

## DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **12 décembre 2024**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Monsieur Nicolas CHAUSSARD**

Titre de la thèse : Étude approfondie de la distillation réactive enzymatique hétérogène : de l'expérimentation à la modélisation et simulation des procédés

### Résumé



L'industrie chimique est en pleine transformation afin de répondre aux enjeux environnementaux, économiques et sociétaux d'aujourd'hui. La distillation réactive enzymatique (DRE) émerge comme une solution prometteuse. En intégrant les réactions biocatalytiques et la séparation en une seule unité, la DRE surmonte les défis des procédés traditionnels, tels que l'amélioration des taux de conversion, la diminution des dépenses énergétiques, tout en utilisant un catalyseur naturel, sans métaux critiques et hautement sélectif. Cependant, la DRE présente des défis tels que la stabilité des enzymes, leur immobilisation, ainsi que des conditions opératoires douces. L'impact des paramètres opératoires sur les performances du procédé n'est pas encore entièrement compris, ce qui rend l'industrie réticente à adopter cette technologie. Pour aborder ces défis, ce travail explore un système de DRE continu et énantiosélectif à l'échelle laboratoire, combinant l'expérimentation à la modélisation. La transestérification énantiosélective de l'éthylbutyrate avec le rac-2-pentanol, catalysée par la lipase B de *Candida antarctica* (CALB), a été choisie comme réaction modèle. Deux formes immobilisées de la lipase ont été étudiées : les billes de résine Novozym®435 et un xerogel contenant la CALB produit par le procédé sol-gel. Des modèles cinétiques détaillés ont été développés pour les deux catalyseurs en considérant le transfert de matière interne, afin d'évaluer l'impact des méthodes d'immobilisation et de représenter la réaction au sein du procédé. Pour

intégrer la réaction dans une colonne de DRE, des packings novateurs comme les mousses à cellules ouvertes et les Tetra Splines imprimés en 3D ont été fonctionnalisés avec le xerogel. La formulation du dépôt et son adhérence sur les structures ont été optimisés malgré de nombreuses contraintes liées à l'utilisation des enzymes et au support en lui-même. Une étude paramétrique en DRE a permis d'évaluer l'influence de la charge catalytique, de la composition de l'alimentation, et de la configuration de la colonne sur l'état stationnaire. Des modèles d'équilibre (EQ) et de non-équilibre (NEQ) ont été développés pour modéliser la DRE. Le modèle EQ a fourni des prédictions fiables à faibles rendements, tandis que le modèle NEQ a été validé avec des internes classiques mais requiert davantage de données expérimentales concernant les coefficients de transfert gaz-liquide des internes novateurs employés. Enfin, une étude paramétrique approfondie par simulations a validé les observations expérimentales et facilité l'extrapolation du procédé à l'échelle pilote et industrielle par modélisation.

**Mots-clés :**

Distillation réactive enzymatique, Intensification des procédés, Biocatalyse hétérogène, Revêtements sol-gel, Garnissages biocatalytiques, Modélisation des procédés,