



**HAL**  
open science

## Procédés intensifiés de photooxygénation : vers une modélisation multiphysiques et multi-échelles

Fontana Lazzari, Micheline Abbas, Jean-François Blanco, Jérémie Dauchet, Fabrice Gros, Thomas Vourc'h, Jean-François Cornet, Karine Loubière

### ► To cite this version:

Fontana Lazzari, Micheline Abbas, Jean-François Blanco, Jérémie Dauchet, Fabrice Gros, et al.. Procédés intensifiés de photooxygénation : vers une modélisation multiphysiques et multi-échelles. 19ème Congrès Francophone de Génie des Procédés, SFGP, Oct 2024, Deauville, France. hal-04796218

**HAL Id: hal-04796218**

**<https://hal.science/hal-04796218v1>**

Submitted on 21 Nov 2024

**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.

## Procédés intensifiés de photooxygénation : vers une modélisation multi-physiques et multi-échelles

Eduardo FONTANA LAZZARI<sup>1,2</sup>, Micheline ABBAS<sup>1</sup>, Jean-François BLANCO<sup>1</sup>, Jérémie DAUCHET<sup>2</sup>, Fabrice GROS<sup>2</sup>, Thomas VOURC'H<sup>2</sup>, Jean-François CORNET<sup>2</sup> et Karine LOUBIERE<sup>1</sup>

*1 Laboratoire de Génie Chimique (LGC), Université de Toulouse, CNRS, INPT, UPS, France*

*2 Université Clermont Auvergne, Clermont Auvergne INP, CNRS, Institut Pascal, F-63000 Clermont-Ferrand, France.*

eduardo.fontanalazzari@toulouse-inp.fr

### RESUME

Le génie des systèmes photoréactifs étudie la conversion directe, par interaction avec la matière, du rayonnement en diverses molécules d'intérêt. Les longueurs d'onde considérées doivent être suffisamment énergétiques et appartiennent, à l'UV, au visible ou au proche infrarouge. Dans le cadre de la transition énergétique et environnementale en cours, ces procédés sont de plus en plus nombreux, riches et variés. On peut citer de façon non exhaustive la production de biocarburants de 3<sup>ème</sup> génération, la production de carburants solaires par photosynthèse artificielle, la mitigation et la réduction du CO<sub>2</sub>, la dépollution des effluents ou la photochimie organique. Toutes ces applications mettent en jeu des technologies différentes qui ont leurs performances cinétiques et énergétiques entièrement contrôlées par la physique du transfert de rayonnement à différentes échelles, leur conférant une forte sensibilité à la géométrie et aux conditions aux limites. Ainsi, la simulation, le design inverse et l'optimisation de ces technologies nécessitent de développer des modèles de connaissance prédictifs et réifiés qui comportent a minima trois volets : (i) le calcul des propriétés radiatives du système photoréactif qui fait appel au corpus de l'électromagnétisme, (ii) la résolution de l'équation du transfert radiatif en milieu semi-transparent, et (iii) la formulation d'une loi de couplage thermocinétique, afin d'accéder au champ local des vitesses de réaction. Ces modèles, multi-physiques et multi-échelles, génèrent une complexité telle qu'ils ne peuvent être que très difficilement résolus par des méthodes déterministes classiques. La reformulation intégrale de leur solution offre l'avantage d'échantillonner statistiquement les observables que l'on souhaite calculer grâce aux dernières avancées de la méthode de Monte Carlo (Dauchet et al., 2013 ; Delatorre et al., 2014). Dans ces conditions, la méthode bénéficie d'une insensibilité du temps de calcul à la complexité géométrique et au nombre d'échelles décrites dans le modèle. Ces caractéristiques sont les seules garantes de la possibilité d'utiliser des modèles physiques multi-échelles pour réaliser du design inverse et de l'optimisation sous contrainte.

Coté applicatif, les technologies microstructurées continues irradiées par des LEDs constituent un des exemples de géométrie complexe de système photoréactif appliqué à la photochimie organique. Ces dispositifs ont permis de s'affranchir des limitations classiquement rencontrées dans des photoréacteurs batch éclairés par des lampes à mercure polychromatiques et énergivores (Loubière et al., 2016). De par leur petite échelle, et l'intensification des phénomènes de transferts résultante, ils permettent d'atteindre des rendements et des sélectivités accrus avec des temps d'irradiation courts (~min), et cela même avec des concentrations en chromophores élevées. En conséquence, depuis une dizaine d'années, le domaine de la « flow photochemistry » connaît un essor remarquable, essentiellement à l'échelle laboratoire même si des premiers exemples de transposition à l'échelle industrielle apparaissent (Zhang et Roth, 2023).

Ce travail se propose dans un premier temps de développer un code de Monte Carlo pour résoudre l'équation de transfert radiatif en géométrie complexe et pour un milieu absorbant, diffusant et luminescent. Différentes géométries de photoréacteurs seront prédéfinies, mais l'utilisateur pourra proposer sa propre CAO. Il devra également spécifier les propriétés radiatives spectrales de son milieu matériel et proposer une loi de couplage thermocinétique qui est spécifique à son application. Ce code sera distribué en tant que ressource *Open Source* à la communauté internationale après avoir été validé sur des résultats expérimentaux. Pour cela, le modèle de système photoréactif choisi relève du domaine de la photochimie organique. Cette voie de synthèse, respectueuse des principes de la chimie verte, donne accès à des molécules de haut degré de complexité moléculaire, souvent en une étape, dans des conditions douces et sans ajout de réactifs supplémentaires. L'oxygène singulet (<sup>1</sup>O<sub>2</sub>), oxydant puissant et sélectif en synthèse, peut être généré par photosensibilisation de l'oxygène moléculaire (triplet), le plus souvent dans le domaine du visible et en

présence d'une faible quantité d'un photosensibilisateur organique. Ce travail se focalisera sur la réaction entre l' $\alpha$ -terpinène et l' $^1\text{O}_2$  conduisant à la formation d'ascaridole (Radjagobalou et al, 2018). Les expériences seront d'abord réalisées dans un photoréacteur de géométrie simple cartésienne 1D (Figure 1a) afin de valider le modèle en condition d'écoulement parfaitement mélangé. Le modèle sera ensuite étendu pour l'application dans des réacteurs microfluidiques continus (Figure 1b). Ces microréacteurs sont très efficaces pour la mise en œuvre des réactions de photooxygénation car le transfert de matière gaz-liquide y est intensifié, ce qui garantit *a priori* que seul le transfert de rayonnement contrôle les performances du procédé. Par contre, ils rendent nécessaire d'intégrer la description de l'écoulement laminaire de Taylor dans la formulation du couplage, ce qui peut amener à résoudre le transfert radiatif dans des milieux possédant un champ de concentration (qui devra alors être intégré au code Monte Carlo utilisé).



Fig. 1. (a) Photoréacteur de référence avec conditions hydrodynamiques parfaitement maîtrisées (Dahi et al., 2015) et (b) réacteur microfluidique en continu de forme spiralée (Radjagobalou et al, 2018).

La présentation que nous proposons à travers cette communication fera le point sur l'avancement du logiciel libre de résolution de l'équation de transfert radiatif en géométrie complexe par la méthode de Monte Carlo. Elle présentera l'état de l'art sur le calcul des propriétés radiatives du milieu photoréactif retenu et, avec une loi de couplage déjà connue de travaux antérieurs (Radjagobalou et al., 2018) discutera la confrontation du modèle de connaissance aux résultats expérimentaux obtenus dans le photoréacteur torique 1D. En perspective, l'extension à la modélisation et validation expérimentale dans le microréacteur spiralé sera envisagée, ainsi que l'utilisation de l'énergie solaire.

## MOTS-CLES DU THEME

*Génie des systèmes photoréactifs, Photochimie organique, Transfert de rayonnement.*

## MOTS-CLES LIBRES

*Méthode de Monte Carlo, Oxygène singulet, Modélisation, Propriétés radiatives.*

## REFERENCES

- Dahi, G., Eskandari, A., Dauchet, J., Gros, F., Roudet, M., & Cornet, J.-F. (2015). A novel experimental bench dedicated to the accurate radiative analysis of photoreactors : The case study of CdS catalyzed hydrogen production from sacrificial donors. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 98, 174-186.
- Dauchet, J., Blanco, S., Cornet, J.-F., El Hafi, M., Eymet, V., & Fournier, R. (2013). The practice of recent radiative transfer Monte Carlo advances and its contribution to the field of microorganisms cultivation in photobioreactors. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 128, 52-59.
- Delatorre, J., Baud, G., Bézian, J. J., Blanco, S., Caliot, C., Cornet, J. F., Coustet, C., Dauchet, J., El Hafi, M., Eymet, V., Fournier, R., Gautrais, J., Gourmel, O., Joseph, D., Meilhac, N., Pajot, A., Paulin, M., Perez, P., Piaud, B., ... Weitz, S. (2014). Monte Carlo advances and concentrated solar applications. *Solar Energy*, 103, 653-681.
- Loubière, K., Oelgemöller, M., Aillet, T., Dechy-Cabaret, O., & Prat, L. (2016). Continuous-flow photochemistry : A need for chemical engineering. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 104, 120-132.
- Radjagobalou, R., Blanco, J.-F., Dechy-Cabaret, O., Oelgemöller, M., & Loubière, K. (2018). Photooxygenation in an advanced led-driven flow reactor module : Experimental investigations and modelling. *Chemical Engineering and Processing - Process Intensification*, 130, 214-228.
- Zhang, M., & Roth, P. (2023). Flow photochemistry—From microreactors to large-scale processing. *Current Opinion in Chemical Engineering*, 39, 100897.