

Développement d'un procédé de méthanation biologique à l'aide d'une approche de modélisation multi-échelle

Biological methanation process development using a multi-scale modeling approach

■ V. NGU¹, C. DUMAS¹, Y. RAFRAFI¹, J. MORCHAIN¹, A. COCKX^{1*}

¹ Toulouse Biotechnology Institute – Université de Toulouse – CNRS – Institut national de recherche pour l'agriculture, l'alimentation et l'environnement (Inrae) – Institut national des sciences appliquées (INSA) – Toulouse

+ Lauréat du Prix de l'Astee 2023

Mots-clés :

Bioréacteur
Méthanation
CFD
Modélisation
Changement d'échelle
Hydrogène
Power-to-Gas

RÉSUMÉ

La méthanation biologique est une technologie verte prometteuse qui permet de valoriser les déchets organiques et de stocker l'excès d'énergie renouvelable sous forme de méthane. Toutefois, cette technologie en est encore à ses débuts en matière de commercialisation, car les recherches actuelles se concentrent sur des études de preuve de concept à l'échelle laboratoire/pilote et les exemples à grande échelle sont encore rares. Par ailleurs, les modèles numériques simplifiés (à une dimension 1D) ou tridimensionnels (CFD – *Computational Fluid Dynamics*) sont des outils pertinents pour le changement d'échelle et l'optimisation des bioréacteurs. Ce travail fournit un exemple concret du changement d'échelle du procédé de méthanation biologique, appuyé par des outils de simulation 1D et 3D. Les modèles ont d'abord été validés avec des données expérimentales à l'échelle pilote (volume de 22 L), puis appliqués à l'échelle industrielle au cas du réacteur d'Electrochaea (volume de ~5 m³). Il s'avère que le transfert gaz-liquide de l'hydrogène a un impact limitant sur la performance biologique. À l'échelle du laboratoire, l'injecteur de gaz joue un rôle crucial dans la génération de la population de bulles, ce qui affecte ultérieurement le transfert de masse et la performance biologique globale. La pureté du méthane a été multipliée par deux avec une plaque poreuse uniforme par rapport à quatre diffuseurs ponctuels. À plus grande échelle, le modèle CFD révèle des écoulements instables dus à des gradients de densité résultant d'un fort appauvrissement gazeux, puisque l'injection de quatre moles d'hydrogène et une mole de dioxyde de carbone forment au plus une mole de méthane en sortie. L'article se termine par des recommandations pour le changement d'échelle et la conception des réacteurs de méthanation, notamment des stratégies visant à améliorer le transfert gaz-liquide à grande échelle. Ces stratégies impliquent une conception de distributeur uniforme permettant l'injection de petites bulles et la conception de hauts bioréacteurs pour améliorer les performances liées au transfert d'hydrogène.

Keywords:

Bioreactor
Methanation
CFD
1D model
Scale up
Hydrogen
Power-to-Gas

ABSTRACT

Biological methanation is a promising green technology for recovering organic wastes and storing excess renewable energy in the form of methane. However, the technology is still in its early-stage of commercialisation, as the recent research focus on laboratory/pilot-scale proof-of-concept studies and the large-scale examples are still scarce. Numerical models such as the one-dimensional (1D) model and the computational fluid dynamics (CFD) model are valuable tools for scaling-up and optimizing bioreactors. The current work provides a conceptual example of scaling up the biological methanation process. The models were initially validated using pilot-scale (22 L volume) experimental data and subsequently applied to simulate the Electrochaea reactor (~5 m³ volume). It is found that hydrogen gas-liquid mass transfer has a significant impact on biological performance. The sparger design plays a crucial role in determining bubble diameter, which subsequently affects the mass transfer and the overall biological performance. A two-fold increase in the methane purity was obtained with a uniform porous sparger as compared to a point-wise sparger. In the large-scale, the CFD model unravels the unsteady flow patterns due to density gradients resulting from huge gas depletion, as 4 moles of hydrogen and 1 mole of carbon dioxide from the inlet are reduced to 1 mole of methane at the outlet. The paper concludes with recommendations for upscaling and reactor design, namely strategies to improve large-scale gas-liquid mass transfer. These strategies involve a uniform sparger design, small bubble diameters, and designing tall bioreactors for enhanced performance.

1. Introduction

1.1. Contexte sur la méthanation biologique

Au cours des dernières décennies, la demande en énergie liée au développement économique mondial a connu une augmentation significative, et de nombreux pays continuent d'exploiter fortement les combustibles

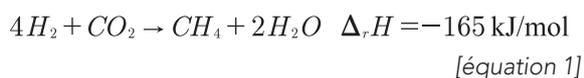
fossiles pour répondre à cette demande énergétique (IEA Data overview²). L'utilisation généralisée des combustibles fossiles s'accompagne d'effets indésirables pour l'homme et l'environnement. En effet, la combustion de ces combustibles fossiles émet du dioxyde de carbone, et son accumulation au fil du temps entraîne une multiplication des événements

* Auteur correspondant – Courriel : cockx@insa-toulouse.fr

² IEA Data overview [WWW Document], 2019. Disponible en ligne : <https://www.iea.org/data-and-statistics>

catastrophiques tels que sécheresses, incendies de forêt et inondations [WESTERLING et BRYANT, 2008 ; XU et al., 2009]. Face à ces défis, il est impératif de réduire la demande énergétique tout en explorant des sources d'énergie renouvelables afin d'atténuer l'impact du réchauffement planétaire et d'accroître l'indépendance énergétique de l'Europe.

Afin de lutter contre le changement climatique et d'atteindre l'objectif zéro émission nette de CO₂, une transformation profonde du système énergétique mondial est indispensable. Outre la réduction de la demande en énergie, un développement des énergies renouvelables telles que l'énergie éolienne et solaire est nécessaire pour substituer progressivement les combustibles fossiles [ZWART et NAP, 2017 ; THEMA et al., 2019]. Cependant, les sources d'énergie solaire et éolienne sont intermittentes et imprévisibles en matière de production d'électricité. Pour équilibrer la production d'électricité fluctuante avec la demande d'électricité, la présence d'un tampon énergétique est essentielle. Bien que plusieurs technologies de stockage soient disponibles, la plus mature et prometteuse est le stockage sous forme de méthane, souvent appelé « Power-to-Gas ». Ses principaux avantages par rapport aux autres méthodes résident dans sa capacité de stockage élevée et son temps de décharge élevé [SCHAAF et al., 2014]. Le méthane peut être produit soit par la voie chimique catalytique, soit par la voie biologique via la réaction de Sabatier :



La méthanation biologique représente une avancée technologique prometteuse dans les domaines de l'énergie renouvelable et du traitement des déchets. L'hydrogène (H₂) nécessaire pour la réduction du dioxyde de carbone peut être généré par électrolyse de l'eau à l'aide de l'électricité excédentaire issue des énergies renouvelables. Le dioxyde de carbone peut provenir des émissions des centrales électriques, des usines ou des installations de biogaz/traitements des eaux usées [STRÜBING et al., 2018]. Une fois purifié, le méthane ainsi produit est directement injecté dans le réseau de gaz naturel existant sans besoin d'infrastructure supplémentaire. Par conséquent, la technologie *Power-to-Methane* facilite l'interconnexion entre les réseaux de gaz et d'électricité, ce qui offre un système de stockage et de distribution d'énergie plus flexible. En plus de son interconnexion avec le réseau électrique alimenté par des énergies renouvelables, la méthanation biologique peut être intégrée aux stations d'épuration des eaux usées (STEP) et aux digesteurs anaérobies,

comme c'est le cas de l'installation de méthanation biologique sur le site de Biofos à Avedøre, Danemark [LARDON et al., 2018]. De plus, le coproduit de l'électrolyse de l'eau, l'oxygène (O₂), peut être utilisé pour l'aération de bassin de STEP voisine, tout en réduisant les dépenses énergétiques des compresseurs d'air. La pureté du biogaz issu de la digestion anaérobie, principalement composé de méthane (CH₄) et de dioxyde de carbone (CO₂), peut être enrichie par la méthanation biologique. La chaleur produite par la méthanation biologique peut être utilisée pour chauffer le digesteur anaérobie. En effet, la méthanation biologique est un processus exothermique qui fonctionne généralement à une température supérieure à 50 °C, tandis que la digestion anaérobie des boues d'épuration est un processus endothermique, qui fonctionne généralement à la température mésophile nécessitant un chauffage à une température d'environ 35 à 37 °C. Une intégration thermique peut être réalisée entre ces deux procédés [ANGENENT et al., 2018] pour créer une synergie, avec un bilan énergétique positif réalisable à grande échelle [LARDON et al., 2018].

Il existe deux grandes familles de procédés de méthanation biologique : *in situ* et *ex situ*. Dans le cadre d'un système *in situ*, l'hydrogène est injecté directement dans le digesteur anaérobie pour obtenir la méthanation. La production de méthane se combine alors avec les autres réactions telles que l'hydrolyse des matières organiques, l'acidogenèse et l'acétogenèse. En revanche, pour un système *ex situ*, un bioréacteur distinct est mis en œuvre, alimenté par le biogaz issu d'un méthaniseur et de l'hydrogène additionnel [LECKER et al., 2017].

Malgré les nombreux avantages de la méthanation biologique, plusieurs verrous techniques restent à résoudre avant de pouvoir commercialiser cette technologie à grande échelle. Le principal défi de la méthanation biologique, similaire au défi des bioprocédés aérobies, réside dans le transfert de matière gaz-liquide, notamment celui d'hydrogène [LECKER et al., 2017 ; RAFRAFI et al., 2020]. En effet, l'hydrogène est très peu soluble dans l'eau, avec une solubilité de l'ordre de 1 mg/L en conditions normales, environ dix fois plus faible que celle de l'oxygène de l'air. Seules quelques unités de méthanation biologique à grande échelle, avec un volume compris entre 3 et 100 m³, sont répertoriées dans la littérature, ce qui signifie que la technologie en est encore à ses débuts dans son application industrielle [RAFRAFI et al., 2020].

L'état de l'art actuel se concentre sur la preuve de concept à l'échelle pilote avec des études extensives

sur le design du réacteur, la configuration et les conditions opératoires. Les types de réacteurs les plus étudiés sont le réacteur agité, le réacteur à lit fixe, la colonne à bulles et le réacteur à membrane, avec chacun leurs avantages et leurs inconvénients. La section suivante présente une courte revue des différentes technologies de méthanation biologique et les propositions pour améliorer le transfert gaz-liquide d'hydrogène afin d'augmenter la productivité et la qualité en méthane. Pour mieux illustrer les différentes technologies présentées ci-dessous, la *figure 1* montre les types de bioréacteurs couramment appliqués pour la méthanation biologique.

1.2. Type de bioréacteur appliqué pour la méthanation biologique

1.2.1. Réacteur agité

Le réacteur le plus étudié pour la méthanation biologique est le réacteur agité [LECKER *et al.*, 2017; GRIMALT-ALEMANY *et al.*, 2018]. La performance biologique dépend de plusieurs paramètres qui impactent l'hydrodynamique et le transfert de matière : la puissance d'agitation, la configuration et la conception de la turbine d'agitation, le débit de gaz et le diamètre de bulles. PEILLEX *et al.* [1988] ont montré que la performance augmente lorsqu'une turbine de Rushton est utilisée par rapport à une turbine axiale, grâce à un coefficient d'échange gaz-liquide plus élevé. LUO et ANGELIDAKI [2012] ont observé une augmentation de pureté de méthane de 90 % à 95 % lorsque la vitesse d'agitation a été augmentée de 500 à 800 ppm. Une augmentation de débit de gaz entraîne une augmentation de productivité, mais la pureté de méthane est systématiquement diminuée [LUO et ANGELIDAKI, 2012; SEIFERT *et al.*, 2014].

1.2.2. Réacteur à lit fixe

Le réacteur à lit fixe est un réacteur intéressant, car il offre une grande surface d'échange gaz-liquide. La

performance de méthanation dépend du matériau utilisé pour le garnissage, du débit de gaz, de la pression, et du bon fonctionnement hydrodynamique. ULLRICH *et al.* [2018] ont observé une augmentation de conversion de H_2 et CO_2 avec la pression, et donc une meilleure pureté en méthane à la sortie. Une autre stratégie mentionnée pour augmenter la performance biologique est de moduler le débit d'arrosage de liquide. Il a été démontré que la pureté du CH_4 passe de 89 % à 97 % en passant d'un intervalle de pause d'arrosage de liquide de 2 minutes à 1 jour [ULLRICH et LEMMER, 2019]. La modulation permet : (1) une meilleure répartition de la solution nutritive ; (2) un film liquide plus mince pour un meilleur transfert gaz-liquide ; et (3) une baisse de consommation énergétique. ALITALO *et al.* [2015] n'observent par ailleurs aucune perte d'activité biologique si le matériau de garnissage n'est mouillé qu'une fois toutes les 72 heures, démontrant la robustesse du procédé. Bien que le liquide ne soit fourni que de manière discontinue, une distribution homogène du liquide sur le garnissage est essentielle pour limiter les zones mortes sans activité méthanogène [DUPNOCK et DESHUSSES, 2019]. Une bonne répartition du liquide et une bonne mouillabilité du matériau entraînent une meilleure productivité du procédé [KIMMEL *et al.*, 1991]. Comme pour tous les réacteurs de ce type, la performance dépend ainsi fortement du bon ruissellement du liquide sur le garnissage.

1.2.3. Réacteur de type colonne à bulles

La colonne à bulles est moins présente comme technologie de réacteur par rapport aux réacteurs agités ou à lit fixe [RUSMANIS *et al.*, 2019]. Comme en réacteur agité, la performance biologique dépend fortement du mélange et du transfert gaz-liquide – la vitesse superficielle de gaz, le diamètre de bulles, le diffuseur de gaz déterminent l'intensité du transfert. Elle offre également un mélange non mécanique dit pneumatique et donc un coût de fonctionnement relativement faible par rapport à un réacteur agité [GRIMALT-ALEMANY *et al.*, 2018]. Cependant, une pureté de méthane > 90 % est difficile à obtenir sans optimisation des conditions opératoires et géométriques [BASSANI *et al.*, 2016; VOELKLEIN *et al.*, 2019]. Par exemple, la recirculation de gaz est une stratégie couramment utilisée pour augmenter la pureté de méthane dans une colonne à bulles [KOUGIAS *et al.*, 2017 ; GRIMALT-ALEMANY *et al.*, 2018; VOELKLEIN *et al.*, 2019]. Le design de diffuseur joue également un rôle important sur la taille de bulles et éventuellement donc le transfert gaz-liquide et les performances biologiques [MÖLLER *et al.*, 2017 ; NGU *et al.*, 2023].

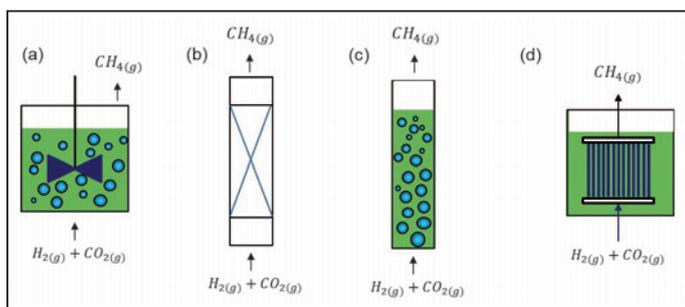


Figure 1. Différents procédés de méthanation biologique : (a) Réacteur agité; (b) Réacteur à lit fixe; (c) Colonne à bulles; (d) Réacteur à membrane

1.2.4. Réacteur à membrane

Le réacteur à membrane offre une technologie alternative aux réacteurs plus conventionnels cités précédemment. Il ressort souvent que le coefficient volumétrique de transfert gaz-liquide ($k_L a$) est beaucoup plus intéressant que celui de réacteur agité ou de colonne à bulles. DIAZ *et al.* [2015] expliquent que cela est dû à l'aire interfaciale d'échange d'un réacteur à membrane qui est beaucoup plus élevée par rapport à celle des diffuseurs de gaz en réacteur agité. LUO et ANGELIDAKI [2013] ont montré que la pureté et la productivité de méthane augmentent simultanément avec le débit de gaz, ce qui n'est pas le cas pour un réacteur agité ou une colonne à bulles. Cependant, cette technologie est limitée par le débit de gaz, ce qui se traduit par une plus faible production en méthane [RUSMANIS *et al.*, 2019; JENSEN *et al.*, 2021a]. Le risque de colmatage entraîne également une nécessité de rétrolavage qui implique une perte d'efficacité.

1.3. Le changement d'échelle pour la méthanation biologique

Comme discuté, la technologie de méthanation biologique en est encore à ses débuts à l'échelle industrielle. À ce jour, très peu de projets sont référencés dans la littérature. Parmi les plus connus il existe, par exemple, les projets de MicrobEnergy (Viessmann) et d'Electrochaea [RAFRAFI *et al.*, 2020]. Le changement d'échelle du procédé de méthanation biologique est une étape très complexe industriellement, car des pertes de performance sont généralement observées tout au long du processus du *scale-up*. La méthode classique basée sur des essais expérimentaux empiriques pourrait être coûteuse à grande échelle et ne pas permettre d'explorer pleinement les plages de fonctionnement disponibles. Dans ce contexte, l'utilisation de modèles numériques s'avère indispensable pour effectuer des simulations de bioréacteurs à diverses conditions opératoires, ce qui aboutit à une conception optimale du réacteur et garantit les performances recherchées (concept de jumeau numérique). Les deux modèles numériques de réacteur largement utilisés dans la littérature sont le modèle 1D « *one-dimensional model* » qui décrit la variation spatiale des espèces dans une direction axiale, et le modèle CFD « *Computational Fluid Dynamics* » qui résout finement l'écoulement de fluide et l'impact de l'hydrodynamique sur d'autres phénomènes physiques (transfert de matière, performance biologique, métabolisme microbien) présents dans un bioréacteur. Ces modèles sont devenus des outils de conception de bioréacteurs fiables pour minimiser les

risques de changement d'échelle et définir les dimensions optimales [SIEBLER *et al.*, 2019, 2020; SCULLY *et al.*, 2020].

1.4. La stratégie de modélisation multi-échelle en méthanation biologique

Dans une stratégie de développement de procédé, il est préférable de commencer par acquérir des données de bases dans un pilote représentatif du procédé industriel à l'échelle du laboratoire. Ces données de bases vont être utilisées pour l'acquisition de connaissances et la validation des modèles numériques. Il est plus facile de commencer par un modèle macroscopique du type modèle 1D pour faire des calculs rapides. Néanmoins, ce dernier doit englober les lois physiques nécessaires et adéquates décrivant les bioréacteurs. Sur la base des résultats du modèle macroscopique, une analyse plus locale peut ensuite être réalisée à l'aide de la modélisation CFD pour caractériser plus précisément les hétérogénéités spatio-temporelles. Les résultats du modèle 1D peuvent aussi être utilisés pour développer des relations asymptotiques ou des règles de calcul. Ces règles simplifiées aident à déterminer les paramètres clés qui contrôlent réellement le bioprocédé complexe pour mieux comprendre et valoriser les résultats expérimentaux.

L'objectif de cet article est d'illustrer l'application de cette stratégie de modélisation multi-échelle à la méthanation biologique *ex situ* à l'aide des données issues d'une installation pilote. Cette contribution démontre l'utilisation pertinente des modèles CFD et 1D pour la simulation de bioréacteurs de méthanation biologique. En outre, des analyses et des comparaisons entre les résultats des modèles CFD et 1D avec les données expérimentales sont présentées et explicitées. Par ailleurs, les modèles numériques CFD et 1D ont été appliqués pour prédire la performance biologique de l'unité industrielle d'Electrochaea. Enfin, quelques recommandations et lignes directrices pour un meilleur dimensionnement et fonctionnement du bioréacteur de méthanation sont proposées.

2. Matériels et méthodes

Dans cette section, le pilote sur lequel les données de bases ont été acquises et le cas de référence utilisé (Electrochaea) vont être exposés de manière synthétique, car la description complète peut être consultée dans la littérature ouverte ou dans l'article original. Premièrement, le pilote de méthanation biologique à l'échelle laboratoire Toulouse Biotechnology Institute (TBI) et l'unité de méthanation biologique d'Electrochaea ►



Facilite le conditionnement des boues et
et réduit l'empreinte carbone des chantiers.



application **facile** et
sans risque pour
l'opérateur



assèchement
immédiat



chargement **optimisé**
et **sécurisé**



100%
biodégradable



jusqu'à 1000%
d'émissions carbone
en moins*

**par rapport aux solutions traditionnelles.*

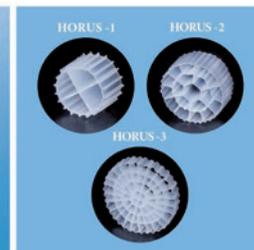
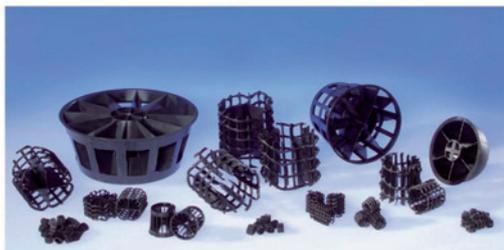
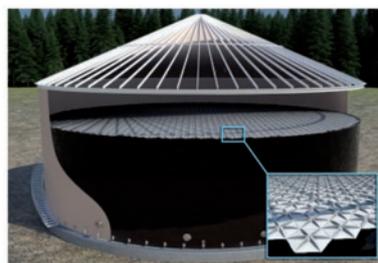




Traitement et dépollution de l'Air et de l'Eau



- Garnissage structuré et vrac (air/eau)
- Dévésiculeurs et séparateurs
- Lit bactérien
- Lit immergé
- Flocformer
- Décanteur lamellaire
- Filtre à tamis autonettoyant
- Mélangeur en ligne statique et dynamique
- Couverture de bassin fixe ou flottante
- Garnissage pour MBBR
- Anneaux pour laveur de gaz
- Racleur à chaînes de fond et de surface
- Couverture solaire de bassin



- ▶ vont être présentés. Ensuite, les outils numériques de calculs, en particulier, les modèles 1D et CFD vont être présentés. Le modèle 1D spatio-temporel est décrit brièvement, car les méthodes de résolution détaillées sont décrites dans NGU *et al.* [2022b]. Enfin, le modèle CFD utilisé pour simuler le réacteur d'Electrochaea est également décrit brièvement, les détails étant disponibles dans NGU *et al.* [2023].

2.1. Dispositif expérimental du pilote de méthanation biologique

Le schéma simplifié du pilote comme montré dans la figure 2 a été composé d'une colonne à bulles de 22 L avec un diamètre interne de 15 cm et une hauteur d'eau de 125 cm. La méthanation biologique a eu lieu à la pression atmosphérique et dans des conditions thermophiles (température de 55 °C). La température a été régulée à l'aide d'un thermostat en faisant circuler de l'eau dans la double enveloppe de la colonne. Le mélange gazeux H₂:CO₂ a été injecté dans un rapport stœchiométrique de 4:1 avec deux types de diffuseur pour étudier leur efficacité sur la performance biologique. Le premier est composé de quatre petits diffuseurs frittés en verre de diamètre de 10 mm chacun. Le second est une plaque poreuse occupant l'ensemble de la section transversale de la colonne. Le débit de gaz en entrée de mélange H₂/CO₂ peut atteindre 0,16 NL/min. L'analyse en phase gaz a été suivie par infrarouge pour le CO₂ et CH₄, ainsi que par un analyseur de conductivité thermique pour l'H₂. Pour augmenter la conversion de l'hydrogène sans augmenter la pression, une forte recirculation du gaz a été mise en place. Le taux de recirculation (R) qui définit comme débit de recirculation sur débit entrant peut atteindre jusqu'à R = 12,5.

2.2. Brève description de l'unité de méthanation biologique d'Electrochaea

Dans la littérature, il est revendiqué qu'une des plus grandes installations de méthanation biologique *ex situ* au monde est l'unité d'Electrochaea à Avedøre, au Danemark. La figure 3 montre l'installation d'Electrochaea qui est constituée d'une colonne de méthanation biologique couplée avec des méthaniseurs et des énergies éoliennes. Le bioréacteur a été dimensionné pour traiter le CO₂ provenant d'un digesteur anaérobie, avec un mélange de biogaz typique composé de 60 % de CH₄ et de 40 % de CO₂ [LARDON *et al.*, 2018; RUSMANIS *et al.*, 2019]. Le CO₂ provenant du biogaz est valorisé dans un bioréacteur de méthanation pour produire un total de 125 Nm³/h de CH₄ avec une alimentation complémentaire de 200 Nm³/h de H₂ généré par électrolyse de l'eau à l'aide d'électricité renouvelable excédentaire. Il est mentionné que l'électrolyseur fonctionne à une capacité électrique maximale de 1 MW. Le réacteur fonctionne dans des conditions thermophiles, à une température de 65 °C et sous une pression de 8 bars.

2.3. Modèle 1D spatio-temporel développé pour la méthanation biologique

Le modèle 1D spatio-temporel précédemment développé a été validé pour différentes applications telles que la méthanation biologique [NGU *et al.*, 2022a, 2023], ainsi que l'absorption réactive du CO₂ [NGU *et al.*, 2022b]. Le modèle 1D est composé d'équations de transport d'espèces, telles qu'illustrées dans les équations 2 et 3 qui font référence à la conservation de la masse dans un volume élémentaire de hauteur, *dz*.

$$\frac{\partial \Phi_{G,i}}{\partial t} + \frac{\partial u_G \Phi_{G,i}}{\partial z} = D_G \frac{\partial}{\partial z} \left(\epsilon_G \frac{\partial C_{G,i}}{\partial z} \right) - k_{L,i} a (C_i^* - C_{L,i})$$

[équation 2]

$$\frac{\partial \Phi_{L,i}}{\partial t} + \frac{\partial u_L \Phi_{L,i}}{\partial z} = D_L \frac{\partial}{\partial z} \left(\epsilon_L \frac{\partial C_{L,i}}{\partial z} \right) + k_{L,i} a (C_i^* - C_{L,i}) + \epsilon_L R_i$$

[équation 3]

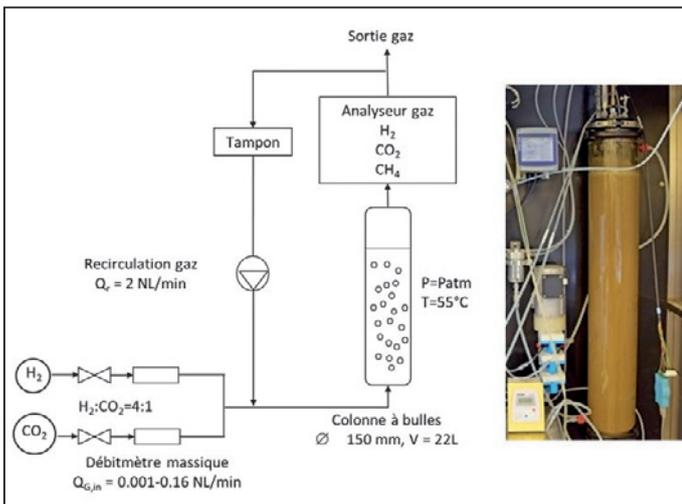


Figure 2. Schéma simplifié du dispositif expérimental et image du réacteur de colonne à bulles



Figure 3. Site industriel avec colonne de biométhanation d'Electrochaea au Danemark

u_G et u_L représentent respectivement les vitesses du gaz et du liquide. ε_G et ε_L sont les fractions volumiques du gaz et du liquide. $C_{G,i}$ et $C_{L,i}$ représentent les concentrations de l'espèce i dans les phases gazeuse et liquide. Par conséquent, $\phi_{G,i}$ est la concentration de l'espèce i dans la phase gazeuse par unité de volume de la colonne, c'est-à-dire $\phi_{G,i} = \varepsilon_G C_{G,i}$. De manière similaire, nous avons $\phi_{L,i} = \varepsilon_L C_{L,i}$. D_G et D_L sont les coefficients de dispersion axiale qui représentent le mélange du gaz et du liquide. Le terme de transfert de masse se compose de $k_{L,i}$, le coefficient de transfert côté liquide pour l'espèce i , a est l'aire interfaciale volumétrique et $C_i^* - C_{L,i}$ est la force motrice du transfert ou potentiel d'échange avec C_i^* la solubilité du gaz i dans le liquide. R_i représente les réactions de consommation et de production décrivant la biométhanation qui a lieu uniquement en phase liquide [NGU et al., 2023]. Toutes les variables du modèle dépendent de l'espace et du temps, ce qui permet une représentation riche de la physique et une analyse détaillée des résultats, d'où le modèle spatio-temporel comme illustré dans la figure 4.

2.4. Modèle CFD eulérien développé pour la colonne de méthanation biologique

La simulation de l'écoulement gaz-liquide a été réalisée à l'aide de logiciel de CFD Ansys Fluent 2021 R1. Le comportement de chaque phase de l'écoulement est résolu de manière eulérienne c'est-à-dire via des grandeurs moyennes qui représentent statistiquement les vitesses, la composition et la proportion de chaque phase, la turbulence présente dans la phase liquide, mais aussi les interactions entre le gaz et le liquide (transfert de masse, forces entre les bulles et le liquide

et interactions liées à la turbulence). La configuration du modèle CFD peut être assez complexe et délicate, elle nécessite une bonne connaissance des processus physiques importants dans le cadre du procédé étudié. Pour la colonne à bulles à grande échelle, nous avons principalement suivi les recommandations du travail de SIEBLER et al. [2019]. Les équations de Navier Stokes y sont résolues en moyenne statistique de Reynolds (RANS) pour chaque phase, complétée par le modèle standard de turbulence $k - \varepsilon$ modifié pour les écoulements dispersés à bulles.

Le diamètre des bulles à l'entrée est estimé à 2 mm, d'après le travail de NGU et al. [2022a] s'appuyant sur la modélisation 1D du réacteur d'Electrochaeca. De la même manière, la variation de la taille des bulles a été prise en compte pour décrire les effets (i) de la pression hydrostatique et (ii) de la perte importante de moles dans la phase gazeuse, comme décrit par l'équation 1. En effet, quatre moles de H_2 et une mole de CO_2 à l'entrée vont être réduites à une mole de CH_4 à la sortie, soit une réduction de 80 % du flux molaire si la conversion est totale. Cet effet de variation du volume de gaz et donc du diamètre des bulles sera marquant sur les 10 mètres de hauteur du réacteur par rapport à la colonne pilote de 1,25 m. Pour modéliser ces effets, l'équation de transport d'aire interfaciale a été activée dans Ansys Fluent, pour calculer la variation du diamètre moyen des bulles en tout point. Les effets de coalescence et de rupture ont été négligés ici.

Le gaz est injecté uniformément sur la totalité de la section basse de la colonne avec une vitesse superficielle (débit de gaz/section) de 0,031 m/s. La sortie est à la pression de 8 bars. Le rapport de fraction molaire des espèces gazeuses à l'entrée, $H_2:CO_2:CH_4$, était de 61,5 %:15,3 %:23,2 %, il tient compte du mélange entre le biogaz et l'hydrogène produit par l'électrolyseur. La colonne est fermée au liquide et le gaz se comporte comme un gaz parfait sans recirculation.

La résolution numérique se fait en plusieurs étapes pour favoriser une bonne obtention des résultats. Dans un premier temps, l'hydrodynamique gaz-liquide est résolue en instationnaire jusqu'à convergence. Ensuite, les équations de transport de chaque espèce (H_2 , CO_2 , H_2O , CH_4) ont été activées conjointement avec les équations d'écoulement, mais sans transfert gaz-liquide ni réaction biologique. Ensuite, le transfert de masse et la réaction biologique ont été activés, et toutes les équations ont été résolues simultanément en instationnaire. Une fois quasi-stationnaire, un suivi transitoire est fait pendant 100 secondes supplémentaires, pour enregistrer les données toutes les secondes. Toutes les

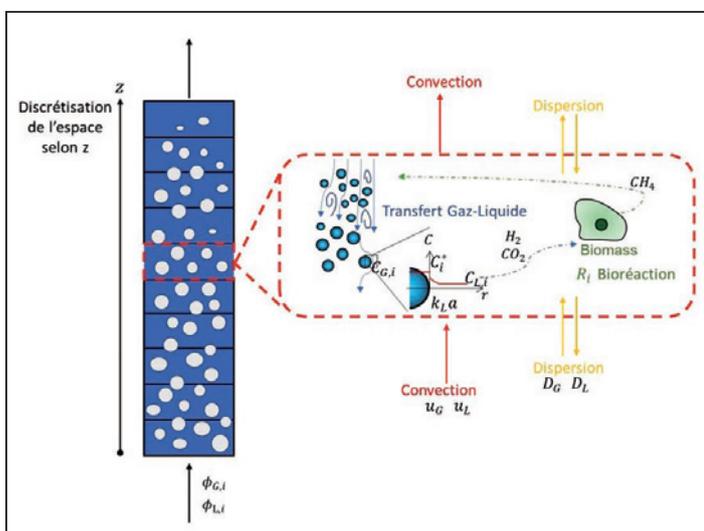


Figure 4. Illustration du modèle 1D et de sa signification physique

simulations ont été effectuées avec un pas de temps de 0,01 s et avec des résidus numériques $< 0(10^{-4})$, ce qui permet une bonne description de l'écoulement transitoire et une bonne précision du calcul.

Pour la méthanation biologique, il est généralement admis que le taux de transfert de matière gaz-liquide d' H_2 est le facteur limitant du procédé [LECKER *et al.*, 2017; RAFRAFI *et al.*, 2020; JENSEN *et al.*, 2021b]. Il est ici proposé que l'état stationnaire (après la phase de croissance) de la biomasse (g/L) se caractérise par un équilibre entre la quantité d'hydrogène transférée et celle consommée par la biomasse. Ce taux spécifique d'absorption d'hydrogène (le transfert de matière divisé par la concentration en biomasse) équilibre le taux de maintenance spécifique nécessaire pour garder en vie cette même biomasse [NGU *et al.*, 2022a]. À partir de cet état d'équilibre, les taux de consommation de dioxyde de carbone et de production de méthane seront constants, tous deux étant proportionnels au taux de transfert de masse d'hydrogène. Étant donné que le taux de transfert de masse d'hydrogène est le facteur limitant pour le métabolisme, le taux spécifique d'absorption d'hydrogène à l'état stationnaire est égal au taux maximal de transfert de masse d'hydrogène par

$$\text{masse cellulaire } \varphi_{H_2, \max} = m = \frac{k_L a (C_{H_2}^* - 0)}{\varepsilon_L X}$$

et par conséquent en régime stationnaire, le taux spécifique de consommation du dioxyde de carbone et de production du méthane est exprimé de manière stœchiométrique comme suit :

$$\varphi_{CO_2} = \frac{\varphi_{H_2, \max}}{4} \cdot \frac{M_{CO_2}}{M_{H_2}} \quad \text{et} \quad \varphi_{CH_4} = \frac{\varphi_{H_2, \max}}{4} \cdot \frac{M_{CH_4}}{M_{H_2}}$$

Comme l'objectif ici est de prédire les performances du bioréacteur à l'état stationnaire et de les comparer avec les résultats industriels de la littérature, il est choisi de fixer une concentration de biomasse constante obtenue en fin de croissance grâce au modèle 1D pour le même réacteur [NGU *et al.*, 2022a]. Étant donné que le taux de croissance des méthanogènes est généralement très faible, de l'ordre de plusieurs jours, il n'est en effet pas réaliste de simuler la phase transitoire de croissance avec le modèle CFD au contraire de ce qui a pu être fait en 1D.

3. Résultats et discussions

3.1. Performance de méthanation biologique dans une colonne pilote de 22 L

Les résultats expérimentaux en conditions permanentes sont présentés sur la figure 5 sous forme de cercle bleu pour le diffuseur avec quatre petits frittés en verre, et de

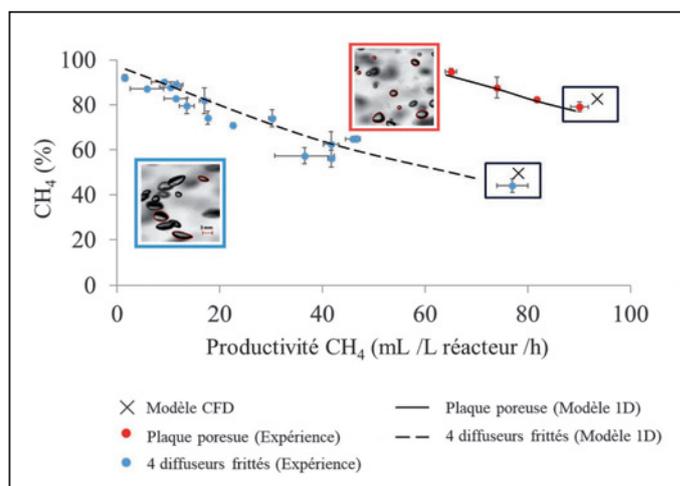


Figure 5. Les résultats expérimentaux confrontés avec le modèle 1D et le modèle CFD pour les deux types de diffuseurs de gaz – plaque poreuse (diffuseur uniformément réparti sur la section totale de la colonne) et 4 petits diffuseurs (injection à point). Les carrés représentent la performance biologique à toutes conditions égales par ailleurs pour les deux diffuseurs

cerle rouge pour la plaque poreuse uniforme. Le débit de gaz à l'entrée de la colonne augmente de gauche à droite. Plus le débit de gaz entrant est grand, plus la productivité est élevée, mais moins le gaz est riche en méthane via l'effet de dilution. Cela signifie également que pour la même pureté de méthane en sortie (iso-y), la plaque poreuse permet de traiter une plus grande quantité de gaz, et donc d'obtenir une plus grande productivité. De même, pour un débit donné de gaz à l'entrée, la conversion biologique est nettement meilleure avec la plaque poreuse. Comme le montrent les rectangles noirs sur la figure 5, la pureté en sortie a quasi doublé en changeant le type d'injecteur. Cela est dû au fait que le diamètre de bulles généré par la plaque poreuse est plus petit que celui de quatre frittés en verre, ce qui offre un plus grand flux de transfert gaz-liquide pour le même flux de gaz réactif à l'entrée du réacteur. Le modèle 1D représenté par les courbes a pu reproduire et expliquer la tendance expérimentale. Une approche théorique basée sur la réduction du modèle 1D permet d'identifier les paramètres déterminants pour la performance biologique. Le modèle alors simplifié à 0D montre clairement que le paramètre qui contrôle la performance de la biométhanation est le transfert d'hydrogène – c'est le verrou technique à surmonter. Ce modèle simplifié 0D va être présenté à la section § 3.3. Plus de détails sur les résultats expérimentaux et numériques peuvent être trouvés dans LAGUILLAU-MIE *et al.* [2022] et NGU *et al.* [2023]. Les modèles numériques étant validés à l'échelle pilote, ils peuvent être utilisés pour l'étude CFD du bioréacteur de méthanation à grande échelle, objet de la section suivante.

3.2. Simulations CFD du réacteur de méthanation biologique d'Electrochaea

Dans cette section, les résultats de la simulation du réacteur d'Electrochaea sont présentés. Tout d'abord, la prédiction des variables hydrodynamiques telles que le diamètre des bulles, la rétention de gaz, la vitesse du gaz et l'aire interfaciale en présence de la réaction biologique est décrite, comme la montre la *figure 6*. Le comportement hydrodynamique dans le réacteur est instationnaire. Le diamètre des bulles varie dans l'espace et dans le temps. La moyenne temporelle sur une période transitoire de 100 s révèle que la taille

moyenne des bulles diminue globalement du pied vers la tête de la colonne, comme la montre la *figure 6a*. La vitesse axiale du gaz de la *figure 6b* reflète l'influence des différentes tailles de bulles sur leurs vitesses ascensionnelles, mais également l'effet des recirculations du liquide dans la colonne. Près des parois, il arrive que le gaz redescende transitoirement. En raison de la grande consommation de H_2 et de CO_2 , la rétention de gaz diminue considérablement de l'entrée à la sortie, passant d'environ 10 % en bas de colonne à 5 % en haut, comme la montre la *figure 6c* et ce malgré la détente du gaz par diminution de la pression hydrostatique. Les 15 % de dioxyde de carbone se solubilisent très rapidement, dès le premier mètre après l'injection du gaz (non présenté). Cette réduction de près de deux fois la rétention de gaz crée un gradient axial fort, conduisant à un fluide mixte gaz/liquide plus lourd en haut de la colonne qu'en bas. La forte instabilité de l'écoulement diphasique provient de cette différence de densité. Par conséquent, le mélange à grande échelle est favorisé, ce qui entraîne des dispersions axiales et radiales importantes. Les *figures 6c* et *6d* montrent des champs de rétention de gaz et d'aire interfaciale avec des valeurs maximales situées au bas de la colonne et les valeurs les plus basses en tête de la colonne. La combinaison d'une aire interfaciale et d'une pression hydrostatique plus élevées au bas de la colonne permet d'obtenir un flux de transfert gaz-liquide maximum dans cette région. Les profils radiaux moyennés dans le temps (moyenne transitoire) de la rétention de gaz et de l'aire interfaciale deviennent quasiment homogènes à mi-hauteur de colonne.

Précédemment, le modèle 1D spatio-temporel a été utilisé pour prédire les performances de méthanation biologique du réacteur d'Electrochaea [NGU *et al.*, 2022a]. Dans cette section, quelques résultats CFD ont été comparés à ces résultats 1D précédemment publiés, comme le montre la *figure 7*.

Globalement, le modèle CFD suit la même tendance que le modèle 1D. La pression hydrostatique diminue linéairement du bas vers le haut de la colonne, comme le montre la *figure 7a*. Avec la diminution de la pression hydrostatique et la vitesse de la réaction biologique, la rétention gazeuse et le débit de gaz diminuent fortement du bas vers le haut de la colonne, comme le montrent respectivement la *figure 7c* et la *figure 7d*. Comme pour la rétention gazeuse, le débit volumique de gaz est réduit environ d'un facteur deux. Selon la stœchiométrie de la réaction, telle qu'exprimée dans l'équation 3, le débit devrait être réduit d'un facteur 5 (5 moles de réactif conduit à 1 mole de méthane), mais étant

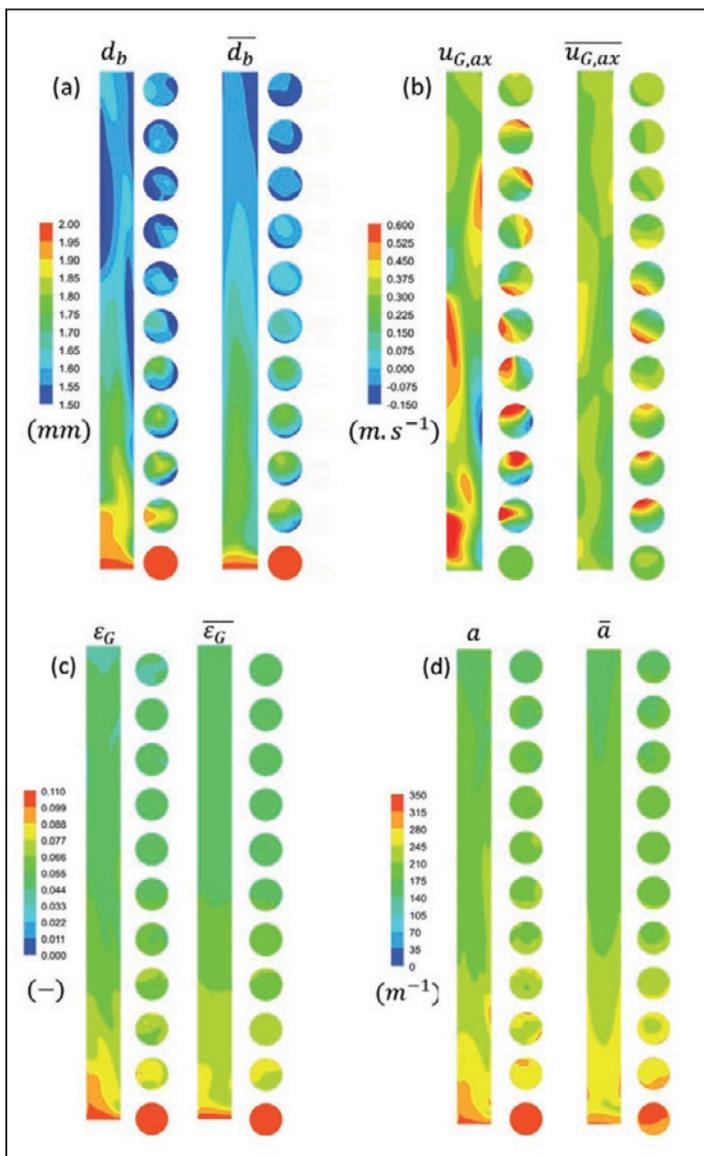


Figure 6. Profils des contours instantanés et moyennes transitoires sur un plan axial et des sections transversales (à chaque mètre de hauteur) pour (a) le diamètre des bulles; (b) la vitesse du gaz axiale; (c) la rétention de gaz; et (d) l'aire interfaciale. Les tracés de surface instantanés ont été obtenus après 500 secondes de simulation. Les moyennes transitoires ont été faites sur les 100 dernières secondes

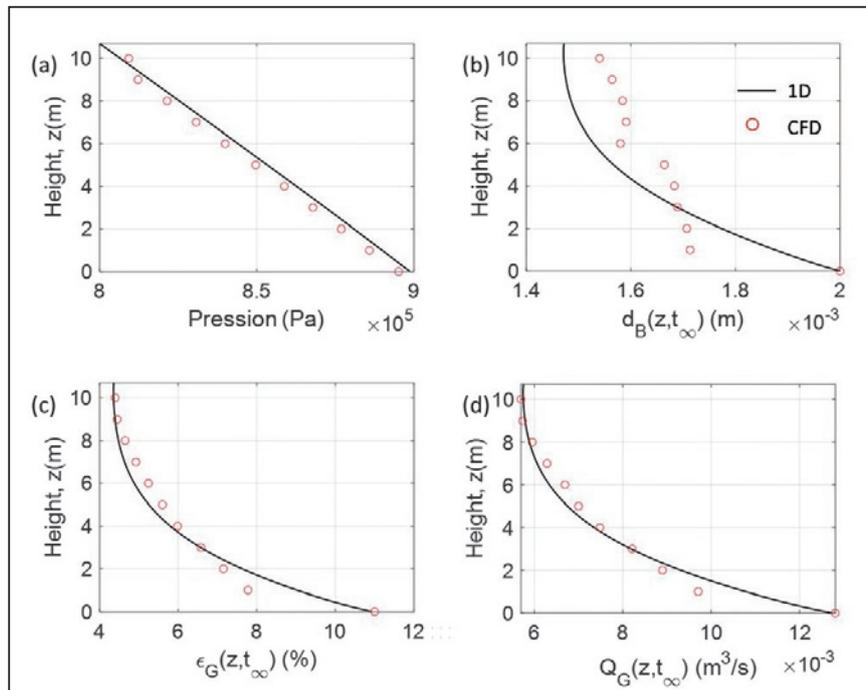


Figure 7. Comparaison de profils axiaux de paramètres hydrodynamiques entre les modèles CFD et 1D. (a) Pression hydrostatique; (b) diamètre de bulles; (c) rétention gazeuse; (d) débit de gaz. Les points CFD ont été calculés à partir de la moyenne surfacique de résultats en moyenne transitoire

donné que la pression hydrostatique varie d'un facteur deux dans une colonne de 10 mètres de haut, la réduction théorique du débit est donc de 2,5, ce qui est conforme à la réduction observée. En haut de la colonne, la rétention gazeuse reste presque stable autour de 5 %, ce qui représente un écoulement à bulles en régime homogène [SHAH *et al.*, 1982; KRISHNA *et al.*, 1999]. La *figure 7b* montre que deux zones pour le diamètre des bulles peuvent être distinguées, avec une moyenne de 1,7 mm dans la partie inférieure de la colonne et une moyenne de 1,55 mm dans la partie supérieure. Cela reflète qu'en bas, où la rétention gazeuse est plus élevée, les instabilités liquides et les effets d'essaim induisent un mélange entre les bulles grandes et petites, conduisant à un diamètre de bulle moyen. Les *figures 8a* et *8b* présentent respectivement les contours des fractions molaires pour l'hydrogène et le méthane. La fraction molaire d'hydrogène varie d'environ 60 % à l'entrée à moins de 5 % à la sortie. Une valorisation réussie du biogaz a été réalisée, car la fraction molaire de méthane augmente de 25 % à l'entrée à 95 % en sortie. Cela prouve que la conception du bioréacteur choisie, en tant que « colonne à bulles mince et de haute taille », convient à la production de méthane de haute qualité en favorisant le transfert de masse H₂ gaz-liquide, sans avoir besoin de recirculer le gaz comme à l'échelle pilote. Les colonnes à bulles de grande taille sont donc avantageuses pour le transfert

de masse en raison de l'augmentation du temps de séjour du gaz et de la solubilité du gaz (pression hydrostatique), comme cela a été discuté précédemment dans la littérature [DECKWER *et al.*, 1978; SIEBLER *et al.*, 2019; NGU *et al.*, 2022a]. De plus, les résultats CFD ont montré que les gradients radiaux sont négligeables en comparaison des gradients axiaux, ce qui explique que les résultats 1D sont assez proches sans être aussi précis que la CFD au vu des fortes instabilités axiales observées.

La *figure 8c* et la *figure 8d* présentent respectivement les profils axiaux de concentration de gaz et de liquide pour l'hydrogène. De même, la *figure 8e* et la *figure 8f* présentent les profils pour le méthane. Le dioxyde de carbone n'est pas présenté, car il disparaît dès le premier mètre de la colonne. Les prédictions numériques présentent les résultats 3D et 1D : la concentration en hydrogène diminue dans tout le réacteur, par transfert de masse puis conversion en méthane. Dans le liquide, la concentration en hydrogène reste à zéro, signifiant que l'hydrogène dissous est consommé directement par la réaction biologique. La concentration en hydrogène et sa solubilité obtenue par CFD sont en accord avec les prédictions du modèle 1D. Pour les concentrations en méthane, les différences entre le modèle CFD et 1D sont plus importantes dans la partie inférieure de la colonne. Cela pourrait être dû à l'instabilité de l'écoulement diphasique dans la colonne à bulles de grande

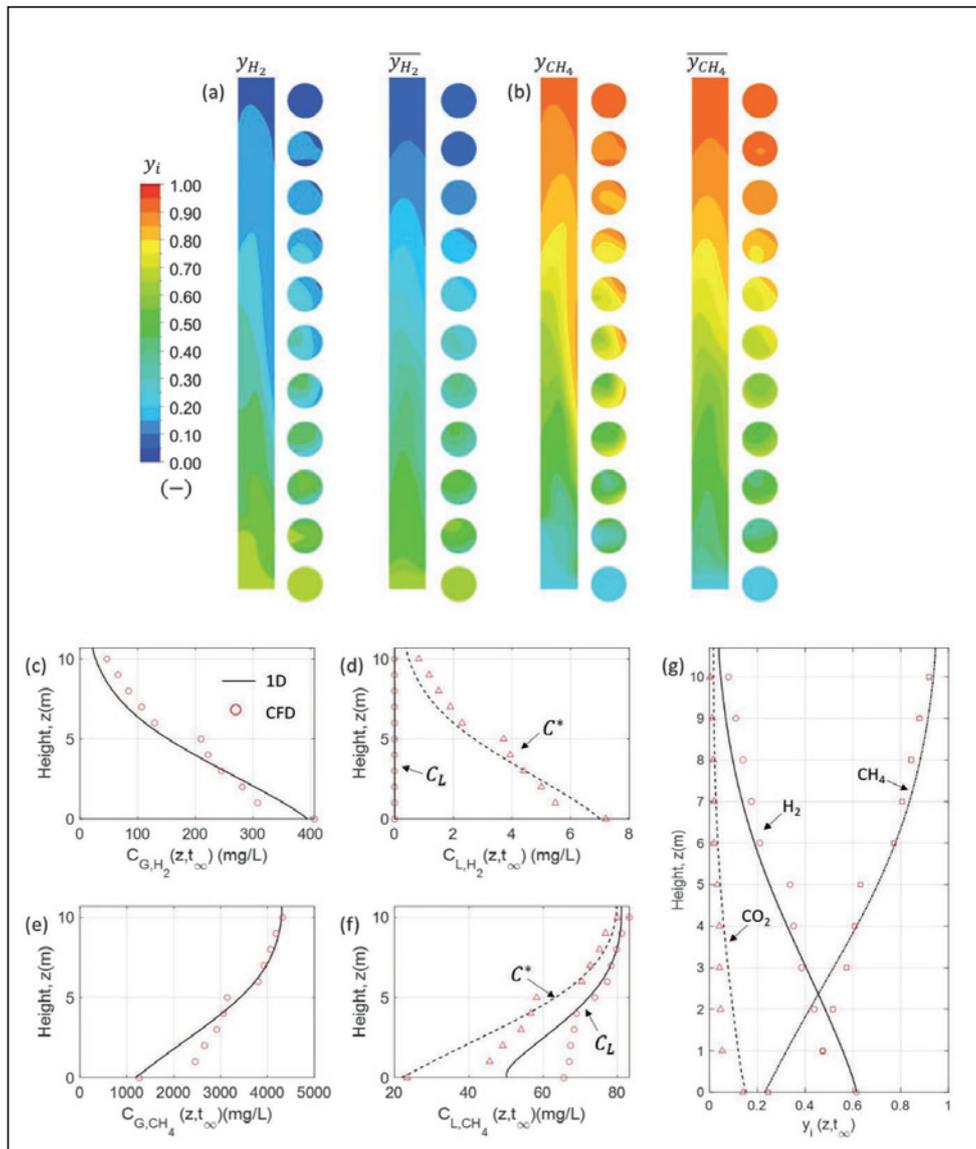


Figure 8. Profils des contours instantanés et moyennes transitoires pour : (a) fraction molaire d'hydrogène gazeux ; (b) fraction molaire de méthane gazeux. Comparaison entre les profils axiaux CFD et 1D pour (c) et (d) concentration d'hydrogène en phase gazeuse et phase liquide, respectivement ; (e) et (f) concentration de méthane en phase gazeuse et en phase liquide, respectivement. (g) Fraction molaire des espèces. Les contours CFD ont été calculés à partir de la moyenne spatiale de la moyenne transitoire

taille là où la réaction et le transfert de masse sont les plus intenses. En raison de la stœchiométrie de la bio-réaction, une perte importante de gaz était attendue, ce qui contribue à de forts gradients axiaux de rétention gazeuse, qui induisent des recirculations liquides instables pilotées par les gradients de densité. Comme le modèle 1D simplifie le mélange axial via un terme de dispersion, il est probable que la réalité est mieux représentée par les résultats de la CFD, en particulier dans cette partie basse.

Dans l'ensemble, après la mi-hauteur, les prédictions CFD concordent bien avec les résultats du modèle 1D. Cela est attendu, car les gradients axiaux après cette

hauteur sont relativement faibles, comme le montrent les tracés de contour de la figure 8. On peut remarquer dans la figure 7c que l'évolution axiale de la rétention gazeuse est plus faible en haut de la colonne, ce qui induit une relative stabilité de l'écoulement diphasique qui devient plus homogène. Cela justifie le choix du modèle 1D pour simuler le réacteur de méthanation biologique d'Electrochaea, car il est suffisant pour obtenir des résultats globaux. À la sortie, le modèle CFD prédit une pureté de CH_4 de 95 % et une productivité de $126,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$, ce qui concorde bien avec la prédiction du modèle 1D de 95 % et $123 \text{ Nm}^3/\text{h}$ [NGU et al., 2022a] et les valeurs rapportées par Electrochae de

90-95 % et 125 Nm³/h de CH₄ (Electrochaea - Carbon and Energy storage 2017², et SVEINBJÖRNSSON et MÜNSTER [2017]). La similarité des résultats entre les deux modèles confirme que la mise en œuvre cohérente des différentes approches 1D et 3D et la sélection des lois de fermeture sont adéquates physiquement. L'instabilité de l'écoulement observée dans l'étude CFD 3D est modélisée comme un terme de dispersion dans le modèle 1D. Les corrélations habituelles pour l'estimation de ce coefficient de dispersion se sont néanmoins avérées satisfaisantes dans la configuration simulée ici. En ce qui concerne la biologie, l'état stationnaire coïncide avec un équilibre entre la consommation et la maintenance de la biomasse, ce qui se traduit par

$$\varphi_{H_2,max} = \left\langle \frac{k_L a C_{H_2}^*}{\epsilon_L X} \right\rangle = m$$

Cette formule relie de manière pratique la concentration de la biomasse, la maintenance et le flux de transfert d'hydrogène pour donner une estimation rapide des trois paramètres si deux d'entre eux sont connus.

3.3. Recommandations pour le changement d'échelle de méthanation biologique

Dans cette section, les paramètres clés du procédé de méthanation biologique vont être présentés dans le but de souligner leur importance pour le dimensionnement optimal d'une colonne à bulles et le bon fonctionnement du procédé. Un modèle simplifié a été établi par une réduction du modèle 1D avec les conditions suivantes : régime permanent, limitation par le transfert d'hydrogène, composition entrée de H₂:CO₂ = 4 : 1. Ce modèle réduit conduit à pouvoir calculer directement la pureté et la productivité du méthane en sortie du réacteur à partir des équations 4 et 5 [NGU et al., 2023] à partir du rendement de transfert η :

$$y_{CH_4} = \frac{\eta}{5 - 4\eta} \quad [\text{équation 4}]$$

$$\text{Productivité} = \frac{\eta}{4V} Q_{H_2,in} \quad [\text{équation 5}]$$

$$\eta = \frac{T_{H_2}}{F_{H_2,in}} \quad [\text{équation 6}]$$

T_{H_2} est le flux molaire de transfert d'hydrogène et $F_{H_2,in}$ est le flux molaire d'hydrogène à l'entrée. L'équation 6 représente la conversion d'hydrogène qui est directement lié au transfert gaz-liquide T_{H_2} . L'amélioration du transfert gaz-liquide conduit à une meilleure performance biologique et par conséquent une meilleure conversion en méthane.

² Disponible en ligne : https://www.europeanbiogas.eu/wp-content/uploads/2017/09/7.-Electrochaea_EBA_Sept2017.pdf

Les prochaines discussions vont être basées sur les bonnes pratiques et les recommandations en termes d'ingénierie pour le design du bioréacteur de méthanation biologique qui passe nécessairement par un bon transfert de l'hydrogène injecté pour que η se rapproche de 1.

3.3.1. Distributeur de gaz

Comme pour la plupart des procédés gaz-liquide, le distributeur de gaz joue un rôle important sur l'hydrodynamique du réacteur. Dans la littérature, de nombreux travaux concernant l'influence du distributeur sur le mélange, la rétention gazeuse et le transfert gaz-liquide peuvent être trouvés [CHAUMAT et al., 2006; HAN et AL-DAHMAN, 2007; MCCLURE et al., 2016; MÖLLER et al., 2017; BESAGNI et al., 2018; ABRO et al., 2021]. Toutes conditions étant égales par ailleurs, un distributeur homogène et uniformément réparti sur la section du réacteur possède une meilleure performance de transfert gaz-liquide [ROUSTAN, 2003]. Cela évite également des zones sous ou surconcentrées en gaz dans la colonne qui génère des instabilités d'écoulement et des pertes de performances liées aux amas de bulles, voire à leur coalescence (figure 9). Pour les colonnes de laboratoire ou les pilotes, les distributeurs de type poreux en verre ou en métal (pore en 10 à 100 μ m) sont préférés, alors que pour les installations industrielles, les plateaux, tores ou tubes perforés sont majoritaires [TRAMBOUZE et EUZEN, 2002]. À l'échelle pilote, le diffuseur type plaque poreuse offre une meilleure performance de transfert gaz-liquide ($k_L a$) grâce à de plus petite taille de bulles générées [NGU et al., 2023]. Pour faciliter le changement d'échelle et être représentatif du régime hydrodynamique industriel, il est recommandé que la colonne utilisée pour les essais pilote présente un diamètre supérieur à 0,15 m, une hauteur supérieure à 1 m et un diamètre d'orifice compris entre 2 mm et 15 mm, avec le nombre à déterminer pour assurer un débit sensiblement égal à travers chaque orifice [WILKINSON et al., 1992; TRAMBOUZE et EUZEN, 2002].

3.3.2. Diamètre de bulles

Comme le facteur principal pour la performance biologique est le transfert d'hydrogène, le transfert gaz-liquide doit être maîtrisé pour permettre un changement d'échelle optimal. Le diamètre de bulles est un paramètre déterminant pour le transfert gaz-liquide. Plus le diamètre est petit, plus la surface spécifique d'échange gaz-liquide est importante. En termes d'ordre de grandeur, il a été montré par le calcul que le bioréacteur de Electrochaea nécessite un diamètre de

2 mm pour atteindre la spécificité de pureté et productivité de gaz à la sortie du réacteur [NGU *et al.*, 2022a, 2023]. Dans une autre application industrielle de fermentation du syngaz par les bactéries de type *C. ljungdahlii*, il a également montré qu'un diamètre de bulles de 2 mm est nécessaire pour garantir la performance de transfert gaz-liquide [PUIMAN *et al.*, 2022].

3.3.3. Diamètre et hauteur de la colonne

Pour un débit de gaz donné, le diamètre du réacteur fixe la vitesse superficielle de gaz et donc le régime d'écoulement : régime homogène, régime de transition et régime hétérogène [SHAH *et al.*, 1982; KRISHNA *et al.*, 1999]. Le diamètre de la colonne influe donc aussi sur les phénomènes de coalescence et le diamètre moyen des bulles. Il a été suggéré par différents auteurs que le diamètre de bulles moyen varie avec $D^{-0,3}$ en général [TRAMBOUZE et EUZEN, 2002]. Plus le diamètre du réacteur est petit, plus le risque de coalescence des bulles est grand, et plus le diamètre des bulles est grand, moins il est intéressant pour le transfert gaz-liquide.

Concernant la taille du réacteur, il est recommandé d'avoir une grande hauteur. Étant donné la faible solubilité d'hydrogène, il est primordial d'avoir un long temps de séjour des bulles pour prolonger le temps de contact gaz-liquide. À défaut, il faut envisager de recirculer une partie du gaz. Cela induira une meilleure conversion d'hydrogène et une sortie plus riche en méthane, d'après l'équation 4. Une hauteur de réacteur élevée implique également une pression hydrostatique plus élevée au fond de la colonne, et donc une plus grande solubilité des gaz. En supposant que le bioréacteur est en régime physique (concentration de substrat égal à zéro, car consommé par la biomasse), la forte solubilité en pied de colonne augmente la force motrice du transfert gaz-liquide, ΔC , ce qui privilégie le transfert d'hydrogène dès l'entrée du gaz. Le design du réacteur Electrochaea qui est une colonne de grande hauteur est donc très favorable pour l'échange gaz-liquide.

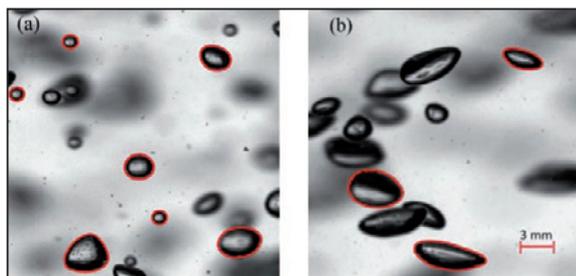


Figure 9. Population de bulles générées avec des distributeurs homogènes sur la section (à gauche, moyenne de 2,6 mm) et localisés en 4 frittés (moyenne de 4,1 mm) sur le pilote de laboratoire TBI

3.3.4. Pression opératoire

Dans la littérature, il a été revendiqué que l'augmentation de pression opératoire donne un impact positif sur la performance de conversion biologique [MARTIN *et al.*, 2013; SEIFERT *et al.*, 2014]. Intuitivement, l'augmentation de pression peut améliorer le transfert gaz-liquide en augmentant la solubilité de gaz. Cependant, il a été montré que l'augmentation de pression n'a pas nécessairement d'impact sur le transfert gaz-liquide [MAALEJ *et al.*, 2003; PUIMAN *et al.*, 2022; NGU *et al.*, 2023]. MAALEJ *et al.* [2003] ont montré que pour un débit massique de gaz donné, l'augmentation de pression implique une diminution drastique de $k_L a$, ce qui diminue rapidement le flux de transfert. En effet, d'après la loi de gaz parfait, pour un débit massique du gaz donné, plus la pression est grande, plus la rétention gazeuse sera faible, plus le $k_L a$ est petit. L'effet positif de la pression sur la solubilité sera exactement compensé par la chute de rétention gazeuse. Cet effet a été également démontré dans l'étude de fermentation de syngaz pour la production de bioéthanol [PUIMAN *et al.*, 2022].

Néanmoins, il a été revendiqué qu'une pression élevée est bénéfique pour retarder l'apparition du régime hétérogène en augmentant la vitesse de gaz superficielle de transition à une vitesse plus élevée [CLARK, 1990; WILKINSON, 1991]. Une surpression permet de délivrer un débit de gaz plus important par section de la colonne tout en restant dans un régime d'écoulement homogène, ce qui permet de retarder les phénomènes de coalescence ou d'essaims. Il est donc intéressant pour les applications industrielles de faire fonctionner les colonnes à bulles sous pression pour traiter une grande quantité de gaz-substrat. Les raisons sont davantage liées au régime d'écoulement gaz-liquide plus favorable qu'au flux transféré qui n'est pas amélioré via la solubilité du gaz.

Conclusion

Dans ce travail, une méthodologie pour le développement du procédé de méthanation biologique a été démontrée de l'échelle pilote à l'échelle industrielle. Tout d'abord, les données de bases sur la méthanation biologique ont été acquises dans une colonne à bulles de 22 L, notamment la pureté et la productivité du méthane en sortie. Deux types d'injecteur de gaz ont été testés expérimentalement pour étudier ses impacts sur la performance biologique. Il a été montré que le diffuseur uniforme et poreux offre un meilleur transfert gaz-liquide, ce qui implique un meilleur rendement et

une meilleure pureté en méthane pour un même débit massique de gaz. Sur la base de ces essais, deux modèles numériques complémentaires – le modèle 1D et le modèle CFD – ont été développés et validés pour expliquer le rôle des phénomènes physiques dans le procédé de méthanation biologique. Les résultats numériques permettent d'expliquer les tendances expérimentales et d'isoler le paramètre clé pour avoir une bonne performance biologique – le rendement du transfert d'hydrogène. Par ailleurs, une réduction du modèle a pu être réalisée pour les praticiens afin de faire des prédictions rapides sans avoir besoin de faire les simulations lourdes en temps de calcul. Les modèles 1D et CFD validés à l'échelle pilote ont été extrapolés pour prédire les performances d'Electrochaea – une des plus grandes unités de méthanation biologique actuelles. Les simulations numériques sont cruciales pour la conception des procédés, car les essais à grande échelle sont coûteux et représentent de nombreux défis techniques. À grande échelle, l'hydrodynamique se complique du fait de la réduction de débit de gaz lors de la réaction. Le diamètre des bulles et le taux de gaz diminuent du bas vers le haut de la colonne, ce qui génère une instabilité de l'écoulement et du panache

de bulles, notamment dans la zone basse de la colonne. Pour obtenir des bonnes performances biologiques à l'échelle industrielle, il est essentiel de parvenir à une conversion élevée de l'hydrogène en ayant des bulles de petit diamètre, des diffuseurs de gaz uniformément répartis et des colonnes de grande taille pour favoriser le temps de contact gaz-liquide. L'approche peut être transposée à tous les types de bioréacteurs avec fermentation gazeuse, ce qui facilite l'extrapolation du bioprocédé de l'échelle réduite à l'échelle industrielle qui s'appuie ainsi sur des règles issues de modèles rationnels et multi-échelles.

Remerciements

Ce travail a bénéficié d'une subvention de l'État gérée par l'Agence nationale de la recherche (ANR) dans le cadre du programme des Investissements d'Avenir sous la référence ANR-18-EURE-0021. Les travaux de CFD ont pu être réalisés grâce aux ressources HPC du centre de calcul Calmip dans le cadre de la subvention 2022 (P22025). Le travail expérimental a été réalisé grâce au financement de la région Occitanie et de l'Ademe dans le cadre des programmes Hycabiome et Hydromet.

Bibliographie

ABRO M., YU L., YU G., CHEN X., QAZI A.B. (2021) : « Experimental investigation of hydrodynamic parameters and bubble characteristics in CO₂ absorption column using pure ionic liquid and binary mixtures: Effect of porous sparger and operating conditions ». *Chemical Engineering Science*; 229 : 116041.

ALITALO A., NISKANEN M., AURA E. (2015) : « Biocatalytic methanation of hydrogen and carbon dioxide in a fixed bed bioreactor ». *Bioresource Technology*; 196 : 600-5.

ANGENENT L.T., USACK J.G., XU J., HAFENBRADL D., POSMANIK R., TESTER J.W. (2018) : « Integrating electrochemical, biological, physical, and thermochemical process units to expand the applicability of anaerobic digestion ». *Bioresource Technology*; 247 : 1085-94.

BASSANI I., KOUGIAS P.G., ANGELIDAKI I. (2016) : « In-situ biogas upgrading in thermophilic granular UASB reactor: key factors affecting the hydrogen mass transfer rate ». *Bioresource Technology*; 221 : 485-91.

BESAGNI G., GALLAZZINI L., INZOLI F. (2018) : « Effect of gas sparger design on bubble column hydrodynamics using pure and binary liquid phases ». *Chemical Engineering Science*; 176 : 116-26.

CHAUMAT H., BILLET A.-M., DELMAS H. (2006) : « Axial and radial investigation of hydrodynamics in a bubble column; influence of fluids flow rates and sparger type ». *International Journal of Chemical Reactor Engineering*; 4(1).

CLARK K.N. (1990) : « The effect of high pressure and temperature on phase distributions in a bubble column ». *Chemical Engineering Science*; 45 : 2301-7.

DECKWER W.-D., ADLER I., ZAIDI A. (1978) : « A comprehensive study on CO₂-interphase mass transfer in vertical cocurrent and countercurrent gas-liquid flow ». *The Canadian Journal of Chemical Engineering*; 56(1) : 43-55.

DÍAZ I., PÉREZ C., ALFARO N., FDZ-POLANCO F. (2015) : « A feasibility study on the bioconversion of CO₂ and H₂ to biomethane by gas sparging through polymeric membranes ». *Bioresource Technology*; 185 : 246-53.

DUPNOCK T.L., DESHUSSES M.A. (2019) : « Detailed investigations of dissolved hydrogen and hydrogen mass transfer in a biotrickling filter for upgrading biogas ». *Bioresource Technology*; 290 : 121780.

GRIMALT-ALEMANY, A., SKIADAS, I.V., GAVALA, H.N. (2018) : « Syngas biomethanation: state-of-the-art review and perspectives ». *Biofuels, Bioproducts and Biorefining* ; 12(1) : 139-58.

HAN L., AL-DAHMAN M.H. (2007) : « Gas-liquid mass transfer in a high pressure bubble column reactor with different sparger designs ». *Chemical Engineering Science; Fluidized Bed Applications* 62(1-2), 131-9.

JENSEN M.B., OTTOSEN L.D.M., KOFOED M.V.W. (2021a) : « H₂ gas-liquid mass transfer: A key element in biological

- Power-to-Gas methanation ». *Renewable and Sustainable Energy Reviews*; 147 : 111209.
- JENSEN M.B., POULSEN S., JENSEN B., FEILBERG A., KOFOED M.V.W. (2021b) : « Selecting carrier material for efficient biomethanation of industrial biogas-CO₂ in a trickle-bed reactor ». *Journal of CO₂ Utilization*; 51 : 101611.
- KIMMEL D.E., KLASSON K.T., CLAUSEN E.C., GADDY J.L. (1991) : « Performance of trickle-bed bioreactors for converting synthesis gas to methane ». *Applied Biochemistry and Biotechnology*; 28 : 457-69.
- KOUGIAS P.G., TREU L., BENAVENTE D.P., BOE K., CAMPANARO S., ANGELIDAKI I. (2017) : « Ex-situ biogas upgrading and enhancement in different reactor systems ». *Bioresource Technology*; 225 : 429-37.
- KRISHNA R., URSEANU M.I., VAN BATEN J.M., ELLENBERGER J. (1999) : « Influence of scale on the hydrodynamics of bubble columns operating in the churn-turbulent regime: experiments vs. Eulerian simulations ». *Chemical Engineering Science*; 54(21) : 4903-11.
- LAGUILLAUMIE L., RAFRAFI Y., MOYA-LECLAIR E., DELAGNES D., DUBOS S., SPÉRANDIO M., PAUL E., DUMAS C. (2022) : « Stability of ex situ biological methanation of H₂/CO₂ with a mixed microbial culture in a pilot scale bubble column reactor ». *Bioresource Technology*; 354 : 127180.
- LARDON L., THORBERG D., KROSGAARD L. (2018) : *Biogaz valorization and efficient energy management. D 3.2. Technical an economic analysis of biological methanation*. Disponible en ligne : <https://ec.europa.eu/research/participants/documents/downloadPublic?documentId=080166e5af252ade&appId=PPGMS>
- LECKER B., ILLI L., LEMMER A., OECHSNER H. (2017) : « Biological hydrogen methanation – A review ». *Bioresource Technology*; 245(A) : 1220-8.
- LUO G., ANGELIDAKI I. (2012) : « Integrated biogas upgrading and hydrogen utilization in an anaerobic reactor containing enriched hydrogenotrophic methanogenic culture ». *Biotechnology and Bioengineering*; 109(11) : 2729-36.
- LUO G., ANGELIDAKI I. (2013) : Hollow fiber membrane based H₂ diffusion for efficient *in situ* biogas upgrading in an anaerobic reactor. *Applied Microbiology and Biotechnology*; 97 : 3739-44.
- MAALEJ S., BENADDA B., OTTERBEIN M. (2003) : « Interfacial area and volumetric mass transfer coefficient in a bubble reactor at elevated pressures ». *Chemical Engineering Science*; 58 : 2365-76.
- MCCLURE D.D., WANG C., KAVANAGH J.M., FLETCHER D.F., BARTON G.W. (2016) : « Experimental investigation into the impact of sparger design on bubble columns at high superficial velocities ». *Chemical Engineering Research and Design*; 106 : 205-13.
- MARTIN M.R., FORNERO J.J., STARK R., METS L., ANGENENT L.T. (2013) : A single-culture bioprocess of *Methanothermobacter thermoautotrophicus* to upgrade digester biogas by CO₂-to-CH₄ Conversion with H₂. *Archaea*; vol. 2013 : 157529.
- MÖLLER F., SEILER T., LAU Y.M., WEBER M.F., WEBER M.K., HAMPEL U., SCHUBERT M. (2017) : « Performance comparison between different sparger plate orifice patterns: Hydrodynamic investigation using ultrafast X-ray tomography ». *Chemical Engineering Journal*; 316, 857-71.
- NGU V., MORCHAIN J., COCKX A. (2022a) : « Spatio-temporal 1D gas-liquid model for biological methanation in lab scale and industrial bubble column ». *Chemical Engineering Science*; 251 : 117478.
- NGU V., MORCHAIN J., COCKX A. (2022b) : « In-depth analysis of reactive bubbly flow using two-way coupled spatio-temporal 1D model ». *Chemical Engineering Science*; 261 : 117963.
- NGU V., FLETCHER D.F., KAVANAGH J.M., RAFRAFI Y., DUMAS C., MORCHAIN J., COCKX A. (2023) : « H₂ mass transfer – A key factor for efficient biological methanation: Comparison between pilot-scale experimental data, 1D and CFD models ». *Chemical Engineering Science*; 268, 118382.
- PEILLEX J.-P., FARDEAU M.-L., BOUSSAND R., NAVARRO J.-M., BELAICH J.-P. (1988) : « Growth of *Methanococcus thermoautotrophicus* in batch and continuous culture on H₂ and CO₂: influence of agitation ». *Applied Microbiology Biotechnology*; 29 : 560-4.
- PUIMAN L., ABRAHAMSON B., LANS, R.G.J.M. VAN DER HARINGA C., NOORMAN H.J., PICIOREANU C. (2022) : « Alleviating mass transfer limitations in industrial external-loop syngas-to-ethanol fermentation ». *Chemical Engineering Science*; 259 : 117770.
- RAFRAFI Y., LAGUILLAUMIE L., DUMAS C. (2020) : « Biological methanation of H₂ and CO₂ with mixed cultures: current advances, hurdles and challenges ». *Waste and Biomass Valorization*; 12 : 5259-82.
- ROUSTAN M., ed. (2003) : *Transferts gaz-liquide dans les procédés de traitement des eaux et des effluents gazeux*. Paris : Tec et Doc Lavoisier.
- RUSMANIS D., O'SHEA R., WALL D.M., MURPHY J.D. (2019) : « Biological hydrogen methanation systems – an overview of design and efficiency ». *Bioengineered*; 10(1) : 604-34.
- SCHAAF T., GRÜNIG J., SCHUSTER M.R., ROTHENFLUH T., ORTH A. (2014) : « Methanation of CO₂ – storage of renewable energy in a gas distribution system ». *Energy, Sustainability and Society*; 4(2).
- SCULLY J., CONSIDINE L.B., SMITH M.T., MCALEA E., JONES N., O'CONNELL E., MADSEN E., POWER M., MELLORS P., CROWLEY J., O'LEARY N., CARVER S., VAN PLEW D. (2020) : « Beyond heuristics: CFD-based novel multiparameter scale-up for geometrically disparate bioreactors demonstrated at industrial 2kL–10kL scales ». *Biotechnology and Bioengineering*; 117 : 1710-23.
- SEIFERT A.H., RITTMANN S., HERWIG C. (2014) : « Analysis of process related factors to increase volumetric productivity and quality of biomethane with *Methanothermobacter marburgensis* ». *Applied Energy*; 132 : 155-62.
- SHAH Y.T., KELKAR B.G., GODBOLE S.P., DECKWER W.-D. (1982) : « Design parameters estimations for bubble column reactors ». *AIChE Journal*; 28(3) : 353-79.
- SIEBLER F., LAPIN A., HERMANN M., TAKORS R. (2019) : « The impact of CO gradients on *C. ljungdahlii* in a 125 m³ bubble column: Mass transfer, circulation time and lifeline analysis ». *Chemical Engineering Science*; 207 : 410-23.
- SIEBLER F., LAPIN A., TAKORS R. (2020) : « Synergistically applying 1-D modeling and CFD for designing industrial scale bubble column syngas bioreactors ». *Engineering in Life Sciences*; 20(7) : 239-51.

STRÜBING D., MOELLER A.B., MÖBNANG B., LEBUHN M., DREWES J.E., KOCH K. (2018) : « Anaerobic thermophilic trickle bed reactor as a promising technology for flexible and demand-oriented H₂/CO₂ biomethanation ». *Applied Energy*; 232 : 543-54.

SVEINBJÖRNSSON D., MÜNSTER E. (2017) : « WP1: Gas conditioning and grid operation - Upgrading of biogas to biomethane with the addition of hydrogen from electrolysis ». Skørping: PlanEnergi ».

THEMA M., BAUER F., STERNER M. (2019) : « Power-to-Gas: Electrolysis and methanation status review ». *Renewable and Sustainable Energy Reviews*; 112 : 775-87.

TRAMBOUZE P., EUZEN J.-P. (2002) : *Les réacteurs chimiques. De la conception à la mise en œuvre*. Paris : Technip.

ULLRICH T., LINDNER J., BÄR K., MÖRS F., GRAF F., LEMMER A. (2018) : « Influence of operating pressure on the biological hydrogen methanation in trickle-bed reactors ». *Bioresource Technology*; 247 : 7-13.

ULLRICH T., LEMMER A. (2019) : « Performance enhancement of biological methanation with trickle bed reactors by liquid flow modulation ». *GCB Bioenergy*; 11(1) : 63-71.

VOELKLEIN M.A., RUSMANIS D., MURPHY J.D. (2019) : « Biological methanation: Strategies for in-situ and ex-situ upgrading in anaerobic digestion ». *Applied Energy*; 235 : 1061-71.

WESTERLING A.L., BRYANT B.P. (2008) : « Climate change and wildfire in California ». *Climatic Change*; 87 : 231-49.

WILKINSON P.M. (1991) : *Physical aspects and scale-up of high pressure bubble columns*. Disponible en ligne : <https://research.rug.nl/en/publications/physical-aspects-and-scale-up-of-high-pressure-bubble-columns>

WILKINSON P.M., SPEK A.P., VAN DIERENDONCK L.L. (1992) : « Design parameters estimation for scale-up of high-pressure bubble columns ». *AIChE Journal*; 38(4) : 544-54.

XU J., GRUMBINE R.E., SHRESTHA A., ERIKSSON M., YANG X., WANG Y., WILKES A. (2009) : « The melting Himalayas: cascading effects of climate change on water, biodiversity, and livelihoods ». *Conservation Biology*; 23(3) : 520-30.

ZWART K., NAP J.P. (2017) : *Power to methane: state-of-the-art and future prospects of biological power-to-methane (BioP2M) approaches*. Disponible en ligne : https://research.hanze.nl/ws/portalfiles/portal/25427991/power2methaneBioP2G_hanze_def.pdf



SOLUTION DE SURVEILLANCE EN CONTINU

Réseaux eau potable



I-CENSE

Disponible juin 2024

Multiparamètres

6 mesures essentielles en 1 seul point

- Chlore libre
- Turbidité
- Conductivité
- Température
- Débit
- Pression



Communicante

4G . NB-IoT . LTE-M



Mesures précises

Basées sur les normes en vigueur



Faible maintenance

1 fois par an sans outillage



Autonome

Alimentation par piles
Remplacement annuel



I-CENSE™ la solution autonome et communicante

EFS - 192, allée des chênes - ZAC du baconnet - Montagny - 69700 • www.efs.fr - sales_env@efs.fr

Brandenburger Liner BB^{2.5}

La gaine pour toutes les géométries

BB^{2.5} VERTICAL
chemisage de regards



BB^{2.5}

— durable — maniable —
— fiable — flexible —



BB^{2.5} FLEX / BB^{2.5} FLEX XL
coudes et variations de DN

Depuis 1995 6000 km de gaines produites.

Démos BB 2.5 Flex au Salon VST

du 29 au 30 Mai stand E10

 Brandenburger



www.brandenburger-liner.com
welcome@brandenburger.de