Résumé

Résumé français | English abstract | Contributions (FR) | Contributions (EN)

Les adsorbeurs à lit fixe jouent un rôle majeur dans le captage du dioxyde de carbone, la séparation des gaz et les technologies de stockage thermique. Leur performance résulte du couplage entre écoulement multicomposant, transfert de matière, cinétique d'adsorption et transfert thermique, depuis l'échelle du grain poreux jusqu'à celle du réacteur. Cette thèse développe un ensemble de modèles tridimensionnels de mécanique des fluides numérique (CFD) à ces deux échelles afin de mieux comprendre ces interactions et d'évaluer l'influence de la morphologie des particules et de l'architecture des lits sur le captage du CO_2 par la zéolithe 13X.

Une analyse critique des modèles unidimensionnels, bidimensionnels et tridimensionnels clarifie d'abord les équations, hypothèses et limites des approches existantes. Un modèle macroscopique de lit poreux est ensuite développé en introduisant, dans les équations de transport des espèces et de conservation de l'énergie, de nouveaux termes sources volumiques intégrant l'effet du taux d'occupation des pores par adsorption (PAOR). Les simulations sont confrontées aux données expérimentales de la littérature pour des alimentations contenant 15, 50 et 100 % de CO_2, avec de l'hélium comme gaz complémentaire, à une pression voisine de 1,02 bar. Elles reproduisent les courbes de percée et la propagation des fronts thermiques.

À l'échelle particulaire, une méthode de frontières immergées pour milieux poreux à forçage direct (PB-IBM) est développée dans OpenFOAM. Elle décrit les écoulements et les transferts à l'intérieur et autour des grains sans maillage ajusté à leur surface. Sa validation hydrodynamique s'appuie sur des données de vélocimétrie par images de particules et de simulation de Boltzmann sur réseau. Son application à un lit d'environ 5 000 particules adsorbantes de diamètre 1,5 mm permet de confronter les prédictions couplées aux mesures de percée et de température, tout en résolvant les hétérogénéités locales, les écoulements préférentiels et les effets de paroi.

L'étude de particules de même volume et de même masse met en évidence l'influence de leur surface externe sur les transferts et la dynamique d'adsorption. Dans une comparaison entre une particule irrégulière et une sphère, le gain maximal de quantité adsorbée au cours du transitoire atteint environ 34 %. Enfin, quatre architectures de lit sont comparées à quantité d'adsorbant et conditions opératoires identiques. Par rapport au cylindre de référence, l'architecture courbe à branches multiples réduit l'élévation maximale de température de 26,72 %, au prix d'une augmentation d'environ 30 % de la perte de charge moyenne. La fraction moyenne de zones mortes reste comprise entre 2,13 et 2,16 %.

Ces travaux fournissent des outils complémentaires pour l'analyse des mécanismes locaux et la sélection de géométries d'adsorbeurs, ainsi qu'une base pour de futurs modèles réduits et l'optimisation des procédés cycliques d'adsorption.

Mots-clés : adsorption ; captage du CO_2 ; CFD ; milieux poreux ; PB-IBM ; transferts couplés de chaleur et de matière ; géométrie des particules ; adsorbeurs à lit fixe.

Abstract

Résumé français | English abstract | Contributions (FR) | Contributions (EN)

Fixed-bed adsorbers play a major role in carbon dioxide capture, gas separation, and thermal energy storage technologies. Their performance depends on the coupling between multicomponent flow, mass transfer, adsorption kinetics, and heat transfer, from the porous-particle scale to the reactor scale. This thesis develops three-dimensional computational fluid dynamics (CFD) models at these two scales to improve understanding of these interactions and assess how particle morphology and bed architecture influence CO_2 capture using zeolite 13X.

A critical review of one-, two-, and three-dimensional models first clarifies the governing equations, assumptions, and limitations of existing approaches. A macroscopic porous-bed model is then developed with new volumetric source terms in the species-transport and energy-conservation equations that account for the effect of the pores adsorption occupation rate (PAOR). Simulations are compared with experimental data from the literature for feeds containing 15, 50, and 100 % CO_2, with helium as the balance gas, at approximately 1.02 bar. The model reproduces breakthrough curves and thermal-front propagation.

At the particle scale, a direct-forcing porous-based immersed boundary method (PB-IBM) is developed in OpenFOAM. It describes flow and transport within and around porous pellets without requiring body-fitted meshes at their surfaces. Hydrodynamic validation uses particle image velocimetry and lattice Boltzmann data. Application to a bed containing approximately 5 000 adsorbent pellets of diameter 1.5 mm enables comparison of coupled predictions with breakthrough and temperature measurements while resolving local heterogeneities, preferential flow paths, and wall effects.

Investigations of particles with equal volume and mass demonstrate how external surface area influences transport and adsorption dynamics. In a comparison between an irregular particle and a sphere, the maximum increase in transient adsorbed quantity reaches approximately 34 %. Finally, four bed architectures are compared under matched adsorbent inventory and operating conditions. Relative to the cylindrical reference, a curved multi-branch architecture reduces the maximum temperature rise by 26.72 %, with an approximately 30 % increase in mean pressure loss. Mean dead-zone fractions remain between 2.13 and 2.16 %.

Together, these developments provide complementary tools for analysing local mechanisms and screening adsorber geometries, as well as a foundation for future reduced-order models and the optimization of cyclic adsorption processes.

Keywords: adsorption; CO_2 capture ; CFD ; porous media ; PB-IBM ; Coupled heat and mass transfer ; particle geometry ; fixed-bed adsorbers.

Contributions scientifiques

Résumé français | English abstract | Contributions (FR) | Contributions (EN)

1. **Synthèse critique des modèles d'adsorption.** Comparaison structurée des formulations 1D, 2D et 3D décrivant les transferts couplés dans les lits adsorbants. Cette synthèse met en évidence les conséquences des hypothèses relatives à la cinétique, au transport en milieu poreux, aux effets thermiques et aux mélanges multicomposants, et fournit des critères de choix des modèles. Article associé (DOI).

2. **Développement d'un modèle CFD macroscopique tridimensionnel.** Introduction de termes sources volumiques intégrant le PAOR dans les bilans d'espèces et d'énergie. La validation sur l'adsorption de CO_2 par la zéolithe 13X, pour trois compositions d'alimentation à environ 1,02 bar, porte sur les courbes de percée et les fronts thermiques. Le modèle permet également de comparer des géométries de lit à volume d'adsorbant équivalent. Article associé (DOI).

3. **Développement et validation d'une méthode PB-IBM à l'échelle du grain.** Implémentation dans OpenFOAM d'une méthode à forçage direct pour coupler écoulement, transport des espèces, adsorption et transfert thermique dans les particules poreuses et leur voisinage. La validation sur une sphère poreuse utilise des données PIV et LBM à différents nombres de Reynolds. La méthode permet l'étude de formes irrégulières sans maillage conforme à leur surface. Article associé (DOI).

4. **Simulation d'un lit avec résolution explicite des particules.** Application de la PB-IBM à environ 5 000 billes de zéolithe 13X de diamètre 1,5 mm pour une alimentation CO_2/He (50 %/50 %) à pression atmosphérique. Les simulations reproduisent le comportement de percée et les fronts thermiques et donnent accès aux champs locaux de vitesse, concentration et température. L'échauffement à partir de 295 K conduit à des températures atteignant environ 350 K. Article associé (DOI).

5. **Quantification des effets de morphologie et réduction du coût numérique.** Comparaison d'une sphère lisse, d'une particule irrégulière et d'une particule finement texturée, à volume et masse identiques, avec des rapports de surface externe d'environ 1, 1,5 et 2,5. L'étude de particules et d'arrangements structurés distingue les effets de forme des interactions entre particules. Un gain transitoire maximal d'environ 34 % est rapporté pour la comparaison irrégulière–sphère étudiée. Une stratégie de gel du champ d'écoulement après saturation accélère les simulations de longue durée.

6. **Évaluation comparative de quatre architectures d'adsorbeurs.** Comparaison de S_1–S_4 à inventaire d'adsorbant, volume de lit, porosité, diamètre équivalent des grains et conditions opératoires communs. Les indicateurs sont la perte de charge moyenne, l'élévation maximale de température et la fraction moyenne de zones mortes. Le gain thermique de S_4 s'accompagne d'un surcoût hydraulique ; S_2 et S_3 présentent le compromis nominal le plus équilibré parmi les configurations étudiées.

Scientific contributions

Résumé français | English abstract | Contributions (FR) | Contributions (EN)

1. **Critical synthesis of adsorption models.** A structured comparison of 1D, 2D, and 3D formulations for coupled transport in adsorbing beds identifies the implications of assumptions concerning kinetics, porous-medium transport, thermal effects, and multicomponent mixtures. The review provides criteria for selecting appropriate numerical models. Associated article (DOI).

2. **Development of a three-dimensional macroscopic CFD model.** New volumetric source terms incorporating PAOR are introduced into the species and energy balances. Validation for CO_2 adsorption on zeolite 13X covers three feed compositions at approximately 1.02 bar and compares breakthrough curves and thermal fronts. The model also supports comparisons of bed geometries with equivalent adsorbent volume. Associated article (DOI).

3. **Development and validation of a particle-scale PB-IBM.** A direct-forcing method is implemented in OpenFOAM to couple flow, species transport, adsorption, and heat transfer within and around porous particles. Validation for flow past a porous sphere uses PIV and LBM data at different Reynolds numbers. The method enables irregular particle shapes to be investigated without surface-conforming meshes. Associated article (DOI).

4. **Particle-resolved simulation of a packed adsorbing bed.** PB-IBM is applied to approximately 5 000 zeolite 13X beads of diameter 1.5 mm with a 50 %/50 % CO_2/He feed at atmospheric pressure. Simulations reproduce breakthrough behaviour and thermal fronts while providing local velocity, concentration, and temperature fields. Adsorption-induced heating raises temperatures from an initial 295 K to values reaching approximately 350 K. Associated article (DOI).

5. **Quantification of morphology effects and computational acceleration.** A smooth sphere, an irregular particle, and a finely textured particle are compared at equal volume and mass, with external surface-area ratios of approximately 1, 1.5, and 2.5. Investigations of particles and structured arrangements distinguish shape effects from inter-particle interactions. A maximum transient uptake increase of approximately 34 % is reported for the irregular-particle/sphere comparison studied. A frozen-flow strategy after saturation accelerates long-time simulations.

6. **Comparative assessment of four adsorber architectures.** Designs S_1–S_4 are compared under common adsorbent inventory, bed volume, voidage, equivalent particle diameter, and operating conditions. The indicators are mean pressure loss, maximum temperature rise, and mean dead-zone fraction. The thermal improvement of S_4 entails a hydraulic penalty, while S_2 and S_3 provide the most balanced nominal compromise among the configurations studied.