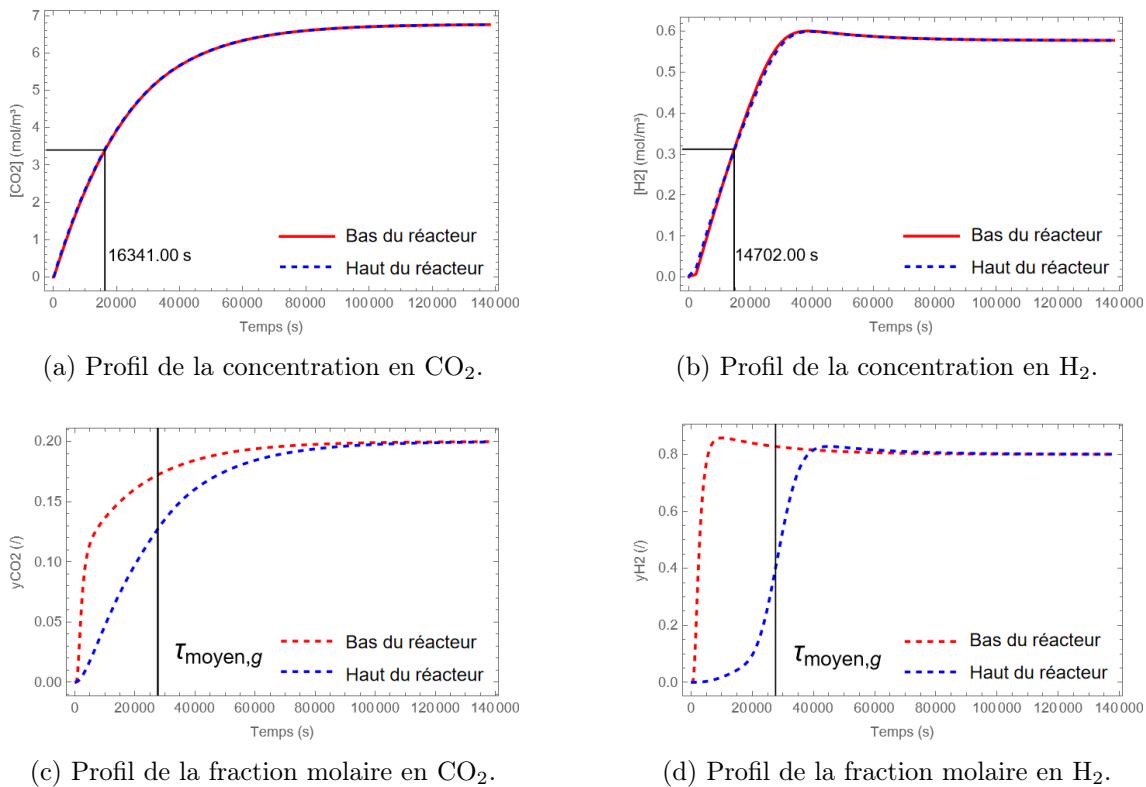


FIGURE 5.13 – Profil de concentration standardisée et fraction molaire en fonction de la hauteur et du temps pour le  $CO_2$  et l' $H_2$  pour  $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$  et  $Q_L=7.0\text{L min}^{-1}$ .

La Figure 5.13 indique que l'impact de l'augmentation du liquide de  $3.5$  à  $7.0 \text{ L min}^{-1}$  n'est pas significatif sur l'écoulement du liquide et l'écoulement du gaz au sein du réacteur. Le temps nécessaire pour arriver à la moitié de la saturation étant quasiment identique que dans les situations de référence :  $16829$  s à  $16341$  s pour le  $CO_2$  et  $14444$  s à  $14702$  s. Cela s'explique par le fait que la variation du débit liquide n'induit qu'une très faible variation des valeurs de proportion de phase ( $\epsilon_l=0.039\rightarrow0.052$  et  $\epsilon=0.089\rightarrow0.086$ ) et des coefficients de transfert de matière ( $k_L A_{p,CO_2}=0.0265\rightarrow0.0187$  et  $k_L A_{p,H_2}=0.0710\rightarrow0.500$ ).

### Impact du débit de gaz

Le débit de gaz augmente de  $50 \text{ mL min}^{-1}$  à  $500 \text{ mL min}^{-1}$ , entraînant un changement significatif des  $k_L A_p$  tandis que les proportions des phases varient très peu.

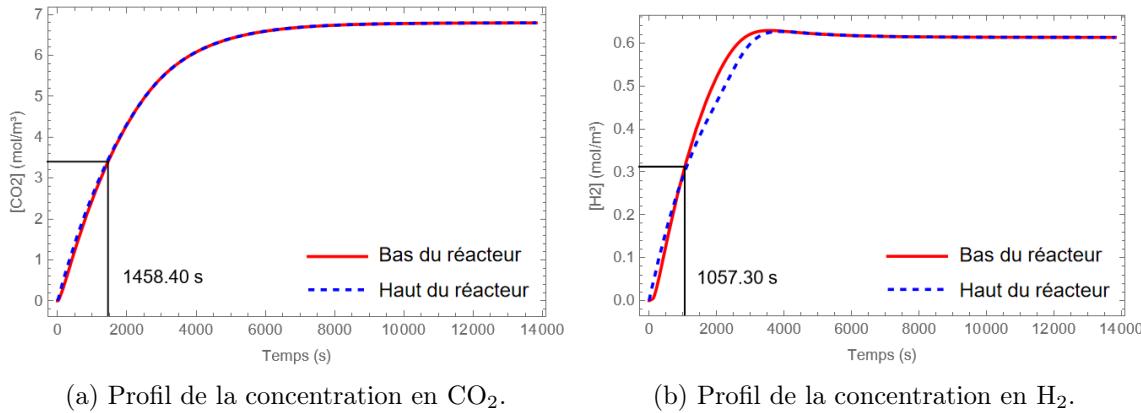


FIGURE 5.14 – Profil de concentration standardisée dans le liquide en fonction de la hauteur et du temps pour le  $\text{CO}_2$  et l' $\text{H}_2$  pour  $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$  et  $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$ .

Dans les graphiques de la Figure 5.14, les courbes montrent des tendances et des allures similaires à celles observées précédemment dans la Figure 5.11, atteignant toutes deux un plateau qui signifie une saturation. Toutefois, la vitesse à laquelle les concentrations de  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2$  atteignent la saturation est nettement plus rapide dans le cas du débit de gaz à  $500 \text{ mL min}^{-1}$ . En effet, le temps nécessaire pour arriver à la moitié de la saturation par rapport aux conditions de références est environ 11 fois plus faible pour l' $\text{CO}_2$  et environ 14 fois plus faible pour l' $\text{H}_2$ . Cette accélération est directement proportionnelle à l'augmentation du débit de gaz, avec les échelles de temps pour atteindre la saturation réduite par un facteur de 10, correspondant à l'augmentation d'un facteur 10 du débit de gaz. Cependant, l'augmentation des concentrations n'est pas uniquement d'un facteur 10 ; elle est également influencée par une augmentation d'un facteur 3 des coefficients de transfert de masse liquide-gaz ( $k_L A_p$ ), expliquant ainsi l'accélération encore plus marquée de la dissolution des gaz. Par conséquent, malgré le temps de séjour réduit, le profil de concentration suggère que le transfert de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{H}_2$  du gaz vers le liquide reste suffisamment efficace pour compenser la réduction de ce temps de séjour. En dépit de ces changements, la similitude des formes des courbes, ajustée pour ces temps plus courts, indique que la dynamique fondamentale de l'écoulement et du transfert de matière reste la même, bien que les processus se déroulent sur des intervalles de temps réduits.

Grâce à l'augmentation du débit de gaz, les courbes de la Figure 5.15 atteignent plus rapidement leurs plateaux respectifs que les courbes de la Figure 5.12 au débit inférieur de  $50 \text{ mL min}^{-1}$ , tout en maintenant des valeurs de saturation identiques. Cette augmentation plus rapide est principalement due à l'augmentation du débit de gaz qui induit une vitesse superficielle plus élevée dans le réacteur, réduisant ainsi le temps de séjour du gaz. Cela s'observe au niveau du croisement du temps de séjour (droite verticale noire) avec les courbes bleues des deux figures. Nous observons particulièrement pour l' $\text{H}_2$  qu'à  $50 \text{ mL min}^{-1}$  la fraction molaire est plus faible qu'à  $500 \text{ mL min}^{-1}$  pour leur temps de séjour respectif.

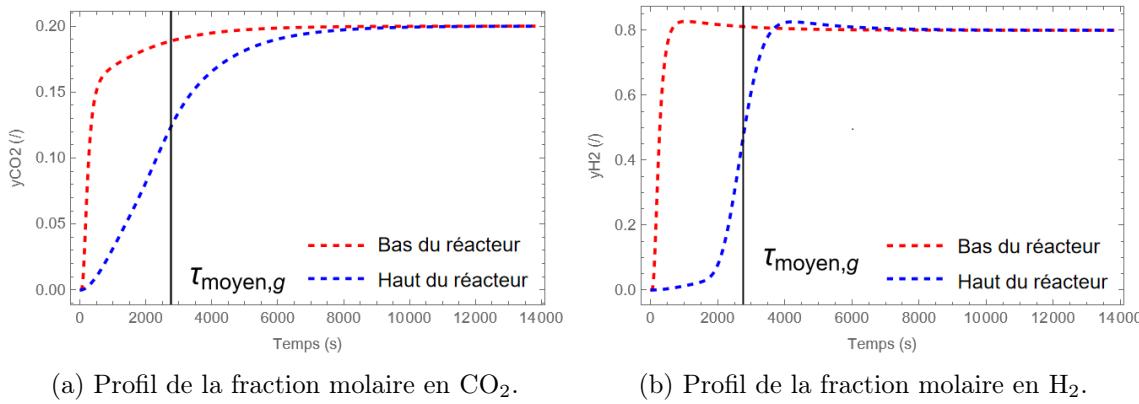


FIGURE 5.15 – Profil de fraction molaire dans le gaz en fonction de la hauteur et du temps pour le  $\text{CO}_2$  et l' $\text{H}_2$  pour  $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$  et  $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$ .

### Impact des éléments de garnissage

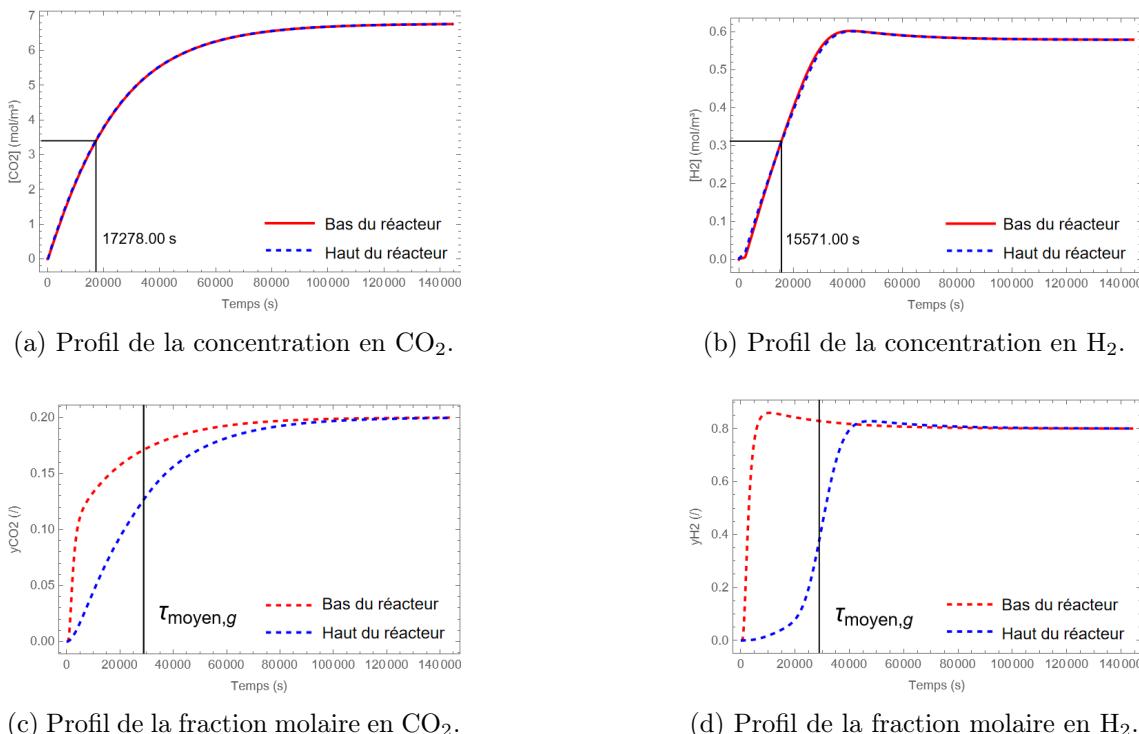


FIGURE 5.16 – Profil de concentration standardisée et fraction molaire en fonction de la hauteur et du temps pour le  $\text{CO}_2$  et l' $\text{H}_2$  pour  $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$  et  $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$  et pour les éléments de garnissage RFK 25L.

Nous observons que les graphiques de la Figure 5.18 présentent des résultats similaires que les figures pour les Hill flow rings au débit de gaz de  $50 \text{ mL min}^{-1}$  et pour les deux débits liquides de  $3.5 \text{ L min}^{-1}$  (figures 5.11 et 5.12) et  $7.5 \text{ L min}^{-1}$  (figure 5.13). Cette similarité, malgré la variation du type de garnissage entre RFK et Hill flow rings, suggère une influence minime, voire nulle du type de garnissage, sur l'écoulement dans ces conditions spécifiques. Cette observation est logique étant donné la faible variation des proportions de phases et des coefficients de transfert de matières dans chacune de ces conditions. Le temps nécessaire pour arriver à la moitié de la saturation est quelque peu plus important que dans les situations de référence : 16829 s à 17278 s pour le  $\text{CO}_2$  et 14444 s à 15571 s pour l' $\text{H}_2$ .

### Impact du transfert de matière

Nous avons ici réalisé une simulation sans transfert de matière, c'est-à-dire que les valeurs de  $k_L A_p$  sont nulles.

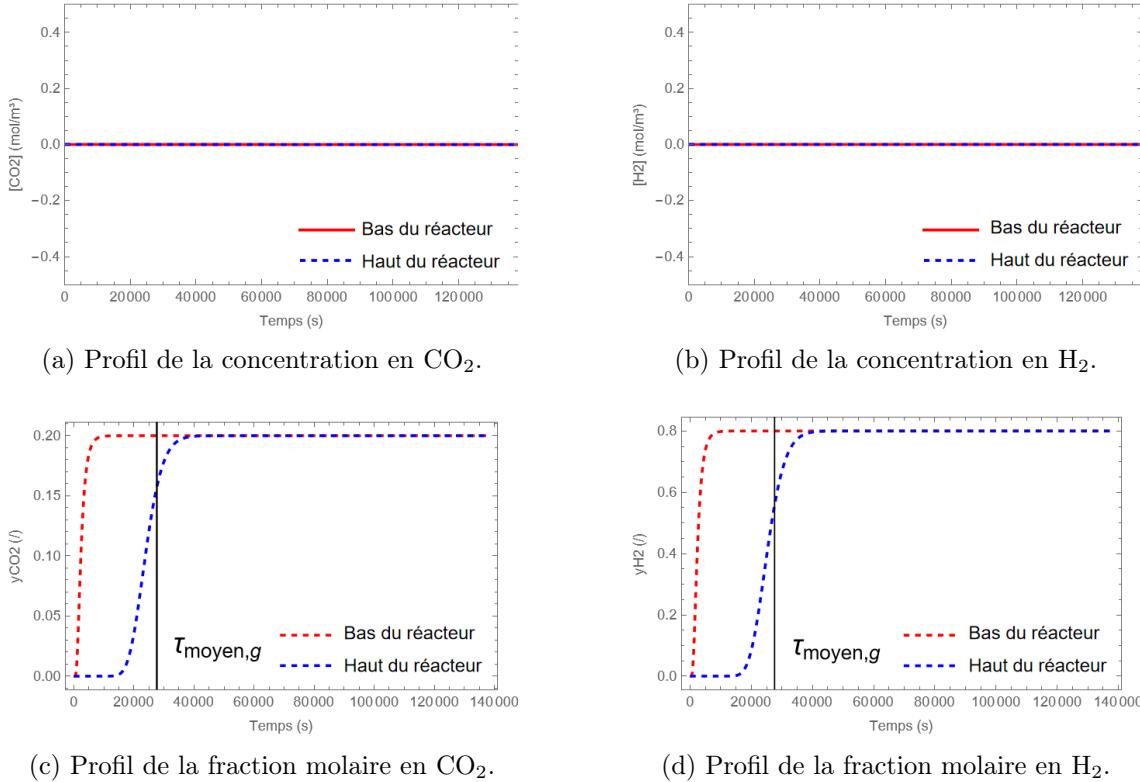
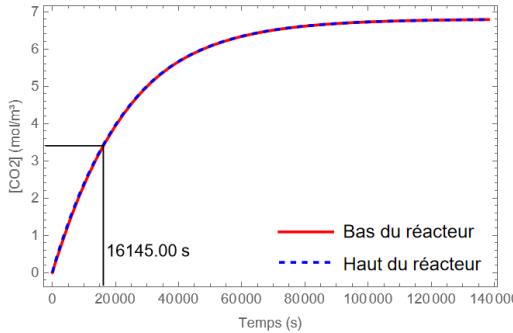


FIGURE 5.17 – Profil de concentration standardisée et fraction molaire en fonction de la hauteur et du temps pour le  $\text{CO}_2$  et l' $\text{H}_2$  pour  $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$  et  $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$ .

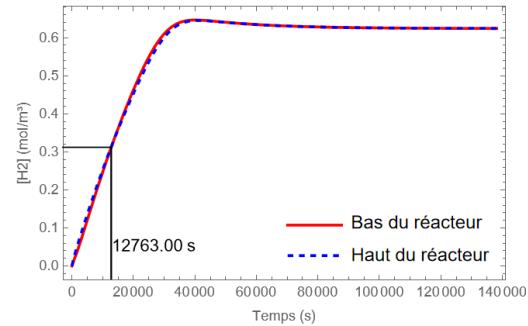
Les deux graphiques 5.18a et 5.18b confirment qu'il n'y a pas de transfert de matière et que les concentrations dans le liquide sont nulles. Les profils de fraction molaire dans le gaz montrent des différences notables par rapport aux conditions de référence 5.12. Premièrement, nous observons que ce sont les transferts de matière entre phases qui influencent le plus l'allure respective des courbes des graphiques de référence. En revanche, pour les graphiques 5.17c et 5.17d, l'allure est identique pour  $y_{\text{CO}_2}$  et  $y_{\text{H}_2}$ . Cela a du sens étant donné que les équations pour la fraction molaire en  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2$  sont implémentés de la même façon dans le modèle. Dans ces conditions, nous remarquons l'impact de notre terme de dispersion. Ce terme devait initialement servir d'astuce numérique lors de la résolution du système. Cependant, il s'avère non négligeable lorsque le transfert entre phases est nul, bien que nous ayons choisi un terme de dispersion,  $\tau_d$ , mille fois supérieur à celui de convection,  $\tau_c$ . Néanmoins, l'impact de ce terme de dispersion reste beaucoup plus faible que celui du transfert entre les phases. Cette différence est clairement visible en comparant les graphiques 5.12a et 5.17c.

### Impact du terme de réaction

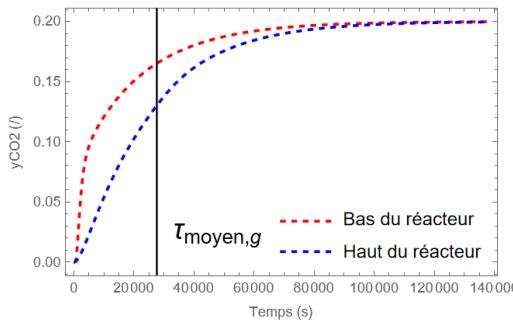
Nous avons ici réalisé une simulation sans terme de réaction, c'est-à-dire  $r_{\text{H}_2}=r_{\text{CO}_2}=0 \text{ mol m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ .



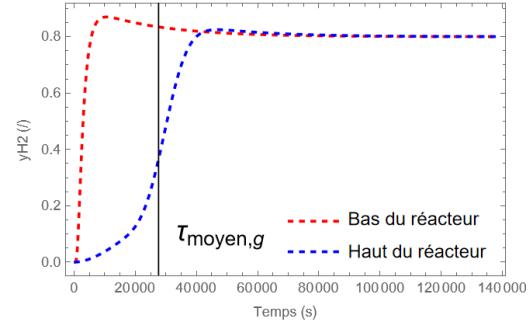
(a) Profil de la concentration en  $\text{CO}_2$ .



(b) Profil de la concentration en  $\text{H}_2$ .



(c) Profil de la fraction molaire en  $\text{CO}_2$ .



(d) Profil de la fraction molaire en  $\text{H}_2$ .

FIGURE 5.18 – Profil de concentration standardisée et fraction molaire en fonction de la hauteur et du temps pour le  $\text{CO}_2$  et l' $\text{H}_2$  pour  $Q_G=50 \text{ mL min}^{-1}$  et  $Q_L=3.5 \text{ L min}^{-1}$ .

L'annulation de ce terme de réaction ne semble pas affecter grandement les profils de fraction molaire dans le gaz par rapport aux conditions de référence. Cependant, pour les concentrations, bien que l'allure ne change pas significativement, nous observons que sans le terme de réaction, la concentration en  $\text{CO}_2$  tend vers sa valeur à saturation pour une alimentation  $y_{\text{CO}_2}=0.2$  à savoir  $6.8 \text{ mol m}^{-3}$ . De même, l' $\text{H}_2$  tend aussi vers sa valeur à saturation pour  $y_{\text{H}_2}=0.8$ , à savoir  $0.624 \text{ mol m}^{-3}$ . Le faible impact du terme de réaction sur l'allure des courbes illustre que le transfert de matière est le phénomène dominant et limitant ici.

### 5.6.2 Analyse des transferts de matière

Les graphiques de la Figure 5.19 sont très intéressants, car ils présentent les différents transferts au sein du réacteur pour les deux types d'éléments de garnissage et pour différents débits gazeux et liquides.

Premièrement, un phénomène très intéressant se manifeste : la direction du transfert varie en fonction de la hauteur dans le réacteur. Nous observons un transfert du gaz vers le liquide dans le bas du réacteur et, à l'inverse, un transfert du liquide vers le gaz dans le haut du réacteur. Cela s'explique par le fait que l'entrée de gaz est en bas de la colonne, donc la concentration en CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub> dans le liquide est inférieure à la saturation (et initialement nulle au temps t=0 s), expliquant ainsi le transfert du gaz vers le liquide. En haut du réacteur, le gaz commence avec une fraction molaire nulle de H<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub>. Toutefois, comme le liquide est recirculé de la sortie en bas vers l'entrée en haut, il contient de l'H<sub>2</sub> et du CO<sub>2</sub> qui ont été transférés depuis le gaz en bas du réacteur. Ainsi, le liquide se retrouve sursaturé en comparaison avec le gaz, ce qui entraîne un transfert des espèces du liquide vers le gaz.

Le débit gazeux semble être le paramètre le plus important influençant le transfert de matière. Cela est logiquement attendu, au vu de nos expériences précédentes sur les calculs de  $k_L A_p$ . Les valeurs maximales de transferts sont 3 à 4 fois plus grandes pour le débit de gaz de 500 mL min<sup>-1</sup> par rapport au débit 50 mL min<sup>-1</sup>.

Dans notre modèle, l'impact des éléments de garnissage sur les variations des transferts de masse sous différentes conditions testées apparaît comme relativement mineur par rapport à l'impact de la variation du débit gazeux. La variation est assez constante dans chacune des conditions testées, avec une légère diminution du transfert pour les RFK 25L par rapport aux Hill flow ring 25-7. Dans le modèle, les éléments de garnissage influencent principalement les valeurs de proportions de phase  $\epsilon_l$ ,  $\epsilon_g$  et  $\epsilon_s$  ainsi qu'au niveau des  $k_L A_p$ . Cependant, les variations de  $k_L A_p$  dues aux différents types de garnissage sont moins prononcées comparées aux impacts résultant des modifications des débits de gaz ou de liquide.

Nous observons également, lors des simulations, que l'impact du débit liquide n'a pas d'effet notable sur le transfert au débit de gaz de 500 mL min<sup>-1</sup> tant pour les Hill Flow Rings que pour les RFK, et un très léger impact au débit de 50 mL min<sup>-1</sup>.

En définitive, le transfert tend à être positif une fois que le système arrive à stabilisation pour chacun des conditions. Ce qui ne peut qu'être logique au regard de la consommation d'H<sub>2</sub> et de CO<sub>2</sub> par les microorganismes, induisant une différence par rapport à la saturation prolongeant le transfert, aussi bien en bas qu'en haut du réacteur. Ceci est confirmé par la figure 5.20 où nous avons simulé le modèle avec un taux de réaction nulle,  $r_{CO_2}=r_{H_2}=0$  mol m<sup>-3</sup> s<sup>-1</sup>.

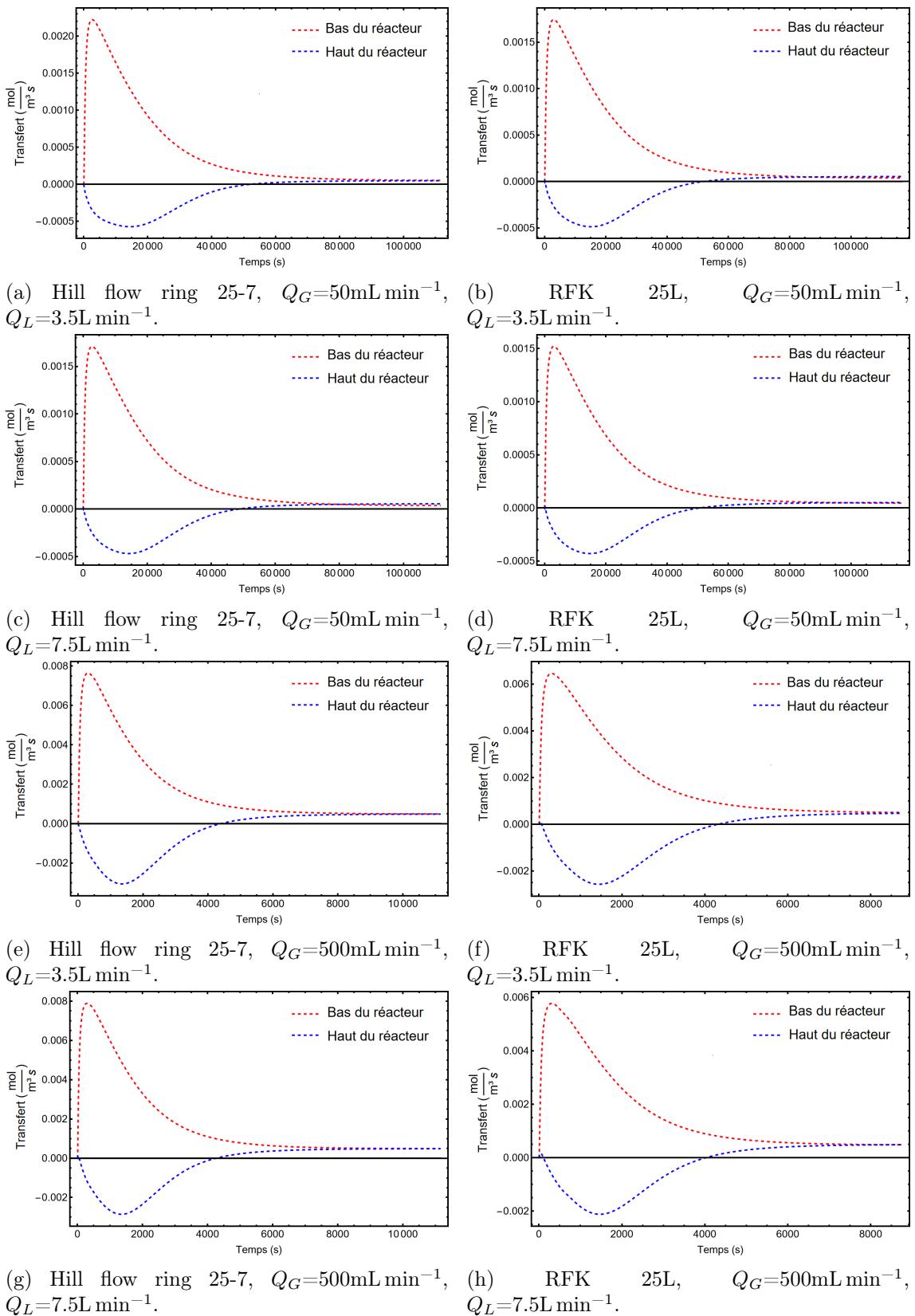


FIGURE 5.19 – Évolution du transfert en  $\text{mol m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  pour différentes conditions opératoires.

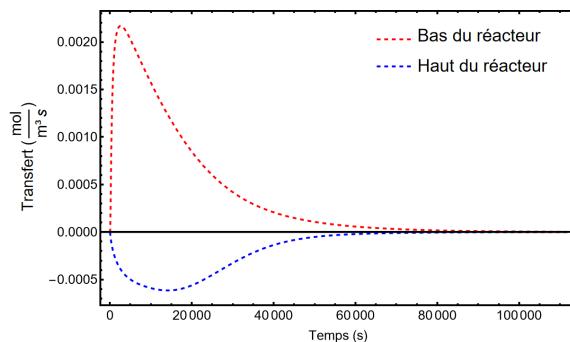


FIGURE 5.20 – Évolution du transfert en  $\text{mol m}^{-3} \text{s}^{-1}$  pour les Hill flow ring 25-7 au débit  $Q_G=500 \text{ mL min}^{-1}$  et  $Q_L=3.5 \text{ L min}^{-1}$  lorsque le terme de réaction est nul.

### 5.6.3 Limitations

Une des principales limitations de notre modèle se résume au fait qu'il ne prend pas en compte le volume du réservoir, ce qui ajoute un certain délai pour l'arrivée du liquide en haut de la colonne. Ce délai affectant aussi bien la concentration dans le liquide que la fraction molaire dans le gaz pourrait être calculé expérimentalement avec un suivi dans le réservoir.

Un autre aspect critique à mettre en évidence est l'absence de validation expérimentale des prédictions du modèle. Pour renforcer la crédibilité des résultats présentés, il est nécessaire de réaliser des analyses de suivi des concentrations de  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2$  directement dans le réacteur. Cela permettrait de confirmer ou d'infirmier les tendances observées dans les résultats de cette section et d'ajuster le modèle en conséquence.

De plus, la modélisation des réactions chimiques impliquées nécessite une attention particulière. Nous avons reçu des valeurs peu précises, limitant ainsi la fiabilité des prédictions du modèle dans ce domaine. Une étude plus approfondie des mécanismes réactionnels et de leur cinétique serait nécessaire pour améliorer l'exactitude du modèle.

L'amélioration de ces aspects contribuerait, non-seulement à une validation plus approfondie du modèle, mais également à renforcer sa robustesse pour des applications prédictives, en particulier lors de la modification d'autres paramètres opérationnels tels que la pression, la température, la présence de microorganismes sur les éléments de garnissage, etc.

# Chapitre 6

# Travaux futurs

Les travaux menés au sein de ce mémoire ouvrent la voie à des avancées futures déterminantes pour l'amélioration de notre TBR utilisés pour la méthanation biologique. Ces recherches peuvent être organisées en initiative à court et à long terme pour une progression stratégique du domaine.

## 6.1 Travaux à court terme

### 6.1.1 Amélioration des systèmes de mesure

Intégration d'un système de refroidissement plus efficace pour minimiser les fluctuations de température significatives dans le système. Cette innovation est décisive pour la réutilisation du système, car elle permet d'améliorer le contrôle des conditions opératoires du système et de corriger les biais de mesure liés à la variation de température.

Adoption d'une sonde à oxygène spécifiquement conçue pour les environnements secs afin d'améliorer la précision des mesures de l'écoulement gazeux.

Utilisation de sondes et de capteurs mieux adaptés au TBR, tels que des capteurs de CO<sub>2</sub>, de pH, et de conductivité, pour obtenir des données plus précises sur le suivi des écoulements gazeux et liquides ainsi que le transfert de matières. Cette amélioration technique facilitera également l'ajustement des paramètres opérationnels.

Pour améliorer notre compréhension de la dynamique des fluides dans le TBR, il est envisagé de mesurer la vitesse du gaz dans différentes zones de la colonne. L'analyse des vitesses permettra d'identifier les zones dans lesquelles celles-ci sont soit trop élevées, risquant alors de perturber l'écoulement liquide, soit trop faibles, pouvant ainsi créer des zones mortes ou affecter négativement la réaction chimique. Cette connaissance va être essentielle tant pour optimiser la conception que les conditions opératoires du réacteur. Les données recueillies permettront d'ajuster les paramètres opératoires en vue d'optimiser la distribution du flux et l'homogénéité de la réaction, améliorant ainsi l'efficacité globale du réacteur.

### 6.1.2 Amélioration du modèle

Le modèle développé dans ce mémoire présente plusieurs pistes pour son amélioration future. Initialement, il est envisageable de continuer à développer ce modèle en l'enrichissant avec plus de résultats expérimentaux obtenus à partir de nouvelles expériences. Ces données pourraient permettre de construire de nouvelles corrélations, par exemple pour le calcul du coefficient de transfert de masse intrinsèque  $k_L A_p$ . Par la suite, ces nouvelles corrélations pourraient être intégrées dans le modèle actuel en remplacement de celles actuellement utilisées. Cette démarche permettrait non seulement d'augmenter la précision et la fiabilité des prédictions du modèle, mais aussi de le rendre plus robuste face aux variations des conditions opérationnelles.

Il pourrait également être enrichi par l'intégration d'un terme de dispersion plus adéquat au système, augmentant ainsi la précision de la simulation de l'écoulement des fluides. Ce terme de dispersion peut être obtenu à partir des résultats de mesures de concentration en O<sub>2</sub> dans l'air. Suite à cela, il serait intéressant de reprendre le modèle actuel et le modifier afin de vérifier les résultats actuels de l'écoulement du gaz dans le réacteur pour différentes conditions opératoires.

Par ailleurs, le terme de réaction pourrait être affiné en se basant sur des mesures précises des taux de consommation des réactifs. Cela permettrait d'intégrer les dynamiques de production du méthane et de l'eau, qui n'étaient pas prises en compte ici, car nous nous intéressions essentiellement aux transferts de masse. L'ajout de ces équations contribuerait à un modèle plus complet et réaliste, capable de simuler les interactions biochimiques au sein du réacteur.

Finalement, une extension du modèle pour inclure des dimensions spatiales supplémentaires serait envisageable, passant dès lors d'un modèle unidimensionnel à des modèles plus complexes en 2D voir 3D. La justification pour une augmentation de la complexité du modèle réside dans la nécessité de prendre en compte les interactions spatiales supplémentaires qui influent sur le transfert de matières. Cette étape représente l'une des dernières améliorations du modèle, après avoir optimisé les aspects présentés ci-dessus.

## 6.2 Travaux à long terme

Les travaux à long terme sont essentiels pour garantir la viabilité technique, la rentabilité économique et l'alignement environnemental du TBR. Après l'optimisation des paramètres et la validation du modèle, des simulations et tests à grande échelle permettront de préparer le déploiement industriel. L'intégration du TBR avec les énergies renouvelables, en utilisant l'excédent d'énergie pour produire de l'hydrogène par électrolyse, permettra une production de méthane plus durable. Des études de faisabilité économique approfondie sont nécessaires pour évaluer les coûts, les économies potentielles et la rentabilité à long terme, afin de soutenir les décisions stratégiques concernant l'implémentation industrielle de ces technologies, tout en considérant les impératifs environnementaux et les fluctuations des marchés énergétiques. Ces étapes sont évidemment très éloignées du stade actuel du projet mais permettent d'éclairer et rappeler l'intérêt de tels réacteurs dans le système industriel.

# Chapitre 7

## Conclusions

La complexité de l'écoulement au sein des trickle bed reactors, qui pose des défis dans l'évaluation des transferts de matière, nous a incité à développer un système et un modèle pour mieux comprendre ces mécanismes. Par la modélisation et l'expérimentation, nous avons significativement amélioré notre compréhension des processus de transport de matière au sein du réacteur.

Nous avons conçu et mis en œuvre un système abiotique, similaire à celui utilisé au Canada, pour étudier l'hydrodynamique du réacteur. Le dispositif nous a permis de réaliser diverses expériences. Un protocole expérimental a été développé pour mesurer les proportions de phases dans le réacteur, une donnée cruciale pour comprendre le fonctionnement interne et pour l'implémentation dans notre modèle. Nous avons également réalisé une expérience instrumentée pour mesurer les coefficients de transfert de matière,  $k_L A_p$ . Nos expériences visaient à comparer deux éléments de garnissage couramment utilisés à l'IEP et analyser l'impact des débits de gaz et de liquide dans le TBR. Nos résultats révèlent que l'utilisation des éléments de garnissage Hill flow rings 25-7 permet d'augmenter le transfert de matière d'environ 15 à 45 % par rapport au RFK 25L, selon les débits gazeux et liquides. Il est apparu que le débit gazeux est le facteur le plus déterminant pour le coefficient de transfert, augmentant de 3 à 4 fois la valeur de  $k_L A_p$  avec l'intensification du débit gazeux (de 50 à 500 mL min<sup>-1</sup>). En revanche, le débit liquide a un impact moindre et son augmentation tend à diminuer la valeur de  $k_L A_p$  à cause de l'augmentation du volume de liquide dans le réacteur. En complément, au cours d'une nouvelle expérience, nous avons mesuré le pourcentage d'O<sub>2</sub> dans le haut du réacteur et nous avons observé une importante dispersion et la présence de by-pass. Les mesures indiquent que le débit liquide induit une plus rapide recirculation du gaz vers le haut de la colonne. Ces résultats sont très intéressants et suggèrent qu'il serait pertinent de continuer et d'approfondir ces investigations.

En outre, nous avons développé un modèle pour caractériser les écoulements de gaz et de liquide ainsi que les transferts de matière dans le réacteur. Alimenté par des données expérimentales telles que les proportions de phase et les coefficients de transfert, ce modèle illustre l'influence prépondérante du débit gazeux sur les profils de concentration et les fractions molaires dans le gaz à différentes hauteurs dans le réacteur. Nous avons découvert que le transfert de matière dans la partie supérieure du réacteur s'effectue du liquide vers le gaz au démarrage du système, puis tend à devenir positif en raison de la consommation des substrats par les microorganismes. Cette dynamique souligne un aspect fondamental du fonctionnement du réacteur qui pourrait influencer considérablement les stratégies de conception et d'optimisation futures.

Sur la base des résultats obtenus dans ce mémoire, il semblerait plus intéressant de travailler dorénavant avec les Hill flow rings et à des débits de gaz plus élevés. Cependant, il est nécessaire de prendre en compte le fait qu'une augmentation du débit de gaz induit des contraintes sur le transfert en diminuant le taux de conversion. En effet, plus la vitesse

superficielle du gaz augmente, plus une partie du gaz non transféré se retrouvera à la sortie de la colonne. Ces recommandations doivent être considérées avec prudence, car elles sont basées sur nos observations expérimentales et les résultats du modèle, chacun ayant ses propres limites. De plus, notre système présente de légères différences par rapport à celui du Canada, en raison de nécessités pratiques et économiques.

À la lumière de ces développements, notre travail met en évidence la nécessité de continuer à affiner ces paramètres pour maximiser les transferts de matière et améliorer les performances du procédé de méthanation. En intégrant les résultats obtenus et les limitations identifiées, nous pouvons orienter les recherches futures vers des solutions plus efficaces et durables.

# Bibliographie

- [1] Carriers for trickling filters and submerged fixed beds, <https://www.rvtpe.com/global/en/products/biological-carriers/carriers-for-trickling-filters-and-submerged-fixed-beds>, accessed : 2024-05-10 [Cited on pages 19, 37, and 42.]
- [2] Hillflow ring | rvt, <https://www.rvtpe.com/global/en/products/random-packings/hiflow-ring>, accessed : 2024-05-10 [Cited on pages 19, 37, and 42.]
- [3] Mass transfer (Oct 2023), [https://en.wikipedia.org/w/index.php?title=Mass\\_transfer&oldid=1181708571](https://en.wikipedia.org/w/index.php?title=Mass_transfer&oldid=1181708571), page Version ID : 1181708571 [Cited on page 9.]
- [4] Amphenol All Sensors. "ELVH-005D-HRRD-I-NAA5." Mouser Electronics (2024) [cited on pages VIII, 21, and 40.]
- [5] Al-Dahhan, M.H., Dudukovic', M.P. : Pressure drop and liquid holdup in high pressure trickle-bed reactors. *Chemical Engineering Science* 49(24, Part 2), 5681–5698 (1994) [Cited on page 10.]
- [6] Angelidaki, I., Karakashev, D., Batstone, D.J., Plugge, C.M., Stams, A.J. : Biomethanation and Its Potential. In : *Methods in Enzymology*, vol. 494, pp. 327–351. Elsevier (2011) [Cited on page 4.]
- [7] Aroniada, M., Maina, S., Koutinas, A., Kookos, I.K. : Estimation of volumetric mass transfer coefficient ( $k_{la}$ )—review of classical approaches and contribution of a novel methodology. *Biochemical Engineering Journal* 155, 107458 (2020) [Cited on page 22.]
- [8] Atta, A., Roy, S., Nigam, K.D. : Investigation of liquid maldistribution in trickle-bed reactors using porous media concept in CFD. *Chemical Engineering Science* 62(24), 7033–7044 (Dec 2007) [Cited on pages 8 and 9.]
- [9] Batstone, D., Virdis, B. : The role of anaerobic digestion in the emerging energy economy. *Current opinion in biotechnology* 27, 142–9 (2014) [Cited on page 2.]
- [10] BOGAERTS, P. : Modeling and control of dynamical systems in bioengineering (2022-2023) [Cited on pages VIII, 11, and 12.]
- [11] Bravo, J.L., Fair, J.R. : Generalized correlation for mass transfer in packed distillation columns. *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development* 21(1), 162–170 (Jan 1982) [Cited on page 45.]
- [12] Breault, R.W. : A review of gas–solid dispersion and mass transfer coefficient correlations in circulating fluidized beds. *Powder Technology* 163(1), 9–17 (Apr 2006) [Cited on page 10.]
- [13] Cordero, M.E., Uribe, S., Zárate, L.G., Hernandez-Servin, J.A., Reyes, E.P., Regalado-Méndez, A., Natividad, R. : CFD Analysis of BED Textural Characteristics on TBR Behavior : Hydrodynamics and Scaling-up. *International Journal of Chemical Reactor Engineering* 15(6) (Dec 2017) [Cited on page 11.]
- [14] Crabtree, R. : Aspects of methane chemistry. *Chemical Reviews* 95, 987–1007 (1995) [Cited on page 1.]
- [15] DEBASTE, F. : Chemical and biological reactor design (2022-2023) [Cited on pages 9 and 10.]

- [16] Derbal-Mokrane, H., Belhamel, M., Mraoui, A. : L'hydrogène, vecteur énergétique solaire. *Revue des énergies renouvelables ICRESD-07*, 235–247 (01 2007) [Cited on page 2.]
- [17] Dias, V., Pochet, M., Contino, F., Jeanmart, H. : Energy and economic costs of chemical storage 6 (2020) [Cited on page 1.]
- [18] G RUCHTI, I.J.D., J R BOURNE, U.v.S. : Practical guidelines for the determination of oxygen transfer coefficients ( $k_a$ ) with the sulfite oxidation method. *The Chemical Engineering Journal* 30, 29–38 (1984) [Cited on page 22.]
- [19] GmbH, P.P.S. : User Manual for Presens O<sub>2</sub> Sensor (2021), accessed : 2024-05-29 [Cited on page 23.]
- [20] González, R., Cabeza, I., Casallas-Ojeda, M., Gómez, X. : Biological hydrogen methanation with carbon dioxide utilization : Methanation acting as mediator in the hydrogen economy. *Environments* 10, 82 (05 2023) [Cited on page 2.]
- [21] Hofmeester, J.J. : Gas hold-up measurements in bioreactors. *Trends in Biotechnology* 6(1), 19–22 (Jan 1988) [Cited on page 8.]
- [22] I. Zekos, M.S. : A note on a design protocol for deoxygenation of water. *Electrochemistry Communications* 103, 12–16 (2019) [Cited on page 22.]
- [23] IAN B. BUTLER, M.A.A.S., RICKARD, D.T. : Removal of dissolved oxygen from water : A comparison of four common techniques (1994) [Cited on page 22.]
- [24] Iliuta, I., Larachi, F., Grandjean, B.P., Wild, G. : Gas–liquid interfacial mass transfer in trickle-bed reactors : state-of-the-art correlations. *Chemical Engineering Science* 54(23), 5633–5645 (1999) [Cited on page 10.]
- [25] Jiang, Y., Khadilkar, M., Al-Dahhan, M., Dudukovic, M. : Two-phase flow distribution in 2D trickle-bed reactors. *Chemical Engineering Science* 54(13-14), 2409–2419 (Jul 1999) [Cited on page 11.]
- [26] Kirk, T.V., Szita, N. : Oxygen transfer characteristics of miniaturized bioreactor systems. *Biotechnology and Bioengineering* 110(4), 1005–1019 (Apr 2013) [Cited on page 22.]
- [27] Kouri, R., Sohlo, J. : Liquid and gas flow patterns in random packings. *The Chemical Engineering Journal and the Biochemical Engineering Journal* 61(2), 95–105 (Feb 1996) [Cited on page 9.]
- [28] Lecker, B., Illi, L., Lemmer, A., Oechsner, H. : Biological hydrogen methanation – A review. *Bioresource Technology* 245, 1220–1228 (Dec 2017) [Cited on page 4.]
- [29] Llamas, J.D. : Etude expérimentale de la maldistribution des fluides dans un réacteur à lit fixe en écoulement co-courant descendant de gaz et de liquide. Ph.D. thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine (2008) [Cited on page 8.]
- [30] Luis, P. : Chapter 5 - membrane contactors. In : Luis, P. (ed.) *Fundamental Modelling of Membrane Systems*, pp. 153–208. Elsevier (2018) [Cited on pages VIII, 9, and 10.]
- [31] Lydia Rachbauer, Gregor Voitl, G.B.W.F. : Biological biogas upgrading capacity of a hydrogenotrophic community in a trickle-bed reactor. *Applied Energy* 180, 483–490 (2016) [Cited on pages VIII, 3, and 4.]
- [32] Manjrekar, O.N., Mills, P.L. : Trickle Bed Reactors. In : Ranade, V.V., Utikar, R.P. (eds.) *Multiphase Flows for Process Industries*, pp. 533–588. Wiley, 1 edn. (Jun 2022) [Cited on pages XI and 6.]
- [33] Mouad Hachhach, Vincenzo Russo, D.Y.M.T.S. : Modeling of a trickle bed reactor : Study of arabinose oxidation on gold catalyst extrudates. *Computer Aided Chemical Engineering* 52, 405–410 (2023) [Cited on pages 5 and 6.]

- [34] Moutafchieva, D., Popova, D., Dimitrova, M., Tchaoushev, S. : Experimental determination of the volumetric mass transfer coefficient (2013) [Cited on pages 22 and 23.]
- [35] Muñoz, M., Heeb, N.V., Haag, R., Honegger, P., Zeyer, K., Mohn, J., Comte, P., Czerwinski, J. : Bioethanol Blending Reduces Nanoparticle, PAH, and Alkyl- and Nitro-PAH Emissions and the Genotoxic Potential of Exhaust from a Gasoline Direct Injection Flex-Fuel Vehicle. *Environmental Science & Technology* 50(21), 11853–11861 (Nov 2016) [Cited on page 1.]
- [36] Ngu, V.K.S. : Multiscale modelling of gas-liquid bioreactors : Biological Methanation Application. phdthesis, INSA de Toulouse (Nov 2022) [cited on pages VIII, 2, 3, 5, and 11.]
- [37] Orgill, J.J., Atiyeh, H.K., Devarapalli, M., Phillips, J.R., Lewis, R.S., Huhnke, R.L. : A comparison of mass transfer coefficients between trickle-bed, hollow fiber membrane and stirred tank reactors. *Bioresource Technology* 133, 340–346 (2013) [Cited on page 45.]
- [38] Petříček, R., Labík, L., Moucha, T., Rejl, F.J., Valenz, L., Haidl, J. : Volumetric Mass Transfer Coefficient in Fermenters : Scale-up Study in Viscous Liquids. *Chemical Engineering & Technology* 40(5), 878–888 (May 2017) [Cited on page 10.]
- [39] Rafrafi, Y., L.L..D.C. : Biological methanation of h2 and co2 with mixed cultures : Current advances, hurdles and challenges. *Waste Biomass Valor* 12, 5259–5282 (2020) [Cited on page 4.]
- [40] Ramírez-Castelán, C.E., Hidalgo-Vivas, A., Brix, J., Jensen, A.D., Huusom, J.K. : Mathematical Modelling and Simulation of a Trickle-Bed Reactor for Hydrotreating of Petroleum Feedstock. *International Journal of Chemical Reactor Engineering* 17(7) (Jul 2019) [Cited on pages 1 and 4.]
- [41] Ranade, V.V., Chaudhari, R.V., Gunjal, P.R. : Hydrodynamics and Flow Regimes. In : *Trickle Bed reactors ; Reactor Engineering & Applications*, pp. 25–75. Elsevier (2011) [Cited on pages VIII, 7, and 8.]
- [42] Sposob, M., Wahid, R., Fischer, K. : Ex-situ biological CO<sub>2</sub> methanation using trickle bed reactor : review and recent advances. *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology* 20(4), 1087–1102 (Dec 2021) [Cited on page 3.]
- [43] Sposób, M. : Optimization of ex-situ biomethanation process in trickle bed reactor : The impact of slight H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> ratio adjustments and different packing materials. *Renewable Energy* 222, 119971 (Feb 2024) [Cited on pages 1, 3, 6, and 7.]
- [44] Strübing, D., Huber, B., Lebuhn, M., Drewes, J.E., Koch, K. : High performance biological methanation in a thermophilic anaerobic trickle bed reactor. *Bioresource Technology* 245, 1176–1183 (2017) [Cited on page 2.]
- [45] Sucra, A.B. : Réplique nasale instrumentée et simulations cfd pour administration du nez au cerveau (2022-2023) [Cited on pages VIII and 21.]
- [46] Thema, Martin, e.a. : Biological co<sub>2</sub>-methanation : An approach to standardization. *Energies* 12 (2019) [cited on page 1.]
- [47] Tribe, L., Briens, C., Margaritis, A. : Determination of the volumetric mass transfer coefficient ( $k(l)a$ ) using the dynamic "gas out-gas in" method : Analysis of errors caused by dissolved oxygen probes. *Biotechnology and bioengineering* 46 4, 388–92 (1995) [Cited on pages 22 and 23.]
- [48] Vivek V. Ranade, Raghunath V. Chaudhari, P.R.G. : *Trickle Bed Reactors Reactor Engineering Applications*. Elsevier (2011) [Cited on pages VIII, 5, and 6.]

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [49] Wang, G.Q., Yuan, X.G., Yu, K.T. : Review of Mass-Transfer Correlations for Packed Columns. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 44(23), 8715–8729 (Nov 2005) [Cited on pages XI, 10, and 45.]
- [50] Yin, F. : LIQUID MALDISTRIBUTION AND MASS TRANSFER EFFICIENCY IN RANDOMLY PACKED DISTILLATION COLUMNS. Ph.D. thesis (1999) [Cited on pages VIII, 8, and 9.]
- [51] Ying Sun, Yumi Ueda, H.S.M.H.S.i.K.S.T. : Pressure drop threshold in the foaming of low-density polyethylene, polystyrene, and polypropylene using co<sub>2</sub>and n<sub>2</sub>as foaming agents. *The Journal of Supercritical Fluids* 103 (2015) [Cited on page 11.]
- [52] Özbek, B., Gayik, S. : The studies on the oxygen mass transfer coefficient in a bio-reactor. *Process Biochemistry* 36(8), 729–741 (2001) [Cited on page 22.]

# Annexe A

## Matériel et méthode

### A.1 TBR

- La figure A.1 est une photo du réacteur dans son ensemble au laboratoire TIPs
- La figure A.2 montre une sortie à gauche destinée au gaz, à pression atmosphérique, ainsi qu'une entrée de liquide à droite provenant du réservoir, grâce à un mécanisme de recirculation assuré par la pompe.
- La figure A.3 montre l'alimentation de liquide dans la partie inférieure de la colonne et à droite la recirculation du liquide vers la pompe et donc le haut de la colonne.
- La figure A.4 est une photo du débitmètre de gaz.
- La figure A.5 est une photo du débitmètre liquide.
- La figure A.6 présente les deux types d'éléments de garnissage utilisés.
- La figure A.7 dévoile l'intérieur de la colonne.

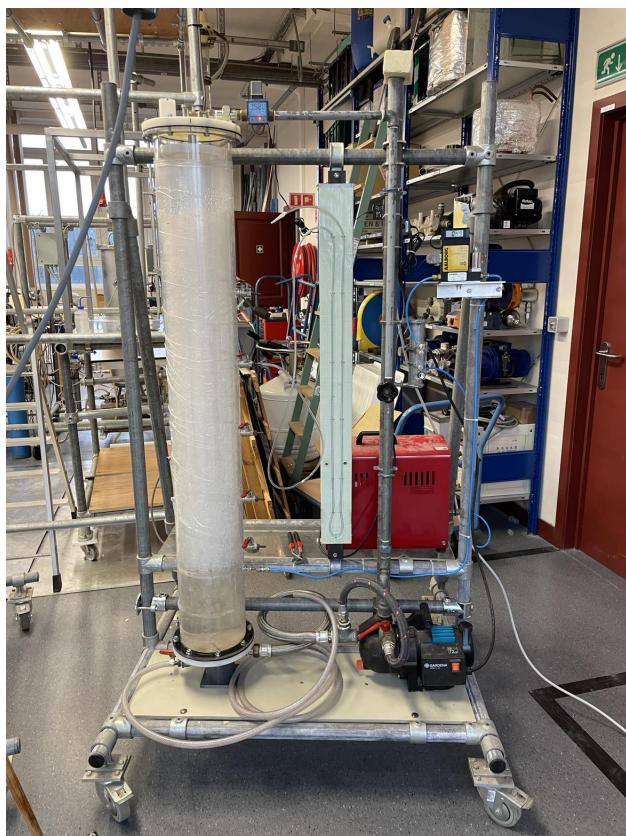
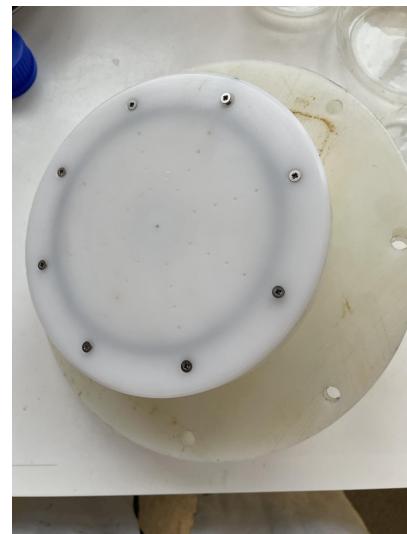


FIGURE A.1 – TBR de Bruxelles.



(a) partie supérieure



(b) Partie inférieure

FIGURE A.2 – Système d’écoulement du liquide sur les éléments de garnissage.



(a) Entrée liquide dans le bas de la colonne



(b) Sortie de liquide vers la pompe

FIGURE A.3 – Image du bas de la colonne.



FIGURE A.4 – Débitmètre de gaz.



FIGURE A.5 – Débitmètre liquide.



(a)



(b)

FIGURE A.6 – Éléments de garnissage Hill flow ring 25-7 et RFK 25L.



FIGURE A.7 – Image de l'intérieur de la colonne.

## A.2 Mesure Pression

```
sketch_feb13a.ino
1 #include <Wire.h>
2
3 #define SENSOR_ADDRESS 0x28 // Adresse I2C du capteur
4
5 void setup() {
6     Wire.begin(); // Initialisation de la communication I2C
7     Serial.begin(9600); // Initialisation de la communication série pour afficher les données lues
8 }
9
10 void loop() {
11     Wire.requestFrom(SENSOR_ADDRESS, 2); // Demande de lecture de 2 octets à l'adresse du capteur
12     if (Wire.available() >= 2) {
13         int msb = Wire.read();
14         int lsb = Wire.read();
15         int data = (msb << 8) | lsb; // Combinaison des octets lus en une valeur de 16 bits
16         float pressure1 = ((data * 250.0) / 8096.5) - 250.0; // Conversion de la valeur lue en pression réelle
17         Serial.print("Pression : ");
18         Serial.print(pressure1);
19         Serial.println(" Pa");
20     }
21     delay(500);
22 }
23
```

FIGURE A.8 – Code pour la mesure de pression.

# Annexe B

# Résultats de laboratoire

## B.1 Résultats proportion de phase

### B.1.1 Calcul du volume dans les tuyaux de recirculation du liquide

Le volume total dans les tuyaux est parfaitement connue étant donné que la dimension de l'ensemble des tuyaux utilisés est connue. Chaque tuyau est un cylindre et le Volume est calculé tel que :

$$V_{tuyau,i} = \pi \times \left(\frac{d_{tuyau,i}}{2}\right)^2 \times L_{tuyau,i} \quad (\text{B.1})$$

Les tuyaux sont divisés en 3 parties :

- 1, du bas du réacteur à la pompe
- 2, by-pass de la pompe
- 3, de la sortie de la pompe à l'entrée du liquide dans la colonne

TABLEAU B.1 – Tableau de résultats du volume de liquide dans les tuyaux

| i | $L_{tuyau,i}$ [cm] | $d_{tuyau,i}$ [cm] | $V_{tuyau,i}$ [L] |
|---|--------------------|--------------------|-------------------|
| 1 | 106                | 2                  | 0.33              |
| 2 | 71                 | 1.6                | 0.14              |
| 3 | 210                | 1.2                | 0.24              |

Le volume total dans les tuyaux est de :

$$V_{tuyau} = V_{tuyau,1} + V_{tuyau,2} + V_{tuyau,3} = 0.71L \quad (\text{B.2})$$

### B.1.2 Tableaux récapitulatifs des résultats expérimentaux

TABLEAU B.2 – Tableau des résultats de mesure de  $\epsilon_l$ ,  $\epsilon_g$  et  $\epsilon_s$  pour les éléments de garnissage Hill Flow rings 25-7

| $Q_G$ (mL min $^{-1}$ ) | $Q_L$ (L min $^{-1}$ ) | $\epsilon_l$ (/) | $\epsilon_g$ (/) | $\epsilon_s$ (/) |
|-------------------------|------------------------|------------------|------------------|------------------|
| 25                      | 2.33                   | 0.032            | 0.88             | 0.086            |
|                         | 3.49                   | 0.036            | 0.88             | 0.086            |
|                         | 4.33                   | 0.041            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 5.53                   | 0.045            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 6.75                   | 0.050            | 0.86             | 0.086            |
| 50                      | 2.63                   | 0.036            | 0.88             | 0.086            |
|                         | 3.36                   | 0.039            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 4.55                   | 0.043            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 5.65                   | 0.048            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 6.83                   | 0.052            | 0.86             | 0.086            |
| 100                     | 2.33                   | 0.036            | 0.88             | 0.086            |
|                         | 3.32                   | 0.040            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 4.69                   | 0.044            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 5.68                   | 0.047            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 6.98                   | 0.053            | 0.86             | 0.086            |
| 250                     | 2.61                   | 0.036            | 0.88             | 0.086            |
|                         | 3.48                   | 0.039            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 4.56                   | 0.044            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 5.56                   | 0.047            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 6.83                   | 0.053            | 0.86             | 0.086            |
| 500                     | 2.65                   | 0.036            | 0.88             | 0.086            |
|                         | 3.23                   | 0.039            | 0.88             | 0.086            |
|                         | 4.36                   | 0.043            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 5.42                   | 0.046            | 0.87             | 0.086            |
|                         | 6.87                   | 0.053            | 0.86             | 0.086            |

TABLEAU B.3 – Tableau des résultats de mesure de  $\epsilon_l$ ,  $\epsilon_g$  et  $\epsilon_s$  pour les éléments de garnissage RFK25L

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | $\epsilon_l$ (/) | $\epsilon_g$ (/) | $\epsilon_s$ (/) |
|-------------------------------|------------------------------|------------------|------------------|------------------|
| 25                            | 2.28                         | 0.041            | 0.92             | 0.044            |
|                               | 3.28                         | 0.048            | 0.91             | 0.044            |
|                               | 4.63                         | 0.053            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 5.77                         | 0.057            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 6.97                         | 0.061            | 0.90             | 0.044            |
| 50                            | 2.21                         | 0.044            | 0.91             | 0.044            |
|                               | 3.22                         | 0.050            | 0.91             | 0.044            |
|                               | 4.43                         | 0.054            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 5.63                         | 0.058            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 6.98                         | 0.062            | 0.89             | 0.044            |
| 100                           | 2.22                         | 0.044            | 0.91             | 0.044            |
|                               | 3.40                         | 0.048            | 0.91             | 0.044            |
|                               | 4.60                         | 0.054            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 5.72                         | 0.058            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 6.85                         | 0.062            | 0.89             | 0.044            |
| 250                           | 2.47                         | 0.045            | 0.91             | 0.044            |
|                               | 3.33                         | 0.049            | 0.91             | 0.044            |
|                               | 4.66                         | 0.054            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 5.93                         | 0.058            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 7.00                         | 0.062            | 0.89             | 0.044            |
| 500                           | 2.61                         | 0.046            | 0.91             | 0.044            |
|                               | 3.34                         | 0.050            | 0.91             | 0.044            |
|                               | 4.58                         | 0.053            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 6.02                         | 0.058            | 0.90             | 0.044            |
|                               | 6.98                         | 0.062            | 0.89             | 0.044            |

### B.1.3 Tableaux détaillés des mesures de proportion de phases

TABLEAU B.4 – Hill flow ring 25-7, test n°1

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | dh (m) | $\epsilon_l$ (/) | $\epsilon_g$ (/) | $\epsilon_s$ (/) |
|-------------------------------|------------------------------|--------|------------------|------------------|------------------|
| 50                            | 2.4                          | 0.071  | 0.04             | 22.08            | 0.88             |
|                               | 3.6                          | 0.075  | 0.04             | 22.00            | 0.87             |
|                               | 4.5                          | 0.077  | 0.04             | 21.95            | 0.87             |
|                               | 5.6                          | 0.083  | 0.05             | 21.82            | 0.87             |
|                               | 6.9                          | 0.089  | 0.05             | 21.69            | 0.86             |
| 25                            | 2.5                          | 0.068  | 0.04             | 22.15            | 0.88             |
|                               | 3.5                          | 0.071  | 0.04             | 22.08            | 0.88             |
|                               | 4.5                          | 0.076  | 0.04             | 21.97            | 0.87             |
|                               | 5.6                          | 0.082  | 0.05             | 21.84            | 0.87             |
|                               | 6.5                          | 0.088  | 0.05             | 21.71            | 0.86             |
| 100                           | 2.2                          | 0.070  | 0.04             | 22.11            | 0.88             |
|                               | 3.7                          | 0.074  | 0.04             | 22.01            | 0.87             |
|                               | 4.4                          | 0.078  | 0.04             | 21.93            | 0.87             |
|                               | 5.5                          | 0.081  | 0.05             | 21.86            | 0.87             |
|                               | 6.9                          | 0.090  | 0.05             | 21.66            | 0.86             |
| 250                           | 2.55                         | 0.072  | 0.04             | 22.07            | 0.88             |
|                               | 3.4                          | 0.076  | 0.04             | 21.96            | 0.87             |
|                               | 4.8                          | 0.078  | 0.04             | 21.93            | 0.87             |
|                               | 5.3                          | 0.084  | 0.05             | 21.80            | 0.87             |
|                               | 6.7                          | 0.091  | 0.05             | 21.64            | 0.86             |
| 500                           | 2.8                          | 0.070  | 0.04             | 22.10            | 0.88             |
|                               | 3.3                          | 0.075  | 0.04             | 21.99            | 0.87             |
|                               | 4.3                          | 0.078  | 0.04             | 21.92            | 0.87             |
|                               | 5.6                          | 0.083  | 0.05             | 21.82            | 0.87             |
|                               | 6.8                          | 0.091  | 0.05             | 21.64            | 0.86             |

TABLEAU B.5 – Hill flow ring 25-7, test n°2

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | dh (m) | $\epsilon_l$ (/) | $\epsilon_g$ (/) | $\epsilon_s$ (/) |
|-------------------------------|------------------------------|--------|------------------|------------------|------------------|
| 50                            | 2.4                          | 0.068  | 0.037            | 22.08            | 0.88             |
|                               | 3.6                          | 0.071  | 0.041            | 22.00            | 0.87             |
|                               | 4.5                          | 0.078  | 0.043            | 21.95            | 0.87             |
|                               | 5.6                          | 0.081  | 0.048            | 21.82            | 0.87             |
|                               | 6.9                          | 0.086  | 0.054            | 21.69            | 0.86             |
| 25                            | 2.5                          | 0.061  | 0.035            | 22.15            | 0.88             |
|                               | 3.5                          | 0.066  | 0.038            | 22.08            | 0.88             |
|                               | 4.5                          | 0.072  | 0.042            | 21.97            | 0.87             |
|                               | 5.6                          | 0.076  | 0.047            | 21.84            | 0.87             |
|                               | 6.5                          | 0.083  | 0.052            | 21.71            | 0.86             |
| 100                           | 2.2                          | 0.070  | 0.036            | 22.11            | 0.88             |
|                               | 3.7                          | 0.074  | 0.041            | 22.01            | 0.87             |
|                               | 4.4                          | 0.077  | 0.044            | 21.93            | 0.87             |
|                               | 5.5                          | 0.081  | 0.046            | 21.86            | 0.87             |
|                               | 6.9                          | 0.088  | 0.054            | 21.66            | 0.86             |
| 250                           | 2.55                         | 0.068  | 0.038            | 22.07            | 0.88             |
|                               | 3.4                          | 0.073  | 0.042            | 21.96            | 0.87             |
|                               | 4.8                          | 0.077  | 0.044            | 21.93            | 0.87             |
|                               | 5.3                          | 0.081  | 0.049            | 21.80            | 0.87             |
|                               | 6.7                          | 0.087  | 0.055            | 21.64            | 0.86             |
| 500                           | 2.8                          | 0.068  | 0.037            | 22.10            | 0.88             |
|                               | 3.3                          | 0.071  | 0.041            | 21.99            | 0.87             |
|                               | 4.3                          | 0.075  | 0.044            | 21.92            | 0.87             |
|                               | 5.6                          | 0.079  | 0.048            | 21.82            | 0.87             |
|                               | 6.8                          | 0.088  | 0.055            | 21.64            | 0.86             |

TABLEAU B.6 – Hill flow ring 25-7, test n°3

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | dh (m) | $\epsilon_l$ (/) | $\epsilon_g$ (/) | $\epsilon_s$ (/) |
|-------------------------------|------------------------------|--------|------------------|------------------|------------------|
| 50                            | 2.8                          | 0.070  | 0.037            | 22.10            | 0.88             |
|                               | 3.5                          | 0.073  | 0.039            | 22.04            | 0.87             |
|                               | 4.5                          | 0.077  | 0.043            | 21.95            | 0.87             |
|                               | 5.85                         | 0.084  | 0.049            | 21.80            | 0.87             |
|                               | 7.0                          | 0.089  | 0.053            | 21.69            | 0.86             |
| 25                            | 2.1                          | 0.066  | 0.033            | 22.19            | 0.88             |
|                               | 3.2                          | 0.071  | 0.037            | 22.08            | 0.88             |
|                               | 4.5                          | 0.077  | 0.043            | 21.95            | 0.87             |
|                               | 5.6                          | 0.081  | 0.046            | 21.86            | 0.87             |
|                               | 7.1                          | 0.086  | 0.051            | 21.75            | 0.86             |
| 100                           | 2.6                          | 0.069  | 0.036            | 22.13            | 0.88             |
|                               | 3.0                          | 0.072  | 0.038            | 22.06            | 0.88             |
|                               | 4.8                          | 0.079  | 0.044            | 21.91            | 0.87             |
|                               | 6.05                         | 0.083  | 0.048            | 21.82            | 0.87             |
|                               | 7.15                         | 0.090  | 0.054            | 21.66            | 0.86             |
| 250                           | 2.4                          | 0.067  | 0.034            | 22.17            | 0.88             |
|                               | 3.65                         | 0.070  | 0.037            | 22.10            | 0.88             |
|                               | 4.4                          | 0.079  | 0.044            | 21.91            | 0.87             |
|                               | 5.8                          | 0.082  | 0.047            | 21.84            | 0.87             |
|                               | 7.1                          | 0.090  | 0.054            | 21.66            | 0.86             |
| 500                           | 2.55                         | 0.070  | 0.037            | 22.10            | 0.88             |
|                               | 3.4                          | 0.072  | 0.038            | 22.06            | 0.88             |
|                               | 4.7                          | 0.077  | 0.043            | 21.95            | 0.87             |
|                               | 5.7                          | 0.082  | 0.047            | 21.84            | 0.87             |
|                               | 7.0                          | 0.087  | 0.051            | 21.73            | 0.86             |

TABLEAU B.7 – RFK 25L, test n°1

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | dh (m) | $\epsilon_l$ (/) | $\epsilon_g$ (/) | $\epsilon_s$ (/) |
|-------------------------------|------------------------------|--------|------------------|------------------|------------------|
| 50                            | 2.3                          | 0.078  | 0.04             | 23.00            | 0.91             |
|                               | 3.6                          | 0.087  | 0.05             | 22.79            | 0.90             |
|                               | 4.6                          | 0.091  | 0.05             | 22.70            | 0.90             |
|                               | 5.7                          | 0.095  | 0.06             | 22.62            | 0.90             |
|                               | 7.05                         | 0.098  | 0.06             | 22.55            | 0.90             |
| 25                            | 2.2                          | 0.072  | 0.04             | 23.12            | 0.92             |
|                               | 4.2                          | 0.084  | 0.05             | 22.85            | 0.91             |
|                               | 5.0                          | 0.090  | 0.05             | 22.72            | 0.90             |
|                               | 6.2                          | 0.094  | 0.06             | 22.63            | 0.90             |
|                               | 7.0                          | 0.099  | 0.06             | 22.53            | 0.89             |
| 100                           | 2.3                          | 0.079  | 0.04             | 22.96            | 0.91             |
|                               | 3.5                          | 0.085  | 0.05             | 22.83            | 0.91             |
|                               | 4.6                          | 0.090  | 0.05             | 22.72            | 0.90             |
|                               | 5.65                         | 0.094  | 0.06             | 22.65            | 0.90             |
|                               | 6.7                          | 0.099  | 0.06             | 22.54            | 0.89             |
| 250                           | 2.4                          | 0.078  | 0.04             | 23.00            | 0.91             |
|                               | 3.3                          | 0.084  | 0.05             | 22.85            | 0.91             |
|                               | 5.1                          | 0.091  | 0.05             | 22.71            | 0.90             |
|                               | 6.2                          | 0.096  | 0.06             | 22.59            | 0.90             |
|                               | 6.9                          | 0.100  | 0.06             | 22.51            | 0.89             |
| 500                           | 2.4                          | 0.077  | 0.04             | 23.01            | 0.91             |
|                               | 3.1                          | 0.0845 | 0.05             | 22.84            | 0.91             |
|                               | 5.0                          | 0.0915 | 0.06             | 22.69            | 0.90             |
|                               | 6.6                          | 0.0955 | 0.06             | 22.60            | 0.90             |
|                               | 7.0                          | 0.098  | 0.06             | 22.55            | 0.90             |

TABLEAU B.8 – RFK 25L, test n°2

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | dh (m) | $\epsilon_l$ (/) | $\epsilon_g$ (/) | $\epsilon_s$ (/) |
|-------------------------------|------------------------------|--------|------------------|------------------|------------------|
| 50                            | 2.4                          | 0.043  | 0.01             | 23.77            | 0.94             |
|                               | 3.8                          | 0.049  | 0.02             | 23.63            | 0.94             |
|                               | 4.4                          | 0.052  | 0.02             | 23.57            | 0.94             |
|                               | 5.4                          | 0.056  | 0.02             | 23.48            | 0.93             |
|                               | 6.6                          | 0.061  | 0.03             | 23.37            | 0.93             |
| 25                            | 2.5                          | 0.032  | 0.00             | 24.01            | 0.95             |
|                               | 3.5                          | 0.036  | 0.01             | 23.91            | 0.95             |
|                               | 4.5                          | 0.044  | 0.01             | 23.73            | 0.94             |
|                               | 5.5                          | 0.048  | 0.02             | 23.64            | 0.94             |
|                               | 6.5                          | 0.052  | 0.02             | 23.56            | 0.94             |
| 100                           | 2.5                          | 0.038  | 0.01             | 23.86            | 0.95             |
|                               | 3.5                          | 0.040  | 0.01             | 23.82            | 0.95             |
|                               | 4.5                          | 0.046  | 0.02             | 23.69            | 0.94             |
|                               | 5.5                          | 0.051  | 0.02             | 23.58            | 0.94             |
|                               | 6.5                          | 0.055  | 0.02             | 23.49            | 0.93             |
| 250                           | 2.5                          | 0.037  | 0.01             | 23.89            | 0.95             |
|                               | 3.5                          | 0.042  | 0.01             | 23.79            | 0.94             |
|                               | 4.5                          | 0.044  | 0.01             | 23.73            | 0.94             |
|                               | 5.5                          | 0.048  | 0.02             | 23.64            | 0.94             |
|                               | 6.5                          | 0.055  | 0.02             | 23.49            | 0.93             |
| 500                           | 2.5                          | 0.042  | 0.01             | 23.79            | 0.94             |
|                               | 3.5                          | 0.050  | 0.02             | 23.60            | 0.94             |
|                               | 4.5                          | 0.055  | 0.02             | 23.49            | 0.93             |
|                               | 5.5                          | 0.059  | 0.03             | 23.40            | 0.93             |
|                               | 6.5                          | 0.063  | 0.03             | 23.32            | 0.93             |

TABLEAU B.9 – RFK 25L, test n°3

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | dh (m) | $\epsilon_l$ (/) | $\epsilon_g$ (/) | $\epsilon_s$ (/) |
|-------------------------------|------------------------------|--------|------------------|------------------|------------------|
| 50                            | 2.3                          | 0.080  | 0.05             | 22.94            | 0.91             |
|                               | 2.9                          | 0.084  | 0.05             | 22.85            | 0.91             |
|                               | 4.4                          | 0.089  | 0.05             | 22.74            | 0.90             |
|                               | 5.7                          | 0.095  | 0.06             | 22.61            | 0.90             |
|                               | 6.9                          | 0.101  | 0.06             | 22.48            | 0.89             |
| 25                            | 2.5                          | 0.074  | 0.04             | 23.07            | 0.92             |
|                               | 2.8                          | 0.082  | 0.05             | 22.90            | 0.91             |
|                               | 4.5                          | 0.088  | 0.05             | 22.77            | 0.90             |
|                               | 5.9                          | 0.092  | 0.06             | 22.68            | 0.90             |
|                               | 6.8                          | 0.096  | 0.06             | 22.59            | 0.90             |
| 100                           | 2.15                         | 0.080  | 0.05             | 22.94            | 0.91             |
|                               | 3.3                          | 0.084  | 0.05             | 22.85            | 0.91             |
|                               | 4.4                          | 0.090  | 0.05             | 22.72            | 0.90             |
|                               | 5.7                          | 0.095  | 0.06             | 22.61            | 0.90             |
|                               | 7.0                          | 0.099  | 0.06             | 22.53            | 0.89             |
| 250                           | 2.5                          | 0.083  | 0.05             | 22.88            | 0.91             |
|                               | 3.4                          | 0.086  | 0.05             | 22.81            | 0.91             |
|                               | 4.3                          | 0.090  | 0.05             | 22.72            | 0.90             |
|                               | 5.9                          | 0.095  | 0.06             | 22.61            | 0.90             |
|                               | 7.0                          | 0.100  | 0.06             | 22.50            | 0.89             |
| 500                           | 2.95                         | 0.083  | 0.05             | 22.88            | 0.91             |
|                               | 3.65                         | 0.086  | 0.05             | 22.81            | 0.91             |
|                               | 4.8                          | 0.090  | 0.05             | 22.72            | 0.90             |
|                               | 5.9                          | 0.095  | 0.06             | 22.61            | 0.90             |
|                               | 7.15                         | 0.100  | 0.06             | 22.50            | 0.89             |

TABLEAU B.10 – RFK 25L, test n°4

| $Q_G$ (mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$ (L min <sup>-1</sup> ) | dh (m) | $\epsilon_l$ (/) | $\epsilon_g$ (/) | $\epsilon_s$ (/) |
|-------------------------------|------------------------------|--------|------------------|------------------|------------------|
| 50                            | 2.05                         | 0.079  | 0.04             | 22.96            | 0.91             |
|                               | 3.2                          | 0.084  | 0.05             | 22.85            | 0.91             |
|                               | 4.3                          | 0.089  | 0.05             | 22.74            | 0.90             |
|                               | 5.5                          | 0.095  | 0.06             | 22.61            | 0.90             |
|                               | 7.0                          | 0.099  | 0.06             | 22.53            | 0.89             |
| 25                            | 2.15                         | 0.079  | 0.04             | 22.96            | 0.91             |
|                               | 3.0                          | 0.084  | 0.05             | 22.85            | 0.91             |
|                               | 4.4                          | 0.088  | 0.05             | 22.77            | 0.90             |
|                               | 5.25                         | 0.094  | 0.06             | 22.63            | 0.90             |
|                               | 7.1                          | 0.098  | 0.06             | 22.55            | 0.90             |
| 100                           | 2.2                          | 0.077  | 0.04             | 23.01            | 0.91             |
|                               | 3.4                          | 0.080  | 0.05             | 22.94            | 0.91             |
|                               | 4.8                          | 0.089  | 0.05             | 22.74            | 0.90             |
|                               | 5.8                          | 0.095  | 0.06             | 22.61            | 0.90             |
|                               | 6.85                         | 0.099  | 0.06             | 22.53            | 0.89             |
| 250                           | 2.5                          | 0.080  | 0.05             | 22.94            | 0.91             |
|                               | 3.3                          | 0.083  | 0.05             | 22.88            | 0.91             |
|                               | 4.6                          | 0.088  | 0.05             | 22.77            | 0.90             |
|                               | 5.7                          | 0.093  | 0.06             | 22.66            | 0.90             |
|                               | 7.1                          | 0.097  | 0.06             | 22.57            | 0.90             |
| 500                           | 2.5                          | 0.081  | 0.05             | 22.92            | 0.91             |
|                               | 3.3                          | 0.084  | 0.05             | 22.85            | 0.91             |
|                               | 4.0                          | 0.086  | 0.05             | 22.81            | 0.91             |
|                               | 5.6                          | 0.094  | 0.06             | 22.63            | 0.90             |
|                               | 6.8                          | 0.100  | 0.06             | 22.50            | 0.89             |

### B.1.4 Tableau détaillé des résultats de calcul de $k_L A_p$ sur base des mesures de proportion de phase

TABLEAU B.11 – Tableau des calculs de  $k_L A_p$  pour différentes combinaisons de débits

| $Q_G(\text{mL min}^{-1})$ | Hill flow rings 25-7      |                             | RFK 25L                   |                             |
|---------------------------|---------------------------|-----------------------------|---------------------------|-----------------------------|
|                           | $Q_L (\text{L min}^{-1})$ | $k_L A_p (\text{min}^{-1})$ | $Q_L (\text{L min}^{-1})$ | $k_L A_p (\text{min}^{-1})$ |
| 25                        | 2.2                       | 0.049                       | 2.3                       | 0.030                       |
|                           | 3.5                       | 0.039                       | 3.3                       | 0.022                       |
|                           | 4.3                       | 0.030                       | 4.6                       | 0.018                       |
|                           | 5.5                       | 0.025                       | 5.8                       | 0.016                       |
|                           | 6.8                       | 0.020                       | 7.0                       | 0.014                       |
| 50                        | 2.6                       | 0.038                       | 2.2                       | 0.026                       |
|                           | 3.4                       | 0.033                       | 3.2                       | 0.021                       |
|                           | 4.6                       | 0.027                       | 4.4                       | 0.018                       |
|                           | 5.7                       | 0.022                       | 5.6                       | 0.015                       |
|                           | 6.8                       | 0.019                       | 7.0                       | 0.013                       |
| 100                       | 2.2                       | 0.039                       | 2.2                       | 0.026                       |
|                           | 3.4                       | 0.032                       | 3.4                       | 0.022                       |
|                           | 4.6                       | 0.027                       | 4.6                       | 0.018                       |
|                           | 5.7                       | 0.023                       | 5.7                       | 0.015                       |
|                           | 6.9                       | 0.018                       | 6.9                       | 0.013                       |
| 250                       | 2.5                       | 0.040                       | 2.5                       | 0.025                       |
|                           | 3.3                       | 0.033                       | 3.3                       | 0.021                       |
|                           | 4.7                       | 0.027                       | 4.7                       | 0.018                       |
|                           | 5.9                       | 0.023                       | 5.9                       | 0.015                       |
|                           | 7.0                       | 0.018                       | 7.0                       | 0.013                       |
| 500                       | 2.6                       | 0.039                       | 2.6                       | 0.024                       |
|                           | 3.4                       | 0.033                       | 3.4                       | 0.021                       |
|                           | 4.6                       | 0.028                       | 4.6                       | 0.018                       |
|                           | 6.0                       | 0.023                       | 6.0                       | 0.015                       |
|                           | 7.0                       | 0.018                       | 7.0                       | 0.013                       |

### B.1.5 ANOVA

```
#ANOVA pour la proportion de phase liquide et gazeuse avec les éléments de garnissage Hill
import pandas as pd
import statsmodels.api as sm
from statsmodels.formula.api import ols

# Charger les données
data = pd.read_csv('ANOVA.csv')

# Formule pour ANOVA sur la proportion de phase gazeuse (\epsilon_g)
model_g = ols('epsilon_g ~ Q_G * Q_L', data=data).fit()
anova_table_g = sm.stats.anova_lm(model_g, typ=2)
print("ANOVA for epsilon_g:")
print(anova_table_g)

# Formule pour ANOVA sur la proportion de phase liquide (\epsilon_l)
model_l = ols('epsilon_l ~ Q_G * Q_L', data=data).fit()
anova_table_l = sm.stats.anova_lm(model_l, typ=2)
print("ANOVA for epsilon_l:")
print(anova_table_l)

ANOVA for epsilon_g:
      sum_sq    df          F         PR(>F)
Q_G        0.000002  1.0    0.232504  6.346606e-01
Q_L        0.000973  1.0   100.274691  1.891435e-09
Q_G:Q_L    0.000004  1.0    0.442149  5.133238e-01
Residual   0.000204  21.0        NaN         NaN
ANOVA for epsilon_l:
      sum_sq    df          F         PR(>F)
Q_G        5.389929e-06  1.0    3.955485  5.990548e-02
Q_L        8.957358e-04  1.0   657.349943  2.482717e-17
Q_G:Q_L    7.587551e-10  1.0    0.000557  9.813968e-01
Residual   2.861558e-05  21.0        NaN         NaN
```

FIGURE B.1 – Résultats de l'ANOVA réalisé avec la librairie statsmodels sur python pour les éléments de garnissage Hill flow ring 25-7.

```
#ANOVA pour la proportion de phase Liquide et gazeuse avec les éléments de garnissage RFK
import pandas as pd
import statsmodels.api as sm
from statsmodels.formula.api import ols

# Charger les nouvelles données
data = pd.read_csv('ANOVARfk.csv')

# Formule pour ANOVA sur la proportion de phase gazeuse (\epsilon_g)
model_g = ols('epsilon_g ~ Q_G * Q_L', data=data).fit()
anova_table_g = sm.stats.anova_lm(model_g, typ=2)
print("ANOVA for epsilon_g:")
print(anova_table_g)

# Formule pour ANOVA sur la proportion de phase Liquide (\epsilon_l)
model_l = ols('epsilon_l ~ Q_G * Q_L', data=data).fit()
anova_table_l = sm.stats.anova_lm(model_l, typ=2)
print("ANOVA for epsilon_l:")
print(anova_table_l)
```

|          | sum_sq       | df   | F          | PR(>F)       |
|----------|--------------|------|------------|--------------|
| Q_G      | 4.923149e-06 | 1.0  | 0.425917   | 5.210799e-01 |
| Q_L      | 1.247814e-03 | 1.0  | 107.952353 | 9.873035e-10 |
| Q_G:Q_L  | 1.933294e-07 | 1.0  | 0.016726   | 8.983294e-01 |
| Residual | 2.427375e-04 | 21.0 | NaN        | NaN          |

|          | sum_sq       | df   | F          | PR(>F)       |
|----------|--------------|------|------------|--------------|
| Q_G      | 5.617119e-07 | 1.0  | 0.504369   | 4.853992e-01 |
| Q_L      | 9.791381e-04 | 1.0  | 879.182008 | 1.268154e-18 |
| Q_G:Q_L  | 2.001677e-06 | 1.0  | 1.797334   | 1.943587e-01 |
| Residual | 2.338754e-05 | 21.0 | NaN        | NaN          |

FIGURE B.2 – Résultats de l'ANOVA réalisé avec la librairie statsmodels sur python pour les éléments de garnissage RFK 25L.

```

# Combinaison des deux ensembles de données
combined_data = pd.concat([data_hill, data_rfk])

# Formule pour ANOVA sur la proportion de phase gazeuse
model_g = ols('epsilon_g ~ Q_G * Q_L * Type', data=combined_data).fit()
anova_table_g = sm.stats.anova_lm(model_g, typ=2)
print("ANOVA for epsilon_g:")
print(anova_table_g)

# Formule pour ANOVA sur la proportion de phase liquide
model_l = ols('epsilon_l ~ Q_G * Q_L * Type', data=combined_data).fit()
anova_table_l = sm.stats.anova_lm(model_l, typ=2)
print("ANOVA for epsilon_l:")
print(anova_table_l)

```

ANOVA for epsilon\_g:

|              | sum_sq       | df   | F           | PR(>F)       |
|--------------|--------------|------|-------------|--------------|
| Type         | 1.294552e-02 | 1.0  | 1217.778984 | 1.193458e-32 |
| Q_G          | 2.559460e-07 | 1.0  | 0.024077    | 8.774332e-01 |
| Q_G:Type     | 6.531748e-06 | 1.0  | 0.614438    | 4.375200e-01 |
| Q_L          | 2.219056e-03 | 1.0  | 208.745504  | 6.759469e-18 |
| Q_L:Type     | 1.616295e-06 | 1.0  | 0.152044    | 6.985601e-01 |
| Q_G:Q_L      | 3.001309e-06 | 1.0  | 0.282332    | 5.979761e-01 |
| Q_G:Q_L:Type | 1.481728e-06 | 1.0  | 0.139385    | 7.107706e-01 |
| Residual     | 4.464783e-04 | 42.0 | NaN         | NaN          |

ANOVA for epsilon\_l:

|              | sum_sq       | df   | F           | PR(>F)       |
|--------------|--------------|------|-------------|--------------|
| Type         | 1.239347e-03 | 1.0  | 1000.951277 | 6.323151e-31 |
| Q_G          | 4.717681e-06 | 1.0  | 3.810206    | 5.762952e-02 |
| Q_G:Type     | 1.134979e-06 | 1.0  | 0.916659    | 3.438328e-01 |
| Q_L          | 1.874565e-03 | 1.0  | 1513.981259 | 1.411051e-34 |
| Q_L:Type     | 3.082867e-07 | 1.0  | 0.248986    | 6.203937e-01 |
| Q_G:Q_L      | 1.112617e-06 | 1.0  | 0.898598    | 3.485804e-01 |
| Q_G:Q_L:Type | 8.898189e-07 | 1.0  | 0.718657    | 4.013902e-01 |
| Residual     | 5.200312e-05 | 42.0 | NaN         | NaN          |

FIGURE B.3 – Résultats de l'ANOVA réalisé avec la librairie statsmodels sur python pour la combinaison des deux types d'éléments de garnissage.

```

import pandas as pd
import statsmodels.api as sm
from statsmodels.formula.api import ols

# Créer un DataFrame
df = pd.DataFrame(data)

# Effectuer l'ANOVA
model = ols('k_LA_p ~ C(Type) + Q_G + Q_L + Q_G:Q_L + Q_G:C(Type) + Q_L:C(Type) + Q_G:Q_L:C(Type)', data=df).fit()
anova_table = sm.stats.anova_lm(model, typ=2)

anova_table

```

|                 | sum_sq       | df   | F          | PR(>F)       |
|-----------------|--------------|------|------------|--------------|
| C(Type)         | 1.279939e-03 | 1.0  | 330.739485 | 1.589158e-21 |
| Q_G             | 4.070687e-06 | 1.0  | 1.051876   | 3.109465e-01 |
| Q_G:C(Type)     | 1.038295e-07 | 1.0  | 0.026830   | 8.706759e-01 |
| Q_L             | 1.898332e-03 | 1.0  | 490.533746 | 8.703095e-25 |
| Q_L:C(Type)     | 1.597172e-04 | 1.0  | 41.271329  | 9.737325e-08 |
| Q_G:Q_L         | 9.398618e-06 | 1.0  | 2.428626   | 1.266415e-01 |
| Q_G:Q_L:C(Type) | 9.059189e-07 | 1.0  | 0.234092   | 6.310196e-01 |
| Residual        | 1.625371e-04 | 42.0 | Nan        | Nan          |

FIGURE B.4 – Résultats de l’ANOVA réalisé avec la librairie statsmodels sur python pour les  $k_L A_p$  calculés à partir des mesures de volumes de liquides mesurés.

## B.2 Mesure de la concentration en O<sub>2</sub> et calcul de $k_{La}$

### B.2.1 Figures de la concentration en oxygène O<sub>2</sub> en fonction du temps

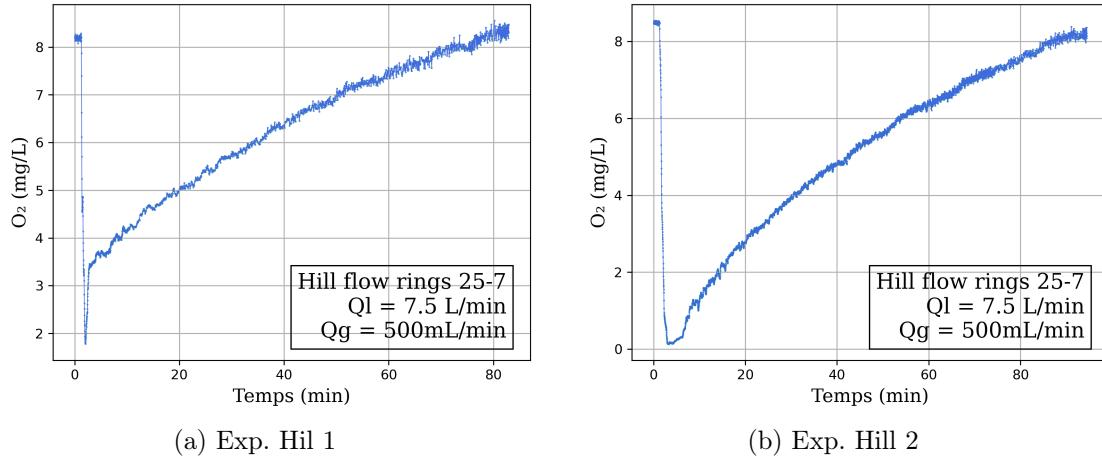


FIGURE B.5 – Expériences Hill 1 et 2 de la mesure de la concentration en O<sub>2</sub> en fonction du temps.

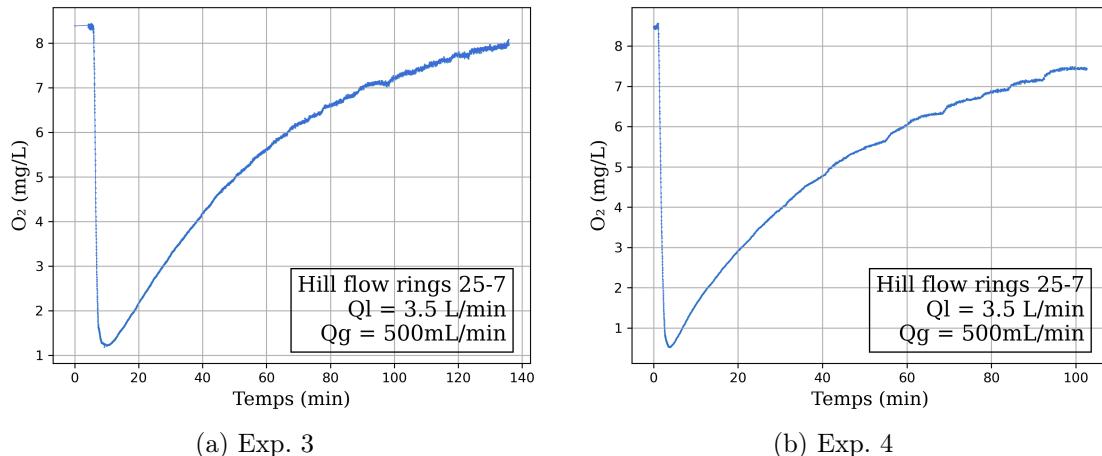


FIGURE B.6 – Expériences Hill 3 et 4 de la mesure de la concentration en O<sub>2</sub> en fonction du temps.

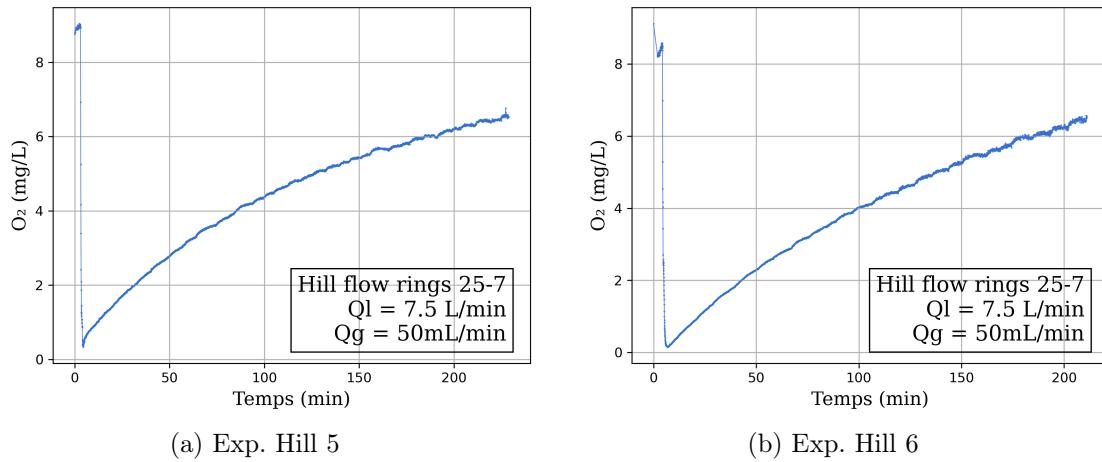


FIGURE B.7 – Expériences Hill 5 et 6 de la mesure de la concentration en O<sub>2</sub> en fonction du temps.

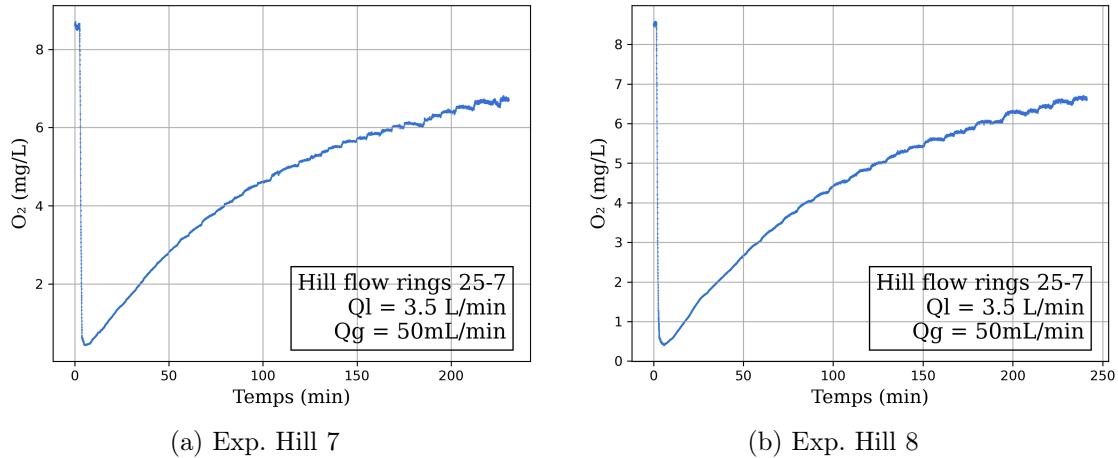


FIGURE B.8 – Expériences Hill 7 et 8 de la mesure de la concentration en O<sub>2</sub> en fonction du temps.

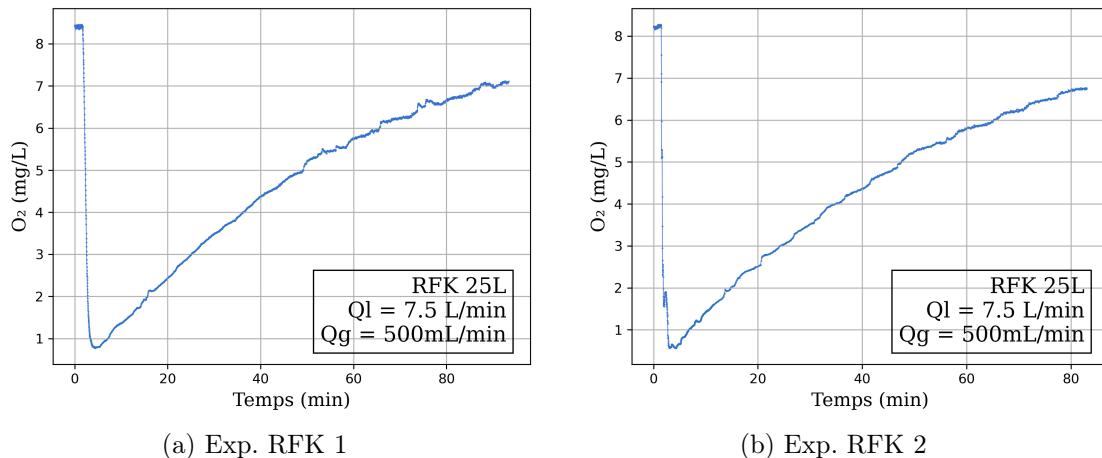


FIGURE B.9 – Expériences RFK 1 et 2 de la mesure de la concentration en O<sub>2</sub> en fonction du temps.

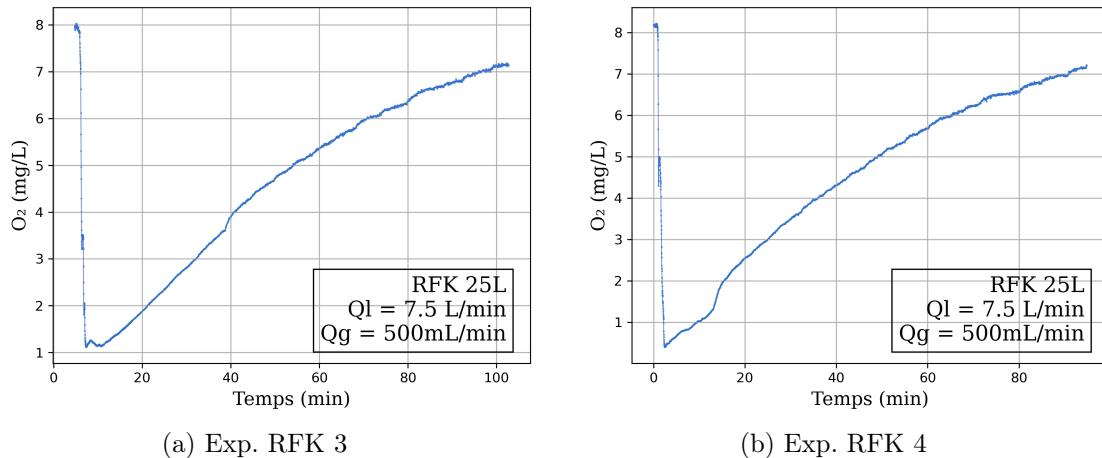


FIGURE B.10 – Expériences RFK 3 et 4 de la mesure de la concentration en  $O_2$  en fonction du temps.

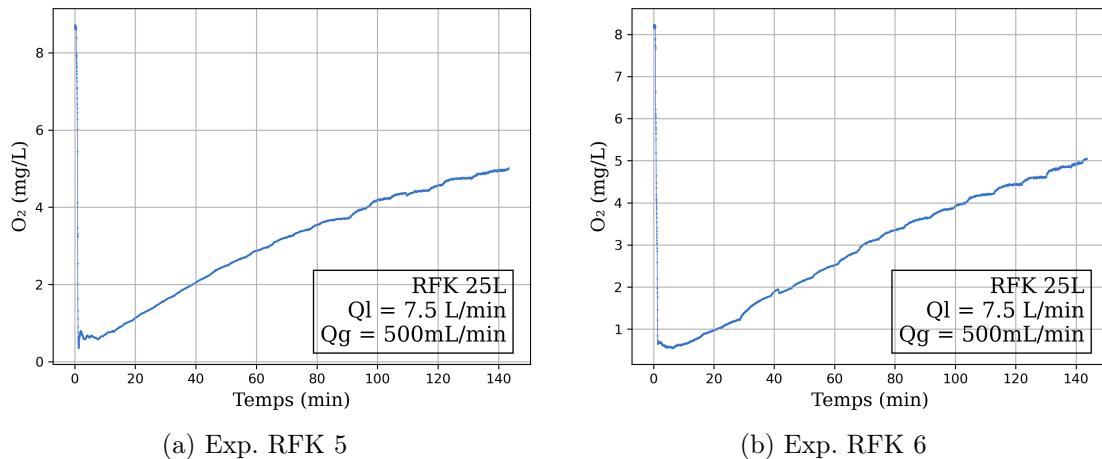


FIGURE B.11 – Expériences RFK 5 et 6 de la mesure de la concentration en  $O_2$  en fonction du temps.

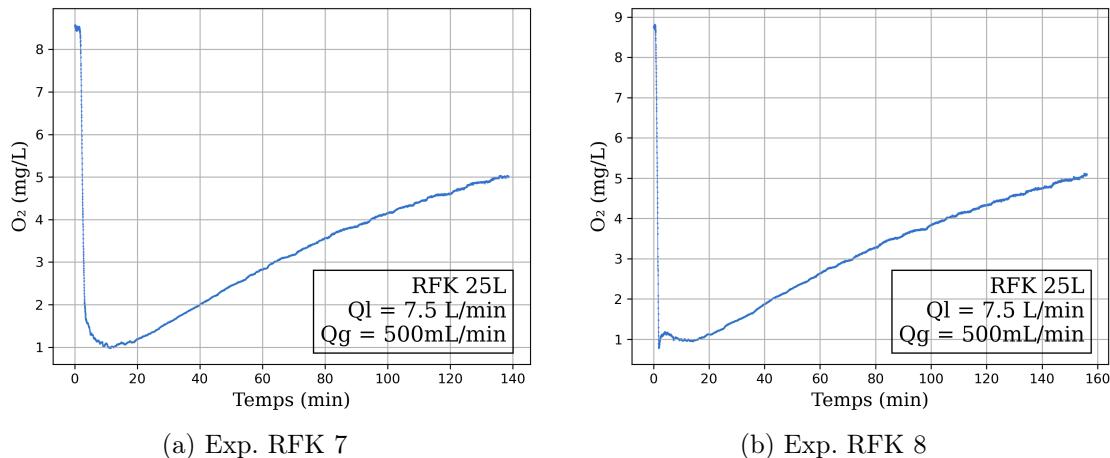


FIGURE B.12 – Expériences RFK 7 et 8 de la mesure de la concentration en  $O_2$  en fonction du temps.

### Graphiques de calcul du

#### B.2.2 Hill Flow rings 25-7

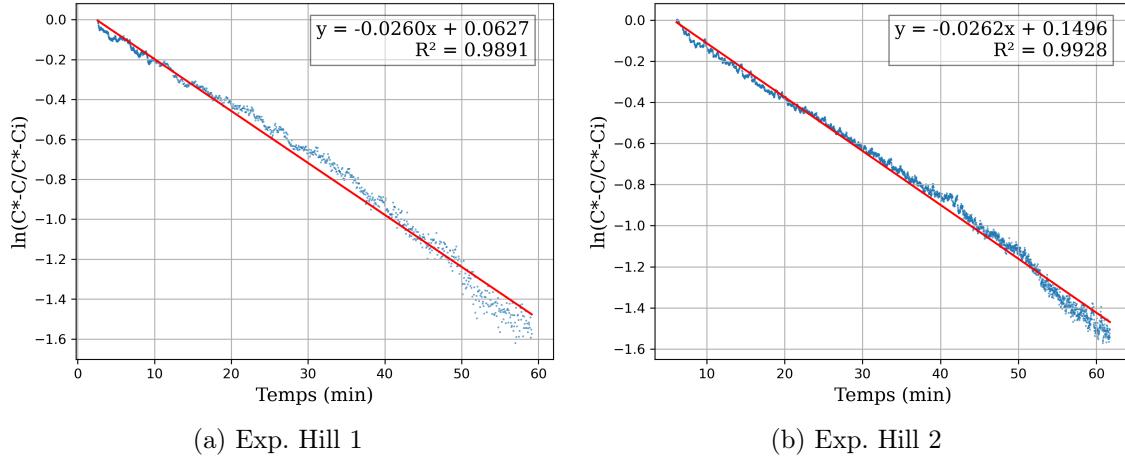


FIGURE B.13 – Calcul de *k<sub>La</sub>* pour les expériences Hill 1 et 2 avec  $Q_L=7.0\text{L min}^{-1}$  et  $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$ .

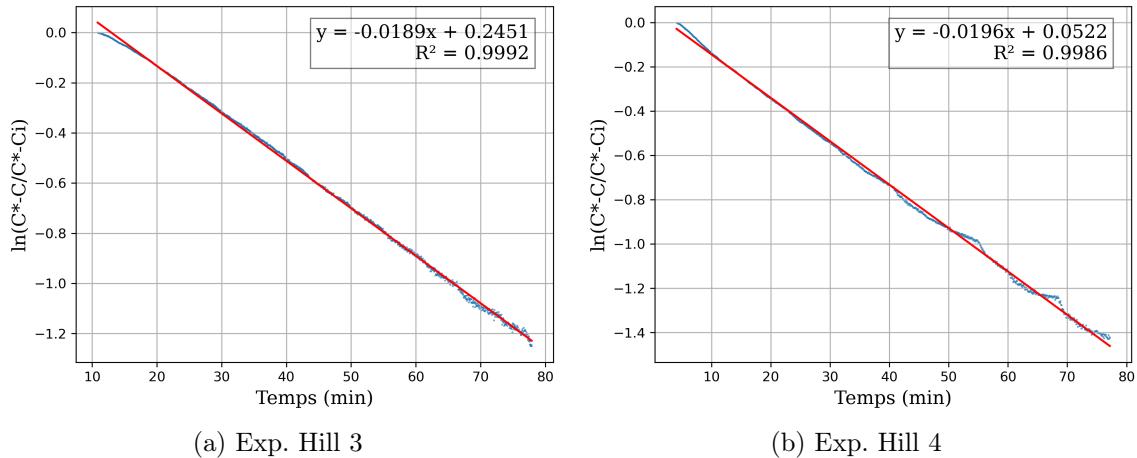


FIGURE B.14 – Calcul de *k<sub>La</sub>* pour les expériences Hill 3 et 4 avec  $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$  et  $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$ .

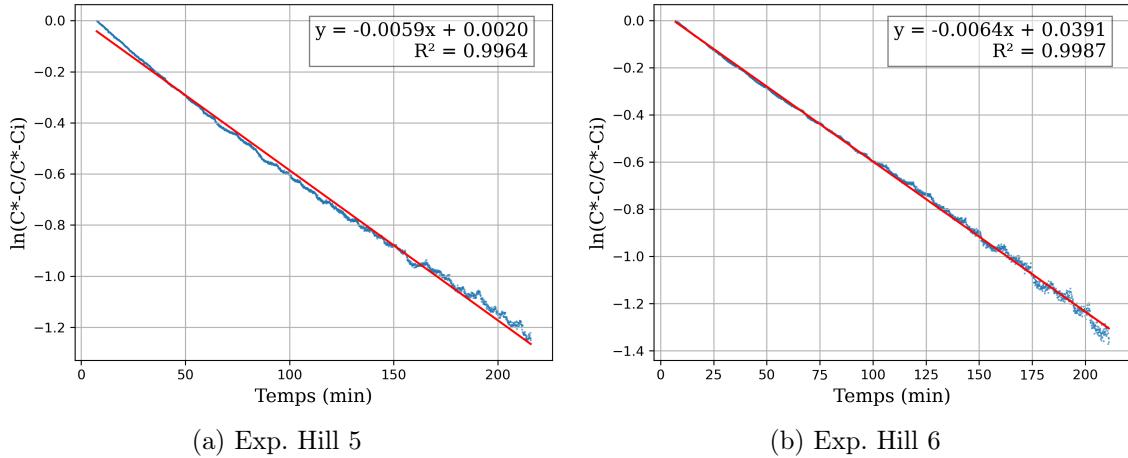


FIGURE B.15 – Calcul de  $k_L a$  pour les expériences Hill 5 et 6 avec  $Q_L=7.0 \text{L min}^{-1}$  et  $Q_G=50 \text{mL min}^{-1}$ .

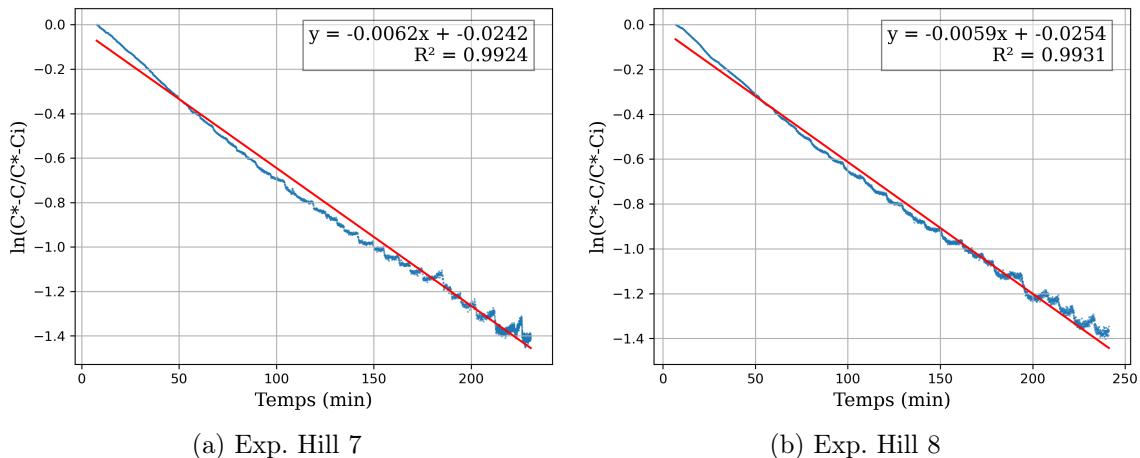


FIGURE B.16 – Calcul de  $k_L a$  pour les expériences Hill 7 et 8 avec  $Q_L=3.5 \text{L min}^{-1}$  et  $Q_G=50 \text{mL min}^{-1}$ .

### B.2.3 RFK 25L

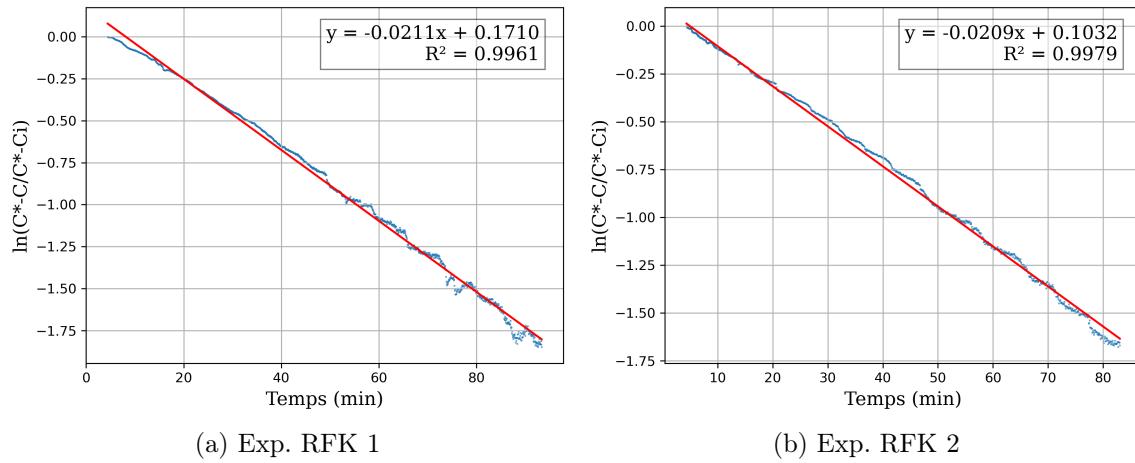


FIGURE B.17 – Calcul de *k<sub>La</sub>* pour les expériences RFK 1 et 2 avec  $Q_L=7.0\text{L min}^{-1}$  et  $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$ .

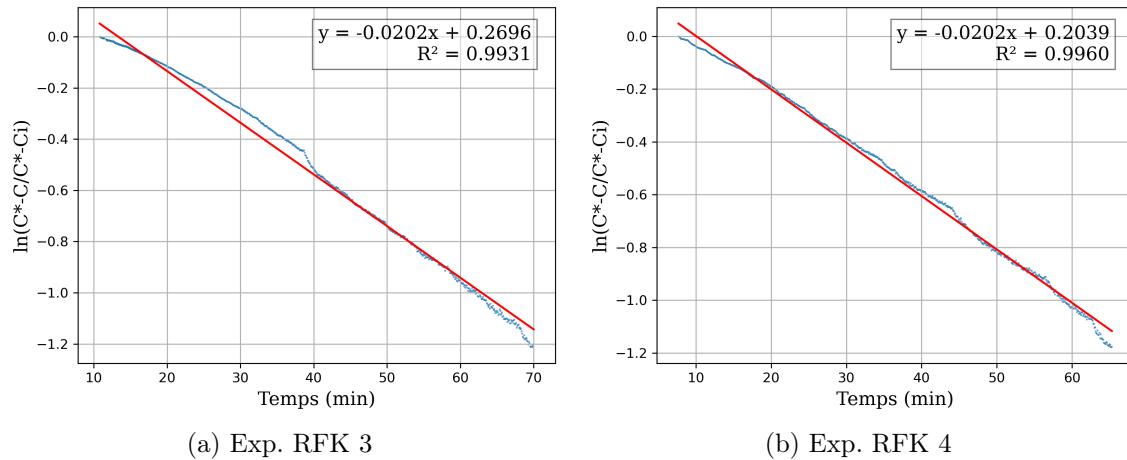


FIGURE B.18 – Calcul de *k<sub>La</sub>* pour les expériences RFK 3 et 4 avec  $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$  et  $Q_G=500\text{mL min}^{-1}$ .

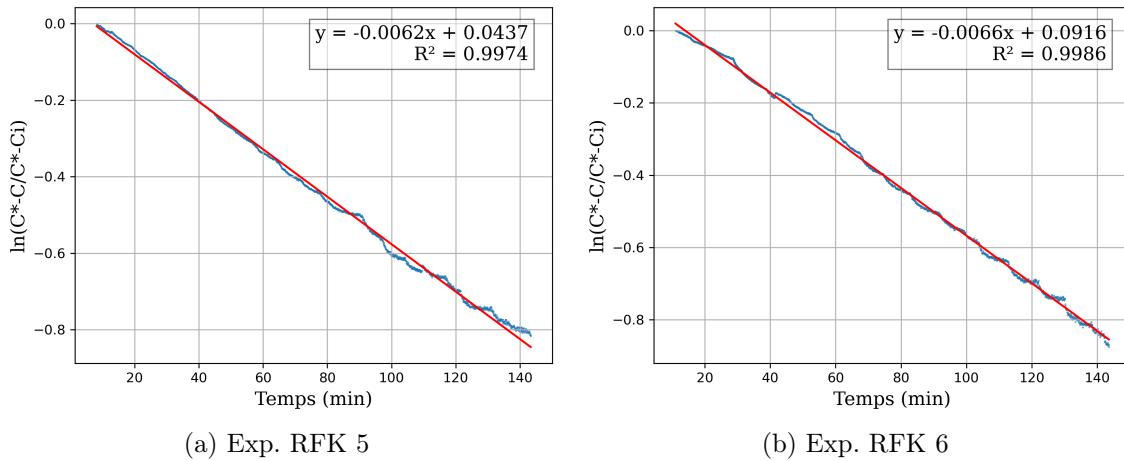


FIGURE B.19 – Calcul de  $k_{La}$  pour les expériences RFK 5 et 6 avec  $Q_L=7.0\text{L min}^{-1}$  et  $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$ .

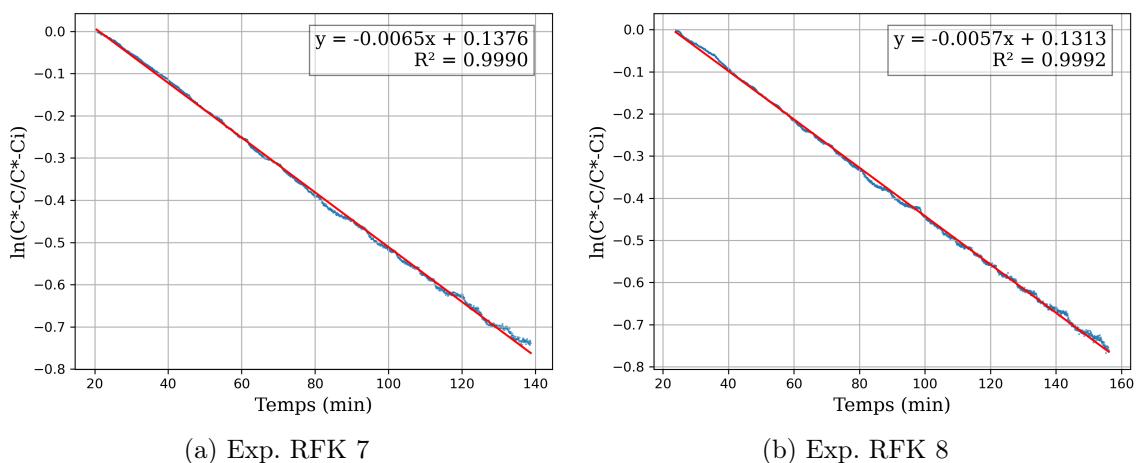


FIGURE B.20 – Calcul de  $k_{La}$  pour les expériences RFK 7 et 8 avec  $Q_L=3.5\text{L min}^{-1}$  et  $Q_G=50\text{mL min}^{-1}$ .

### B.2.4 ANOVA

```

import pandas as pd
import statsmodels.api as sm
from statsmodels.formula.api import ols

# Préparation des données
data = {
    'Type': ['Hill flow rings 25-7']*4 + ['RFK 25L']*4,
    'QG': [50, 50, 500, 500, 50, 50, 500, 500],
    'QL': [3.5, 7.0, 3.5, 7.0, 3.5, 7.0, 3.5, 7.0],
    'kla_p': [0.033, 0.023, 0.098, 0.098, 0.024, 0.020, 0.079, 0.067]
}

df = pd.DataFrame(data)

# ANOVA à deux facteurs
model = ols('kla_p ~ C(QG) + C(QL) + C(Type) + C(QG):C(QL)', data=df).fit()
anova_table = sm.stats.anova_lm(model, typ=2)

print(anova_table)

```

|             | sum_sq       | df  | F         | PR(>F)   |
|-------------|--------------|-----|-----------|----------|
| C(QG)       | 7.320500e-03 | 1.0 | 97.390244 | 0.002212 |
| C(QL)       | 8.450000e-05 | 1.0 | 1.124169  | 0.366825 |
| C(Type)     | 4.805000e-04 | 1.0 | 6.392461  | 0.085549 |
| C(QG):C(QL) | 5.000000e-07 | 1.0 | 0.006652  | 0.940134 |
| Residual    | 2.255000e-04 | 3.0 | NaN       | NaN      |

FIGURE B.21 – Code de l'ANOVA effectuée sur le tableau 5.7.

# Annexe C

## Modèle

### C.1 Calcul de $k_L A_p$ pour le CO<sub>2</sub> et l'H<sub>2</sub>

TABLEAU C.1 – Comparaison des différentes valeurs de  $k_L A_p$  obtenues expérimentalement et à partir de la littérature pour différents débits gazeux et liquides ainsi que pour différents types d'éléments de garnissage.

| $Q_G$<br>(mL min <sup>-1</sup> ) | $Q_L$<br>(L min <sup>-1</sup> ) | $k_L A_{p,CO_2}$<br>(min <sup>-1</sup> ) | $k_L A_{p,H_2}$<br>(min <sup>-1</sup> ) |
|----------------------------------|---------------------------------|--|---|
| <b>Hill flow rings</b>           |                                 |  |   |
| 50                               | 3.5                             | 0.0265                                   | 0.0710                                  |
|                                  | 7.0                             | 0.0187                                   | 0.0500                                  |
| 500                              | 3.5                             | 0.0265                                   | 0.2086                                  |
|                                  | 7.0                             | 0.0778                                   | 0.2081                                  |
| <b>RFK</b>                       |                                 |  |   |
| 50                               | 3.5                             | 0.0193                                   | 0.0516                                  |
|                                  | 7.0                             | 0.0163                                   | 0.0436                                  |
| 500                              | 3.5                             | 0.0630                                   | 0.1686                                  |
|                                  | 7.0                             | 0.053                                    | 0.1431                                  |

### C.2 Code Wolfram Mathematica

Le code utilisé pour la simulation du modèle, ainsi que certains documents annexes, sont disponibles sur le lien GitHub suivant :

<https://github.com/Rom1Sch/Experimental-and-numerical-study-of-gas-solid-liquid-flow-in-a-TBR.git>.