

Sujet de Thèse 2024

Maitrise des écoulements multiphasiques et mise en œuvre de la photocatalyse en réacteur Taylor-Couette



Contacts CEA

Sophie Charton
CEA/DES/ISEC/DMRC
30207 Bagnols-sur-Cèze Cedex
Tel: +(33) 466-796-229
Mèl : sophie.charton@cea.fr

German Garzon Losik
CEA/DES/ISEC/DMRC/STDC/LRVE
30207 Bagnols-sur-Cèze Cedex
Tel: +(33) 466-397-349
Mèl : german.garzonlosik@cea.fr

Contact IMFT

Eric Climent
Institut de Mécanique des Fluides de
Toulouse
Allée Pr. Camille Soula
31400 Toulouse
Tel: +(33) 5 3432-2886
Mèl : eric.climent@imft.fr

Profils de candidature recherchée : Master ou Ingénieur

- Génie Chimique
- Mécanique des fluides et Transferts

Contexte et objectifs

Les procédés exploitant la photocatalyse hétérogène sont une technologie prometteuse dans la mitigation des impacts écologiques. Leurs applications principales sont la dépollution (traitement des eaux usées, la purification de l'air, etc.) et la valorisation du CO₂ (croissance de micro-algues, production du H₂) (Binjhade *et al.*, 2022 ; Supplis, 2020). Le principe de ce procédé repose sur les propriétés de conduction électrique des semi-conducteurs et exploite des processus dans lesquels la lumière, à une énergie suffisante, interagit avec la surface du semi-conducteur (Figure 1). Pour la dépollution de l'eau, le fluide à traiter est mis en contact avec un catalyseur solide activé par l'action de la lumière permettant ainsi la dégradation des composés organiques présents au sein du fluide. Parmi les matériaux ayant des propriétés photocatalytiques, le dioxyde de titane (TiO₂) est le plus utilisé en raison de sa disponibilité, de sa stabilité chimique et de son faible coût.

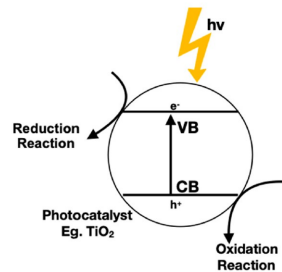


Figure 1. Représentation schématique de la réaction d'oxydation lors de la photo-activation d'un semi-conducteur. (Friedmann, 2022)

L'efficacité d'un tel procédé dépend de nombreux facteurs, tels que **l'hydrodynamique du réacteur notamment en situation multiphasique** (fluide porteur, particules catalytiques, gaz produits) et la chimie, mais au premier ordre, et quel que soit le système physico-chimique considéré, de la **transmission de la lumière à l'intérieur du milieu réactionnel** en écoulement.

Une marge significative pour l'optimisation d'un tel procédé, commune à tous les systèmes, réside donc dans la capacité à maîtriser le transfert radiatif couplé à la dispersion des particules de catalyseur au sein de l'écoulement. **L'objectif de la Thèse est donc d'amener une compréhension approfondie des interactions entre l'apport de lumière, les écoulements et le transport des particules réactives** afin d'améliorer la conception de ces systèmes hétérogènes et rendre possible leur exploitation à une échelle industrielle.

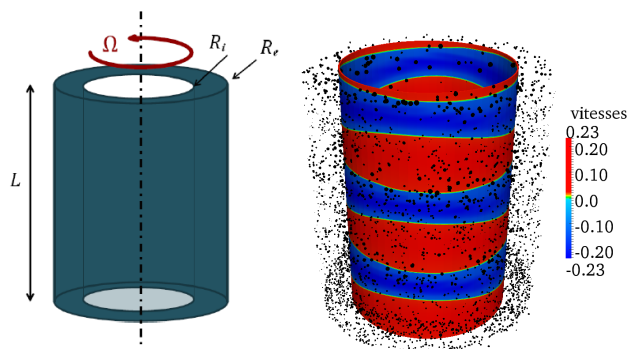


Figure 2. Schéma d'une configuration Taylor-Couette (à gauche) avec une représentation de la vitesse relative de l'écoulement polyphasique déterminée par DNS (à droite).



L'optimisation de ces paramètres est liée au type de réacteur et donc au type d'écoulement mis en œuvre. Une géométrie de réacteur communément utilisée en génie chimique est le réacteur à écoulement Taylor-Couette. De façon schématisée, ce réacteur est généralement composé de deux cylindres concentriques dont le cylindre interne en rotation entraîne le fluide formant ainsi une zone d'écoulement annulaire (Figure 2 droite). Plusieurs instabilités hydrodynamiques peuvent se produire et conduire notamment à la présence de tourbillons annulaires favorables à la dispersion des particules de catalyseur (Figure 2 gauche). Les principaux avantages de ce type de réacteur pour étudier un procédé photocatalytique sont :

- Simplicité de la géométrie cylindrique, un rapport surface/volume élevé permettant une bonne incidence lumineuse et une maîtrise du transfert radiatif
- Écoulement dont la transition vers la turbulence est bien documentée (évolution maîtrisée de l'écoulement piston pur à la turbulence complète en jouant sur la rotation du cylindre intérieur).
- Possibilité de disperser du gaz de façon contrôlée et de maîtriser la dispersion des particules solides.

L'objectif de ce sujet de thèse est de **mieux comprendre les propriétés des réacteurs Taylor-Couette pour un meilleur contrôle des couplages multi-échelles/multi-physiques lors des réactions photocatalytiques en écoulement**. Les deux approches, numérique et expérimentale, s'insèrent dans une démarche dont l'objectif est la montée en échelle de ce type de procédé pour une exploitation industrielle à terme. Pour ce faire, une étude des interactions lumière-matière dans ces écoulements complexes multiphasiques sera menée de **manière expérimentale et en soutien à des simulations numériques couplées du transfert radiatif et de l'hydrodynamique**.

Démarche

Même si le nombre d'articles portant sur l'étude des réactions photochimiques en réacteur de Taylor Couette est limité, il existe certains travaux qui pourront servir de point de départ pour cette étude. Parmi ceux-ci, on peut noter les travaux de Paule et al. (2011) portant sur la culture de micro-organismes sous forme de films sur le cylindre externe du réacteur et éclairé par le cylindre interne. D'autres chercheurs (Dutta et al. 2004, Sengupta et al. 2001, Forney et Pierson 2003) se sont également intéressés à l'efficacité globale de différentes réactions photochimiques en fonction des conditions de fonctionnement expérimentales, de la concentration de polluants et de la concentration de solides dans ce type de réacteur.

La démarche proposée dans cette thèse s'appuiera sur deux approches complémentaires : **une approche par simulation numérique du modèle couplé et une approche expérimentale pour acquérir les propriétés optiques du dispositif et la validation des simulations**.

La première partie, dédiée au couplage entre un modèle de transfert radiatif par méthode de Monte-Carlo et des simulations numériques directes (DNS) de l'hydrodynamique du réacteur, nécessitera l'utilisation de données expérimentales permettant notamment de déterminer les propriétés optiques du milieu pour décrire le comportement des photons dans ce dernier via ses propriétés radiatives (par exemple les sections efficace d'absorption et de diffusion (Supplis, 2020)). Ces données seront dans un deuxième temps implémentées dans un modèle de transport de la lumière et couplées avec des simulations numériques directes (DNS) de l'écoulement dans le réacteur Taylor-Couette. Ceci nécessitera la prédiction de la distribution spatiale des particules (et éventuellement du gaz) au sein de l'écoulement. Enfin, sur la base d'un système chimique bien



maitrisé (TiO₂ par exemple) un troisième couplage sera réalisé pour intégrer la cinétique chimique et arriver à une description complète d'un système photocatalytique.

L'approche expérimentale, consistera en une validation de ce modèle couplé à partir d'une série d'essais dans une maquette optique de réacteur Taylor-Couette. Il s'agira de faire varier les différents paramètres opératoires, tels que le régime d'écoulement, la distribution spatiale des solides, le temps de séjour ou encore le flux lumineux afin de valider les performances du modèle et son domaine de pertinence. Cette étape sera aussi l'occasion d'étudier différentes configurations expérimentales et de déterminer les conditions opératoires optimales.

A l'issue de cette thèse, on disposera d'un premier outil expérimental et numérique pour l'évaluation des procédés photocatalytiques ainsi que d'une première expérience sur leur extrapolation à une échelle représentative.

Dirigés par Eric Climent (Professeur INP-ENSEEIH et chercheur à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse) et Sophie Charton (Directrice de recherche au CEA), les travaux de Thèse se dérouleront principalement sur deux sites. Les travaux expérimentaux seront menés au sein du Laboratoire de développement de procédés de Recyclage et Valorisation pour les systèmes Energétiques décarbonés (LRVE) du CEA Marcoule, sous l'encadrement German Garzon Losik (Ingénieur Chercheur) et de Fabrice Lamadie (Directeur de recherche). Les travaux de modélisation et de simulations numériques seront réalisés au sein de l'IMFT. Une collaboration appuyée est prévue avec Jean-François Cornet (Professeur à l'institut Pascal) notamment pour la modélisation du transfert radiatif et de l'interaction lumière-particules. Les trois équipes disposent des compétences et outils complémentaires à la réalisation de ce projet ambitieux. Le/la doctorant.e sera inscrit.e à l'Ecole Doctorale MEGEP à Toulouse. Le financement est assuré par le CEA.

Plan du projet de thèse

Activité	1 ^{ère} année		2 ^{ème} année		3 ^{ème} année	
	S1	S2	S3	S4	S5	S6
Étude bibliographique	■	■				
Déterminations des propriétés optiques et radiatives du système		■				
Développement du modèle photocatalytique couplé avec l'hydrodynamique		■	■			
Étude expérimentale du système photocatalytique pour la validation des simulations numériques			■	■		
Simulations numériques et comparaison aux expériences			■		■	■
Synthèse des résultats, articles et conférences puis rédaction du manuscrit			■		■	■



■ Activités biblio, rédaction, modélisation, ■ Activités expérimentales, ■ Activités de simulation

Elements bibliographiques - publications de l'équipe *

Binjhade, R., Mondal, R., Mondal, S., (2022), Continuous photocatalytic reactor: Critical review on the design and performance, *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 10(3), 107746.

Dherbecourt, D. (2015). Influence d'une phase dispersée sur le mélange dans l'écoulement de Taylor-Couette. Thèse doctorale IMFT/CEA. INP Toulouse.

* Experimental investigation of mixing efficiency in particle laden Taylor-Couette flows. Z. Rida, S. Cazin, F. Lamadie. D. Dherbecourt, S. Charton, E. Climent (2019), *Experiments in Fluids*. 60, 61.

Dutta, P.K., Ray, A.K., (2004), Experimental investigation of Taylor vortex photocatalytic reactor for water purification. *Chemical Engineering Science*, 59, 5249-5259.

Forney, L.J. and Pierson, J.A., (2003), Optimum photolysis in Taylor–Couette flow. *AIChE J.*, 49: 727-733.

Friedmann, D. (2022). A general overview of heterogeneous photocatalysis as a remediation technology for wastewaters containing pharmaceutical compounds. *Water*, 14, 3588.

* Numerical simulation of bubble dispersion in turbulent Taylor-Couette flow. (2014) A. Chouippe, E. Climent, D. Legendre and C. Gabillet, *Physics of Fluids*, 26, 043304 (2014).

Nemri, M. (2013). Etude expérimentale et numérique du mélange et de la dispersion axiale dans une colonne à effet Taylor-Couette. Thèse doctorale IMFT/CEA. INP Toulouse.

* Mixing and axial dispersion in Taylor-Couette flows: the effect of the flow regime. M. Nemri, S. Charton, E. Climent. (2016) - *Chem. Eng. Sc.*, 139, pp. 109-124.

* Experimental investigation of mixing and axial dispersion in Taylor-Couette flow patterns. M. Nemri, S. Cazin, S. Charton and Eric Climent. (2014) *Experiments in Fluids* - Vol. 55, Issue 7, 1769.

Paule, A., Lauga, B., Ten-Hage, L., Morchain, J., Duran, R., Paul, E., Rols, J.L. (2011), A photosynthetic rotating annular bioreactor (Taylor–Couette type flow) for phototrophic biofilm cultures. *Water Research*, 45 (18), 6107-6118.

Sengupta, T.K., Kabir M.F., and Ray, A.K., (2001), A Taylor Vortex Photocatalytic Reactor for Water Purification. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 40 (23), 5268-5281.

Supplis ; C. (2020). Modélisation et étude expérimentale de la production d'hydrogène solaire en photoréacteur. Thèse doctorale. Université Clermont Auvergne.