



HAL
open science

Mise en évidence de l'accélération du transfert de matière en méthanation biologique d'H₂/CO₂

Pierre Buffière, H. Benbelkacem, Stéphane Hattou, Ruben Teixeira Franco

► To cite this version:

Pierre Buffière, H. Benbelkacem, Stéphane Hattou, Ruben Teixeira Franco. Mise en évidence de l'accélération du transfert de matière en méthanation biologique d'H₂/CO₂. 18ème congrès de la Société Française de Génie des Procédés, Nov 2022, Toulouse, France. hal-04166642

HAL Id: hal-04166642

<https://hal.science/hal-04166642>

Submitted on 20 Jul 2023

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Mise en évidence de l'accélération du transfert de matière en méthanation biologique d'H₂/CO₂

Pierre Buffiere¹, Hassen Benbelkacem¹, Stéphane Hattou², Ruben Teixeira Franco²

1 : Univ Lyon, INSA Lyon, DEEP EA7429, 69621 Villeurbanne, France

2 : Arkolia Energies, 34130 Mudaison, France

Introduction

La méthanation biologique a connu un regain d'intérêt considérable ces dernières années en Europe. Ce procédé permet en effet de convertir le CO₂ en méthane. L'hydrogène nécessaire peut être produit par électrolyse en utilisant une source d'électricité renouvelable excédentaire, permettant ainsi le stockage de cette énergie dans le réseau de gaz naturel (Bassani et al., 2017). Cette réaction met en jeu des espèces microbiennes dites hydrogénotrophes qui n'utilisent que le CO₂ et l'hydrogène comme source de carbone et d'énergie pour leur croissance. L'hydrogène étant peu soluble dans l'eau, le transfert de matière gaz-liquide est l'étape limitante du procédé (Rafrafi et al., 2020). Le flux de transfert est classiquement décrit comme le produit du coefficient de transfert par la force motrice (différence de concentration entre la saturation et la phase liquide) :

$$N_{H_2} = k_L a_{H_2} \times (p_{H_2} H_{H_2} - S_{H_2,liq}) \quad (1)$$

Notre étude a pour objet de confirmer l'impact de cette limitation dans un réacteur de 10 L (colonne agitée) et de caler un modèle de couplage transfert / réaction.

Matériels et méthodes

Le réacteur (hauteur 50 cm, diamètre 15 cm) est équipé d'un diffuseur de gaz, de deux mobiles d'agitations radiaux et de contrepales. Le coefficient de transfert a été mesuré en conditions abiotiques par la méthode de réoxygénation à différents débits gazeux et vitesses d'agitation. Le même réacteur a ensuite été utilisé pour la biométhanation : un inoculum anaérobie (boues digérées de station d'épuration) a été acclimaté au mélange H₂/CO₂ (80/20). Après quelques semaines d'adaptation à 55°C, le réacteur était stable et nous avons appliqué au système 4 conditions de fonctionnement (faible et forte vitesse d'agitation, faible et forte vitesse de gaz, voir Tableau 1).

Nous utilisons un modèle biocinétique incluant le transfert gaz-liquide afin de comparer nos résultats expérimentaux. Le modèle inclus deux mécanismes biologiques (méthanogenèse hydrogénotrophe et mort cellulaire) et les équilibres chimiques, de manière similaire au modèle ADM1 (Batstone et al., 2002). La phase liquide est considérée comme parfaitement agitée et la phase gazeuse a un comportement piston (Inkeri et al., 2018). Le coefficient de transfert $k_L a$ est déduit des expériences abiotiques.

Résultats et conclusions

Les 100 mesures de $k_L a$ en conditions abiotiques (20°C) et avec l'oxygène ont été corrigées afin de tenir compte de la nature du gaz (hydrogène) et de la température. Nous avons obtenu la corrélation suivante ($R^2=0,986$), où P_v est la puissance d'agitation et u_g la vitesse de gaz.

$$k_L a_{H_2,55^\circ C} = 5.31 \times P_v^{0.35} \times u_g^{0.69}, 0.5 \leq P_v \leq 7.2 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-3}; 3.9 \cdot 10^{-5} \leq u_g \leq 4.9 \cdot 10^{-4} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$$

Lors des essais en continu dans les différentes conditions testées, la conversion de l'hydrogène a varié entre 60 % (vitesse d'agitation 500 tr/min, débit de gaz 10 L/h, CNTP) à plus de 99 % (forte intensité de mélange), confirmant ainsi l'importance du transfert de matière. Le modèle n'a pas pu reproduire ces performances et prévoyait systématiquement des valeurs inférieures (Tableau 1). L'ajustement des paramètres biocinétiques n'a eu aucun effet sur les résultats du modèle ; seule l'augmentation du coefficient de transfert de l'hydrogène a eu une influence sur les simulations. Cette constatation nous a conduit à envisager une amélioration du transfert en présence de la réaction et à prendre en compte un facteur d'accélération (de l'ordre de 1,8 aux faibles vitesses d'agitation à plus de 5 aux fortes vitesses).

$$N_{H_2} = k_L a_{H_2} \times E \times (p_{H_2} H_{H_2} - S_{H_2,liq}) \quad (2)$$

L'amélioration du transfert se produit lorsque la réaction a lieu, en partie ou en totalité, dans le film de diffusion côté liquide. C'est un phénomène connu dans le cas des systèmes d'absorption avec réaction chimique (de Coursey, 1982) qui est lié au fait que la réaction est plus rapide que la diffusion moléculaire. Cependant, un tel phénomène n'est pas très courant dans le domaine des systèmes biologiques et, à notre connaissance, n'est pas pris en compte dans les modèles de simulation de la biométhanation. Cette question ouvre de nouvelles perspectives en recherche et plus spécifiquement sur la compréhension de la structure du film de diffusion liquide à l'interface gaz-liquide.

Table 1: Principaux résultats : dans les différentes conditions expérimentales testées, le modèle sous-estime de manière systématique le rendement de conversion de l'hydrogène. Le facteur d'accélération E (dernière colonne) est la valeur permettant de caler le modèle aux résultats expérimentaux obtenus en continu.

Condition	Q_{gaz_e}	N_{mix}	u_g	P_v	Rendement conversion H_2		E
#	(L_{CNTP}/h)	tr/min	$m.s^{-1}$	$kW.m^{-3}$	exp.	model	-
1	10	950	$1.9 \cdot 10^{-4}$	3.2	99.3%	59.1%	5.4
2	10	500	$1.9 \cdot 10^{-4}$	0.5	60.3%	37.7%	1.9
3	5	950	$9.4 \cdot 10^{-5}$	3.2	99.7%	67.4%	5.1
4	5	500	$9.4 \cdot 10^{-5}$	0.5	66.8%	44.6%	1.8

Références bibliographiques

- Bassani, I., Kougias, P.G., Treu, L., Porté, H., Campanaro, S., Angelidaki, I. Optimization of hydrogen dispersion in thermophilic up-flow reactors for ex situ biogas upgrading. *Bioresour. Technol.*, 2017, 234, 310–319. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2017.03.055>.
- Batstone, D.J., et al. Anaerobic digestion model n°1 (ADM1). IWA Scientific and Technical report #13, 2002, 77p.
- DeCoursey, W.J. Enhancement factors for gas absorption with reversible reaction. *Chem. Eng. Sci.* 1982, 37, 1483–1489.
- Inkeri, E., Tynjälä, T., Laari, A., Hyppänen, T. Dynamic one-dimensional model for biological methanation in a stirred tank reactor. *Appl. Energy* 2018, 209, 95–107. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2017.10.073>.
- Rafrafi, Y., Laguillaumie, L., Figueras, J., Dumas, C., 2021. Correction to: Biological Methanation of H_2 and CO_2 with Mixed Cultures: Current Advances, Hurdles and Challenges. *Waste and Biomass Valorization*, 2021, 12, 5283. <https://doi.org/10.1007/s12649-021-01346-9>.