

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية
République Algérienne Démocratique et Populaire
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université de Blida
Faculté des Sciences de l'Ingénieur
Département de Chimie Industrielle

جامعة البليدة
كلية الهندسة
دائرة الكيمياء الصناعية

MEMOIRE DE MAGISTER

Présenté par: **Kamel HACHAMA**

En Vue de l'Obtention du Diplôme de Magister en Chimie Industrielle
Option: Génie des Procédés

THEME

Développement d'une méthodologie de modélisation et de simulation d'un réacteur chimique en marche semi-continu, contrôle du phénomène d'emballlement thermique, application industrielle .

Soutenu publiquement le 21 mai 2002 devant le Jury:

Président:	Mr. F. HANNANE	Maître de Conférences (U.B)
Examineurs:	Mr. B. KADRI Mr. N. MOULAI MOSTEFA Mr. S. OUZZANE	Maître de Recherche (COMENA) Maître de conférences (C.U.Médéa) Chargé de cours (U.B)
Rapporteur:	Mr. M. BEZZINA	Maître de Conférences (U.B)



الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية
République Algérienne Démocratique et Populaire
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université de Blida
Faculté des Sciences de l'Ingénieur
Département de Chimie Industrielle

جامعة البليدة
كلية الهندسة
دائرة الكيمياء الصناعية

MEMOIRE DE MAGISTER

Présenté par: **Kamel HACHAMA**

En Vue de l'Obtention du Diplôme de Magister en Chimie Industrielle
Option: Génie des Procédés

THEME

Développement d'une méthodologie de modélisation et de simulation d'un réacteur chimique en marche semi-continu, contrôle du phénomène d'emballlement thermique, application industrielle .

Soutenu publiquement le 21 mai 2002 devant le Jury:

Président:	Mr. F. HANNANE	Maître de Conférences (U.B)
Examineurs:	Mr. B. KADRI Mr. N. MOULAI MOSTEFA Mr. S. OUZZANE	Maître de Recherche (COMENA) Maître de conférences (C.U.Médéa) Chargé de cours (U.B)
Rapporteur:	Mr. M. BEZZINA	Maître de Conférences (U.B)

Résumé

On présente dans ce travail une méthodologie de modélisation et de simulation d'un réacteur chimique en marche semi-continu, on s'est intéressé surtout au phénomène d'emballement thermique. Cette méthodologie est validée par les résultats d'une synthèse industrielle d'un produit pharmaceutique, porté dans un réacteur semi-pilote, représenté par un système de réactions irréversibles compétitives et exothermiques.

L'objectif de cette étude est la simulation du comportement du réacteur. On passe d'abord par la construction d'un modèle mathématique regroupant les différentes équations qui traduisent les flux d'énergie et de matière ayant lieu dans le système, ensuite une résolution numérique de ces dernières, utilisant pour cela une programmation en langage informatique. A partir de ce programme, on peut étudier le fonctionnement du réacteur en différents états et de déterminer ses meilleurs conditions de marche, qui assurent une bonne production en préservant la stabilité thermique.

ملخص

نهدف من هذه الدراسة تطوير منهجية، لنمذجة و محاكاة مفاعل كيميائي شبه مغلق، آخذين بعين الاعتبار ظاهرة الهيجان الحراري. و للتحقق من نجاعة المنهجية، استعنا بنتائج اصطناع صيدلاني اجري في مجسم لمفاعل، عن طريق تفاعلين غير عكوسين، متنافسين و ناشرين للحرارة. تمر هذه المحاكاة أساسا بتكوين نماذج رياضية، تحتوي على المعادلات الرياضية التي تترجم ظواهر سير المفاعل، وبعدها اختيار أفضل الطرق الرقمية لحل هذه المعادلات للحصول على أدق النتائج، ثم وضع برنامج في الإعلام الآلي، ليتمكننا من إيجاد نتائج لهذه الحلول و متابعة السير الحقيقي للمفاعل، للحصول على أفضل الشروط العملية التي تضمن النوعية الجيدة والكمية المبتغاة للمنتوج، إضافة إلى المحافظة على الثبات الحراري.

Abstract

We are presenting in this work a methodology of modelling and simulation of a chemical semi-batch reactor taking into account the safety aspect. This methodology is validated by the results of an industrial synthesis of a pharmaceutical product which is carried in a pilot plant reactor, and it is represented by a system of competitive irreversible and exothermic reactions. The objective of this study is the simulation of the reactor behaviour. first, we pass by the construction of a mathematical model regrouping the different equations that translate energy and matter flux taking place in the system. Then a numeric resolution of these last is chosen, using for it a programming in computer language. From this program, we can study the working of the reactor in different states and to determine its best march's conditions, that assures a good production and preserve the thermal stability.

DEDICACES

A mes parents

A mes frères et sœurs.

A ma grande famille

A mes amis

A tous ceux qui m'ont aidé, de près ou de loin.

REMERCIEMENTS

Le travail qui fait l'objet de ce mémoire a été effectuée au Département de Chimie Industrielle de l'Université de Blida, sous la direction de **Mr. M. BEZZINA**, maître de conférences à l'Institut de Chimie Industrielle de Blida, qu'il trouve ici toutes les expressions de gratitude et de reconnaissance, pour les efforts et les conseils qu'il m'a attribué.

J'exprime ma vive gratitude pour **Mr. F. HANANE**, Maître de Conférences à l'Université de Blida pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de présider le Jury.

Je remercie l'honorable et respectueux jury, **B. KADRI**, Maître de Recherche au COMENA, **N. MOULAY MOSTEFA**, Maître de Conférences au C.U.de Médéa, et **S. OUZZANE**, Chargé de cours à l'Université de Blida pour l'honneur qu'ils me font en acceptant de juger le présent travail.

Mes sincères remerciements vont aussi à tous ceux qui m'ont aidé. Que ce travail soit le fruit de leurs attentions, à tous les enseignants du Département de Chimie Industrielle, les post-graduants, les techniciens, le responsable de la bibliothèque et tout le personnel en particulier messieurs **A. IMESSAOUDENE**, **H. AMRI** et **K. CHANANE** pour leur sincère amitié.

NOMENCLATURE

NOMENCLATURE

A_R, A_{JT}	surface interne totale du réacteur et de la jaquette (m^2)
A_i, A_j	surface interne et externe du réacteur (m^2)
A_{eT}	surface externe totale du réacteur (m^2)
A_c	surface interne du condenseur (m^2)
A_V, A_S	paramètres propres à la loi de <i>Clasius–Clapeyron</i> , spécifique à la vapeur d'eau et au solvant
B_V, B_S	paramètres propres à la loi de <i>Clasius–Clapeyron</i> , spécifique à la vapeur d'eau et au solvant ($^{\circ}K$)
B	épaisseur du film du condensât du solvant (m)
C_{A0}	concentration initial du réactif A dans le réacteur (mol/l)
C_A, C_B	concentrations des réactifs A et B (mol/l)
C_{Ba}, C_{B0}	concentration initial du réactif B au sein de l'alimentation et du réacteur (mol/l)
C_C, C_D, C_E	concentrations des produits C, D et E (mol/l)
C_p, C_{pB}	capacité thermique massique du mélange réactionnel et de l'alimentation ($J/g^{\circ}K$)
C_{pM}, C_{pe}	capacité thermique massique du métal et de l'eau de refroidissement ($J/g^{\circ}K$)
C_{pCa}	capacité thermique massique du condensat du solvant ($J/g^{\circ}K$)
C_V, C_e	paramètres spécifiques aux vannes d'alimentation de la vapeur et de l'eau de refroidissement
C_{VP}	paramètre spécifique au vanne d'évacuation de l'air à l'extérieur du réacteur.
D_V	débit volumique de la vapeur dans le réacteur (m^3/s)
D_{CD}	débit volumique du condensat dans le condenseur (m^3/s)
E_1, E_2	énergie d'activation de la première et la deuxième réaction (J/mol)
F_{jE}	flux molaire (mol/s)
F_V	débit molaire de la vapeur du solvant (mol/s)
G	vitesse de gravité (m/s^2)
H_{ec}	coefficient d'échange thermique parois–vapeur d'eau ($J/s.m^2.^{\circ}K$)
H_{er}	coefficient d'échange thermique parois–eau froide ($J/s.m^2.^{\circ}K$)
H_i	coefficient d'échange thermique à l'intérieur du réacteur ($J/s.m^2.^{\circ}K$)
h_j	coefficient d'échange thermique à l'intérieur de la jaquette ($J/s.m^2.^{\circ}K$)
h_{jC}	coefficient d'échange thermique vapeur–parois ($J/s.m^2.^{\circ}K$)
H_V, h_C	enthalpie de la vapeur et du condensat de l'eau (J/mol)
H	enthalpie de la vapeur du solvant (J/mol)
H_C	flux de chaleur échangé lors de condensation du solvant (J/s)
K	conductivité thermique du métal de condenseur ($J/s.m.^{\circ}K$)
K_C	est le gain ou sensibilité
K_{MT}	coefficient de transfert massique du solvant ($gr/s.torr$)
K_P, K_I, K_d	paramètres du deuxième régulateur
K_t	paramètre du transmetteur
k_1^0, k_2^0	facteur préexponentiel de la première et la deuxième réaction ($l^2/mol^2.s$)
M_{eau}	masse molaire de l'eau (gr/mol)
P, P_V	pression et pression de vaporisation à l'intérieur du réacteur ($torr$)
P_i, P_{Vj}	pression et pression de vapeur d'eau à l'intérieur de la jaquette (atm)
P_t, P_2	paramètres du transmetteur (atm)
P_r	paramètres du régulateur (atm)

P_{SP}	pression de consigne de la deuxième boucle de régulation (<i>torr</i>)
P_C	pression de consigne de la première boucle de régulation (<i>atm</i>)
Q_B	débit volumique de l'alimentation (m^3/s)
Q	débit massique par unité de largeur de la condensation (<i>gr/m.s</i>)
$Q_{Cd} Q_V$	quantité de chaleur portée par le condensat et par la vapeur du solvant (<i>J/s</i>)
$Q_M Q_J$	quantité de chaleur portée par le métal du réacteur et par le fluide à l'intérieur de la jaquette par unité de temps (flux de chaleur) (<i>J/s</i>)
r_1, r_2	Vitesse de la première et la deuxième réaction ($mol/m^3.s$)
R	constante des gaz parfaits (<i>J/mol. °K</i>)
$R_{C/B}$	rendement du produit C par rapport au réactif B.
t	temps d'opération (<i>s</i>)
T, T_J	température du mélange réactionnel et du fluide caloporteur (<i>°K</i>)
T_0, T_B	température initiale du mélange réactionnel et de l'alimentation (<i>°K</i>)
T_e, T_W	température du fluide caloporteur au sein de la jaquette et du condenseur (<i>°K</i>)
$T_{cd} T_M$	température du condensat, et du métal (<i>°K</i>)
T_1	température de la vapeur du solvant (<i>°K</i>)
T_2	paramètre du transmetteur (<i>°K</i>)
$T_d(s)$	constante de temps de dérivée
$T_i(s)$	constante de temps d'intégration
u_0	la production du contrôleur quand il n'y a aucune erreur
u_d, u_p	le signal de sortie (la production) du régulateur
U	énergie interne (<i>J</i>)
U_W	coefficient d'échange thermique vapeur-condenseur (<i>J/s.m². °K</i>)
V_R	volume du réacteur (<i>l</i>)
V, V_M	volume du mélange réactionnel et du métal autour du réacteur (m^3)
V_J, V_{JT}	volume et volume total de la jaquette (m^3)
W	densité de flux massique du condensation (<i>gr/s.m²</i>)
W_e	débit massique de l'eau de refroidissement (<i>gr/s</i>)
W_C	débit massique du condensat de la vapeur d'eau (<i>gr/s</i>)
W_V	débit massique de la vapeur de l'eau de chauffage (<i>gr/s</i>)
W_{VP}	débit de pompage (<i>gr/s</i>)
X_A	degré de conversion du réactif A
$X_V X_e$	degré d'ouverture des vannes d'alimentations de la vapeur et de l'eau .
X_p	degré d'ouverture de la vanne d'aspiration de l'air.
Z	hauteur du condenseur (<i>m</i>)
ρ_B, ρ	masse volumique de l'alimentation et du mélange réactionnel (<i>gr/m³</i>)
ρ_M	masse volumique du métal de la parois du réacteur (<i>gr/m³</i>)
$\rho_B \rho_e$	masse volumique de l'alimentation et de l'eau de refroidissement (<i>gr/m³</i>)
ρ_{cd}, ρ_V	masse volumique du condensat et de la vapeur du solvant (<i>gr/m³</i>)
ρ_{VJ}	masse volumique de la vapeur d'eau (<i>gr/m³</i>)
$\Delta H_1, \Delta H_2$	enthalpie d'activation de la première et la deuxième réaction (<i>J/mol.</i>)
λ_V	chaleur de vaporisation (<i>J/gr</i>)
ν	viscosité cinématique du condensat du solvant (m^2/s)
ε	c'est l'écart de réglage du régulateur.

SOMMAIRE

SOMMAIRE

Dédicaces
Remerciements
Résumé
Nomenclature
Sommaire:

Introduction générale	1
-----------------------------	---

PARTIE THEORIQUE

Chapitre I Modélisation, simulation et contrôle des procédés

Introduction	3
I.1 La simulation	3
I.1.1 Les principales étapes de la simulation d'un processus.....	3
I.1.2 Principes et limites des logiciels généraux de simulation.....	4
I.2 La modélisation	5
I.2.1 Les modèles mathématiques	6
I.2.2 Les différentes formes de modèles mathématiques.....	7
I.3 Contrôle des procédés.....	8
I.3.1 Généralités.....	8
I.3.2 Paramètres d'un système de commande.....	9
I.3.3 Propriétés d'un système contrôlé (commandé).....	9
I.3.4 La synthèse d'un système de commande	9
I.3.5 Principe de commande automatique.....	9
I.3.6 Elément constitutifs d'une boucle de régulation.....	10
I.3.7 Asservissement et Régulation	11
I.3.8 Classification des régulateurs	12
I.3.9 Réglage des paramètres des régulateurs.....	14
I.3.10 Notion de régulation avancée.....	14
I.4 Méthodes numériques d'intégration et optimisation.....	14
I.4.1 Intégration numérique des équations différentielles.....	14
I.4.2 Optimisation.....	20
I.4.2.1 Plans d'expériences.....	20

Chapitre II Réacteurs et réactions chimiques

Introduction	25
II.1 Les principaux facteurs gouvernant le fonctionnement d'un réacteur chimique	25
II.2 Classification des réacteurs chimiques	26
II.3 Bilans de matière et d'énergie dans les réacteurs chimiques.....	27

II.4 Stabilité thermique des réacteurs	29
II.5 Caractères généraux des réacteurs hétérogènes.....	29
II.6 La cinétique chimique.....	31
II.6.1 Principes généraux de cinétique chimique.....	31
II.6.2 L'énergie d'activation et l'équation d' <i>Arrhénius</i>	31
II.6.3 Equation et coefficients stœchiométriques.....	31
II.6.4 Avancement d'une réaction	32
II.6.5 La vitesse de la réaction.....	32
II.6.6 La chaleur de la réaction.....	33
II.6.7 Variation du volume réactionnel	34
II.6.8 L'enthalpie libre et le critère de transformation.....	35
II.6.9 Classification des réactions chimiques	35
II.6.10 Modes d'activation des réactions chimiques	36

Chapitre III Généralités sur la thermodynamique et le transfert de la chaleur

Introduction	37
III.1 Notions générales sur la thermodynamique.....	37
III.1.1 Propriétés énergétiques d'un système	37
III.1.2 Expressions des fonctions thermodynamiques des fluides purs.....	37
III.1.2.1 Phase gazeuse.....	37
III.1.2.2 La phase liquide et l'équilibre liquide-vapeur	38
III.1.3 Propriétés thermodynamiques des mélanges	40
III.2 Transfert de la chaleur.....	42
III.2.1 Les différents modes de transmission de la chaleur	42
III.2.2 Considérations de base.....	43
III.2.2.1 Conduction	43
III.2.2.3 Convection	44
III.2.2.4 La détermination du nombre de <i>Nusselt</i>	45
III.2.2.5 Divers techniques utilisables.....	45

PARTIE DE SIMULATION

Chapitre V Description et modélisation du système

Introduction	47
V.1 Description du système.....	47
V.1.1 Réaction et mode opératoire.....	48
V.1.2 Description de l'installation.....	49
V.2 Formulation des équations du système.....	50
V.2.1 Transformation chimique.....	50

V.2.2 Bilan de matière.....	51
V.2.3 Bilan énergétique	53
V.2.4 Utilisation du système de refroidissement par action sur pression :	60
V.2.5 Système de régulation et de contrôle.....	62
V.3 Modèle mathématique final	67
V.4 Organisation des équations.....	72
Conclusion:.....	77

Chapitre VI Simulation de la conduite du réacteur

Introduction.....	78
VI.1 Algorithmes de simulation.....	78
VI.2 Résolutions	81
VI.3 La simulation	82
VI.3.1 Validation des résultats préliminaires	82
VI.3.2 Etude de la stabilité thermique du réacteur.....	84
VI.3.2.1 Utilisation d'un réacteur fermé	84
VI.3.2.2 Influence du mauvais contrôle de la chaleur sur la stabilité thermique..	85
VI.3.3 Comparaison entre deux système de refroidissement.....	88
VI.3.3.1 L'utilisation du refroidissement par le fluide caloporteur.....	88
VI.3.3.2 Refroidissement par action sur la pression.....	89
VI.3.4 Application industrielle.....	90

Chapitre VII Optimisation du fonctionnement du réacteur industriel

Introduction.....	92
VII.1- Plans factoriels.....	92
VII.1.1 Matrice des effets.....	93
VII.1.2 Résolution du problème d'optimum.....	94
Conclusion.....	98
Conclusion Générale.....	99

Références Bibliographiques

Annexe 1	Technique d'agitation et de mélange	101
Annexe 2	Les fluides de transfert thermique	106
Annexe 3	Théorie de condensation et physique d'ébullition	109
Annexe 4	Listing du Programme	113

1970
1971
1972
1973
1974

1975
1976
1977
1978

1979
1980
1981
1982

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

La modélisation et la simulation des procédés sont devenues, dans l'industrie, un moyen efficace, rapide, économique et souvent indispensable pour concevoir, contrôler et optimiser un équipement ou une installation devant répondre aux différentes exigences. En général, un problème de simulation se présente sous plusieurs aspects, il appartient à l'utilisateur de formuler les équations qui traduisent les contraintes imposées soit par des raisons techniques ou par la réglementation. Il lui reste encore le choix du bon algorithme et savoir discuter les résultats obtenus.

Maintenant, à cause du coût élevé de l'énergie et les règlements de plus en plus strictes de l'environnement, les industriels doivent améliorer simultanément l'aspect de la performance afin d'obtenir le produit avec les spécifications désirées dans un temps minimum et des coûts de fonctionnement bas, et l'aspect de la sécurité pour éviter l'emballement thermique.

La synthèse des produits pharmaceutiques ou des produits de la chimie fine impliquent généralement des réactions très exothermiques, si la chaleur provoquée par ces réactions n'est pas enlevée par le système de refroidissement, la température du milieu réactionnel augmente progressivement et peut causer finalement une production médiocre en produits, provoquer un emballement thermique du réacteur, et dans les pures des cas, l'emballement est suivi par une inflammation ou même une explosion qui nuit aux opérateurs et aux différents équipement de l'installation.

L'analyse des accidents dans l'industrie chimique montre que les stations en marche discontinue sont beaucoup plus impliquées que celles qui marchent en continue. Un moyen pratique, pour réaliser une opération sans danger dans le cas d'une réaction très exothermiques: est l'addition graduelle d'un ou plusieurs réactifs pendant le déroulement de la réaction, pour contrôler sa vitesse et réduire la chaleur produite. On fait appel ici au réacteur semi-continu, très recommandé dans ce type de réactions.

Le contrôle thermique des réacteurs semi-continu flexibles et polyvalents est exécuté habituellement à travers l'échanges de la chaleur avec un fluide caloporteur qui circule dans l'enveloppe autour du réacteur. Une autre solution employée habituellement pour faciliter l'opération à l'échelle industrielle: est la mise en œuvre des réactions exothermiques dans une grande quantité de solvant à pression atmosphérique. Le contrôle de la réaction à température constante est assuré en maintenant le mélange réactionnel au point d'ébullition, qui peut-être considéré comme constant, à cause de l'excès de solvant. Cette technique de "contrôle thermique", bien connue dans la chimie fine et l'industrie pharmaceutique comme "réaction à reflux", limite le choix du solvant qui a un point d'ébullition près de la température de la réaction envisagée.

En prenant notre attention au réacteur à reflux, une approche spécifique au problème de contrôle thermique du réacteur a été développée, par action sur la pression. Le principe de ce contrôle thermique est de garder le mélange au point d'ébullition et ajuster constamment la

pression dans le réacteur pour compenser des modifications dans l'équilibre thermodynamique et maintenir la température à une valeur constante ou dans un profil désiré. Cette technique de contrôle thermique a beaucoup d'avantages par rapport aux techniques classiques (l'utilisation de la jaquette). Le contrôle thermique par action sur la pression évite les problèmes dus au mauvais transfert thermique à travers la jaquette, parce que, comme dans ce cas, l'échange thermique se fait dans le condenseur employé spécialement pour ce but. La capacité d'échange de la chaleur est donc considérablement améliorée par une grande surface d'échange et par le mode des transferts de la chaleur (la chaleur latente de vaporisation qui est beaucoup plus grande que les chaleurs sensibles échangées dans pendant le transfère par convection classique à travers la jaquette).

Dans la présente étude, nous nous sommes intéressés à un réacteur semi-continu dans lequel deux réactions compétitives, irréversibles et exothermiques d'une synthèse pharmaceutique ont lieu . Le réacteur est entouré par une jaquette (double enveloppe) et surmonté par un condenseur dans lesquels deux fluides caloporteurs circulent. La gestion du système de réactions implique l'action sur la variable de contrôle (la température). Une première boucle de contrôle incluant un algorithme de commande calcule le flux thermique à fournir au milieu réactionnel pour atteindre la température d'activation de la réaction principale. le flux de chaleur produit par les réactions chimiques est contrôlé au fur et à mesure par le système de refroidissement-chauffage à l'aide des vannes réglant le débit des fluides caloporteurs et la pression à l'intérieur du réacteur. Les régulateurs employés dans cette étude possèdent une large application industrielle.

Ce travail est subdivisé en deux grandes parties. Une partie théorique regroupant quatre chapitres, consacrés à donner des notions de base nécessaires à la modélisation et à la simulation des réacteurs chimiques. L'autre, est une partie de la simulation, comportant trois chapitres, débutant par la description et la mise en équations du système, ensuite la simulation de la conduite du réacteur et enfin un chapitre d'optimisation d'un réacteur industriel, où on applique la méthode des plans d'expériences.

PARTIE THEORIQUE

Chapitre I

**Modélisation, simulation et contrôle
des procédés**

CHAPITRE I

MODELISATION, SIMULATION ET CONTROLE DES PROCEDES

Introduction

La modélisation et la simulation des procédés sont, sans aucun doute, une des clés stratégiques des enjeux industriels. Elles permettent d'accélérer les processus de conception, de minimiser les expérimentations, de diminuer le nombre de prototypes, d'accroître la productivité, de garantir la sûreté des installations, et de tester la stratégie de la conduite mise en œuvre. Cependant, beaucoup de problèmes du processus qui étaient plus complexes, plus difficiles, et plus intéressants sont devenus des tâches simples et fiables.

L'optimisation dynamique et la commande ont pour finalité une qualité de produit et une productivité optimale.

1.1 La simulation

La simulation est une technique qui permet de visualiser le comportement d'un système, évaluer ses performances dans des conditions prédéterminées, étudier et optimiser son fonctionnement dans diverses situations. Parmi ses avantages la minimisation de l'effort expérimental souvent coûteux et parfois inadéquat, tout en évitant le mauvais fonctionnement et les risques les plus divers (tels que l'inflammation et l'explosion...).

Le domaine de la simulation a énormément évolué au cours de ces dernières années. Les progrès majeurs sont dus au développement vertigineux des moyens informatiques et des logiciels. Plusieurs banques de données des propriétés physiques ont été intégrées à plusieurs simulateurs du processus. Parmi les banques les plus utilisées se trouvent : DIPPR (Etats-Unis), PPDS (Royaume-Uni) et DECHEMA (Allemagne.). Néanmoins, des progrès importants restent à faire sur la modélisation thermodynamique, sur la modélisation cinétique des réactions et sur la prédictions des transferts de matière ou de chaleur. Cela ne peut pas se faire sans une meilleur appréhension des phénomènes microscopiques.

1.1.1 Les principales étapes de la simulation d'un processus

Pour réaliser une simulation il faut suivre les différentes étapes schématisées dans la figure(1.1).

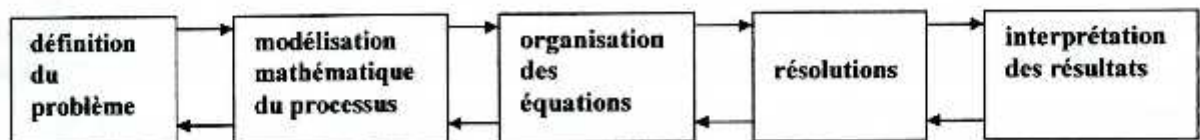


Figure (1.1): les principales étapes de la simulation d'un processus [1].

I.1.1.1 Définition du problème

Une bonne définition du problème doit répondre à des questions tel que : Qu'est-ce je veux réellement trouver ? Quelles sont les conséquences importantes de l'étude? Pourquoi ce travail devrait être fait? Quel effort devrait être exigé de l'ingénieur? Combien de temps ce travail devrait prendre?

I.1.1.2 Modélisation mathématique du processus

Elle se fait par écriture les équations des bilans et les relations appropriées au processus. Les expériences de laboratoire doivent être conçues et exécutées pour déterminer les mécanismes inconnus et les paramètres du modèle. Les décisions simplificatrices doivent être prises sur les effets qui sont importants et d'autres qui peuvent être négligés, sans oublier, les hypothèses faites dans le développement du modèle mathématique.

I.1.1.3 Organisation des équations

Une fois les relations mathématiques se sont assemblées, elles doivent être arrangés dans une solution stratégique qui place parallèlement la cause et l'effet logique rapportés au système physique. Des décisions doivent être prises sur le variable qui sera résolu dans chaque relation. L'Arrangement des équations dans un diagramme de courants est recommandé. Cette approche du diagramme de bloc est utile pour les buts de l'organisation et l'illustration des corrélations parmi les variables de l'équation.

I.1.1.4 Résolutions

Pour obtenir une solution au problème de la simulation, il est indispensable de faire des calculs à partir de solution analytique ou numérique. A cause de la complexité et non-linéarité de problèmes de la simulation du processus, la plupart des solutions exigent le calcul numérique. Les ordinateurs numériques sont utiles pour résoudre les problèmes qui impliquent des manipulations numériques. Le langage FORTRAN est conçue pour un usage scientifique et il a une excellente capacité logique.

I.1.1.5 Interprétation des résultats

Le vrai apport de la simulation des processus chimique est dans l'interprétation intelligente des résultats. A ce point, on doit constater si le modèle est une représentation valide du processus réel ou, s'il a besoin d'une révision. On doit s'assurer que les résultats paraissent fiables. L'interprétation des résultats, nous permet d'apprécier la concrétisation des objectifs visés dans la définition du problème.

I.1.2 Principes et limites des logiciels généraux de simulation

Beaucoup de simulateurs sont disponibles sur le marché, on retrouve principalement des logiciels commerciaux dans les domaines suivant : la synthèse automatique de procédés, la simulation statique ou dynamique, la simulation hydrodynamique, le dimensionnement etc..

Les divers logiciels disponibles présentent toujours une certaine incapacité à répondre à des problèmes assez fréquents dans l'industrie. Les divers modules disponibles dans la banque de ces logiciels ne répandent pas toujours à une situation réelle existante (un test préliminaire avec un cas connu est toujours nécessaire). Pour tout cela, une programmation 'personnalisée' est nécessaire parfois afin de répondre à des problèmes assez fréquents en sophistiquant de plus en plus les modèles mathématiques (l'utilisation de modèles formels par exemples) avec peu d'hypothèses simplificatrices.

Parmi les logiciels les plus utilisés on trouve, **ANSYS** et **SYSTUS** pour la thermique, la thermomécanique et l'électromagnétisme, **FLUENT** pour la mécanique des fluides et la thermique, **SIMEVENT** pour la simulation de réseaux de ventilation bâtiment ou procédé (régime permanent et transitoire, transport de polluant, incendie), **ASPEN CUSTOM MODELER** et **ASPEN DYNAMICS** pour la simulation dynamique des procédés, **ASPEN PLUS** pour la simulation stationnaire des procédés chimiques, **TASC**, **TREB** et **ASPEN B-JAC** pour les échangeurs de chaleur, **PAREX** et **SIMULEX** pour l'extraction liquide-liquide.

1.1.2.1 Les simulateurs statiques

Les premiers outils de simulation statique de procédés sont apparus au cours de l'année 1970. De nombreux logiciels commerciaux ont été développés. Nous en citons ci-après quelques-uns en commençant par les plus connus: **ASPEN**, **PRO II**, **HYSIM**, **PROSIM** et **BELSIM**. Tous ces logiciels, par le biais d'une programmation spécifique ou d'une interface graphique permettant le codage du problème, exploitent une bibliothèque de sous-programmes et de base de données. La bibliothèque de sous programmes se décompose en deux parties. La première contient les méthodes de calcul des propriétés physico-chimiques des mélanges; elles font appel à la base de données qui rassemble les propriétés physiques des corps purs et les paramètres d'interaction caractérisant la non- idéalité des mélanges; son contenu est essentiel pour que le logiciel soit adapté aux besoins de l'utilisateur. la deuxième rassemble les modèles des opérations unitaires (distillation, équilibre entre phases, échangeurs de chaleur, pompe, compresseur..). La richesse de cette bibliothèque de modèles ou 'modules' est un autre critère de comparaison entre les différents produits commerciaux.

Tous les aspects de transfert de matière ou de chaleur ne sont pas vraiment pris en compte. Tous proposent des modules de réacteur parfaitement agité ou de réacteur piston[2].

1.1.2.2 Les simulateurs dynamiques

Les Simulateurs dynamiques calculent l'évolution du système en régime transitoire. Contrairement aux simulateurs statiques, ces logiciels tiennent compte des phénomènes d'accumulation dans le procédé, en étudiant la réponse aux diverses perturbations envisageables. Le produit le plus connu : **SPEED -UP**.

Les principales applications de la simulation dynamique réalisables à l'aide de ce type de logiciels sont:

- L'étude de procédés discontinus (optimisation de conditions opératoires);
- Les test de protocoles d'automatisation pour comparer leurs efficacité;
- Les études de sécurité où les conséquences d'événements (fermeture d'une vanne, apparition de fuites) sont quantifiées;

1.2 La modélisation

En termes simples, la modélisation est une procédure qui permet, à partir de faits expérimentaux et (ou des lois fondamentales), de construire un modèle. La conception d'un modèle d'un système est une représentation du système réel ou imaginaire dans le but d'analyser (c'est-à-dire l'étude des caractéristiques au procédé non directement accessibles à la mesure), de prédire son comportement dans différentes situations et déterminer des lois de commande qui permettent de définir l'état de passage d'un système, d'un point de fonctionnement à un autre.

Si, pour la construction du modèle du système, il y a un autre système physique, sur lequel il est possible d'effectuer des expériences de façon économique, alors un tel moyen d'étude des systèmes réels (originaux) est appelé *modélisation physique*. Par modèle mathématique, il faut entendre une formule, une équation, un système d'équations, une matrice complexe ou tout autre appareil mathématique encore plus complexe qui permet, avec une approximation suffisante, de décrire un phénomène ou de condenser l'information fournie par un ensemble de données.

1.2.1 Les modèles mathématiques

Pour concevoir un appareil, déterminer son domaine de fonctionnement, l'optimiser et le régler, il est indispensable de connaître son comportement d'un point de vue quantitatif. On a alors recouru aux équations et relations qui le caractérisent. On appelle modèle mathématique l'ensemble des relations qui décrivent le comportement d'un système, reliant ses sorties à ses entrées. Ses entrées sont les paramètres qui agissent sur son comportement qui peuvent être contrôlés ou non. Ses sorties sont les paramètres résultant des valeurs données aux entrées. Le modèle ne tient pas compte de tous les paramètres, il se limite à ceux indispensables à la résolution du problème[2,3].

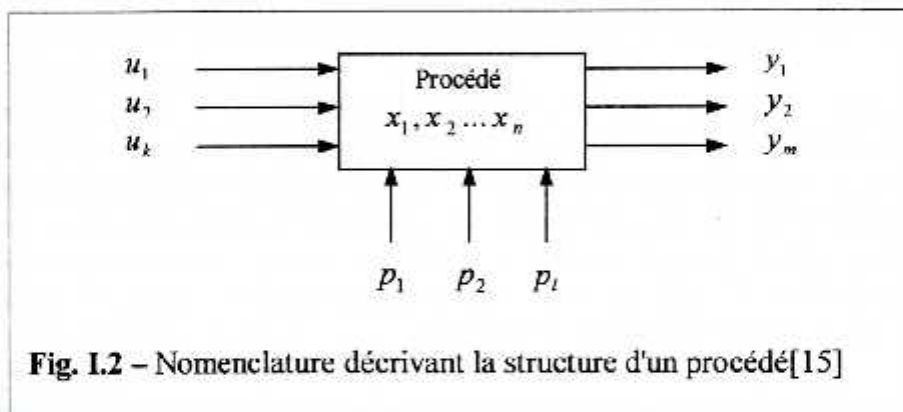


Fig. I.2 – Nomenclature décrivant la structure d'un procédé[15]

On distingue dans un procédé (figure I.1), le vecteur des entrées (u_1, u_2, \dots, u_k), le vecteur des sorties (y_1, y_2, \dots, y_m) et le vecteur des perturbations (p_1, p_2, \dots, p_l). Les valeurs des perturbations correspondent aux paramètres influant sur le comportement statique ou dynamique du procédé sans que l'on puisse les maîtriser ou que l'on veuille les prendre en compte dans le modèle. Ce concept de perturbations est très important pour les problèmes de modélisation dynamique et/ou d'automatisation.

La description précédente restreint le problème aux bornes du système, c'est-à-dire aux entrées et sorties. Le plus souvent, une succession de phénomènes internes intervient dans la relation entre les entrées et les sorties. Ces variables internes sont souvent appelées variables d'état du procédé (x_1, x_2, \dots, x_n). Elles peuvent dépendre du temps (lorsqu'elles décrivent un procédé non stationnaire) ou non (lorsqu'elles représentent un procédé en régime permanent). Le choix d'un modèle donc, n'est pas une chose facile et l'étendue de sa complexité se doit d'être justifiée sur la base de l'intégration des phénomènes physico-chimiques significatifs intervenants et sa validité dépend de la capacité de prédire le fonctionnement du procédé[4,5].

1.2.2 Les différentes formes de modèles mathématiques

Le modèle mathématique peut prendre différentes formes selon son niveau de description.

1.2.2.1 Modèle fondamental et modèle formel

Certains des modèles résultent d'une étude théorique et d'autres sont purement empiriques (telles que les corrélations). Si la totalité des équations qui constituent le modèle sont de nature empirique, on dira qu'il est de type formel (ou aveugle qui ne fournit aucune explication d'ordre phénoménologique), par contre le modèle sera qualifié de fondamental si la plupart des équations sont issues des lois physiques ou physico-chimiques[6]. Le modèle fondamental, appelé parfois modèle de représentation, modèle de connaissance ou modèle phénoménologique.

1.2.2.2 Modèle à paramètres distribués et modèle à paramètres concentrés

Le modèle à paramètres distribués : ses variables varient dans le temps et dans l'espace (t, x, y, z) et le modèle à paramètres concentrés (localisés) : ses variables varient avec le temps

1.2.2.3 Modèle statique et modèle dynamique

Selon que le temps intervient ou non dans un modèle, on dit que l'on a affaire à un modèle dynamique ou à un modèle statique.

Le modèle statique se réfère à un régime établi : les valeurs des variables ayant été fixées, le système a répondu en se déplaçant vers un état d'équilibre et on examine cet état sans se préoccuper de la manière dont cet état a été atteint. Au contraire on rencontrera un modèle dynamique : soit dans des opérations en discontinues (batch) où les valeurs de variables se modifient constamment au cours du temps ; soit dans des opérations continues en phase transitoire de démarrage, de changement de régime ou d'arrêt ; soit dans des opérations continues où certaines variables sont soumises à des perturbations telles que le système n'atteint jamais sa position stable.

En résumé, le modèle statique permet de décrire, pour un jeu de variables donné, la situation qui devrait s'établir plus ou moins rapidement, alors que le modèle dynamique permet la description des périodes transitoires d'approche de cet état d'équilibre[6].

1.2.2.4 Modèle déterministe et modèle probabiliste

On admet implicitement que tous les modèles dont question ici respectent le principe du déterminisme, c'est-à-dire sous-tendent le fait qu'une même cause aura toujours sensiblement les mêmes effets. Il est donc impropre de parler de modèle statistique ou probabiliste puisqu'on n'imagine pas qu'il puisse exister des effets sans causes sauf à renoncer à toute stratégie de modélisation.

L'approche stochastique (se dit de phénomènes pour lesquels on ne peut formuler que des prévisions globales, d'ordre statistique) d'un problème peut tout fois s'avérer fort instructive. Chaque fois qu'il apparaît possible de décrire un phénomène, un comportement, une situation, en mettant en jeu des probabilités d'existence, de dépassement de seuil, de rencontre, de passage préférentiel, il est avantageux de faire, même si, en définitive, le modèle se révélera globalement déterministe, l'approche stochastique fournissant des valeurs moyennes.

I.2.2.5 Modèle analytique et modèle expérimentale (boite noire)

La modélisation analytique repose sur une connaissance parfaite du modèle et une représentation mathématique adéquate, elle permet d'établir des modèles de procédés à partir des lois fondamentales, leur structure est formée sur la base de l'analyse des processus, se déroulant dans le système.

Un modèle de type boîte noire se réduit à une description du procédé dénuée de toute signification physique. De nombreuses formes peuvent lui être données depuis la formulation mathématique pure reliant les entrées et les sorties jusqu'à une description qualitative comme les techniques modernes d'intelligence artificielle (les systèmes experts, les réseaux neuronaux, la logique floue, la physique quantitative...) l'autorisent.

Deux problèmes sont à résoudre lorsque l'on cherche à créer des relations mathématiques entre entrées et sorties. Le premier consiste à sélectionner les variables influant le plus sur la sortie étudiée. Le second consiste à chercher la forme mathématique la plus appropriée. Des outils statistiques peuvent aider, à partir de l'analyse des valeurs expérimentales, à déterminer les variables ayant le plus d'influence (composantes principales).

Quelles que soient les techniques utilisées, les modèles de type boîte noire sont des modèles de régression, c'est-à-dire qu'ils ne représentent de manière fiable que le domaine expérimental sur lequel ils ont été calés. Les utiliser en extrapolation est un risque qu'il faut savoir maîtriser[2].

I.3 Contrôle des procédés

Le Contrôle dans une forme ou une autre est une partie essentielle de toutes les opérations de génie chimique. Dans tous les processus, il est nécessaire de garder débit, pressions, températures, compositions, etc., dans certaines limites pour raisons de sécurité ou spécification[7].

I.3.1 Généralités

I.3.1.1 Automatisation

Dès que l'on désire obtenir des produits de qualité constante, assurer la régularité de fonctionnement d'un procédé, réduire l'impact de l'énergie et des matières premières sur le coût de production, l'automatisation devient une nécessité absolue. Elle l'est d'autant plus que certains procédés tels que le cracking catalytique, les réacteurs nucléaires..., n'auraient jamais pu fonctionner si on n'avait pas su les automatiser.

L'automatisation c'est l'ensemble des procédés visant à réduire ou à supprimer l'intervention humaine dans les processus de production, elle est indispensable dans toutes les branches et applications industrielles [8,9,10,11].

I.3.1.2 Commande

L'ensemble des opérations, nécessaires pour la mise en marche et à l'arrêt du processus, et aussi pour le maintien ou le changement dans un sens souhaité des grandeurs qui caractérisent l'état d'un processus donnée est appelé commande. Si cette commande est accomplie par l'opérateur humain, alors la commande est manuelle. L'accomplissement de la fonction du changement de l'état du système commandé à l'aide des dispositifs intermédiaires selon des lois déterminées représente, en général, une commande automatique[12].

I.3.1.3 Régulation

La régulation est l'action de régler automatiquement une grandeur de telle sorte que celle-ci garde constamment sa valeur ou reste proche de la valeur désirée, quelles que soient les perturbations qui peuvent survenir[13].

L'objectif global de la régulation peut se résumer par ces trois mots clefs : mesurer, comparer, corriger et modifier. Cependant, chaque procédé possède ses exigences propres, chaque appareil possède ses propres conditions de fonctionnement[14].

I.3.1.4 Système de commande

Le système commandé peut être décrit par deux types de grandeurs d'entrée (commande et de perturbations) et de sortie. Ces grandeurs sont des fonctions de temps, appelées aussi signaux. Il est composé d'un système de commande et du système à commander

Commander (contrôler) : C'est organiser un système dans un but fixé.

Le système à commander : est le système sujet à la commande (four, moteur, réacteur ...).

I.3.2 Paramètres d'un système de commande

- *Ordre* : C'est la consigne de régulation, où le but est fixé. Par exemple fixer une température à 37 °c ou fixer une trajectoire d'un avion.
- *Action de commande* : Action susceptible de changer l'état du système à commander. Elle est élaborée en fonction des ordres.
- *Perturbations* : variable aléatoire dont on ne connaît pas l'origine.
- *Sortie* : variable à contrôler.

I.3.3 Propriétés d'un système contrôlé (commandé)

Le rôle d'un automaticien est de concevoir un Système de Régulation Automatique (SRA), répond aux qualités exigées d'une régulation industrielle, qui soit :

Stable : La grandeur de sortie doit converger vers un point d'équilibre stable, et ne doit pas osciller autour du point de consigne.

Précis : La grandeur à mesurer doit être maintenue en permanence au plus près de la consigne.

Rapide : Il doit répondre rapidement à une excitation[15].

I.3.4 La synthèse d'un système de commande

La synthèse d'un système de commande se fait généralement en trois étapes.

La première étape consiste à élaborer un modèle de commande qui représente au mieux le comportement d'entrée sortie, la seconde étape consiste à déterminer les paramètres d'un régulateur en fonction des performances requises à partir des méthodes de synthèse offertes par la théorie de la commande et la dernière étape consiste à mettre en œuvre l'algorithme de commande sur un calculateur de temps réel, doté d'une bonne librairie d'analyse numérique et d'une interface, disponible pour ce faire[16].

I.3.5 Principe de commande automatique

Dans la majorité des cas, cependant, si le réglage simple d'un système n'est pas suffisant, parce que trop grossier ou instable. Il faut alors comparer, en permanence, la valeur mesurée de la grandeur réglée à celle que l'on souhaite obtenir (consigne) et agir en conséquence sur la grandeur d'action, dite grandeur réglante. On a, dans ce cas, constitué une boucle de régulation.

Cette boucle nécessite la mise en œuvre d'un ensemble de moyen de mesure, de traitement de signal ou de calcul, d'amplification et de commande d'actionneur, constituant une chaîne d'éléments associés : la chaîne de régulation[13,17].

En fonction de la source du signal utilisé par le système de commande, les systèmes automatiques sont classées en trois catégories :

- 1) **Système à boucle ouverte** : Système dont on a aucune information sur la grandeur à commander. Par exemple, le réglage de la température du four est assuré par une personne extérieure (de la salle de contrôle), il n'a donc aucune information sur la grandeur à régler.
- 2) **Système à boucle fermée** : Le principe de fonctionnement des systèmes à boucle fermée est fondé sur la mesure de l'écart (grandeur de correction ou erreur) ou le principe de contre réaction. Ce principe consiste à comparer la valeur désirée avec la valeur réelle de la grandeur commandée. A titre d'exemple, le réglage de la température en agissant sur un organe de réglage (la vanne) en fonction de l'écart entre la valeur désirée et la valeur réelle.
- 3) **Système en boucle cascade (combinée)**: En associant dans ce type de montage une boucle ouverte et une boucle fermée, on obtient à la fois la fiabilité, indispensable à une bonne régulation, et une réponse rapide. Dans ce montage, la consigne du régulateur est donnée par un autre régulateur appelé PILOTE.

1.3.6 Elément constitutifs d'une boucle de régulation

Une boucle de régulation doit comporter au minimum un capteur de mesure, un transmetteur souvent intégré au capteur, un régulateur, et un actionneur[17]. Elle est souvent complétée par, un enregistreur, des convertisseurs, et des sécurités[18].

1.3.6.1 Capteurs

Un capteur est l'élément d'un appareil de mesure servant à la prise d'informations relatives à la grandeur à mesurer. Ce sont donc des organes sensibles, transformant la grandeur à mesurer en un signal électrique, pneumatique, hydraulique ou numérique, normalisé, représentatif de l'information originelle. Cette transformation nécessite généralement un apport d'énergie extérieure au système. En règle générale, l'élément sensible du capteur est lié à un transmetteur.

Dans les équipements thermiques, le capteur de température est le plus répandu, dans les fours, on utilise en général [15] :

- **des lunettes infrarouges** : (mono ou bichromatiques) utilisées pour les mesures sans contact ; elles restent une solution chère et pas toujours utilisable ; leur domaine d'utilisation est généralement supérieur à 600°C ;
- **des thermocouples** : il en existe plusieurs types selon la gamme de température balayée par le four.

Les thermocouples les plus utilisées sont de types :

cuiivre-constantan	(-185 à +300 °C),	platine-platine rhodié 13 %	(0 à +1600°C),
fer-constantan	(+20 à +70 °C) ,	platine-platine rhodié 10 %	(0 à +155 0°C),
chromel-alumel	(0 à +1100°C) ,	tungstène- tungstène 26%	(+20 à +2300°C),
platine rhodié 30 % - platine rhodié 6 %	(+100 à +1600°C).		

Comme capteurs, on peut citer aussi les capteurs de débit, de pression, de déplacement, de masse, d'humidité, etc. Ces capteurs fournissent en général un signal analogique, image de la grandeur physique mesurée.

I.3.6.2 Transmetteurs

Le transmetteur est utilisé lorsque la mesure est éloignée du régulateur (par exemple distance supérieur à 10 m). Son rôle est de transformer la mesure physique en un courant (ex : 4-20 mA) ou une tension (ex : 0-10 V) moins sensibles aux parasites. Le transmetteur peut faire partie intégrante du capteur. Il peut également conditionner le signal (par exemple, filtrage, compensation de soudure froide pour un thermocouple)[15].

Cet appareil, essentiel dans la majorité des chaînes de régulation, remplit en fait un triple rôle :

- séparation de la grandeur mesurée et de la grandeur transmise,
- conversion des signaux et amplification de puissance,
- normalisation.

Quels que soient la nature de grandeur physique mesurée et son niveau, le transmetteur la transforme en effet en une grandeur, électrique ou pneumatique, normalisée[17].

I.3.6.3 Régulateur

Un régulateur est le "cerveau" de la boucle de régulation, c'est un mécanisme automatique qui élabore un signal de commande U en fonction de l'écart de réglage $M-C$ selon un algorithme donné f :

$$U = f(M-C) \quad (1.1)$$

M : ou PV, le signal de mesure, elle provient du transmetteur,

C : ou SP, consigne qui peut être locale ou provient d'un instrument extérieur,

U : sortie du régulateur, signal de commande, elle actionne l'organe de réglage afin d'annuler cet écart et de ramener la mesure vers la valeur de consigne[18].

I.3.6.4 Actionneurs

C'est l'organe de commande de la grandeur réglante, à travers lequel la chaîne entière exerce son action sur le processus.

Dans la majorité des cas, cependant, l'actionneur retenu est une Vanne, fonctionnant soit en tout ou rien, soit (le plus souvent) en continu. C'est en effet par le réglage de pression ou de débit d'un fluide d'alimentation, d'extraction ou de recyclage que la plupart des processus industriels peuvent être commandés[17].

I.3.7 Asservissement et Régulation

Un système asservi est un système dit suiveur, c'est la consigne qui varie, (par exemple, une machine outil qui doit usiner une pièce selon un profil donné, un missile qui poursuit une cible). Dans le cas de la régulation, la consigne est fixée et le système doit compenser l'effet des perturbations, à titre d'exemple, le réglage de la température dans un four, de la pression dans un réacteur, le niveau d'eau dans un réservoir [18].

I.3.8 Classification des régulateurs

I.3.8.1 Selon la nature de l'énergie qu'ils utilisent

A. Pneumatique : sortie 0.2 à 1 bar. Ils sont utilisés dans l'industrie chimique du gaz, ne présentent pas de danger d'explosion, de moins au moins utilisés car lents et encombrants.

B. Electronique : sortie 4-20 mA utilisent des signaux analogiques à base d'amplificateurs opérationnels.

C. Numérique : Sortie sous forme numérique. La technologie numérique permet d'avoir une grande souplesse : opération arithmétique, auto ajustage des coefficients, possibilité d'émettre ou de recevoir des données.

I.3.8.2 Selon le type d'action

P-régulateur, PI-régulateur, PD-régulateur, PID-régulateur et régulateur tout ou rien.

I.3.8.2.1 Régulateur proportionnel (P-Régulateur)

Le signal de sortie du régulateur est directement (ou inversement) proportionnel à l'écart entre la mesure et la consigne. Le coefficient de proportionnalité est noté 'gain' (K) du régulateur. L'action Proportionnelle corrige de manière instantanée, donc rapide, tout écart de la grandeur à régler.

Afin de diminuer l'écart de réglage et rendre le système plus rapide, on augmente le gain K mais, on est limité par la stabilité du système donc l'action proportionnelle seule ne permet pas en général à la mesure de rejoindre la valeur de consigne.

On utilise un P-régulateur lorsque la précision n'est pas importante. Le réglage par exemple du niveau d'eau dans un réservoir de stockage. Elle est simple à réaliser (simple amplificateur) d'où son grand avantage[13,18,19].

L'expression de sa sortie est donnée par:
$$u_p = u_0 + K_C \varepsilon \quad (1.2)$$

ε : c'est l'écart de réglage (M-C),

u_p : est le signal de sortie (la production) du régulateur, K_C : est le gain ou sensibilité,

u_0 : est la production du contrôleur quand il n'y a aucune erreur [7]

I.3.8.2.2 Régulateur Intégral (I-Régulateur)

L'action intégrale complète l'action proportionnelle, elle intègre l'écart de réglage en fonction du temps. Elle permet d'éliminer l'erreur résiduelle en régime permanent. Afin de rendre le système plus dynamique (diminuer le temps de réponse), on diminue l'action intégrale mais, ceci provoque l'augmentation du déphasage ce qui provoque l'instabilité en état fermé. Elle est conditionnée par le temps d'intégration (T_i) généralement exprimé en minutes qui est d'autant plus grand que l'action intégrale est faible[13].

Dans l'industrie, on utilise l'action intégrale, chaque fois que nous avons besoin, pour des raisons technologiques, d'avoir une précision parfaite - exemple: la régulation de la pression ou température dans un réacteur nucléaire.

De plus, il faut souligner que l'action I est un filtre donc il est intéressant de l'utiliser pour le réglage des paramètres très dynamiques telle que la pression[15,17].

L'expression de sa sortie est donnée par:
$$u_I = u_0 + K_I \int_0^t \varepsilon . dt \quad (1.3)$$

Avec : $K_I = K_C / T_i$

L'action intégrale est d'autant plus forte que le temps d'intégration T_i est petit et K_C est grand. L'inconvénient de l'action intégrale est la tendance au dépassement et donc à l'instabilité[19].

1.3.8.2.3 Régulateur dérivé D-Régulateur

L'action dérivée est une action qui tient compte de la vitesse de variation de la mesure (ou de l'écart de réglage). Elle compense les effets du temps mort du process. Elle a un effet stabilisateur mais une valeur excessive peut entraîner une instabilité. La présence de l'action dérivée permet donc d'augmenter la rapidité du système en augmentant le gain sans être inquiété par la stabilité. On recommande de l'utiliser pour le réglage des paramètres lents tels que la température. Par contre en présence des paramètres bruités, l'action dérivée est déconseillée. En effet un signal bruité ayant par exemple la fréquence du réseau (50 hz) sera amplifiée en le dérivant. Le temps de dérivé (T_d) s'exprime en minutes[13,18].

L'expression de sa sortie est donnée par :
$$u_d = u_0 + K_d \frac{d\varepsilon}{dt} \quad (1.4)$$

Avec : $K_d = K_C T_d$

lorsque l'erreur ne varie plus, la commande due à l'action dérivée s'annule. L'action dérivée est dotant plus forte que T_d et K_C sont grands[19]

Les actions intégrale et dérivée ne sont jamais employées seules mais associées à l'action proportionnelle (PI, PD)[15].

1.3.8.2.4 Régulateur proportionnel, intégral et dérivé PID-Régulateur

Les régulateurs à trois actions, PID, sont sans doute les plus répandus en régulation industrielle. D'une manière sommaire, on peut dire que, dans ces régulateurs : l'action proportionnelle tend à corriger de manière instantanée, donc rapide, tout écart de la grandeur réglée, l'action intégral complète l'effet de l'action proportionnelle en annulant l'écart résiduel en régime permanent et l'action drivée, en compensant an partie les inerties, accélère la réponse du régulateur et améliore la stabilité de la boucle, en permettant notamment un amortissement rapide des oscillations dues à l'apparition d'une perturbation ou à une variation subite de la consigne[17].

L'équation temporelle reliant la commande u à l'erreur de régulation ε est la suivante :

$$u = u_0 + K_C \left(\varepsilon + \frac{1}{T_i} \int_0^t \varepsilon . dt + T_d \frac{d\varepsilon}{dt} \right) \quad (1.5)$$

Où, K_C est le gain statique du régulateur (sans unité si u et y exprime en valeur réduite), $T_i(s)$ constante de temps d'intégration, $T_d(s)$ constante de temps de dérivée.

1.3.8.2.5 Régulateurs "tout ou rien"

Un régulateur «tout ou rien» est un régulateur qui élabore une action de commande discontinue qui prend deux positions ou deux états 0 et 1 (ou 0 et 100%). Ils consistent à déterminer laquelle des deux tensions (consigne et mesure) est la plus grande et envoyer la commande correspondante. Ils sont utilisés pour la commande des systèmes ayant une grande inertie où la précision de régulation n'est pas importante. A titre d'exemple la régulation d'un four à l'aide d'une résistance chauffante[18,19].

1.3.8.3 Selon le sens d'action

le sens d'action est choisi en fonction de celui de la vanne. Le sens de celle ci est fixé en fonction des conditions de sécurité. Ainsi par exemple, une vanne de réglage d'un gaz combustible doit être fermée par manque d'air.

- *Direct* : l'augmentation de la mesure provoque l'augmentation de la commande,
- *Inverse* : l'augmentation de la mesure provoque la diminution de la commande.

1.3.9 Réglage des paramètres des régulateurs

La procédure logique à respecter pour élaborer les valeurs optimales de réglage des paramètres d'un régulateur P.I.D consiste dans un premier temps, à déterminer quantitativement la fonction de transfert du processus à réguler (nature et grandeurs caractéristiques), c'est l'identification du processus, dans un second temps, à calculer les valeurs K_C , T_i et T_d , à partir de formules ou d'abaques prenant en compte les données relatives au processus, obtenues dans la phase d'identification.

En principe, l'identification se fait par des tests appropriés sur le processus en boucle ouverte, c'est-à-dire en plaçant le régulateur en mode manuel pendant les tests. Certains processus ne permet cependant pas d'ouvrir la boucle. Il est nécessaire alors d'effectuer les tests d'identification en boucle fermée, par de petites variations en échelon sur la consigne du régulateur. Il existe d'autres méthodes bien plus précises, mais de mise en œuvre parfois complexes, elles nécessitent des algorithmes mathématiques fondés sur l'analyse spectrale des signaux enregistrés, sur les corrélations, etc.[17].

Une fois l'identification effectuée, on peut déterminer les valeurs optimales des paramètres à partir de méthodes aujourd'hui bien connues et largement utilisées comme la méthode de *Ziegler* et *Nichols*, la méthode de *Strejc*, la méthode de *Broida*, ou bien des méthodes générales de synthèse des correcteurs (abaque de Black, lieu des pole, etc.).

1.3.10 Notion de régulation avancée

Lorsque la régulation classique PID est incapable de stabiliser ou de réguler le processus, on doit ou bien changer la structure du système de commande ou proposer d'autres algorithmes de commande plus sophistiqués. Ces méthodes sont communément appelées méthodes avancées de régulation. La liste des méthodes modernes de réglage (commande floue, par réseaux de neurones, horizon infini etc.). En génie des procédés, on utilise surtout les méthodes classiques, telles que : La régulation cascade, prédictive et auto adaptative.

I.4 Méthodes numériques d'intégration et optimisation

L'objectif de cette partie est de décrire un certain nombre de méthodes pratiques, de base, permettant de résoudre numériquement le problème de *Cauchy*, des équations différentielles ordinaires. Ainsi, de présenter d'une façon générale la méthode des plans d'expérience et son utilité dans la planification, l'organisation et l'optimisation du choix des essais.

I.4.1 Intégration numérique des équations différentielles

I.4.1.1 Définition du problème

Soient un intervalle $[a, b]$ de \mathbb{R} , une application $f : [a, b] \times \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R}^n$, et une application différentiable $y : [a, b] \rightarrow \mathbb{R}^n$.

On considère le problème type suivant :

Trouver $y(x)$ vérifiant : $\begin{cases} y'(x) = f(x, y(x)), & x \in [a, b] & \dots\dots\dots(1.6) \\ y(a) = y_0 & \text{(condition initiale)} & \dots\dots\dots(1.7) \end{cases}$

où f est supposée suffisamment régulière.

I.4.1.2 Existence et unicité

Le théorème suivant nous donne des conditions qui assurent l'existence et l'unicité de la solution[20] :

Théorème : Si f est définie et continue sur $[a, b] \times \mathbb{R}^n$, et s'il existe une constante L strictement positive telle que : $\forall x \in [a, b], \forall u, v \in \mathbb{R}^n : \|f(x, u) - f(x, v)\| \leq L\|u - v\|$, alors le problème de *Cauchy* admet une solution unique quelque soit $y_0 \in \mathbb{R}^n$.
 L est dite la *constante de Cauchy*.

Remarque : En pratique, les conditions de Cauchy sont souvent satisfaites. C'est le cas par exemple pour une fonction f de classe C^1 . Ceci étant, nous nous plaçons toujours dans les conditions du théorème. Par ailleurs, pour simplifier les notations nous avons choisi ici d'exposer le cas unidimensionnelle ($n = 1$), le cas multidimensionnelle se fait d'une manière similaire.

I.4.1.3 Résolution du problème de Cauchy

Si l'on prend un problème de Cauchy très simple, par exemple $y' = a.y$ avec $y(0) = 1$, on sera capable d'obtenir sa solution exacte par les méthodes de l'analyse mathématique : $y(x) = \exp(ax)$. Si le problème est plus compliqué, on a recours aux méthodes numériques qui fournissent des valeurs approchées de la solution.

Etant donné une subdivision de l'intervalle $[a, b]$: $a = x_0 < x_1 < \dots < x_N = b$, on cherche à exprimer des valeurs approchées y_0, y_1, \dots, y_N des valeurs $y(x_n)$ prises par la solution exacte y . On notera : $h_n = x_{n+1} - x_n, 0 \leq n \leq N - 1$, les pas successifs.
 $h_{\max} = \max(h_n)$, le pas de la subdivision.

I.4.1.3.1 Méthodes de résolution

Les méthodes de calcul de y_0, y_1, \dots, y_N se divisent en deux classes selon la façon dont les valeurs de y_n sont calculés [20]:

- Les méthodes à pas séparés (ou à un pas) : Le calcul de y_{n+1} ne fait intervenir que y_n ;
exemple : Méthode d'Euler, méthode de Runge Kutta, ...
- Les méthodes à pas liés (ou à pas multiples) : Le calcul de y_{n+1} fait intervenir $y_n, y_{n-1}, \dots, y_{n-k}$ pour k fixé.
exemple : Méthode de Nystrom, méthode d'Adams- Bashforth.

Le choix d'une méthode de résolution doit tenir compte du temps de calcul, de la précision et de la facilité de programmation.

Les erreurs arithmétiques de l'ordinateur ou de troncature due à l'ordre d'approximation de la méthode interviennent à chaque pas d'intégration. L'erreur sur un pas courant affecte la valeur suivante. Le phénomène est cumulatif. Pour que la méthode soit stable, il faut borner les erreurs. D'où la définition sur la stabilité de la méthode.

A. Méthodes à un pas

Le schéma général de ces méthodes se présente sous la forme :

$$y_{n+1} = y_n + h_n \cdot \Psi(x_n, y_n, h_n) \text{ pour } n = 0, \dots, N-1 \quad (1.8)$$

Les différentes méthodes se distinguent les unes des autres par le choix de Ψ et de h_n .

Souvent, h_n est pris constant, et égal à $\frac{b-a}{N}$.

A.1. Méthode d'Euler

Principe:

1. On subdivise l'intervalle d'intégration $[a, b]$ en N sous-intervalles de longueur égale à $h = \frac{b-a}{N}$ délimités par les points de subdivision x_n .
2. Pour chaque abscisse x_n , on calcule une valeur approchée y_n de la vraie valeur $y(x_n)$ de la fonction y .
3. Pour cela, on considère la tangente en (x_n, y_n) à la courbe intégrale passant par ce point.
La valeur de y_{n+1} est l'ordonnée du point de cette droite d'abscisse x_{n+1} .

Algorithme :

- Choix du pas : $h_n = h = \frac{b-a}{N}$.
- Choix de Ψ : $\Psi(x, y, h) = f(x, y)$.

- Itération :

$$y_{n+1} = y_n + h f(x_n, y_n) \quad n = 0, \dots, N-1 \quad (1.9)$$

C'est l'algorithme de la méthode d'Euler, à pas fixe, pour la résolution du problème (1.6) - (1.6).

A.2. Méthode d'Euler améliorée

Principe :

1. On subdivise l'intervalle d'intégration $[a, b]$ en N sous-intervalles de longueur égale à $h = \frac{b-a}{N}$ délimités par les points de subdivision x_n .
2. Pour chaque abscisse x_n , on calcule une valeur approchée y_n de la vraie valeur $y(x_n)$ de la fonction y .
3. Pour cela, on remplace dans la formule d'Euler la pente de la tangente $f(x_n, y_n)$ par la valeur corrigée au milieu de l'intervalle $[x_n, x_{n+1}]$.

Algorithme :

- Choix du pas : $h_n = h = \frac{b-a}{N}$.
- Choix de Ψ : $\Psi(x, y, h) = f\left(x + \frac{h}{2}, y + \frac{h}{2} f(x, y)\right)$.
- Itération :

$$y_{n+1} = y_n + h f\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2} f(x_n, y_n)\right) \quad n = 0, \dots, N-1 \quad (1.10)$$

On introduit dans ce qui suit une méthode plus précise que la méthode d'Euler, et qui présente l'intérêt, entre autres, de la généraliser.

A.3. Méthode de Runge Kutta d'ordre 4

Principe :

1. On subdivise l'intervalle d'intégration $[a, b]$ en N sous-intervalles de longueur égale à $h = \frac{b-a}{N}$ délimités par les points de subdivision x_n .
2. Pour chaque abscisse x_n , on calcule une valeur approchée y_n de la vraie valeur $y(x_n)$ de la fonction y .
3. Pour cela, on remplace dans la formule d'Euler la pente de la tangente $f(x_n, y_n)$ par une moyenne pondérée de cette pente avec 3 valeurs corrigées successivement en 3 points de l'intervalle $[x_n, x_{n+1}]$.

- Itération :

$$y_{n+1} = y_n + h f(x_n, y_n) \quad n = 0, \dots, N-1 \quad (1.9)$$

C'est l'algorithme de la méthode d'Euler, à pas fixe, pour la résolution du problème (1.6) - (1.6).

A.2. Méthode d'Euler améliorée

Principe :

1. On subdivise l'intervalle d'intégration $[a, b]$ en N sous-intervalles de longueur égale à $h = \frac{b-a}{N}$ délimités par les points de subdivision x_n .
2. Pour chaque abscisse x_n , on calcule une valeur approchée y_n de la vraie valeur $y(x_n)$ de la fonction y .
3. Pour cela, on remplace dans la formule d'Euler la pente de la tangente $f(x_n, y_n)$ par la valeur corrigée au milieu de l'intervalle $[x_n, x_{n+1}]$.

Algorithme :

- Choix du pas : $h_n = h = \frac{b-a}{N}$.
- Choix de Ψ : $\Psi(x, y, h) = f\left(x + \frac{h}{2}, y + \frac{h}{2} f(x, y)\right)$.
- Itération :

$$y_{n+1} = y_n + h f\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2} f(x_n, y_n)\right) \quad n = 0, \dots, N-1 \quad (1.10)$$

On introduit dans ce qui suit une méthode plus précise que la méthode d'Euler, et qui présente l'intérêt, entre autres, de la généraliser.

A.3. Méthode de Runge Kutta d'ordre 4

Principe :

1. On subdivise l'intervalle d'intégration $[a, b]$ en N sous-intervalles de longueur égale à $h = \frac{b-a}{N}$ délimités par les points de subdivision x_n .
2. Pour chaque abscisse x_n , on calcule une valeur approchée y_n de la vraie valeur $y(x_n)$ de la fonction y .
3. Pour cela, on remplace dans la formule d'Euler la pente de la tangente $f(x_n, y_n)$ par une moyenne pondérée de cette pente avec 3 valeurs corrigées successivement en 3 points de l'intervalle $[x_n, x_{n+1}]$.

Algorithme :

- Choix du pas : $h_n = h = \frac{b-a}{N}$.
- Choix de Ψ : $\Psi(x, y, h) = \frac{1}{6} f(k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4)$, avec k_i comme donnés ci-dessous.
- Itération :

$$\left. \begin{aligned} k_1 &= f(x_n, y_n) \\ k_2 &= f\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + h \frac{k_1}{2}\right) \\ k_3 &= f\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + h \frac{k_2}{2}\right) \\ k_4 &= f(x_n + h, y_n + h k_3) \\ y_{n+1} &= y_n + \frac{h}{6} (k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4) \end{aligned} \right\} n = 0, \dots, N-1 \quad (1.11)$$

Remarque : Nous avons ici présenté la méthode de *Runge Kutta* d'ordre 4, car elle est la plus utilisée en pratique.

B. Méthodes à pas multiples

Le schéma général de ces méthodes se présente sous la forme :

$$y_{n+1} = \Psi(x_n, y_n, h_n; \dots; x_{n-k}, y_{n-k}, h_{n-k}) \text{ pour } n = 0, \dots, N-1. \quad (1.12)$$

k est dit l'ordre de la méthode.

L'intérêt de ces méthodes vient du fait qu'on peut obtenir un ordre plus élevé, donc plus de précision, pour une complexité de calcul nettement inférieure à celle des méthodes de *Runge Kutta*. L'un des problèmes essentiels, néanmoins, est de s'assurer que la stabilité numérique reste suffisamment bonne [21].

B.1. Méthode de Nyström**Principe :**

1. On subdivise l'intervalle d'intégration $[a, b]$ en N sous-intervalles de longueur égale à $h = \frac{b-a}{N}$ délimités par les points de subdivision x_n .
2. Pour chaque abscisse x_n , on calcule une valeur approchée y_n de la vraie valeur $y(x_n)$ de la fonction y .
3. Pour cela, on considère la droite de pente $f(x_n, y_n)$ passant par le point (x_{n-1}, y_{n-1}) (parallèle à la tangente à la courbe intégrale passant par (x_n, y_n)). La valeur de y_{n+1} est l'ordonnée du point de cette droite d'abscisse x_{n+1} .

Algorithme :

- Choix du pas : $h_n = h = \frac{b-a}{N}$.
- Choix de Ψ : $\Psi(x, y, h) = \frac{1}{6} f(k_1 + 2.k_2 + 2.k_3 + k_4)$, avec k_i comme donnés ci-dessous.
- Itération :

$$\left. \begin{aligned} k_1 &= f(x_n, y_n) \\ k_2 &= f\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + h \frac{k_1}{2}\right) \\ k_3 &= f\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + h \frac{k_2}{2}\right) \\ k_4 &= f(x_n + h, y_n + h k_3) \\ y_{n+1} &= y_n + \frac{h}{6}(k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4) \end{aligned} \right\} n = 0, \dots, N - 1 \quad (1.11)$$

Remarque : Nous avons ici présenté la méthode de *Runge Kutta* d'ordre 4, car elle est la plus utilisée en pratique.

B. Méthodes à pas multiples

Le schéma général de ces méthodes se présente sous la forme :

$$y_{n+1} = \Psi(x_n, y_n, h_n, \dots, x_{n-k}, y_{n-k}, h_{n-k}) \text{ pour } n = 0, \dots, N - 1. \quad (1.12)$$

k est dit l'ordre de la méthode.

L'intérêt de ces méthodes vient du fait qu'on peut obtenir un ordre plus élevé, donc plus de précision, pour une complexité de calcul nettement inférieure à celle des méthodes de *Runge Kutta*. L'un des problèmes essentiels, néanmoins, est de s'assurer que la stabilité numérique reste suffisamment bonne [21].

B.1. Méthode de Nyström

Principe :

1. On subdivise l'intervalle d'intégration $[a, b]$ en N sous-intervalles de longueur égale à $h = \frac{b-a}{N}$ délimités par les points de subdivision x_n .
2. Pour chaque abscisse x_n , on calcule une valeur approchée y_n de la vraie valeur $y(x_n)$ de la fonction y .
3. Pour cela, on considère la droite de pente $f(x_n, y_n)$ passant par le point (x_{n-1}, y_{n-1}) (parallèle à la tangente à la courbe intégrale passant par (x_n, y_n)). La valeur de y_{n+1} est l'ordonnée du point de cette droite d'abscisse x_{n+1} .

Algorithme :

- *Initialisation* : Calcul de y_1 à l'aide d'une méthode à 1 pas ;

- *Itération* :

$$y_{n+1} = y_{n-1} + 2hf(x_n, y_n) \quad n = 1, \dots, N-1 \quad (1.13)$$

B.2. Méthode d'Adams-Bashforth-Moulton**Principe :**

1. On subdivise l'intervalle d'intégration $[a, b]$ en N sous-intervalles de longueur égale à $h = \frac{b-a}{N}$ délimités par les points de subdivision x_n .
2. Pour chaque abscisse x_n , on calcule une valeur approchée y_n de la vraie valeur $y(x_n)$ de la fonction y .
3. Pour cela, on utilise la propriété suivante :

$$y(x_{n+1}) = y(x_n) + \int_{x_n}^{x_{n+1}} f(x, y(x)) dx \quad (1.14)$$

On approche $f(x, y(x))$ sur $[x_n, x_{n+1}]$ par un polynôme d'interpolation aux points :

- $x_{n-3}, x_{n-2}, x_{n-1}, x_n$ (formule de prédiction),
- $x_{n-2}, x_{n-1}, x_n, x_{n+1}$ (formule de correction) ;

et on remplace $y(x_n)$ par y_n pour tout n .

Algorithme :

- *Initialisation* : Calcul de y_1, y_2, y_3 à l'aide d'une méthode à 1 pas

- *Itération* :

- *Formule de prédiction :*

$$y_{n+1}^* = y_n + \frac{h}{24} [55f(x_n, y_n) - 50f(x_{n-1}, y_{n-1}) + 37f(x_{n-2}, y_{n-2}) - 9f(x_{n-3}, y_{n-3})] \quad (1.15)$$

$$n = 3, \dots, N-1$$

- *Formule de correction :*

$$y_{n+1} = y_n + \frac{h}{24} [9f(x_{n+1}, y_{n+1}^*) + 10f(x_n, y_n) - 5f(x_{n-1}, y_{n-1}) + f(x_{n-2}, y_{n-2})] \quad (1.16)$$

$$n = 3, \dots, N-1$$

Les divers algorithmes sont cités dans la référence[22].

I.4.2 Optimisation :

L'objectif de l'industrie chimique est l'obtention des produits de bonne qualité et pureté, avec la minimisation des pertes dans la matière première et éviter la pollution. L'optimisation des conditions opératoires (température, débit d'alimentation en réactifs, temps de l'opération...) est l'approche la plus effective dans l'industrie chimique pour atteindre les normes d'une meilleure productivité (qualité, rendement maximum, temps réduit, coût bas...). Parmi les techniques d'optimisations les plus répandues vient la méthode des plans d'expériences.

I.4.2.1 Plans d'expériences

La méthode des plans d'expérience est à la fois nouvelle et ancienne. Nouvelle pour l'ingénierie mécanique et électronique qui, traditionnellement, est portée vers les sciences exactes. Elle est cependant ancienne. Depuis longtemps, les agronomes et les chimistes l'utilisent pour concevoir et analyser leurs expérimentations.

Le but de cette science est l'optimisation du choix des essais et de celui de leurs enchaînements au cours de l'expérimentation. Cette méthode apporte à l'expérimentateur un puissant outil de réflexion et d'analyse qui lui permettra de conduire son expérimentation avec sûreté et précision. Elle est basée sur des règles mathématiques strictes et elle exige une démarche rigoureuse de la part de l'expérimentateur [23,24,25].

L'universalité de ces méthodes devrait les faire employer dans de nombreux domaines, elles prouvent des réussites en recherches fondamentales, en recherche appliquée, en développement industriel et même en fabrication pour optimiser les performances du produit ou du procédé de fabrication. Elle s'applique également dans le cas où les résultats sont obtenus par simulation à partir de code de calcul. On parle alors de plans d'expériences numériques.

I.4.2.1.1 Généralités

I.4.2.1.1.1 Réponses, facteurs et niveaux

Un phénomène peut toujours être mis sous la forme mathématique suivante [23,24]:

$$Y = f(x_1, x_2, \dots, x_n) \text{ , avec :}$$

- Y grandeur à laquelle on s'intéresse l'expérimentateur, et qui est mesurée à chaque expérience : cette grandeur est appelée *la réponse* ou *la grandeur d'intérêt*;
- x_i variable sur laquelle l'expérimentateur peut agir;

Ces variables peuvent être continues ou discontinues. On les appelle *facteurs*. Dans le langage des plans d'expériences, on dit que le facteur varie entre le *niveau bas* (borne inférieure que l'on note le plus souvent par -1) et le *niveau haut* (borne supérieure que l'on note le plus souvent par +1);

- f fonction mathématique qui explique le mieux les variations de la réponse selon les différentes valeurs données aux x_i . Dans le cas des plans d'expériences, cette fonction mathématique est souvent un polynôme.

I.4.2.1.2 Coordonnées centrées réduites :

Lorsqu'on attribue la valeur -1 au niveau bas et la valeur +1 au niveau haut, on effectue deux modifications importantes [23]:

On change l'unité de mesure :

Par exemple, si le niveau bas d'un facteur est 60 °C et le niveau haut 80 °C, il y a 20 °C entre ces deux valeurs, soit 20 fois l'unité courante de température. Entre -1 et +1, il y a deux unités nouvelles. La nouvelle unité vaut donc 10°C, on lui donne le nom de pas.

On déplace l'origine des mesures :

Dans l'exemple choisi, le milieu de l'intervalle [-1 , +1] correspond à la température de 70 °C. Cette nouvelle origine, notée zéro, diffère donc de l'origine exprimée en unités courantes.

Ces deux modifications entraînent l'introduction de nouvelles variables que l'on appelle variables centrées réduites (v.c.r.) (centrées pour indiquer le changement d'origine, et réduites pour signaler la nouvelle unité).

Le passage des variables d'origine A aux variables centrées réduites x , et inversement, est donné par (A_0 étant la valeur centrale des unités courantes) :

$$x = (A - A_0) / pas \quad (1.17)$$

L'intérêt des v.c.r. est de pouvoir présenter les plans d'expériences de la même manière quels que soient les domaines expérimentaux et quels que soient les facteurs, ce qui donne une grande généralité de présentation à la théorie des plans d'expériences[23].

I.4.2.2 Principes de la méthode

I.4.2.2.1 La représentation de la méthode

Chaque point du domaine d'étude représente des conditions opératoires possibles, donc une expérience que l'opérateur peut réaliser.

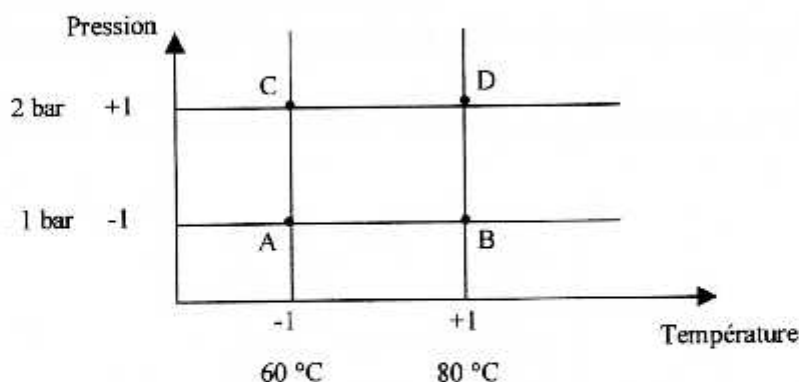


Figure I.3 - les meilleurs emplacements des points expérimentaux , dans le case du modèle du premier degré.

Le choix du nombre et de l'emplacement des points d'expériences est le problème fondamental des *plans d'expériences*. On a l'habitude d'appeler plans d'expériences des ensembles de points expérimentaux répondant à des propriétés bien précises[24].

La représentation géométrique d'un plan d'expériences ne peut plus être employer dès que le nombre de facteurs est supérieur à trois. Nous adopterons alors, une représentation en forme de tableau ou *matrice d'expériences* (tableau 1.1), définit les essais à réaliser.

1.4.2.2 Plans factoriels complets à deux niveaux 2^k

Les plans factoriels complets à deux niveaux sont les plus simples, ils sont aussi les plus utiles car ils forment la base de tous les débuts d'étude. Les premiers résultats obtenus grâce à ces plans peuvent toujours être complétés par de nouvelles expériences permettant d'atteindre le degré de précision d'information recherché[23].

Il s'agit de plans pour lesquels on étudie k facteurs prenant chacun deux niveaux. Le modèle mathématique adopté a priori est un polynôme prenant en compte la moyenne, les effets de chaque facteur et toutes les interactions entre les facteurs pris deux à deux, trois à trois, quatre à quatre, ..., k à k .

$$Y = a_0 + \sum a_i x_i + \sum a_{ij} x_i x_j + \sum a_{ijl} x_i x_j x_l + \dots + a_{j\dots k} x_i x_j \dots x_k \quad (1.18)$$

L'ensemble des résultats d'un plan 2^k conduit donc à un système de 2^k équations à 2^k inconnues, si l'on ne tient pas compte des erreurs expérimentales.

Ce système peut se mettre sous la forme matricielle :

$$Y = X \cdot a \quad (1.19)$$

avec

- Y vecteur ayant pour composantes les réponses de chaque essai, et représenté par une matrice colonne ($2^k, 1$);
- a vecteur ayant pour composantes la moyenne, les effets des facteurs et toutes les interactions, et représenté par une matrice colonne ($2^k, 1$); ces composantes sont les inconnues que l'on cherche à déterminer;
- X matrice carrée ($2^k, 2^k$) composée de -1 et +1 suivant les valeurs des niveaux x_i .

Si nous reprenons le système du plan 2^2 , la relation (1.19) prend la forme suivante :

$$\begin{bmatrix} Y_1 \\ Y_2 \\ Y_3 \\ Y_4 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} +1 & -1 & -1 & +1 \\ +1 & +1 & -1 & -1 \\ +1 & -1 & +1 & -1 \\ +1 & +1 & +1 & +1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_0 \\ a_1 \\ a_2 \\ a_{12} \end{bmatrix}$$

1.4.2.3 Plans complets à deux facteurs

Nous allons d'abord décrire le cas simple du plan 2^2 . Commençons par expliquer cette notation:

- Le 2 en exposant signifie qu'il y a deux facteurs étudiés;
- L'autre 2 signifie que chaque facteur prend deux niveaux



Cette notation se généralise immédiatement : pour un plan comportant l'étude de k facteurs prenant chacun deux niveaux, on écrira qu'il s'agit d'un plan 2^k .

Le choix des meilleures expériences est le problème fondamental de l'expérimentateur. En l'absence de toute information sur la fonction f , on se donne, a priori, une loi d'évolution de la réponse en fonction des variables. Cette loi est la suivante pour les plans factoriels complets comportant deux facteurs :

$$Y = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_{12}x_1x_2 \quad (1.20)$$

Où:

Y est la réponse; x_1 et x_2 sont les coordonnées des points expérimentaux exprimées en variables centrées limites; et a_0 est une constante. C'est la valeur de la réponse pour le point central du domaine d'étude[24].

1.4.2.2.4 Effet d'un facteur

L'expérimentateur ayant réalisé les essais est en possession de quatre valeurs de la réponse : Y_1, Y_2, Y_3 et Y_4 . Il a donc un système de quatre équations à quatre inconnues. Les inconnues étant les coefficients du modèle : a_0, a_1, a_2 et a_{12} . En remplaçant dans la relation (1.20) les x_i par leur valeur, on obtient :

Système	La résolution de système	
$Y_1 = a_0 - a_1 - a_2 + a_{12}$	$a_0 = \frac{1}{4}(+Y_1 + Y_2 + Y_3 + Y_4)$	(1.21)
$Y_2 = a_0 + a_1 - a_2 - a_{12}$	$a_1 = \frac{1}{4}(-Y_1 + Y_2 - Y_3 + Y_4)$	(1.22)
$Y_3 = a_0 - a_1 + a_2 - a_{12}$	$a_2 = \frac{1}{4}(-Y_1 - Y_2 + Y_3 + Y_4)$	(1.23)
$Y_4 = a_0 + a_1 + a_2 + a_{12}$	$a_{12} = \frac{1}{4}(+Y_1 - Y_2 - Y_3 + Y_4)$	(1.24)

Signification de a_0 : Peut être considéré comme la moyenne des quatre réponses.

Signification de a_1 : L'effet du facteur 1.

Signification de a_2 : L'effet du facteur 2.

Signification de a_{12} : La mesure de l'interaction entre les deux facteurs 1 et 2 [23].

1.4.2.2.5 Calcul de l'effet d'un facteur

Reprenons la formule (1.22) qui donne l'effet du facteur 1 : $a_1 = \frac{1}{4}(-Y_1 + Y_2 - Y_3 + Y_4)$.

On constate:

- que toutes les réponses participent au calcul de l'effet;
- que chaque réponse est précédée d'un signe et que la suite de ces signes est la même que celle de la colonne du facteur 1 dans la matrice d'expérience, soit $- + - +$;
- qu'il y'a un coefficient, ici $1/4$, dont le dénominateur est égal au nombre d'expériences effectuées.

Le lecteur vérifiera qu'il en est de même pour le facteur 2, la suite des signes étant cette fois $- - + +$, c'est-à-dire celle de la colonne du facteur 2 dans la matrice d'expériences.

Le calcul pratique d'un effet est le suivant: on multiplie chaque réponse par le signe correspondant de la colonne du facteur; on additionne les produits et l'on divise la somme par le nombre d'expériences[23].

1.4.2.2.6 Matrice de calcul des effets

Nous venons de voir que les signes de la matrices d'expériences permettent de calculer les effets. Ayant la matrice d'expériences, il est facile de construire *la matrice de calcul des effets* (tableau 1.1) en ajoutant une colonne de signe + pour la moyenne et en calculant celle de l'interaction par la règle des signes[23].

Exemple de calcul :

Un expérimentateur désire étudier le rendement d'une réaction chimique. Après analyse de son problème, il estime qu'il faut retenir deux facteurs : la température et la pression. Il définit également les niveaux haut et bas de chaque facteur (température : 60 °c et 80 °C, pression : 1 et 2 bar). Puis il décide de réaliser les essais selon la démarche des plans d'expériences. Il choisit les quatre essais qui correspondent aux sommets du domaine d'étude .

La matrice d'expériences comprend une première colonne qui identifie les essais. Les colonnes suivantes indiquent les coordonnées des points représentatifs des expériences prévues , les interactions des effets , la colonne réponse et une ligne supplémentaire, la ligne des effets. Le deuxième sous-tableau indique, en unités courantes, les valeurs des niveaux haut et bas de chacun des facteur. Ainsi, en un seul tableau (tableau 1.1), se trouvent résumées toutes les caractéristiques de l'expérimentation.

Tableau 1.1- Matrice de calcul des effets de l'exemple.

Numéro de l'essai	Moyenne	Facteur 1 (T)	Facteur2 (P)	Interaction 12 (T, P)	Réponses
1	+1	-1	-1	+1	$Y_1 = 60$
2	+1	+1	-1	-1	$Y_2 = 70$
3	+1	-1	+1	-1	$Y_3 = 80$
4	+1	+1	+1	+1	$Y_4 = 90$
Effets et Interaction	75	5	10	0	
Niveau -		60°C	1 bar		
Niveau +		80° C	2 bar		

L'expérimentateur peut maintenant aborder la phase d'interprétation. Il calcul la moyenne, les effets et l'interaction comme nous l'avons indiqué et note ses résultats en bas de chaque colonne. Ces résultats montrent que les deux facteurs étudiés sont influents et que, pour augmenter le rendement, il faut élever la température et la pression. La modélisation pratique s'obtient en remplaçant les valeurs littérales de la formule (1.20) par les effets calculés:

$$Y = 75 + 5.x_1 + 10.x_2. \quad (1.25)$$

Chapitre II

Réacteurs et réactions chimiques

CHAPITRE II

REACTEURS ET REACTIONS CHIMIQUES

Introduction

D'une manière générale, on peut définir le réacteur chimique comme toute portion d'espace, où peut avoir lieu une transformation chimique[26], cette transformation est la raison pour construire une unité industrielle. Il est lié à la production, à la purification des corps réagissants, à la préparation du mélange réactionnel, et lui même est une installation servant à préparer les étapes suivantes : utilisation du mélange, purification et lavage des produits[3].

Généralement, le réacteur ne présente pas la plus grosse part de l'investissement dans un procédé industriel. Et pourtant, ses caractéristiques de fonctionnement conditionnent les installations placées en amont (préparation des charges de réactif, choix de la température et de la pression) et les dispositifs placés en aval, pour la séparation des produits notamment. Une amélioration de quelques points de rendement du réacteur peut donc se traduire par un abaissement notable des coûts d'investissement et des consommations de la matière et d'énergie. En ce sens, on peut dire que le réacteur est véritablement le « cœur du procédé », qui requiert toute l'attention de l'ingénieur.

II.1 Les principaux facteurs gouvernant le fonctionnement d'un réacteur chimique

La figure (II.1) indique schématiquement les principaux facteurs gouvernant le fonctionnement d'un réacteur chimique.

Ce sont d'abord des données physico-chimiques sur la nature des transformations chimiques mises en jeu : vitesse des réactions, thermicité, présence d'équilibres, influence de la pression, de la température, de l'état de dilution sur ces paramètres.

Ce sont ensuite les données hydrodynamiques sur l'écoulement des phases et leur mode de mélange et de la mise au contact. L'hydrodynamique est à son tour étroitement liée aux phénomènes de transfert et de transport de chaleur, de matière et de quantité de mouvement qui accompagnent les réactions chimiques. Les données de transfert à l'intérieur d'une phase, entre phases ou entre le mélange réactionnel et la paroi du réacteur, relevant de la cinétique physique, jouent un rôle aussi important que les vitesses de transformations chimiques proprement dites, qui sont du domaine de la cinétique chimique. bien entendu, il faut replacer l'ensemble de ces phénomènes dans une structure géométrique qui est celle du réacteur et qui imprime sa marque à l'hydrodynamique et aux transferts physiques en particulier. [26]

Tous les facteurs que nous venons d'énumérer concourent à relier l'ensemble des paramètres opératoires (nature des espèces chimiques entrant dans le réacteur, pression, température, concentrations, débits et temps de séjour des phases) à l'ensemble des résultats de l'opération (taux de conversion des réactifs, nature et distribution des produits, rendements matériels et énergétiques). Suivant le point de vue auquel on se place, ces relations sont utilisées dans des sens différents .

Le chercheur qui étudie une transformation chimique s'efforce de maîtriser les conditions opératoires, la structure du réacteur et l'hydrodynamique. Il observe le résultat de l'opération et cherche à remonter le plus simplement possible aux données de base sur la cinétique et les transferts. Réciproquement, l'ingénieur qui veut assurer une production industrielle avec des spécifications précises rassemble les données physico-chimiques, hydrodynamiques et de transfert, pour concevoir un réacteur industriel et déterminer ses conditions de marche

optimales. Ou encore, s'il dispose d'un appareillage existant, il cherche à prévoir le résultat qu'il obtiendra à partir d'un mélange d'alimentation donné [26].

Dans tous les cas, il est nécessaire de connaître les relations qui existent entre les facteurs gouvernant le fonctionnement du réacteur (fig. II.1). tel est précisément l'objet du génie de la réaction chimique .

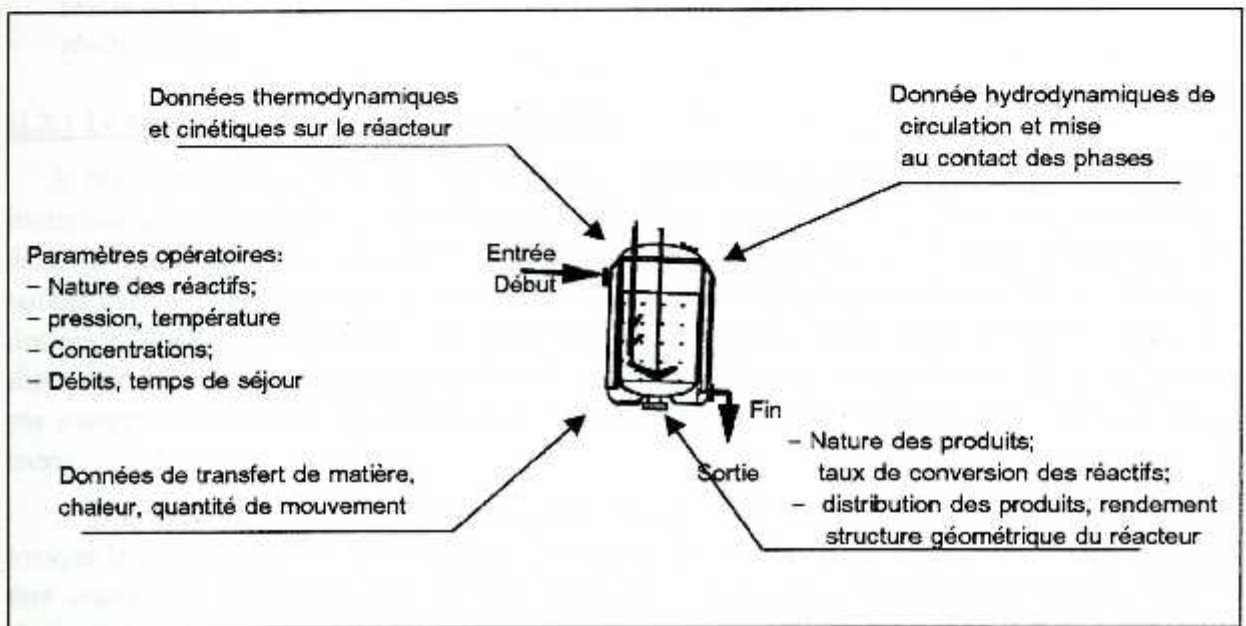


Figure II.1: Facteurs gouvernant le fonctionnement d'un réacteur chimique

II.2 Classification des réacteurs chimiques

On peut classer les réacteurs chimiques de plusieurs manières selon des critères [26,27,28,29]:

Critère 1: la circulation du mélange réactionnel (le type d'opération effectuée). On distingue :

- réacteur fermé (discontinu), pas d'échange de matière avec l'extérieur,
- réacteur semi-fermé (semi-continu), une partie de la charge est ajoutée ou extraire en cours d'opération,
- réacteur ouvert (continu), la charge circule dans le réacteur.

Critère 2: la phases prenant part à la réaction (le type de milieu réactionnel). On distingue:

- homogène :Gaz, Liquide où les réactions ont lieu dans une seule phase,
- hétérogène : Gaz -Liquide, Liquide- Liquide, Gaz -Solide, Liquide -Solide et Solide -Liquide -Gaz ou tels que les réactions font intervenir les constituants de plusieurs phases.

Critère 3 : évolution dans le temps :

- régime transitoire (exemple : opérations discontinues. Démarrage des réacteurs continus);
- régime permanent (exemple industriel : marche continue des réacteurs ouverts).

Critère 4: la mise en contact des phases :

- contre courants(absorption réactive d'un gaz dans un réacteur à ruissellement);
- co-courants (hydrodésulfuration catalytique);
- courants croisés (combustion du charbon sur sole à bande transporteuse).

Critère 5: l'état thermique :

- adiabatique, isotherme et quelconque.

Critère 6 : le degré de mélange des substances en réaction à l'intérieure du réacteur :

- réacteur parfaitement agité (composition uniforme – mélange parfait),
- réacteur en écoulement piston (progression de la charge en bloc),
- réacteur étagé.

II.2.1 Le réacteur semi-continu (semi-batch)

le réacteur semi-continu est fréquemment employé dans diverses industries (pharmacie, biotechnologie, chimie fine , agro-alimentaire et résine organiques)[30]. Il est recommandable dans le cas d'une réaction rapide et fortement exothermique, de manière à ce que la température ne s'élève pas exagérément et ça se fait par le réglage du débit d'injection d'un, des réactifs pour pouvoir facilement contrôler la température, et de maintenir ainsi le régime thermique à l'intérieur des limites prévues sans risquer d'emballement thermique, c'est le cas par exemple de réactions exothermiques très rapides (exp. neutralisation d'un acide par une base).

Il sont également, recommandables dans le cas où la sélectivité décroîtrait rapidement lorsque la concentration d'un réactif est trop forte. Il y a d'autres cas où, au contraire, il peut être avantageux d'éliminer un réactif au cours de la réaction ; on pourra ainsi réduire l'effet limitatif de l'équilibre thermodynamique dans le cas d'une réaction équilibrée, par exemple lors de la réaction d'estérification, l'élimination de l'eau formée peut se faire par distillation[3,28,31]. Il sont également choisis dans le cas des réactions gaz-liquide [7]

II.3 Bilans de matière et d'énergie dans les réacteurs chimiques

En général, un bilan de matière ou d'énergie peut être exprimé dans une zone ou un volume réactionnel qui est le siège d'une transformation chimique susceptible d'échanger de la matière avec le milieu extérieur [26].

II.3.1 Bilans de matière

Pour écrire un bilan de matière dans un réacteur quelconque il faut savoir tout d'abord, s'il existe une variation des paramètres opératoires le long du réacteur. Au cas où il n'y a pas de variation (réacteurs idéaux), c'est à dire le mélange réactionnel est uniforme dans le réacteur; seuls les conditions d'entrée et de sortie sont prises en considération.

Dans le cas contraire, il existe des gradients de température, de concentration voir même de pression. Ces gradients doivent être définis par des profils le long de l'évolution des réactions chimiques [32,33].

Les réacteurs « idéaux » sont des configurations réactionnelles particulièrement simple, où les conditions hydrodynamiques et physiques sont supposées idéalisées et bien déterminées : cuve parfaitement agitée, écoulement piston parfait, pertes de charge et phénomènes de diffusion négligeable, absence de gradients de concentration et de température etc. La conservation de la matière exige qu'à chaque instant, existe la relation :

$$\left(\begin{array}{c} \text{Flux de} \\ A_j \text{ entrant} \end{array} \right) + \left(\begin{array}{c} \text{débit de} \\ \text{production de } A_j \end{array} \right) = \left(\begin{array}{c} \text{Flux de} \\ A_j \text{ sortant} \end{array} \right) + \left(\begin{array}{c} \text{débit} \\ \text{d'accumulation de } A_j \end{array} \right) \quad (2.1)$$

Dans le réacteur semi-continu, le bilan (2.1) fait intervenir, à coté des termes de production chimiques, des flux d'entrée et de sortie pour certains constituants. Si le constituant A_j est ajoutés en cours de réaction avec le flux molaire F_{jE} , le bilan s'écrit :

$$\frac{dn_j}{dt} = F_{jE} + V(t) \sum_{i=1}^{NR} \nu_{ij} r_i \quad (2.2)$$

Où : ν_{ij} est le coefficient stœchiométrique. $V(t)$ est le volume à un temps t calculé par :

$$V(t) = V_{ini} + \sum_{j=1}^{Nc} F_{jE} V_j t \quad (2.3)$$

Avec : V_j est le volume molaire du composant j et V_{ini} le volume initial .

r_i est la vitesse de la réaction i .

Si le constituant A_k est extrait du mélange avec le flux molaire F_{ks} :

$$\frac{dn_k}{dt} = -F_{ks} + V(t) \sum_{i=1}^{NR} \nu_{ik} r_i \quad (2.4)$$

et

$$V(t) = V_{ini} - \sum_{j=1}^{Nc} F_{ks} V_k t \quad (2.5)$$

II.3.2 Bilans énergétiques:

Considérons un réacteur ouvert en régime quelconque. En application du premier principe de la thermodynamique (conservation d'énergie), le bilan d'énergie général est écrit comme suit [34]:

$$\left(\begin{array}{c} \text{flux d'énergie} \\ \text{interne, cinétique} \\ \text{et potentielle} \\ \text{entrant dans le} \\ \text{système par} \\ \text{convection et} \\ \text{diffusion} \end{array} \right) - \left(\begin{array}{c} \text{flux d'énergie} \\ \text{interne, cinétique,} \\ \text{et potentielle} \\ \text{sortant du système} \\ \text{par convection} \\ \text{et diffusion} \end{array} \right) + \left(\begin{array}{c} \text{la chaleur} \\ \text{ajoutée au système} \\ \text{par réaction,} \\ \text{conduction, et} \\ \text{radiation} \end{array} \right) - \left(\begin{array}{c} \text{travail fourni par} \\ \text{les systèmes} \\ \text{et travail des} \\ \text{forces de} \\ \text{pression} \end{array} \right) = \left(\begin{array}{c} \text{vitesse de} \\ \text{variation de} \\ \text{l'énergie interne,} \\ \text{cinétique, et} \\ \text{potentielle à} \\ \text{l'intérieur du} \\ \text{système} \end{array} \right) \quad (2.6)$$

Dans la plupart des systèmes chimiques la forme générale se réduit, essentiellement à une balance d'enthalpie.

II.4 Stabilité thermique des réacteurs

Un réacteur sera instable chaque fois qu'une légère augmentation de la température de fonctionnement produira un accroissement de la vitesse de production de chaleur due à la réaction plus important que celui de la vitesse d'élimination de la chaleur [3].

Lorsqu'on étudie un réacteur où est mise en œuvre une réaction exothermique, avec un refroidissement du mélange soit à la paroi, soit par un serpentin de refroidissement, soit par échange avec le mélange d'alimentation, plusieurs questions se posent : y-a-t-il un ou plusieurs régimes de fonctionnement stationnaires ? Ces régimes sont-ils stables ? Sensibles au réglage des conditions opératoires ? Quel est le comportement du réacteur en régime transitoire avec ou sans régulation ? Ne risque-t-on pas un "emballement" conduisant à la destruction du réacteur ?

Ces questions revêtent une importance accrue depuis l'accident de *Seveso*, qui a particulièrement frappé le grand public. Les recherches sur la stabilité du fonctionnement des réacteurs chimiques font appel à des simulations mathématiques et aux méthodes de la dynamique des systèmes non linéaires, imaginées au début du siècle par *Poincaré* et *Liapounov*, et remises en vigueur dans les années 60 par des théoriciens du génie chimique comme *Aris* et *Amundson*[26]. De telles évolutions incontrôlées de la température seraient évidemment génératrices d'explosions[27].

II.5 Caractères généraux des réacteurs Hétérogènes

II.5.1 Réacteurs à deux phases fluides

Les procédés chimiques mettant en œuvre deux phases fluides se rencontrent très souvent dans la pratique industrielle, que ce soient des opérations du type absorption d'un gaz par un liquide ou du type extraction liquide-liquide. Les méthodes de calcul de tels appareils peuvent se grouper en deux catégories suivant que l'on suppose ou non l'équilibre physique entre les phases réalisé en chaque point de l'appareillage. La première méthode est applicable seulement aux réacteurs continus à étages et aux réacteurs discontinus dans lesquels une agitation intense peut être réalisée et ainsi l'équilibre physique obtenu, l'autre méthode tient compte de la cinétique du transfert de masse et s'applique à tous les types de réacteurs [28].

Nous distinguerons trois types d'appareillages[27] :

- le réacteur discontinu avec variante semi-continue ;
- le réacteur tubulaire ou à gradient de concentration ;
- le réacteur agité ou à concentration uniforme.

Lorsque l'une des phases fluides est gazeuse, le réacteur semi-continu sera parfaitement adapté.

II.5.2 Réacteurs à deux phases (fluide- solide)

Pour effectuer les réactions fluide- solide plusieurs technologies sont envisageables. Nous citerons parmi les plus importantes [26,27]:

- **le lit fixe** : si les grains de catalyseur entassés les uns sur les autres forment un empilement immobile, dans les interstices desquels circule le ou les fluides réactionnels (exp. réacteurs semi- continus);
- **le lit mobile**: si l'empilement réalisé est soumis à une translation généralement verticale, l'ensemble du lit se déplaçant sous l'influence de la force de pesanteur, ce lit est traversé, à cocourant, à contre courant ou à courant croisés par le flux de réactifs. Aussi bien pour les réactifs que pour le catalyseur, on cherche à réaliser un écoulement de type piston. (fours rotatifs, grille transporteuses, hauts- fourneaux, réacteurs continus tubulaire..);
- **le lit fluidisé (combustion, gazéification)** : dans lequel les grains de catalyseur, se présentant sous forme de fines particules, sont maintenus en suspension agitée par un courant ascendant de fluides réactionnel. Ce type de lit présente plusieurs variantes, on pourra distinguer, selon la nature des fluides:
 - les lits fluidisés gaz- solide (présentent globalement un comportement proche de celui des réacteurs parfaitement agités);
 - les lits fluidisés liquide- solide (caractérisant un régime particulier dit « lit pistonnant »)
- **un lit entraîné** : où fluides et particules sont entraînés dans la même direction et traversent ainsi une zone réactionnelle ;
- **une suspension** : de solide catalytique immergé dans le fluide réactionnel liquide.

II.5.3 Réacteurs à trois phases : (gaz – liquide – solide)

Les réacteurs chimiques nécessitant la présence de trois phases gaz- liquide -solide pour leur réalisation sont assez fréquemment rencontrés dans la pratique industrielle, le solide jouant le rôle de catalyseur. Ainsi, on peut citer à titre d'exemple, les hydrogénation catalytiques en phase liquide, qui sont réalisées industriellement depuis fort longtemps.

En pratique, pour mettre en œuvre de tels systèmes réactionnels, on a le choix entre de nombreuses possibilités pour amener en contact les trois phases. Nous retiendrons ceux qui sont les plus fréquemment rencontrés en pratique, à savoir [27,28] :

1. Les systèmes avec catalyseur dispersé dans la phase liquide, pouvant revêtir trois formes principales : les colonnes à bulles, les cuves agitées mécaniquement, et les lits fluidisés à trois phases.
2. Les systèmes avec catalyseur dispersé en lit parcouru par les phases fluides, soit à cocourant (descendant ou ascendant), soit à contre courant.

Les réacteurs fonctionnent en discontinu vis-à-vis du catalyseur par contre si on se réfère à la phase gazeuse, le fonctionnement sera généralement continu.

En prenant la phase liquide comme référence, on retrouvera les divers types de réacteurs correspondant à notre classification, comme nous l'indiquerons ci-dessous :

Réacteur discontinu avec variance semi-continu	Réacteur continu	
	Tubulaire	Parfaitement agité
Colonne à bulles	Lit fixe avec écoulement biphasique	Lit fluidisé à trois phases
Cuve agitée mécaniquement		

II.6 La cinétique chimique:

II.6.1 Principes généraux de cinétique chimique:

La cinétique chimique est l'étude de la vitesse et le mécanisme pour qu'un espèce chimique est converti à d'autre espèce[35]. Elle se base sur l'évolution chronologique d'une réaction chimique (variation dans le temps de composition du mélange réactionnel et du degré d'avancement) et au chemin suivi par celle-ci (son mécanisme)[36].

II.6.2 L'énergie d'activation et l'équation d'Arrhénius:

Pour qu'une réaction chimique puisse se déclencher, il faut que le système réactionnel mis en jeu soit « activé » c'est-à-dire amené à un niveau énergétique suffisamment élevé. En d'autres termes, ceci signifie que pour qu'une réaction puisse se produire, il faut franchir une barrière de potentiel (l'énergie d'activation E_a) plus ou moins élevée selon la nature des réactifs et de la réaction. Donc, à chaque fois que se produit une collision de deux molécules de réactifs, il ne se forme pas forcément une molécule de produit. Il faut, pour cela, que les molécules de réactifs atteignent un niveau énergétique supérieur ou égale au niveau d'énergie d'activation. Le nombre de collisions efficaces est très petit par rapport à celui des chocs réels, si tous les chocs étaient efficaces, les réactions seraient instantanées. *Arrhénius* exprime ce facteur restrictif en donnant à la constante de vitesse la forme:

$$k_i = k_i^{\circ} \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (2.7)$$

k_i° est le facteur préexponentiel , k_i est la constante de vitesse, E_a , représente l'énergie d'activation, est la différence entre le niveau d'énergie moyen des molécules réagissantes et celui qu'elles doivent atteindre pour que la collision soit efficace et que le complexe activé puisse évoluer vers les produits. Cette énergie est caractéristique de chaque réaction.

II.6.3 Equation et coefficients stœchiométriques:

Dans le cas général, les A_j étant les constituants actifs de la réaction, nous conviendrons d'écrire l'équation stœchiométrique :

$$\sum_{i=1}^{NR} \sum_{j=1}^{NC} \nu_{ij} A_j = 0 \quad (2.8)$$

$j = 1, NC$ NC : nombre des constituants

$i = 1, NR$ NR : nombre de réactions

Les coefficients stœchiométriques (ν_{ij}) du système réactionnel peuvent être :

$\nu_{ij} > 0$ si A_j est un produit pour la réaction i ,

$\nu_{ij} < 0$ si A_j est un réactif pour la réaction i ,

$\nu_{ij} = 0$ si A_j n'est pas intéressé de la réaction i .

II.6.4 Avancement d'une réaction

Considérons d'abord le cas où le mélange réactionnel, supposé de composition uniforme, évolue sans échange de matière avec l'extérieur. Prenons pour repère l'état de référence et définissons une variable chimique ξ telle que le nombre de moles n_j à un moment donné de l'évolution du mélange soit relié au nombre de moles n_{j_0} dans l'état de référence par :

$$n_j = n_{j_0} + \nu_j \xi \quad (2.9)$$

On définit ainsi un avancement généralisé $X = \xi / n_0$ tel que :

$$n_j = n_{j_0} + \nu_j n_0 X \quad (2.10)$$

Avec : n_0 est le nombre de moles initiales des réactifs.

Il est possible de choisir une autre norme pour la variation chimique ξ . Par exemple, avec la masse totale m de la phase réactionnelle :

$$n_j = n_{j_0} + \nu_j m X' \quad (2.11)$$

On obtient un nouveau paramètre d'avancement généralisé X' qui a cette fois une dimension (moles/unité de masse).

Dans le cas d'un système de réactions simultanées, le progrès de la transformation est repéré par un vecteur X à R composantes X_i . Chacune de ces composantes caractérise l'avancement d'une réaction. On obtient ainsi :

$$n_j = n_{j_0} + n_0 \sum_i \nu_{ij} X_i \quad (2.12)$$

II.6.5 La vitesse de la réaction

Pour un système chimique quelconque on peut définir la vitesse de réaction comme la quantité de matière transformée par unité de temps et par unité d'une extensité qui dépend du problème traité: volume, masse, surface, etc. La "vitesse" mesure donc un débit spécifique de transformation chimique[26]. En rapportant la vitesse à l'unité d'espace réactionnel, on obtient la vitesse spécifique de réaction ; l'espace réactionnel est défini d'après la localisation de la réaction. Quand les réactions s'effectuent au sein d'une seule et même phase, on dit qu'elles sont homogènes sinon elles sont hétérogènes. La cinétique hétérogène est beaucoup plus complexe et n'est d'ailleurs pas toujours bien connue. Elle fait intervenir des phénomènes de surface entre phases.

Dans le cas des réactions homogènes, on rapportera la vitesse à l'unité de volume, en général le litre. Le cas le plus important des réactions se produisant à une interface est constitué par la catalyse hétérogène : la vitesse est alors généralement rapportée à l'unité de poids ou de volume du catalyseur[37].

Ecrivons l'équation chimique d'une réaction complète en phase homogène[38]:



La vitesse de cette réaction peut être écrite de la manière suivante:

$$r = -\frac{1}{a} \frac{d[A]}{dt} = -\frac{1}{b} \frac{d[B]}{dt} = \frac{1}{c} \frac{d[C]}{dt} = \frac{1}{d} \frac{d[D]}{dt} \quad (2.13)$$

Pour calculer la vitesse, nous supposons que le volume réactionnel ne varie pas au cours du temps sinon les concentrations varient automatiquement. Il faudrait alors écrire la vitesse sous la forme :

$$r = -\frac{1}{a} \frac{d(n_A/V)}{dt} \quad (2.14)$$

Où : n_A est le nombre de moles du corps A , a son coefficient stœchiométrique et V le volume réactionnel.

L'expression de r devient :

$$r = -\frac{1}{aV} \frac{dn_A}{dt} + \frac{n_A}{aV^2} \frac{dV}{dt} \quad (2.15)$$

L'expression de la vitesse peut prendre d'autre forme:

$$r_i = k_i^0 \exp\left(\frac{-Ea_i}{RT}\right) f_i \quad (2.16)$$

$$\text{Avec: } f_i = \prod_{j=1}^{NC} C_j^{a_{ij}} \quad (2.17)$$

f_i est l'équation de concentrations. C_j est la concentration de A_j dans le réacteur, T est la température interne du réacteur et a_{ij} est l'ordre de la i -ème réaction.

Toutes les réactions ayant lieu simultanément, le débit net de production R_j de A_j , rapporté à la référence considérée (unité de volume, de masse, etc....) est [36]:

$$R_j = \sum_{i=1}^{NR} \nu_{ij} r_i \quad (2.18)$$

II.6.6 La chaleur de la réaction

La quantité de la chaleur produite par la réaction peut être formulée comme suit :

$$Q(t) = V(t) \sum_{i=1}^{NR} r_i \Delta H_i \quad (2.19)$$

Où: ΔH_i est l'enthalpie molaire de la réaction i .

Dans le cas d'un réacteur semi-continu, le volume $V(t)$ est calculé par l'équation (2.5) et l'équation (2.3). Le signe de l'enthalpie de la réaction dépendra de l'effet thermique observé:

- réaction exothermique: le système cède de la chaleur au milieu extérieur. Son énergie (ou son enthalpie) diminue: $\Delta H < 0$
- réaction endothermique: le système reçoit de la chaleur du milieu extérieur. Son enthalpie augmente: $\Delta H > 0$ [38]

II.6.7 Variation du volume réactionnel

Dans une phase liquide, désignons par V_I et V_j respectivement les volumes molaires partiels des inertes et des constituants actifs. Le volume de la phase réactionnelle s'écrit :

$$V = n_I V_I + \sum_j n_j V_j \quad (2.20)$$

Faisons d'abord l'hypothèse que les V_j (volume occupé par une mole du constituant j) sont constants à leur valeur V_{j0} dans l'état de référence (solutions idéales). En exprimant les n_j en fonction des avancements, il vient, pour une réaction simple :

$$V = V_0(1 + \alpha X) \quad (2.21)$$

Si l'on tient compte de l'influence de la pression (compressibilité) et de la température (dilatabilité) sur les volumes molaires, on peut rassembler ces influences dans un facteur de dilatabilité physique β et écrire plus généralement:

$$V = \beta V_0(1 + \alpha X) \quad (2.22)$$

Pour un système de réaction multiples, on trouve d'une manière tout à fait analogue :

$$V = \beta V_0(1 + \sum_i \alpha_i X_i) \quad (2.23)$$

Avec :

$$\beta = \frac{TP_0}{T_0P} \quad \text{et} \quad \alpha = \frac{n_0 \Delta v}{n_I + n_0}$$

β : facteur de dilatation physique, il traduit la variation du volume sous l'action de paramètre physique tel que la température et la pression .

α : facteur d'expansion chimique, il traduit la variation du volume dû à la disparition ou à l'apparition de certaines substances de volume molaire différentes.

Il résulte que la masse volumique et la concentration d'un milieu au cours d'une transformation chimique varient selon

$$\rho = \frac{\rho_0}{\beta(1 + \sum_i \alpha_i X_i)} \quad (2.24)$$

$$C_j = \frac{C_{j0} + \nu_j C_0 X}{\beta(1 + \alpha X)} \quad (2.25)$$

Dans des applications courantes, il arrive fréquemment que la dilatation du milieu soit négligeable ($\beta=1$ et les $\alpha_i=0$). C'est le cas de nombreuses réactions en phase liquide. Les concentrations deviennent fonctions linéaires des avancements :

$$C_j = C_{j0} + C_0 \sum_i \nu_{ij} X_i \quad (2.26)$$

II.6.8 L'enthalpie libre et le critère de transformation

Les réactions chimiques se produisent à la suite de chocs entre les molécules des réactifs. Des atomes étant libérés, leurs unions dans un sens ou dans l'autre dépendent :

- de l'énergie de la liaison formée: elle a tendance à être la plus élevée possible;
- du désordre, c'est-à-dire du nombre d'états microscopiques, qui tend à être possible.

Par suite, l'évolution d'un système chimique aura tendance à se faire dans le sens des liaisons les plus solides et de la structure la moins organisée[38]. On relie ces deux aspects qui conditionnent les transformations des systèmes en introduisant une nouvelle fonction: l'enthalpie libre G .

L'enthalpie libre est donc, la différence entre l'enthalpie et le produit de l'entropie par la température. $G = H - TS$

Une transformation est favorable lorsque: $\Delta G < 0$. Donc une transformation est d'autant plus probable que sa diminution d'enthalpie libre est grande.

II.6.9 Classification des réactions chimiques

Cette classification se fait selon plusieurs critères [36,38]:

- a) L'état physique des différents corps mis en jeu et le nombre de phase :
 - réaction homogène: les parois de récipient n'intervient pas dans la réaction,
 - réaction hétérogène.
- b) L'ordre de grandeur de la vitesse de réaction:
 - réaction ultra rapide (fraction de seconde),
 - réaction rapide (quelques secondes à quelques dizaines de minutes),
 - réaction lente (quelques heures à quelques jours),
 - réaction très lente (une semaine à moins quelques années).
- c) La valeur de l'ordre de réaction:
 - ordre entier (réaction purement chimique), ordre 1, ordre 2, ordre 3,
 - Il existe peu de réaction dont l'ordre est supérieure à 3,
- d) Le mécanisme de réaction:
 - réaction ionique,
 - réaction par transfert d'électron,
 - réaction par formation intermédiaire d'un complexe.

e) Le mode de réaction :

- réactions simples (isolées);
- réactions composées : qui comportent :
 - réactions équilibrées (opposées),
 - réactions consécutives,
 - réactions parallèles (réactions jumelles et réactions concurrentes) .
- réaction complexe : dues à l'intervention simultanée de plusieurs modes de combinaisons des réactions

Les autres types de classifications concernant déjà des domaines bien précis de la chimie en l'occurrence la thermodynamique chimique (réaction endothermique ou réaction exothermiques), la chimie organique (substitution, addition, décompositions, oxydation, etc..).

II.6.10 Modes d'activation des réactions chimiques

L'activation d'une réaction chimique , a pour but d'augmenter leur énergie interne jusqu'à un niveau tel que la barrière de potentiel puisse être franchie et que la réaction puisse se déclencher ou bien de diminuer la hauteur de la barrière de potentiel de manière à la rendre plus facilement franchissable. Alors que, pour passer de l'état initial à l'état final, il faut fournir une énergie d'activation thermique très élevée[37].

Pour cet effet, il existe plusieurs moyens d'activer une réaction chimique et qui consistent, tous, à accélérer celle-ci, en voici, par ailleurs, énoncés ci-dessous quelques uns [36]:

- introduire un réactif en excès (pour déplacer l'équilibre);
- éliminer simultanément un produit (qui risque de favoriser la réaction inverse);
- utiliser un agent catalytique (pour économiser du temps et de l'énergie);
- utiliser un agent promoteur (pour amorcer la réaction);
- utiliser un agent inhibiteur (pour défavoriser les réactions indésirables);
- activer à l'aide d'un apport énergétique (lumière , chaleur , radiation ionisantes)

Il existe aussi des techniques d'activation mixtes telles que :

- la photosensibilisation (agent promoteur qui s'active par la lumière),
- la photocatalyse (catalyseur s'activant en présence de lumière),
- la thermocatalyse (action synergique du catalyseur et de la chaleur),
- la thermophotocatalyse (action synergique de la chaleur, de la lumière et du catalyseur).

Chapitre III

Introduction

- 1.1.1. L'air
- 1.1.2. L'eau
- 1.1.3. Le sol
- 1.1.4. Le ciel

1.1.5. Les matériaux

- 1.1.5.1. Les métaux
- 1.1.5.2. Les polymères
- 1.1.5.3. Les céramiques
- 1.1.5.4. Les composites

1.1.6. Les fluides

- 1.1.6.1. Les gaz
- 1.1.6.2. Les liquides
- 1.1.6.3. Les solides
- 1.1.6.4. Les plasmas
- 1.1.6.5. Les superfluides
- 1.1.6.6. Les supraconducteurs
- 1.1.6.7. Les cristaux liquides
- 1.1.6.8. Les matériaux granulaires
- 1.1.6.9. Les matériaux mous
- 1.1.6.10. Les matériaux actifs

1.1.7. Les milieux continus

- 1.1.7.1. Les milieux continus
- 1.1.7.2. Les milieux discrets
- 1.1.7.3. Les milieux continus généralisés
- 1.1.7.4. Les milieux continus non locaux
- 1.1.7.5. Les milieux continus anisotropes
- 1.1.7.6. Les milieux continus inhomogènes
- 1.1.7.7. Les milieux continus incompressibles
- 1.1.7.8. Les milieux continus inextensibles
- 1.1.7.9. Les milieux continus élastiques
- 1.1.7.10. Les milieux continus viscoélastiques
- 1.1.7.11. Les milieux continus hyperélastiques
- 1.1.7.12. Les milieux continus fluides
- 1.1.7.13. Les milieux continus élastofluides
- 1.1.7.14. Les milieux continus électrofluides
- 1.1.7.15. Les milieux continus magnétofluides
- 1.1.7.16. Les milieux continus électromagnétofluides
- 1.1.7.17. Les milieux continus électroélastiques
- 1.1.7.18. Les milieux continus magnétoélastiques
- 1.1.7.19. Les milieux continus électromagnétoélastiques
- 1.1.7.20. Les milieux continus électroélastoélastiques
- 1.1.7.21. Les milieux continus magnétoélastoélastiques
- 1.1.7.22. Les milieux continus électromagnétoélastoélastiques

Généralités sur la Thermodynamique et le transfert de chaleur

CHAPITRE III

GENERALITES SUR LA THERMODYNAMIQUE ET LE TRANSFERT DE LA CHALEUR

Introduction

L'utilisation d'un programme informatique pour simuler un procédé de l'industrie chimique nécessite l'emploi d'expressions analytiques pour le calcul des variables d'état thermodynamiques et éventuellement des variables de transfert. Il est donc nécessaire de disposer de modèles thermodynamiques et des éléments qui les forment pour aborder une procédure de simulation en génie chimique.

III.1 Notions générales sur la thermodynamique

Si certaines caractéristiques telles que, densité, poids moléculaire, pouvoir calorifique et enthalpie se pondèrent selon une formule mathématique très simple, correspondant généralement à une loi thermodynamique, d'autres, au contraire, telles que viscosité, point de congélation, tension de vapeur, font appel à des corrélations empiriques, résultats de tests nombreux [37].

III.1.1 Propriétés énergétiques d'un système

Pour établir un bilan énergétique d'un système, il est nécessaire de connaître les diverses formes d'énergie propre à ce système. Une énergie interne du fait des forces qui s'exercent entre les molécules, atomes et particules élémentaires qui le constituent et de leur mouvement de translation, rotation et vibration, cette énergie est la somme de l'énergie cinétique et potentielle des molécules. L'énergie cinétique est l'énergie des mouvements de translation, d'oscillation, et de rotation des particules ainsi que l'énergie des courants de matières accompagnés un écoulement des fluides. L'énergie potentielle est déterminée par les forces de pesanteur dans le champ de gravitation, d'attraction et de répulsions agissant entre particules, et enfin une énergie superficielle du fait des forces de tension superficielle, cette variété est très généralement négligée, mais permet l'interprétation et le calcul des forces de capillarité.

Il existe d'autres formes d'énergie dont on peut être amené à tenir compte : l'énergie magnétique par exemple. Mais de tels cas sont très particuliers [37].

III.1.2 Expressions des fonctions thermodynamiques des fluides purs

III.1.2.1 Phase gazeuse

La loi de *Boyle-Mariotte* affirme que le produit de la pression qu'exerce un gaz parfait par le volume qu'il occupe ne dépend que de la température :

$$PV = nRT \quad (3.1)$$

Pour le gaz non idéal l'équation (3.1) est modifiée par introduction d'un facteur de compressibilité Z , qui évolue en fonction de la température et la pression :

$$PV = ZnRT \quad (3.2)$$

Pour déterminer le facteur Z , on applique la corrélation de *Pitzer et Coworkers* ou bien l'équation de *Viriel* [37].

Beaucoup d'autres équations ont été données pour dénoter la relation approximative entre les propriétés d'un gaz non-idéal. L'équation la plus utilisée est celle de *Van der Waals* [38]:

$$\left(P + a \frac{n^2}{V^2} \right) (V - nb) = nRT \quad (3.3)$$

Ou bien:
$$P = \frac{RT}{V - b} - \frac{a}{V^2} \quad (3.4)$$

Où, a et b : sont des constantes positives . Ils sont nulles pour les gaz parfaits.

V : est le volume , \bar{V} : est le volume molaire.

Callender [40] a modifié l'équation de *Van der Waals*, pour prendre la forme :

$$p(V - b + c) = RT \quad (3.5)$$

Où, V est le volume en mètre cubique par mole de la vapeur, P est la pression, T c'est la température absolue, c et b sont des constantes.

L'équation d'état de *Redlich-Kwong* [28] est considérée comme la plus simple des équations d'état, elle est très utilisée pour prédire l'état de la phase vapeur :

$$P = \frac{RT}{V - b} - \frac{a}{T^{1/2}V(V + b)} \quad (3.6)$$

Avec :
$$a = 0.427480 \frac{R^2 T_C^{2.5}}{P_C} \quad \text{et} \quad b = 0.086640 \frac{RT_C}{P_C}$$

Où : T_C, P_C se sont la température et la pression aux points critique.

Il y a d'autre équations qui sont largement très utilisées telles que l'équation de *Soave-Redlich-Kwong*: (SRK) et l'équation de *Peng-Robinson* (PR) [41].

III.1.2.2 Phase liquide et équilibre liquide-vapeur

III.1.2.2.1 Théorie de la viscosité d'un liquide

L'expression de la viscosité d'un liquide pur est donnée par *Eyring* et *Co-Workers* [42]:

$$\mu = \frac{\bar{N} \cdot h}{\bar{V}} \cdot e^{-3.8 T_b / T} \quad (3.7)$$

Où, h : constante de *Planck*, \bar{V} : volume molaire du liquide, \bar{N} : nombre d'*Avogadro* et T_b : température normale d'ébullition .

Il y a d'autres corrélations, comme celle basée sur les valeurs réduites. On peut tirer la valeur de la viscosité réduite à partir d'une figure spécifique, qui représente la variation de la viscosité réduite en fonction de la pression et la température réduites [44] :

$$\text{Avec : } \mu_r = \frac{\mu}{\mu_c}, \quad T_r = \frac{T}{T_c} \quad \text{et} \quad p_r = \frac{P}{p_c} \quad (3.8)$$

T_c, μ_c, P_c : représentent la température, la viscosité et la pression critiques,

T_r, μ_r, P_r : représentent les valeurs réduites de la température, de la viscosité et de la pression.

$$\mu_c = 61.6(MT_c)^{1/2}(\bar{V}_c)^{-1/2} \quad \text{Ou} \quad \mu_c = 7.70M^{1/2}p_c^{2/3}T_c^{-1/6} \quad (3.9)$$

μ_c en micropoises, p_c en atm, T_c en °K, et \bar{V}_c en cc/ gr mole.

On peut estimer la valeur de la viscosité d'un mélange par :

$$\mu_c = \sum_{i=1}^n x_i \mu_{ci} \quad (3.10)$$

III.1.2.2.2 Variation de la pression de vapeur avec la température

La tension de vapeur (la pression de saturation) P^{sat} mesure la tendance des molécules à s'échapper d'une phase liquide pour engendrer une phase vapeur en équilibre, elle ne dépend que de la température et de la nature de la substance. Il existe de nombreux diagrammes représentant les courbes de tension de vapeur.

D'autre part, en thermodynamique, si on considère que la chaleur de vaporisation reste constante l'équation de la loi *Clausius-Clapeyron* s'écrit [37]

$$\ln P^{sat} = A - \frac{B}{T} \quad (3.11)$$

Où, A et B sont des constantes pour une espèce donné, T est la température absolue en °K[37]

L'équation d'Antoine qui est plus satisfaisant pour l'usage général, a la forme :

$$\ln P_{sat} = A - \frac{B}{T+C} \quad (3.12)$$

Un avantage principal de cette équation c'est que, pour beaucoup d'espèce ses constantes A, B, et C sont disponibles.

La représentation exacte vapeur-pression, donnée sur une large gamme de la température, exige une équation de plus grande complexité comme celle de *Riedel*:

$$\ln P_{sat} = A - \frac{B}{T} + D \ln T + FT \quad (3.13)$$

III.1.2.2.3 Chaleur de vaporisation et enthalpie d'une vapeur

Pour la prédiction de la chaleur de vaporisation au point d'ébullition normal *Riedel* a proposé l'équation suivante [43]:

$$\frac{\lambda_v / T_n}{R} = \frac{1.092(\ln P_C - 1.013)}{0.93 - T_{r_n}} \quad (3.14)$$

Où,

T_n : température d'ébullition normale, λ_v : la chaleur latente molaire de vaporisation à T_n ,
 P_c : pression au point critique en bar et T_{r_n} : température réduite

L'évaluation de la chaleur latente de vaporisation d'un liquide pur en fonction de la température est donnée par la méthode de Watson, et qui est basée sur une valeur connue [43]:

$$\frac{\lambda_{v2}}{\lambda_{v1}} = \left(\frac{1 - T_{r2}}{1 - T_{r1}} \right)^{0.38} \quad (3.15)$$

l'enthalpie de la vapeur est déterminée à partir de : $H = CpT + \lambda_v$ (3.16)

III.1.2.2.4 La Densité

Pour un liquides, à une température élevée, l'influence de la pression sur sa densité n'est pas négligeable. *Watson* et *Gamson* ont établi à cet effet, une abaque définissant la valeur du coefficient d'expansion ω , en fonction des coordonnées réduites ou pseudo-réduites de pression et de température, telle que :

$$\frac{d_1}{\omega_1} = \frac{d}{\omega} \quad (3.17)$$

L'emploi de cette formule ne nécessite que la connaissance d'une valeur de la densité d_1 dans les conditions p_1 et T_1 qui définissent sur une figure appropriée la valeur de ω_1 [37].

A partir des concentration des différents espèces C_j et ses masses molaires M_j , la densité du mélange est donnée par :

$$\sum_{j=1}^{NC} M_j C_j = \rho \quad (3.18)$$

III.1.3 Propriétés thermodynamiques des mélanges

III.1.3.1 Systèmes de composition variable d'un comportement idéal

Pour une solution idéale, l'activité est proportionnelle à la fraction molaire :

$$\hat{f}_i^{id} = x_i f_i \quad a^{id} = x_i \quad (3.19)$$

Où, f_i est une fonction de T et P.

Les grandeurs extensives sont calculées comme suit :

$$M^{id} = \sum x_i M_i^{id} \quad \text{et} \quad \bar{M}_i^{id} = M_i \quad (3.20)$$

M représentent la valeur molaire d'une telle propriété, par exemple U, H, V, S, G

Les propriétés partielles \bar{M}_i , par exemple, $\bar{U}_i, \bar{H}_i, \bar{V}_i, \bar{S}_i, \bar{G}_i$

Un mélange des gaz idéaux la lois de *Lewis/Randall* se simplifie à :

$$f_i^{id} = y_i P \quad (3.21)$$

Similaire à celles des solutions, les grandeurs extensives des gaz sont calculées comme suit :

$$M^{ig} = \sum y_i M_i^{ig} \quad \text{et} \quad \bar{M}_i^{ig} = M_i \quad (3.22)$$

III.1.3.2 Systèmes de composition variable d'un comportement nonideal

L'activité d'un constituant, dans un mélange réel se présente comme concentration effective. Les propriétés partielles, résiduelles et de l'excès fondamentale sont données comme suit :

Les propriétés partielles :

$$M = \sum x_i \bar{M}_i \quad (3.23)$$

La multiplication par n donne :

$$nM = \sum n_i \bar{M}_i \quad (3.24)$$

La différence entre la valeur effective d'une propriété (fonction) d'un fluide dans un mélange réelle et la valeur qu'elle prendrait s'il était idéale à pression et à compositions constantes s'appelle ; grandeur résiduelle pour les gaz et grandeur d'excès pour les liquides.

$$\text{grandeur résiduelle : } M^R \equiv M - M^{ig} \quad \bar{M}_i^R = \bar{M}_i - \bar{M}_i^{ig} \quad (3.25)$$

$$\text{grandeur d'excès : } M^E \equiv M - M^{id} \quad \bar{M}_i^E = \bar{M}_i - \bar{M}_i^{id} \quad (3.26)$$

Où, M^R et \bar{M}_i^R : les propriétés résiduelle et résiduelle partielle des gaz.,

M^E et \bar{M}_i^E : les propriétés de l'excès et de l'excès partiel des liquides.

Pour le calcul de ces propriétés plusieurs expressions et corrélations ainsi que des abaques sont proposées dans la littérature (ex.[43]).

Les données étendues sur la viscosités des gaz purs et des liquides sont disponibles dans plusieurs références. Quand les données expérimentales manquent, on peut estimer la viscosité par les méthodes empiriques.

III.2 Transfert de la chaleur

Avec le développement des techniques modernes, la transmission de la chaleur (ou transfert de chaleur ou thermocinétique) est devenue une science très vaste qui s'est développée parallèlement à la thermodynamique pour constituer une discipline indépendante.[42]

III.2.1 Les différents modes de transfert de la chaleur

L'expérience montre que deux corps isolés de l'ambiance, et à température différente, échangent de l'énergie sous forme de chaleur, jusqu'à disparition complète de leur différence de température. Cet échange peut se faire de trois façons différentes[37] :

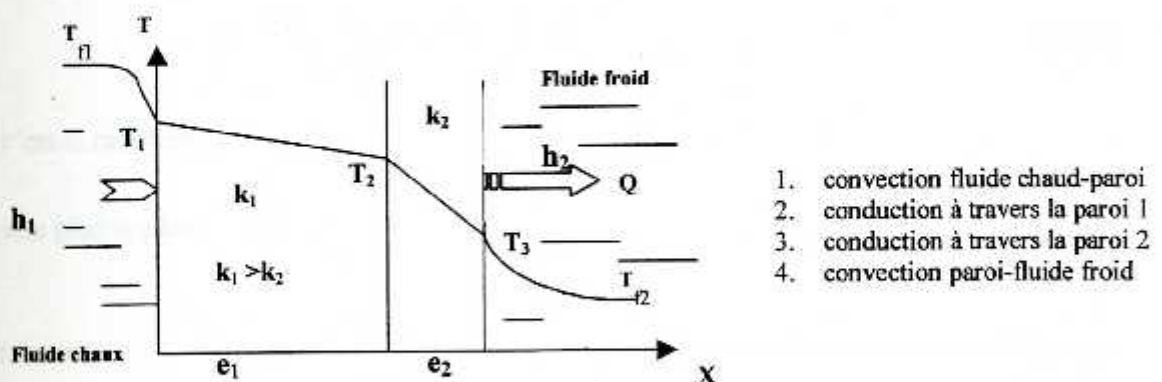
1) Par *conduction*, s'il y a contact physique entre les molécules des corps contigus et immobiles. Le transfert de chaleur correspond alors à la transmission d'une énergie cinétique due aux chocs élastiques des molécules fluides, aux oscillations longitudinales des molécules de solides non conducteurs de l'électricité ou aux mouvements des électrons dans les autres cas. Les lois fondamentales du transfert par conduction sont en complète analogie avec celles de la conduction électrique[37].

2) Par *convection*, s'il s'agit de fluides en mouvement et que la transmission de la chaleur accompagne le déplacement de filets d'un seul fluide ou s'opère par mélange de deux fluides. Ce mode de transfert est donc essentiellement régi par les lois des écoulements des fluides, ainsi que par celles de la conduction[37].

Convection forcée : mouvement produit par action extérieure (pompe, ventilateur)

Convection naturelle (libre) : mouvement produit par des différences de densité.

3) Par *rayonnement*, tout corps porté à une température supérieur au zéro absolu (0°K) rayonne, dans toutes les directions, une énergie sous forme d'ondes électromagnétiques. Inversement, tout corps est susceptible d'absorber tout ou partie d'une énergie électromagnétique analogue à celle qu'il serait susceptible d'émettre. Cette forme de transfert de chaleur ne nécessite donc, entre les corps considérés, aucun support matériel et s'identifie parfaitement à la propagation de la lumière c'est-à-dire à l'optique[37].



1. convection fluide chaud-paroi
2. conduction à travers la paroi 1
3. conduction à travers la paroi 2
4. convection paroi-fluide froid

Figure III.1 : Décomposition du transfert de chaleur

En réalité, tout échange thermique s'effectue simultanément sous les trois formes précédentes mais, généralement, l'une d'elles est prédominante et les autres peuvent être négligées. Cependant, lorsque les trois modes de transfert sont concurrent, il est nécessaire d'écrire que l'échange est la somme des trois effets, comme ce serait le cas pour le refroidissement à l'air d'une plaque métallique à très haute température

III.2.2 Considérations de base

La forme simple qui représente cette opération du transfert de la chaleur peut être écrit[39]:

$$Q = UA\Delta T \tag{3.27}$$

où, Q est la quantité de chaleur transférée par unité de temps, A est la surface d'échange, ΔT la différence de température entre les deux milieux et U est le coefficient de transfert de chaleur.

III.2.2.1 Conduction

Soit dans une plaque plane, un gradient de température $\frac{dT}{dx}$ entre les deux cotés, suivant une direction normale à un élément de surface isotherme dA . Fourier écrit l'expression du densité de flux de chaleur Φ pendant le temps dt et à travers l'épaisseur de la plaque sous la forme suivante:

$$\Phi = \frac{dq}{dA \cdot dt} = -k \frac{dT}{dx} \tag{3.28}$$

donc :

$$Q = -kA \left(\frac{dT}{dx} \right) \tag{3.29}$$

q : quantité de chaleur (kcal), k : conductivité thermique, Q : flux de chaleur(kcal/s)

Après intégration entre les température T_1 et T_2 , des deux faces de la plaque on obtient :

$$Q = \frac{(T_1 - T_2) \cdot A}{(x/k)} = \frac{(T_1 - T_2) \cdot A}{R_T} \tag{3.30}$$

R_T : c'est la résistance thermique,

Pour une plaque plane : $R_T = \frac{x}{k}$

Sphère creuse : $R_T = \frac{1/r_1 - 1/r_2}{4 \cdot \pi \cdot k}$; r_1 et r_2 les rayons extérieur et intérieur du sphère,

Cylindre creux : $R_T = \frac{\ln R_2 / R_1}{2 \cdot \pi \cdot k \cdot L}$; R_1 et R_2 les rayons extérieur et intérieur du tube.

III.2.2.3 Convection

Le flux de chaleur est donné par :
$$\Phi = \frac{T_1 - T_2}{R_T} \tag{3.31}$$

Le coefficient de transfert de chaleur h (cal/h.m².°C) est donné par :

$$h = \frac{1}{R_T} \quad \text{avec}$$

donc :
$$\Phi = h \cdot \Delta T \tag{3.32}$$

Le flux de transfert de chaleur Φ dépend des propriétés physiques suivantes [39]:

$$\Phi = \phi[u, l, \rho, \mu, Cp, \Delta T, \beta, g, k] \tag{3.33}$$

Φ : quantité de chaleur transférée / unité de temps et unité de surface

u : Vitesse

l : dimension linéaire

μ : viscosité

ρ : densité

k : conductivité thermique

Cp : chaleur spécifique

ΔT : la différence de température

β : le coefficient d'expansion thermique .

g : la vitesse de gravité.

Afin que l'équation (3.34) devient:

$$\frac{ql}{k\Delta T} = \frac{hl}{k} = \phi \left(\frac{lu\rho}{\mu} \right) \left(\frac{Cp\mu}{k} \right) \left(\frac{\beta g \Delta T l^3 \rho^2}{\mu^2} \right) \tag{3.34}$$

Où : $Nu = \phi[Re, Pr, Gr]$

pour une convection naturelle : $Nu = \phi[Gr, Pr] \tag{3.35}$

pour une convection forcée : $Nu = \phi[Re, Pr] \tag{3.36}$

En entend par : Nu (nombre de Nusselt) = $\frac{hl}{k}$, Gr (nombre de Grashof) = $\frac{l^3 \rho^2 \beta g \Delta T}{\mu^2}$

Pr (nombre de Prandtl) = $\frac{Cp\mu}{k}$, Re (nombre de Reynolds) = $\frac{ul\rho}{\mu}$

III.2.2.4 La détermination du nombre de Nusselt

Dans les conduites cylindriques et pour un écoulement turbulent, *Dittus et Boeller*, ont donné dans une forme générale pour le nombre de *Nusselt* [39] :

$$Nu = 0.023 Re^{0.8} Pr^{0.33} \quad (3.37)$$

Pour un liquide visqueux *Sieder et Tate* ajoutent le terme corrective de la viscosité :

$$Nu = 0.027 Re^{0.8} Pr^{0.33} \left(\frac{\mu}{\mu_s} \right)^{0.14} \quad (3.38)$$

μ : viscosité à la température de charge, μ_s : viscosité à la température de la surface d'échange de chaleur

Pour un écoulement laminaire :

$$Nu \left(\frac{\mu_s}{\mu} \right)^{0.14} = 1.86 \left(Pe \frac{d}{l} \right)^{1/3} \quad (3.39)$$

Pe est le nombre de *Peclet* :

$$Pe = \frac{Cp \cdot \rho \cdot u \cdot d}{k}$$

Avec : *d* est diamètre de la cuve, *l* est la longueur de la cuve.

Dans les cuves agités mécaniquement, *Chilton, Drew et Jebens* ont employé les mêmes modifications du nombre de *Reynolds*. Leurs résultats sont donnés par l'équation suivante [14] :

$$Nu = \frac{h_i D_i}{k} = 0.36 \left(\frac{L^2 N \rho}{\mu} \right)^{2/3} \left(\frac{c \mu}{k} \right)^{1/3} \left(\frac{\mu}{\mu_w} \right)^{0.14} \quad (3.40)$$

Où : *N* est la vitesse de rotation.

Pour plus de détail voir annexe 1.

III.2.2.5 Diverses techniques utilisables

En ce qui concerne l'échange de la chaleur, si la double enveloppe est relativement simple à réaliser, elle est cependant limitée en surface d'échange. Pour cette raison, on remplace souvent la double enveloppe par un serpentin constitué par demi-tube enroulé à l'extérieur à spires jointives et soudé sur la paroi du réacteur, de manière à augmenter la vitesse linéaire du fluide caloporteur et donc le coefficient de transfert.

Un serpentin ou des plaques à l'intérieur du réacteur permettent d'obtenir relativement de bons coefficients de transfert de chaleur avec une surface d'échange plus limitée et leur présence peut gêner l'action de l'agitation ou les opérations de nettoyage.

L'échangeur externe, qu'il soit inclus dans une boucle de circulation du liquide ou qu'il opère en tant que condenseur sur la phase vapeur (voir annexe 3), est le seul système permettant d'avoir une surface d'échange élevée comme le nécessitent les réactions fortement exothermiques (polymérisation par exemple). Il faut cependant se souvenir que le coefficient global d'échange U contient trois composantes qui correspondent respectivement aux trois résistances localisées à l'intérieur du réacteur (h_{int}), à travers la paroi (λ_p) et du côté du fluide caloporteur (h_{ext}) :

$$\frac{1}{U} = \frac{1}{h_{int}} + R_T + \frac{1}{h_{ext}} \quad (3.41)$$

Où,

R_T : c'est la résistance thermique ($R_T = (e / \lambda_p)$ dans le cas d'une paroi mince)

e : épaisseur de la paroi

h : coefficient de transfert de chaleur

h_{int} , dépend de la nature du fluide réactionnel (en particulier de sa viscosité) et de la turbulence au voisinage de la paroi ; une vitesse linéaire élevée, telle que celle qu'il est possible de provoquer dans les systèmes à circulation, permet de réduire cette résistance au transfert. La présence de revêtements de protection contre la corrosion (verre, plastique) tend à augmenter la résistance due à la paroi R_T .

h_{int} et h_{ext} dépendent de l'écoulement des fluides au voisinage de la paroi. Il faut se souvenir que si le transfert se fait avec changement d'état (condensation d'une vapeur par exemple), le coefficient de film (h_{int} ou h_{ext}) peut être notablement plus important que dans le cas où on a simplement circulation du fluide sans changement d'état. C'est pourquoi très souvent, le chauffage d'un réacteur se fait par condensation d'une vapeur dans le double enveloppe ou dans un serpentin.

A coté des échangeurs de chaleur conventionnels qui assurent un transfert de chaleur au travers d'une paroi matérielle entre deux fluides à des température différentes, on trouve toute une gamme de dispositifs industriels où la paroi d'échange est supprimée: tours de refroidissement, échangeurs récupérateurs solide-gaz, contacteurs gaz-liquide pour le chauffage d'eau à partir d'effluents gazeux, humidificateurs à bulles et barométriques. Les échangeurs à contact direct restent cependant assez peu répandus du fait de contraintes intrinsèques et d'une méconnaissance des comportements hydrodynamique et thermique de ces systèmes où interviennent des processus physiques complexes (milieux multiphasés en écoulement avec ou sans changement d'état). il est bien clair que les échangeurs à contact direct ne sont pas une panacée, mais dans certains cas spécifiques, ils constituent une alternative intéressante car ils offrent la possibilité de réduire le coût d'investissement et d'accroître les performances d'échange par rapport à un échangeur classique[55].

En ce qui concerne les agitateurs, nous avons rassemblé (voir annexe1) les principales notions à retenir pour le choix et la conception d'un système d'agitation.

Pour le chauffage et le refroidissement du réacteur on pourra utilisés de l'eau, de la vapeur ou un fluide caloporteur adapté au domaine de température envisagé (voir annexe2).

PARTIE DE SIMULATION

Chapitre IV

**Description et modélisation
du système**

CHAPITRE IV

DESCRIPTION ET MODELISATION DU SYSTEME

Introduction

Notre système est caractérisé par un certain nombre d'éléments se trouvant en interactions (fig.4.1). Pour connaître son comportement et ses performances dans différentes situations d'exploitation, il est indispensable de représenter son fonctionnement par un modèle mathématique, qui permet de décrire les divers paramètres. Le modèle est composé d'un ensemble d'équations qui, prises individuellement, sont simples. Néanmoins, la variété des interconnexions entre les variables communes aux diverses équations rend l'ensemble généralement complexes à résoudre.

La modélisation mathématique se fait par écriture des équations des bilans et les relations appropriées au processus. Les expériences de laboratoire doivent être conçues et exécutées pour déterminer les mécanismes inconnus et les paramètres du modèle. Les décisions simplificatrices doivent être prises sur les effets qui sont importants et d'autres qui peuvent être négligés, sans oublier les hypothèses faites dans le développement du modèle mathématique.

La procédure de construction du modèle mathématique est itérative et comprend les étapes suivantes:

- description du système;
- analyse des processus se déroulant dans le système et leur description mathématique;
- formulation du système des hypothèses de simplification ;
- composition du système des équations des bilans;
- identification paramétrique;
- la validation et de l'adéquation du modèle construit.

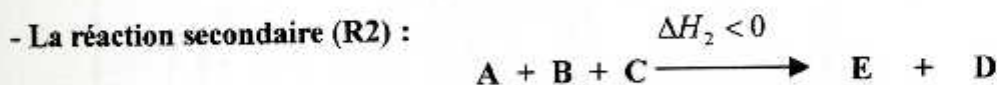
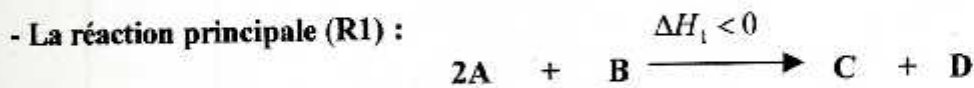
Si dans le sens du critère retenu le modèle s'est avéré non adéquat, alors la procédure de construction du modèle est répétée, en commençant par l'analyse des processus et en adoptant d'autres hypothèses.

IV.1 Description du système

La description du système contient l'information sur la construction du système, les dimensions géométriques de tous ses éléments et leur positions mutuelles, les valeurs numériques des variables d'entrée et les propriétés du milieu environnant. On donne également les conditions de fonctionnement du système, et l'énumération des processus qui se déroulent.

IV.1.1 Réactions et mode opératoire

L'étude suivante porte sur un réacteur semi-continu dans lequel se déroulent deux réactions compétitives, irréversibles et fortement exothermiques, en phase homogène, liquide. La réaction envisagée est utilisée dans la production d'un produit pharmaceutique de Sanofi Chimie. Le mécanisme cinétique de la synthèse, ainsi que les produits intermédiaires peuvent être décomposés dans les deux réactions comme suit :



Où "C " est le produit désiré.

Les paramètres cinétiques ont été identifiés par un laboratoire expérimental (CEZERAC, 1995) et les valeurs obtenues sont classées dans le tableau (4.1)

Tableau 4.1 : Paramètres cinétiques de la réaction de synthèse [45].

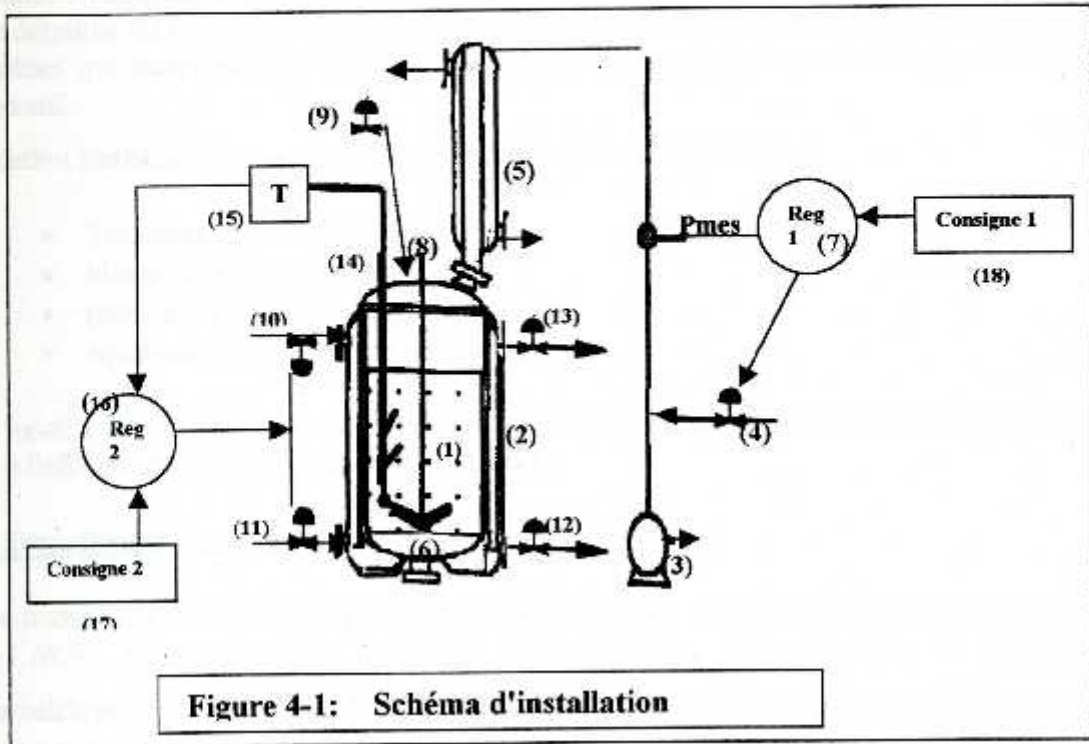
Réaction	facteur préexponentiel k_i^0 ($l^2/mole^3 s$)	Energie d'activation E_i (J/mole)	f_i
R1	$1.38 \cdot 10^9$	87870	$C_A^2 C_B$
R2	$2.16 \cdot 10^9$	92294	$C_A C_B C_C$

La loi cinétique est écrite comme suit: $r_i = k_i^0 \exp(-E_i / RT) f_i$

Une chaleur globale de 180 kJ par mole de B consommée, a été mesurée par une étude calorimétrique[43]. Le réactif A, en excès par rapport au réactif B ($C_A / C_B = 3.4$), est introduit dans le réacteur (0.8 l) et est chauffé à une température de 100°C, par la vapeur d'eau circulant dans la jaquette. Le réactif B, dans une solution de toluène, alimente le réacteur pendant 6 heures avec un débit de ($0.19E-04 m^3/s$). Le mélange réactionnel est maintenu à une température constante de 100°C durant un temps de 6 heures additionnelles (le temps du fonctionnement total est alors 12 heures à une température de 100°C \pm 5°C). On s'intéresse à l'augmentation du rendement du produit C (nombre définitif de moles de produit que C/ le nombre total de moles de réactif B introduit).

Cette production est accompagnée par un dégagement de chaleur qui va provoquer une élévation de température du milieu réactionnel, cela permet au système de contrôle évacuer cette excès de chaleur à l'aide de la circulation d'une eau froide dans la jaquette, ou bien par la diminution de la pression dans le réacteur. L'entretien de la température permettra également d'éviter l'emballement thermique.

IV.1.2 Description de l'installation



La figure 4-1 représente l'installation de l'unité pilote choisie dans le contexte de cette étude. Le mélange réactionnel (1) peut être gardé à son point d'ébullition par échange de la chaleur avec le fluide caloporteur chaud à l'intérieur de la jaquette (2) entourant du réacteur. La pompe à vide (3) fonctionne de façon continue pour maintenir la pression désirée dans le système (réacteur et condenseur (5)). Cette pression appropriée est donnée par la consigne 1 (18) implanté dans le régulateur (7). Dans la pratique, un changement de pression est exécuté par une variation dans le degrés de l'ouverture de la vanne de contrôle (4) qui contrôle le débit d'air à l'intérieur du réacteur. Le condensat est recyclé dans le réacteur (6). Le milieu réactionnel est agité grâce à un agitateur mécanique (8). Le réactif B est ajouté progressivement dans la réacteur par l'intermédiaire d'une vanne (9).

On propose un deuxième système de refroidissement - chauffage, composé par la jaquette (2) dans laquelle circule la vapeur d'eau par l'intermédiaire d'une vanne (10) si on chauffe, et de l'eau froide par l'intermédiaire d'une autre vanne (11), si par contre on refroidit. Après circulation dans la jaquette, la vapeur soutirée est évacuer par la vanne (12).

L'eau froide est évacuée par la vanne (13). La température du mélange réactionnel est mesurée grâce à un thermocouple (14). Le signal du thermocouple est transmis au régulateur (16) à travers un transmetteur de signal (15). Suivant une certaine consigne (17), le régulateur agit sur le procédé grâce à deux vannes (10 et 11).

Il faut noter que le réacteur est conçu avec un métal bon conducteur thermique, d'épaisseur mince afin de maximiser les échanges thermiques. Le choix du système de refroidissement-chauffage dépend, en grande partie, de la qualité et de la quantité de l'échange de chaleur envisagé.

IV.2 Formulation des équations du système

La mise en équations de notre système (réacteur et système de régulation) nécessite une analyse détaillée du processus et, de ce fait mène à une meilleure compréhension des divers phénomènes qui interviennent. Cela nous a permis de construire un modèle mathématique représentatif.

Les équations mathématiques constituant le modèle sont relatives aux :

- Transformations chimiques
- bilans massique, énergétiques;
- phénomènes thermodynamiques;
- équations de système de régulation ...

Ce modèle est constitué de deux parties : une est relative à la transformation chimique, l'autre à l'effet thermique de cette transformation.

IV.2.1 Transformation chimique

Une transformation chimique peut être caractérisée par le nombre de réactifs et produits $A_j (j=1, NC)$, le nombre de réactions indépendantes $R_i (i=1, NR)$, le coefficient stœchiométrique (ν_{ij}), l'ordre de la $i^{\text{ème}}$ réaction a_{ij} et par les paramètres cinétiques : Le facteur préexponentiel (k_i^0) et l'énergie d'activation (E_i).

Arrhénius exprime le facteur (k_i^0) en donnant à la constante de vitesse la forme:

$$k_i = k_i^0 \exp\left(-\frac{E_i}{RT}\right) \quad (4.1)$$

Les coefficients stœchiométriques (ν_{ij}) du système réactionnel peuvent être :

- $\nu_{ij} > 0$ si A_j est un produit pour la réaction i
- $\nu_{ij} < 0$ si A_j est un réactif pour la réaction i
- $\nu_{ij} = 0$ si A_j n'est pas intéressé par la réaction i .

La loi cinétique est écrite comme suit:

$$r_i = k_i^0 \exp\left(\frac{-E_i}{RT}\right) f_i \quad i=1, NR \quad (4.2)$$

Avec : $f_i = \prod_{j=1}^{NC} C_j^{\nu_{ij}}$ l'équation de concentration. (4.3)

C_j : est la concentration de A_j dans le réacteur, T : est la température interne du réacteur, r_i : est la vitesse de la réaction, NC : nombre des constituants et NR : nombre de réactions.

La quantité de la chaleur produite par la réaction peut être formulé comme suit :

$$Q(t) = V(t) \sum_{i=1}^{Nr} r_i \Delta H_i \quad (4.4)$$

ΔH_i : est l'enthalpie de la réaction i .

$V(t)$: est le volume du mélange réactionnel à un temps t calculé par:

$$V(t) = V_{ini} + \sum_{j=1}^{Nc} F_j V_j t \quad (4.5)$$

V_j est le volume molaire du composant j et V_{ini} le volume initial.

F_j est le débit molaire d'alimentation du composant j .

IV.2.2 Bilan de matière

L'équation de continuité globale (2.1), appliquée au mélange réactionnel, donne:

$$Q_B \rho_B - 0 = \frac{d(\rho V)}{dt}$$

$$Q_B \rho_B = \frac{d(\rho V)}{dt} \quad (4.6)$$

On travaille dans un domaine de température étroit, on suppose ainsi que la variation de la masse volumique du mélange réactionnel est très faible dans ce domaine, elle est négligeable devant celle du volume du mélange réactionnel, l'équation précédente devient:

$$Q_B \rho_B = \rho \frac{d(V)}{dt} \quad (5.7)$$

On suppose, également que la masse volumique du mélange réactionnel est pratiquement égale à celle du réactif introduit B, étant donné que les concentrations initiales sont petites, donc:

$$Q_B = \frac{d(V)}{dt} \quad (4.8)$$

Pour le réactif A:

$$0 - 0 - 2r_1 V - r_2 V = \frac{d(C_A V)}{dt}$$

$$V \frac{dC_A}{dt} = -2r_1 V - r_2 V - C_A \frac{dV}{dt}$$

$$\frac{dC_A}{dt} = -2r_1 - r_2 - \frac{C_A}{V} Q_B \quad (4.9)$$

Pour le réactif B:

$$Q_B C_{Ba} - 0 - r_1 V - r_2 V = \frac{d(C_B V)}{dt}$$

$$\frac{dC_B}{dt} = -r_1 - r_2 + \frac{(C_{Ba} - C_B)}{V} \frac{dV}{dt}$$

$$\frac{dC_B}{dt} = -r_1 - r_2 + \frac{(C_{Ba} - C_B)}{V} Q_B \quad (4.10)$$

Pour le réactif C:

$$0 - 0 + r_1 V - r_2 V = \frac{d(C_C V)}{dt}$$

$$\frac{dC_C}{dt} = r_1 - r_2 - \frac{C_C}{V} \frac{dV}{dt}$$

$$\frac{dC_C}{dt} = r_1 - r_2 - \frac{C_C}{V} Q_B \quad (4.11)$$

Pour le réactif D:

$$0 - 0 + r_1 V + r_2 V = \frac{d(C_D V)}{dt}$$

$$\frac{dC_D}{dt} = r_1 + r_2 - \frac{C_D}{V} \frac{dV}{dt}$$

$$\frac{dC_D}{dt} = r_1 + r_2 - \frac{C_D}{V} Q_B \quad (4.12)$$

Pour le réactif E:

$$0 - 0 + r_2 V = \frac{d(C_E V)}{dt}$$

$$\frac{dC_E}{dt} = r_2 - \frac{C_E}{V} \frac{dV}{dt}$$

$$\frac{dC_E}{dt} = r_2 - \frac{C_E}{V} Q_B \quad (4.13)$$

IV.2.3 Bilan énergétique

Afin de décrire fidèlement tous les échanges d'énergie ayant lieu dans le système, il est souvent nécessaire de diviser ce dernier en plusieurs parties étudiées séparément, mais liées entre elles par certains paramètres et équations, pour qu'on puisse respecter la continuité du transfert d'énergie d'une partie à une autre.

Le transfert thermique, dans notre système, se résume à deux cas:

- chauffage du milieu réactionnel grâce à la vapeur d'eau qui circule dans la jaquette.
- Refroidissement du milieu réactionnel grâce à l'eau froide qui circule dans la jaquette (ou bien grâce au système de refroidissement par recyclage de la vapeur condensée)

Le transfert d'énergie s'effectue entre le milieu réactionnel et le fluide caloporteur à travers le métal du réacteur. Ceci nous a amené à diviser notre système en trois parties. Dans la première partie, nous décrivons le bilan énergétique dans le mélange réactionnel tandis que dans la deuxième partie, il sera question d'établir le bilan énergétique dans le métal (parois du réacteur), enfin, dans la troisième partie, on applique l'équation énergétique au fluide caloporteur dans la jaquette selon que l'on désire chauffer ou, au contraire refroidir.

Notons que l'épaisseur du métal du réacteur, élaboré avec un matériau très bon conducteur de chaleur, est suffisamment faible pour considérer que la température est la même à toute la masse de sa parois. Le choix du fluide caloporteur dépend, en grande partie, des quantités de chaleur échangées (voir Annexe 2).

Ce qui concerne le système de refroidissement par recyclage de la vapeur condensée, il faut tenir compte, dans le bilan énergétique, de la quantité de chaleur portée par la vapeur du solvant dégagée, ainsi que le refroidissement par le solvant froid recyclé après condensation de sa vapeur.

Pour le mélange réactionnel:

Il faut s'avoir que nous avons deux débits d'entrées dans le réacteur; le débit d'alimentation Q_B , et le débit volumique du condensat D_{Cd} , ainsi qu'un débit de sortie, celui de la vapeur du solvant D_V .

L'équation énergétique (3.6) appliquée au mélange réactionnel donne :

$$Q_B \rho_B (U_B + K_B + \Phi_B) - Q_V \rho_V (U_V + K_V + \Phi_V) + D_{Cd} \rho_{Cd} (U_{Cd} + K_{Cd} + \Phi_{Cd}) - Q_M - r_1 V \Delta H_1 - r_2 V \Delta H_2 - (W + D_V P_V - Q_B P_B - D_{Cd} P_{Cd}) = \frac{d}{dt} [(U + K + \Phi) V \rho] \quad (4.14)$$

Où,

U : énergie interne, K : énergie cinétique, Φ : énergie potentielle,
 W : travail fait par l'agitation, P_{Cd} : pression d'alimentation du condensat,
 P_B : pression d'alimentation, et P_V : pression de vapeur.

La viscosité du mélange réactionnel est faible, par conséquent le travail fait par l'agitation est négligeable devant l'énergie provoquée par la réaction, on prend donc $W=0$, les vitesses des courants d'entrée et de sortie ne sont pas très grandes, le terme de l'énergie cinétique est donc négligeable. Le terme de l'énergie potentielle est petit. Donc l'éq.(4.14) se réduit à:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}(\rho V U) &= Q_B \rho_B U_B - D_V \rho_V U_V + D_{Cd} \rho_{Cd} U_{Cd} - Q_M - r_1 V \Delta H_1 - r_2 V \Delta H_2 - \\ &\quad \left[D_V \rho_V \left(\frac{P_V}{\rho_V} \right) - Q_B \rho_B \left(\frac{P_B}{\rho_B} \right) - D_{Cd} \rho_{Cd} \left(\frac{P_{Cd}}{\rho_{Cd}} \right) \right] \\ \frac{d}{dt}(\rho V U) &= Q_B \rho_B (U_B + P_B \bar{V}_B) - D_V \rho_V (U_V + P_V \bar{V}_V) + D_{Cd} \rho_{Cd} (U_{Cd} + P_{Cd} \bar{V}_{Cd}) \\ &\quad - Q_M - r_1 V \Delta H_1 - r_2 V \Delta H_2 \end{aligned} \quad (4.15)$$

Où,

\bar{V} est le volume spécifique, $\bar{V} = 1/\rho$, H ou h , est l'enthalpie défini par :

$$h \text{ or } H = U + P \bar{V} \quad (4.16)$$

Nous utiliserons h pour l'enthalpie du liquide et H pour celle de la vapeur, donc, l'éq.(4.15) devient :

$$\frac{d}{dt}(\rho V U) = Q_B \rho_B h_B - D_V \rho_V H_V + D_{Cd} \rho_{Cd} h_{Cd} - Q_M - r_1 V \Delta H_1 - r_2 V \Delta H_2 \quad (4.17)$$

Dans beaucoup de systèmes la terme $P \bar{V}$ est négligeable comparé avec U , donc, on peut utiliser le changement de l'enthalpie du système au lieu de l'énergie interne. On a deux phases (liquide et vapeur), pour cela l'éq.(4.17) devient alors :

$$\frac{d}{dt}(\rho V h) = Q_B \rho_B h_B - D_V \rho_V H_V + D_{Cd} \rho_{Cd} h_{Cd} - Q_M - r_1 V \Delta H_1 - r_2 V \Delta H_2 \quad (4.18)$$

$$\text{Avec :} \quad h = C_p T \quad \text{et} \quad H = C_p T + \lambda_v$$

Où,

λ_v : la chaleur latente de vaporisation du solvant,

Pour simplifier, on a supposé que la densité du mélange est constante (ainsi que l'égalité entre les capacités calorifiques $C_p = C_v$). Avec ces simplifications l'éq.(4.18) devient :

$$\begin{aligned} \frac{d(\rho V C_p T)}{dt} &= Q_B \rho_B C_p T_B - D_V \rho_V (C_p T_V + \lambda_v) + D_{Cd} \rho_{Cd} C_p T_{Cd} - Q_M - \\ &\quad r_1 V \Delta H_1 - r_2 V \Delta H_2 \end{aligned} \quad (4.19)$$

Le développement de cette équation conduit à :

$$\rho C_p V \frac{dT}{dt} + \rho C_p T \frac{dV}{dt} = Q_B \rho_B C_{p_B} T_B - D_V \rho_V (C_{p_V} T_V + \lambda_v) + D_{Cd} \rho_{Cd} C_{p_{Cd}} T_{Cd} - Q_M - r_1 V \Delta H_1 - r_2 V \Delta H_2 \quad (4.20)$$

avec : $V = V_0 + V_B + V_{Cd} - V_v$ donc : $\frac{dV}{dt} = \frac{dV_B}{dt} - \frac{dV_v}{dt} + \frac{dV_{Cd}}{dt} = Q_B - D_V + D_{Cd}$

L'équation(4.20) peut se résumer à une équation différentielle donnant la variation de la température dans le milieu réactionnel:

$$\frac{dT}{dt} = \frac{Q_B}{V} \left(\frac{C_{p_B} \rho_B T_B}{C_{p\rho}} - T \right) - \frac{r_1 \Delta H_1}{\rho C_p} - \frac{r_2 \Delta H_2}{\rho C_p} + \frac{D_{Cd}}{V} \left(\frac{C_{p_{Cd}} \rho_{Cd} T_{Cd}}{C_{p\rho}} - T \right) - \frac{D_V}{V} \left(\frac{(C_{p_v} T_v + \lambda_v) \rho_v}{C_{p\rho}} - T \right) - \frac{Q_M}{C_p V \rho} \quad (4.21)$$

Le premier terme concerne le changement de température dû à l'introduction du réactif B et les deux termes suivants correspondent à la production de chaleur des deux réactions. Le troisième et le quatrième sont dus respectivement, aux changements de la température causés par l'évaporation du solvant et le recyclage de la vapeur condensée. Enfin, le dernier terme correspond à l'échange de chaleur, entre le milieu réactionnel et la paroi interne du réacteur.

Où,

Q_B : débit volumique de l'alimentation,

Q_M : le flux de chaleur entre le milieu réactionnel et la paroi interne du réacteur,

D_{Cd} : débit volumique du condensat et D_v : débit volumique de la vapeur .

L'expression de Q_M est donnée par :

$$Q_M = h_i A_i (T - T_M) \quad (4.22)$$

avec : $A_i = \frac{V}{V_R} A_R$

Où,

A_i : surface interne du réacteur, A_R : surface interne totale du réacteur.

V : volume du mélange réactionnel, V_R : volume total du réacteur.

T_M : la température de la paroi du réacteur, T : la température du mélange réactionnel,

h_i : coefficient d'échange thermique à l'intérieur du réacteur.

Pour le métal du réacteur (la paroi) :

En considérant que la résistance thermique dans le métal du réacteur est très faible (le coefficient de transfert de chaleur par conduction est grand et l'épaisseur du métal est très petite), l'équation (3.6) appliquée au métal du réacteur donne :

$$\frac{dT_M}{dt} = \frac{Q_M - Q_J}{\rho_M C_{p_M} V_M} \quad (4.23)$$

Où,

Q_J : est le flux de chaleur entre la parois externe du réacteur et le fluide caloporteur .

ρ_M, C_{p_M}, V_M : la densité, la chaleur spécifique et le volume de la parois du réacteur.

Pour le fluide caloporteur dans la jaquette:

Le transfert de la chaleur entre la parois externe du réacteur et le fluide caloporteur se fait en deux cas, selon qu'on chauffe ou on refroidit.

Le flux de chaleur Q_J est écrit comme :

$$Q_J = h_J \cdot A_J \cdot (T_J - T_M) \quad (4.24)$$

Où,

h_J : coefficient d'échange thermique entre le fluide caloporteur et la parois externe du réacteur.

T_J : la température du fluide caloporteur.

A. 1^{er} cas chauffage :

Dans ce cas, la surface A_J représente la surface de contact entre la vapeur d'eau, circulant dans la jaquette, et la parois du réacteur. On suppose que la vapeur occupe instantanément tout le volume qui lui est offert, donc:

$$A_J = A_{eT} = \text{constante.}$$

$$h_J = -h_{JC}$$

Où,

A_{eT} : la surface externe totale du réacteur,

h_{JC} : coefficient d'échange thermique entre la vapeur d'eau et la parois du réacteur.

On obtient alors :

$$Q_J = -h_{JC} A_{eT} (T_J - T_M) \quad (4.25)$$

L'équation de continuité globale, appliquée à la vapeur d'eau donne:

$$W_V - W_C = \frac{d(\rho_{VJ} V_{JT})}{dt} \quad (4.26)$$

$V_J = V_{JT} = \text{constante}$. L'équation précédente devient:

$$W_V - W_C = V_{JT} \frac{d\rho_{VJ}}{dt} \quad (4.27)$$

Bilan énergétique de la vapeur d'eau :

$$W_V H_V + Q_J - h_C W_C = V_{JT} \frac{d(U_J \rho_{VJ})}{dt} \quad (4.28)$$

En remplaçant Q_J par son expression, on obtient:

$$W_V H_V - h_{JC} A_{eT} (T_J - T_M) - h_C W_C = V_{JT} \frac{d(U_J \rho_{VJ})}{dt} \quad (4.29)$$

Où,

H_V : Enthalpie de la vapeur d'eau entrante,

h_C : Enthalpie de l'eau condensée soutirée à la sortie,

U_J : Energie interne de la vapeur d'eau dans la jaquette.

Dans les conditions de notre travail, on prend le produit $(\rho_{VJ} V_{JT})$ comme constant, se qui implique $\frac{d(\rho_{VJ} V_{JT})}{dt} = 0$, l'équation (4.26) devient alors : $W_V = W_C$

Ce qui permettra de trouver la valeur de W_C en fonction de la quantité de chaleur échangée:

$$W_C = \frac{-h_{JC} A_{eT} (T_J - T_M)}{H_V - h_C} \quad (4.30)$$

En supposant que la vapeur d'eau est un gaz parfait. On peut écrire:

$$P_J V_J = n R T_J \quad (4.31)$$

$$\rho_{VJ} = \frac{M_{eau} P_J}{R T_J} \quad (4.32)$$

La relation de Clapeyron, donne:

$$P_J = \exp[(A_V / T_J) + B_V] \quad (4.33)$$

L'expression de P_J

A_V et B_V sont des constantes et $P_J = p_J / n$

En remplaçant P_J par (4.33) dans l'équation (4.32) on aboutit à:

$$\rho_{VJ} = \frac{M_{eau}}{RT_J} (\exp[(A_V / T_J) + B_V]) \quad (4.34)$$

On calculera ρ_{VJ} à partir de l'équation (4.27). T_J sera calculée après résolution itérative de l'équation (4.34). Une fois T_J calculée, on peut calculer P_J à partir de l'équation (4.33). (voir diagramme de courants fig.(4.5)). Enfin, la valeur calculée de P_J permettra le contrôle de W_V .

B. 2^{ème} cas refroidissement:

Lors du refroidissement, la surface de contact entre l'eau froide circulant dans la jaquette, et la paroi du réacteur varie pendant le remplissage de la jaquette. Elle dépend du débit d'introduction de l'eau froide. Il faut un certain temps pour que la jaquette soit remplie complètement. On suppose que l'eau froide circulant dans la jaquette est incompressible et parfaitement agitée.

B.1 Pendant le remplissage de la jaquette:

Notons que le débit de sortie est nul, puisque la jaquette est en phase de remplissage, tandis que le volume occupé par l'eau varie.

L'expression de la surface s'écrit donc:

$$A_J = V_J \frac{A_{eT}}{V_{JT}} \quad (4.35)$$

$$h_J = -h_{er}$$

Où,

V_{JT} : volume total de la jaquette., A_J : surface externe du réacteur.

A_{eT} : surface externe totale du réacteur.

V_J : volume instantané de la jaquette occupée par l'eau froide.

h_{er} : coefficient d'échange thermique entre l'eau froide et la parois du réacteur.

On obtient donc :

$$Q_J = -h_{er} A_J (T_J - T_M) \quad (4.36)$$

L'application de l'équation de la conservation d'énergie (3.6), dans ce cas donne :

$$\frac{d(T_J V_J)}{dt} = \frac{W_e T_e}{\rho_e} + \frac{Q_J}{C_{p_e} \rho_e} \quad (4.37)$$

Avec :

$$\frac{dV_J}{dt} = \frac{W_e}{\rho_e} \quad (4.38)$$

$$T_J = T_J V_J / V_J \quad (4.39)$$

Où,

W_e : débit massique de l'eau de refroidissement, introduit dans la jaquette.

C_{p_e}, ρ_e, T_e : la chaleur spécifique, la densité et la température de l'eau de refroidissement.

B.2 Jaquette remplie:

Dans ce cas : $A_J = A_{er}$

L'équation (4.36) devient :

$$Q_J = -h_{er} A_{er} (T_J - T_M) \quad (4.40)$$

L'application de l'équation de la conservation d'énergie (3.6) donne:

$$W_e C_{p_e} (T_e - T_J) + Q_J = V_J C_{p_e} \rho_e \frac{dT_J}{dt} \quad (4.41)$$

donc :

$$\frac{dT_J}{dt} = \frac{W_e (T_e - T_J)}{V_{JT} \rho_e} + \frac{Q_J}{V_{JT} C_{p_e} \rho_e} \quad (4.42)$$

Notant que le volume de la jaquette est complètement remplie avec de l'eau froide, donc $V_J = V_{JT} = \text{constante}$.

IV.2.4 Utilisation du système de refroidissement par action sur la pression :

Le contrôle thermique de l'installation est proposé par les deux systèmes de refroidissement -chauffage indiqué dans l'installation.

Le premier est un système classique, l'échange de chaleur avec le milieu réactionnel se fait, à travers la parois du réacteur et la parois d'une jaquette, avec le fluide froid (l'eau), et le fluide chaud qui est la vapeur d'eau (ses équations sont décrites précédemment). Le deuxième système se fait à travers la pression identifiée par la loi de la pression de vapeur.

La méthodologie pour le contrôle thermique à travers la pression permet le maintien du mélange réactionnel à son point d'ébullition. Le principe est de calculer, à chaque instant de réaction, la valeur de la pression qui devrait être appliquée au réacteur d'après une relation directe de pression- température. Il est reconnu que pour les liquides purs la relation entre la pression de leurs vapeurs et la température est gouvernée par loi de *Clausius-Clapeyron* :

$$\ln p = Acc - \frac{Bcc}{T} \quad (4.43)$$

Une loi semblable pourrait être utilisée pour différents mélanges liquides homogènes. Quand une réaction chimique est mise en œuvre dans un réacteur, la composition du mélange varie dans le temps. Dans ce cas, la loi *Clausius-Clapeyron* est toujours adéquate si les paramètres (Acc , Bcc) sont estimés au fur et à mesure avec le changement de la composition.

Alors, la stratégie du contrôle consiste à utiliser une loi *Clausius-Clapeyron* pour représenter la relation entre la pression et la température au point d'ébullition et identifier les paramètres Acc_{id} et Bcc_{id} . La valeur de la pression qui doit être appliquée au réacteur, P_{sp} , est alors calculée directement à partir de la température désiré du réacteur, T_{sp} (température constante ou profil de la température) d'après la relation:

$$P_{sp} = \exp \left(Acc_{id} - \frac{Bcc_{id}}{T_{sp}} \right) \quad (4.44)$$

Une boucle de régulation a été utilisée pour maintenir la pression dans le réacteur à la valeur de la pression de consigne P_{sp} . Par cet effet, le régulateur conventionnel, agit sur la vanne qui opère sur la circulation d'un débit d'air (provoqué par la pompe), pour diminuer la pression à l'intérieur du réacteur à des valeurs appropriées.

Echange de chaleur lors de la vaporisation du solvant:

Lorsque l'agitation thermique dans un liquide devient importante, il se produit une évaporation du solvant. Si l'évaporation se produit dans une enceinte fermée, la vapeur s'accumule et se condense et la pression de la vapeur augmente et si l'espace est ouvert la vapeur se déplace par diffusion et par convection dans la phase gazeuse constituée du mélange air-vapeur.

Envisageons le cas simple de la diffusion de la vapeur dans une couche stagnante d'air et une petite surface d'évaporation, le système étant à température et pression constante, le mélange air-vapeur étant supposé idéal. Le simple modèle traduit la relation entre la vitesse massique F_V de la vapeur en fonction de la différence entre la pression de la vapeur et la pression de vaporisation est donnée par:

$$F_V = k_C \left(\frac{M_L}{RT} \right) (P_V - P) \quad (4.45)$$

Avec : $P_V = \exp(A_S + B_S/T)$ (4.46)

Où,

K_C : (m/s) le coefficient de transfert de masse relatif à la concentration.

R : constante des gaz parfaits, M_L : masse molaire du liquide,

P : pression de la vapeur et P_V : pression de vaporisation,

Ou bien : $F_V = K_{MT} (P_V - P)$ (4.47)

$$D_V = F_V / \rho_V \quad (4.48)$$

K_{MT} : est le coefficient de pseudo-transfert de masse et D_V : débit volumique de la vapeur.

Echange de chaleur lors de la condensation de la vapeur du solvant:

Examinons une condensation en film sur la surface interne du condenseur, la chaleur libérée lors de la condensation se transmet vers la surface froide à travers le film de condensat formé sur la paroi.

Le transfert de chaleur n'est possible que par la conduction c'est à dire:

$$H_C = \frac{K(T_i - T_w)}{B} \quad (4.49)$$

Où,

K : conductivité thermique du film ($W/m \cdot ^\circ C$), B : épaisseur du film, (m),

T_w : température de paroi, ($^\circ C$), T_i : température de saturation, supposée égale à celle de la vapeur contre la surface libre du film liquide, ($^\circ C$) et H_C : densité de flux de chaleur à travers le condensat (W/m^2).

Le flux de chaleur à travers le mur est :

$$H_C = U_w (T_w - T_R) \quad (4.50)$$

Où,

U_w : coefficient de transfert thermique à travers la surface d'échange,
 T_R : la température du condensat.

Le flux de chaleur H_C est libéré par la condensation de la vapeur à la surface de condensation est de :

$$H_C = W \lambda_v \quad (4.51)$$

Où,

W : densité de flux massique de condensation ($gr/s.m^2$)
 λ_v : la chaleur latente massique (J/gr).

L'épaisseur moyen du film du condensat à différentes valeurs de Z peut être relié au débit massique par unité de largeur de la condensation Q ($gr/m.s$) à ce niveau par la relation :

$$Q = \frac{B^3 \rho_{cd} g}{3\nu} \quad (4.52)$$

Où,

ν : viscosité cinématique du condensat, ρ_{cd} : densité du condensat,
 g : accélération de la pesanteur.

La densité de flux massique de condensation W est donnée par :

$$W = \frac{dQ}{dZ} \quad (4.53)$$

Le débit volumique du condensat introduit dans le mélange réactionnel est :

$$D_{Cd} = Q.Z / \rho_{cd} \quad (4.54)$$

Où, Z est la hauteur du condenseur x

IV.2.5 Système de régulation et de contrôle

Le contrôle est une partie essentielle de toutes les opérations de génie des procédés. L'ensemble des opérations, nécessaires pour la mise en marche et l'arrêt du processus, et aussi pour le maintien ou le changement dans un sens souhaité des grandeurs qui caractérisent l'état d'un processus donnée est appelé contrôle. Dès-que l'on désire obtenir des produits de qualité constante, assurer la régularité de fonctionnement d'un procédé, réduire l'impact de l'énergie et des matières premières sur le coût de production, l'automatisation devient une nécessité absolue.

La conduite des réacteurs chimiques est une notion très importante dans le domaine d'automatisation, elle nécessite un système de régulation et de contrôle très appropriés afin d'assurer :

- La bonne rentabilité en produit désiré,
- La sécurité des opérateurs et des équipements.

Dans notre processus, il est nécessaire de garder les températures, les compositions, dans certaines limites. La nécessité de réguler la température a été dictée par le besoin de préserver le produit *C* afin d'empêcher le déroulement de la seconde réaction qui consomme également les deux réactifs de la réaction principale à savoir *B* et *A* et éviter l'emballement thermique.

L'entretien de la température de la réaction principale pour maximiser le rendement en *C* ne peut se faire sans évacuation de la chaleur produite par les deux réactions. On doit travailler, sous certaines conditions, qui favoriseront le déroulement de la réaction, tout en préservant les réactifs, les produits et en évitant l'emballement.

Dans la majorité des cas, cependant, si le réglage simple d'un système n'est pas suffisant, parce que trop grossier ou instable. Il faut alors comparer, en permanence, la valeur mesurée de la grandeur réglée à celle que l'on souhaite obtenir (consigne) et agir en conséquence sur la grandeur d'action, dite grandeur réglante. On a, dans ce cas, constitué une boucle de régulation.

IV.2.5.1 La boucle de régulation

Cette boucle nécessite la mise en œuvre d'un ensemble de moyen de mesure, de traitement de signal ou de calcul, d'amplification et de commande d'actionneur, constituant une chaîne d'éléments associés, afin d'assurer l'objectif global de la régulation, résumé par ces trois mots clefs : mesurer, comparer, corriger et modifier.

La boucle de régulation de notre système est une boucle fermée, elle comporte un capteur de mesure, un transmetteur, deux régulateurs une pompe et enfin les actionneurs qui sont des éléments terminaux de contrôle (vannes pneumatiques). Cependant, chaque procédé possède ses exigences propres, chaque appareil possède ses propres conditions de fonctionnement.

Le capteur:

Le capteur qui sert à mesurer la température du mélange réactionnel est un thermocouple . transformant la grandeur à mesurer en un signal électrique représentatif de l'information originale vers le transmetteur.

Le choix du thermocouple est dicté par le système lui-même. Il doit être fonctionnel dans la plage de température dans laquelle on travaille. Sa réponse dynamique doit être beaucoup plus rapide que la dynamique du système afin qu'on puisse négliger son temps de réponse. On préconise l'utilisation d'un thermocouple Cuivre-constantan qui est communément utilisé pour une plage de température allant de -185 à 300°C.

Le transmetteur :

Le transmetteur est l'interface entre le processus et son système de contrôle. Dans notre étude, le transmetteur reçoit du thermocouple (le capteur) un signal électrique (en millivolts) et le convertit en un signal sous forme de pression d'air grâce à un étalonnage intégré. Son signal de sortie varie de P_1 à P_2 atmosphère, quand la température du mélange réactionnel varie de T_1 à T_2 °C [46].

On considère que sa réponse est rapide; son gain K_T est donné par l'expression :

$$K_T = \frac{P_2 - P_1}{T_2 - T_1} \quad (4.55)$$

P_1, P_2, T_1, T_2 : données spécifiques à chaque transmetteur. Dans notre système, les paramètres du transmetteur sont: $P_1 = 15$ Psig, $P_2 = 3$ Psig, $T_1 = 500$ °k, $T_2 = 300$ °k. Donc $K_T = \frac{12}{200}$

Pour une température du mélange réactionnel T , le transmetteur envoie un signal de sortie P_T , l'éq.4.55 devient :

$$K_T = \frac{P_2 - P_T}{T_2 - T} \quad (4.56)$$

La pression du signal du transmetteur P_T , est donnée par :

$$P_T = P_2 + (T - T_2)K_T \quad \text{ou bien} \quad P_T = 3 + (T - 300)\frac{12}{200} \quad (4.57)$$

Le régulateur :

Un régulateur est le "cerveau" de la boucle de régulation, c'est un mécanisme automatique qui élabore un signal de commande U en fonction de l'écart de réglage $M-C$ selon un algorithme donné f :

$$U = f(M-C) \quad (4.58)$$

M : ou PV, le signal de mesure, il provient du transmetteur ,

C : ou SP, consigne,

U : sortie du régulateur, signal de commande, elle actionne l'organe de réglage afin d'annuler cet écart et de ramener la mesure vers la valeur de consigne.

On utilise dans notre système deux régulateurs de type PID, le premier pour contrôler le système de chauffage-refroidissement par fluide caloporteur, et le deuxième est utilisé dans le deuxième système où la refroidissement se fait par recyclage de la vapeur condensée.

L'expression du signal d'envoi pour les deux régulateurs est donnée par[45]:

$$P_{r1} = P_{r01} + K_{p1}(P_{c1} - P_{T1}) + K_{I1} \int_t^{t+1} (P_{c1} - P_{T1}) . dt + \frac{1}{K_{d1}} \frac{d}{dt} (P_{c1} - P_{T1}) \quad (4.59)$$

$$P_{r2} = P_{r02} + K_{p2}(P_{sp} - P_{mes}) + K_{I2} \int_t^{t+1} (P_{sp} - P_{mes}) . dt + \frac{1}{K_{d2}} \frac{d}{dt} (P_{sp} - P_{mes}) \quad (4.60)$$

Avec:

- P_{r01}, P_{r02} : signaux (pression) des deux régulateurs quand l'erreur est égale à zéro,
- K_{p1}, K_{p2} : le gain statique du premier et deuxième régulateur,
- P_{T1} : le signal du transmetteur (pression),
- P_c, P_{mes} : pressions de consigne des deux régulateurs,
- P_r : signal de sortie du régulateur (pression),
- K_I, K_d : paramètres.

La pression de consigne P_c correspond à la température désirée à maintenir au milieu réactionnel afin d'activer la réaction principale, éviter l'emballement thermique, augmenter et préserver la production en C .

Le régulateur a pour mission de comparer le signal du processus, envoyé par le thermocouple à travers le transmetteur, avec le signal de consigne et enfin envoyer un signal approprié aux organes terminaux de contrôle afin qu'il agissent sur le système soit pour un refroidissement ou un chauffage.

Actionneur :

C'est l'organe de commande de la grandeur réglante, à travers lequel la chaîne entière exerce son action sur le processus. En général, l'actionneur de contrôle est une vanne automatique qui agit sur le débit du fluide.

On utilise une vanne pneumatique, constituée d'une tige qui ouvre ou ferme un orifice proportionnellement à sa position. Cette tige est fixée à un diaphragme qui se déforme en fonction de la pression d'air qui lui est appliqué. On oppose à ce diaphragme une force à un ressort. Le signal du régulateur P_r se transmet à deux types de vannes[50].

Vanne A-C (air-to-close)

La pression d'air provoque la fermeture de cette vanne; on l'utilise pour l'entrée de l'eau froide. Elle est ouverte pour P_r égale à $P1$ ($X_e = 1$, avec X_e la fraction d'ouverture de la vanne d'eau) et fermée pour P_r égale à $P3$ ($X_e = 0$, avec $P1 < P3$).

Vanne A-O (air-to-open):

En inversant la position de cette vanne; on l'utilise pour l'entrée de la vapeur d'eau, elle est fermée pour P_r égale à P_3 ($X_v = 0$, avec X_v la fraction d'ouverture de vanne de vapeur) et ouverte pour P égale à P_2 ($X_v=1$).

Les fractions d'ouvertures seront données par les relations suivantes:

$$X_v = \frac{(P_r - P_3)}{\Delta P_v} \quad (4.61)$$

et :

$$X_e = \frac{(P_3 - P_r)}{\Delta P_e} \quad (4.62)$$

Où:

$$\Delta P_v = P_2 - P_3 \quad (4.63)$$

$$\Delta P_e = P_3 - P_1 \quad (4.64)$$

Le débit du fluide dépend de la taille de la vanne (fig 4-2), de la position de la tige, de la différence de pression de part et d'autre de la vanne et des propriétés du fluide lui-même .

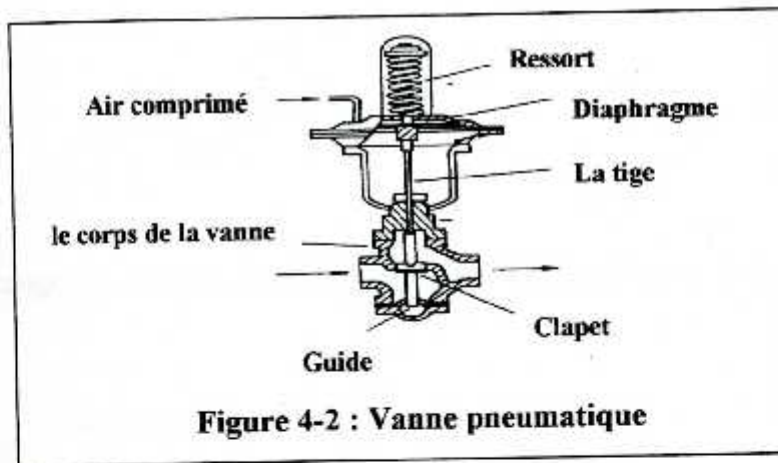


Figure 4-2 : Vanne pneumatique

Le débit de la vanne est donné par l'expression suivante:

$$W = C_v f(X) \sqrt{\Delta P} \quad (4.65)$$

avec:

W : débit massique du fluide sortant de la vanne, en Kg/min, X : fraction d'ouverture,

C_v : coefficient constant (il dépend de la vanne),

$f(X)$: fonction qui dépend de la tige et l'ouverture de la vanne, il existe trois sortes

d'ouvertures: Linéaire : $f(X) = X$, A pourcentage égal : $f(X) = X^{X-1}$,

Racine carrée : $f(X) = X^{0.5}$.

Dans notre cas, on prend $f(X) = X$ et sachant que la pression d'alimentation en vapeur d'eau est égale à 2.4 atm, $C_v = 1.8$, le débit de vapeur sera égal à [45] :

$$W_v = 1.8 X_v \sqrt{2.4 - P_j} \quad (4.66)$$

Pour la vanne d'alimentation de l'eau de refroidissement, $\Delta P = 1.4$ atm. $C_v = 20$, le débit d'eau froide sera égal à :

$$W_e = 20 X_e \sqrt{1.4} \quad (4.67)$$

La troisième vanne (vanne 4 de l'installation), c'est une vanne de type A-O, est utilisée pour diminuer la pression à l'intérieur du régulateur relié avec la pompe (3), elle est fermée pour P_{r2} égale à P_0 et ouverte pour P_{r2} égale à P . Sa fraction d'ouverture X_p est donnée par :

$$X_p = \frac{(P_{r2} - P)}{\Delta P} \quad (4.68)$$

Le débit de pompage est constant, l'expression de cette vanne est donnée par [45,47] :

$$W_{vp} = P_{cr} \cdot C_{vp} \cdot X_p \cdot \frac{0.85}{\sqrt{2}} \quad (4.69)$$

IV.3 Modèle mathématique final :

La modélisation du processus ayant lieu dans le réacteur nous a permis de construire un modèle mathématique, plus ou moins simple grâce à plusieurs hypothèses simplificatrices (- l'agitation des réactifs est idéale; c'est-à-dire absence des gradients de température et concentration; - les coefficients d'échange de chaleur, les masses volumiques, les valeurs des capacités calorifiques sont constantes), qui ont été émises dans le but d'obtenir un modèle susceptible d'être résolu numériquement. La description détaillée de notre système nous a conduit à l'obtention d'une série d'équations complexes, bien qu'elles peuvent être résolues numériquement.

Les expressions du modèle proposé sont représentées comme suit :

V.3.1 Mélange réactionnel et paroi du réacteur

$$Q_B = \frac{dV}{dt} \quad (\text{M.1})$$

$$\frac{dC_A}{dt} = -2r_1 - r_2 - \frac{C_A}{V} \cdot Q_B \quad (\text{M.2})$$

$$\frac{dC_B}{dt} = -r_1 - r_2 + \frac{(C_{Ba} - C_B)}{V} \cdot Q_B \quad (\text{M.3})$$

$$\frac{dC_C}{dt} = r_1 - r_2 - \frac{C_C}{V} \cdot Q_B \quad (\text{M.4})$$

$$\frac{dC_D}{dt} = r_1 + r_2 - \frac{C_D}{V} \cdot Q_B \quad (\text{M.5})$$

$$\frac{dC_E}{dt} = r_2 - \frac{C_E}{V} \cdot Q_B \quad (\text{M.6})$$

$$r_1 = k_1^0 \exp(-E_1/RT) C_A^2 C_B \quad (\text{M.7})$$

$$r_2 = k_2^0 \exp(-E_2/RT) C_A C_B C_C \quad (\text{M.8})$$

$$\frac{dT}{dt} = \frac{Q_B}{V} \left(\frac{C_{PB} T_B}{C_p} - T \right) - \frac{r_1 \Delta H_1}{\rho C_p} - \frac{r_2 \Delta H_2}{\rho C_p} - \frac{D_{Cd}}{V} \left(\frac{C_{pCd} \rho_{Cd} T_{Cd}}{C_p \rho} - T \right)$$

$$- \frac{D_V}{V} \left(\frac{(C_p T + \lambda_v) \rho_v}{C_p \rho} - T \right) - \frac{Q_M}{C_p V \rho} \quad (\text{M.9})$$

$$Q_M = h_i A_i (T - T_M) \quad (\text{M.10})$$

$$A_i = \frac{V}{V_R} A_R \quad (\text{M.11})$$

$$\frac{dT_M}{dt} = \frac{Q_M - Q_J}{\rho_M C_{p_M} V_M} \quad (\text{M.12})$$

$$R_{C/B} = (C_C V / (C_{B0} V_0 + (V - V_0) C_{B\alpha} - C_B V)) 100 \quad (\text{M.13})$$

$$X_A = (C_{A0} V_0 - C_A V) / C_{A0} V_0 \quad (\text{M.14})$$

V.3.2 Chauffage par la vapeur d'eau :

$$A_J = A_{JT} \quad (\text{M.15})$$

$$\frac{d\rho_{VJ}}{dt} = \frac{W_V - W_C}{V_{JT}} \quad (\text{M.16})$$

$$\rho_{VJ} = \frac{M_{\text{eau}} P_J}{RT_J} \quad (\text{M.17})$$

$$P_J = \exp[A_v + B_v / T_J] \quad (\text{M.18})$$

$$W_V = X_V C_v \sqrt{245500 / 101300 - P_J / 101300} \quad (\text{M.19})$$

$$Q_J = -h_{JC} A_J (T_J - T_M) \quad (\text{M.20})$$

$$W_C = \frac{-Q_J}{H_V - h_C} \quad (\text{M.21})$$

$$X_V = \frac{(p_{r1} - 9)}{2} \quad (\text{M.22})$$

IV.3.3 Refroidissement:**Refroidissement agissant sur la méthode de contrôle thermique à travers la pression :**

$$P_{sp} = \exp \left(Acc_{id} - \frac{Bcc_{id}}{T_{sp}} \right) \quad (M.23)$$

$$X_p = \frac{(P_2 - 9)}{6} \quad (M.24)$$

$$P_{Cr} = W_{vp} \cdot \sqrt{2} / (C_{vp} \cdot X_p \cdot 0.85) \quad (M.25)$$

Echange de chaleur lors de la vaporisation du solvant:

$$D_V = F_V / \rho_V \quad (M.26)$$

$$H = C_{ps} T + \lambda_V \quad (M.27)$$

$$F_V = K_{MT} (P_V - p) \quad (M.28)$$

$$P_V = \exp(A_S + B_S / T) \quad (M.29)$$

Echange de chaleur lors de la condensation de la vapeur du solvant:

$$H_C = W \lambda_v \quad (M.30)$$

$$\frac{dQ}{dZ} = W \quad (M.31)$$

$$Q = \frac{B^3 \rho_{cd} g}{3\nu} \quad (M.32)$$

$$H_C = \frac{K(T_i - T_w)}{B} \quad (\text{M.33})$$

$$H_C = U_w(T_w - T_R) \quad (\text{M.34})$$

$$D_{Cd} = Q \cdot Z / \rho_{cd} \quad (\text{M.35})$$

Refroidissement par l'eau froide dans la jaquette

$$W_e = C_e \cdot X_e \sqrt{1.3609} \quad (\text{M.36})$$

$$X_e = \frac{(9 - p_{r1})}{2} \quad (\text{M.37})$$

$$Q_J = -h_{er} A_J (T_J - T_M) \quad (\text{M.38})$$

Lors du remplissage de la jaquette :

$$A_J = V_J \frac{A_{JT}}{V_{JT}} \quad (\text{M.39})$$

$$\frac{dV_J}{dt} = \frac{W_e}{\rho_e} \quad (\text{M.40})$$

$$\frac{d(T_J V_J)}{dt} = \frac{W_e T_e}{\rho_e} + \frac{Q_J}{C_p \rho_e} \quad (\text{M.41})$$

$$T_J = T_e V_J / V_J \quad (\text{M.42})$$

Lors de la Jaquette remplie :

$$A_J = A_{JT} \quad (\text{M.14})$$

$$\frac{dT_J}{dt} = \frac{W_e(T_e - T_J)}{V_{JT} \rho_e} + \frac{Q_J}{V_{JT} C_{p_e} \rho_e} \quad (\text{M.43})$$

Régulation

Transmetteur

$$P_T = P_2 + (T - T_2)K_T \quad (\text{M.44})$$

Régulateurs PID₁

$$P_{r1} = P_{r01} + K_{p1}(P_{c1} - P_{T1}) + K_{I1} \int_t^{t+1} (P_{c1} - P_{T1}) . dt + \frac{1}{K_{d1}} \frac{d}{dt} (P_{c1} - P_{T1}) \quad (\text{M.45})$$

Régulateur PID₂

$$P_{r2} = P_{r02} + K_{p2}(P_{sp} - P_{mes}) + K_{I2} \int_t^{t+1} (P_{sp} - P_{mes}) . dt + \frac{1}{K_{d2}} \frac{d}{dt} (P_{sp} - P_{mes}) \quad (\text{M.46})$$

Notons, à la fin que le modèle proposé est de type fondamental, dynamique et à paramètres concentrés. Le modèle sera amélioré et progressivement ajusté de manière à se rendre compte de l'unité pilote et , plus tard de l'unité industrielle .

IV.4 Organisation des équations:

Un aspect important de la modélisation est l'arrangement des équations .Il a été trouvé par expérience que si les équations sont arrangées en une séquence logique, le modèle d'ordre est stable, cette séquence est appelée ' l'ordre naturel '.

Pour cela, on a représenté les différentes opérations dans des diagrammes de courants, voir figures (5-2, 5-3, 5-4 , 5-5, 5-6, 5-7, 5-8 et 5-9). Cette approche du diagramme est utile pour les buts de l'organisation et l'illustration des équations et leurs variables .

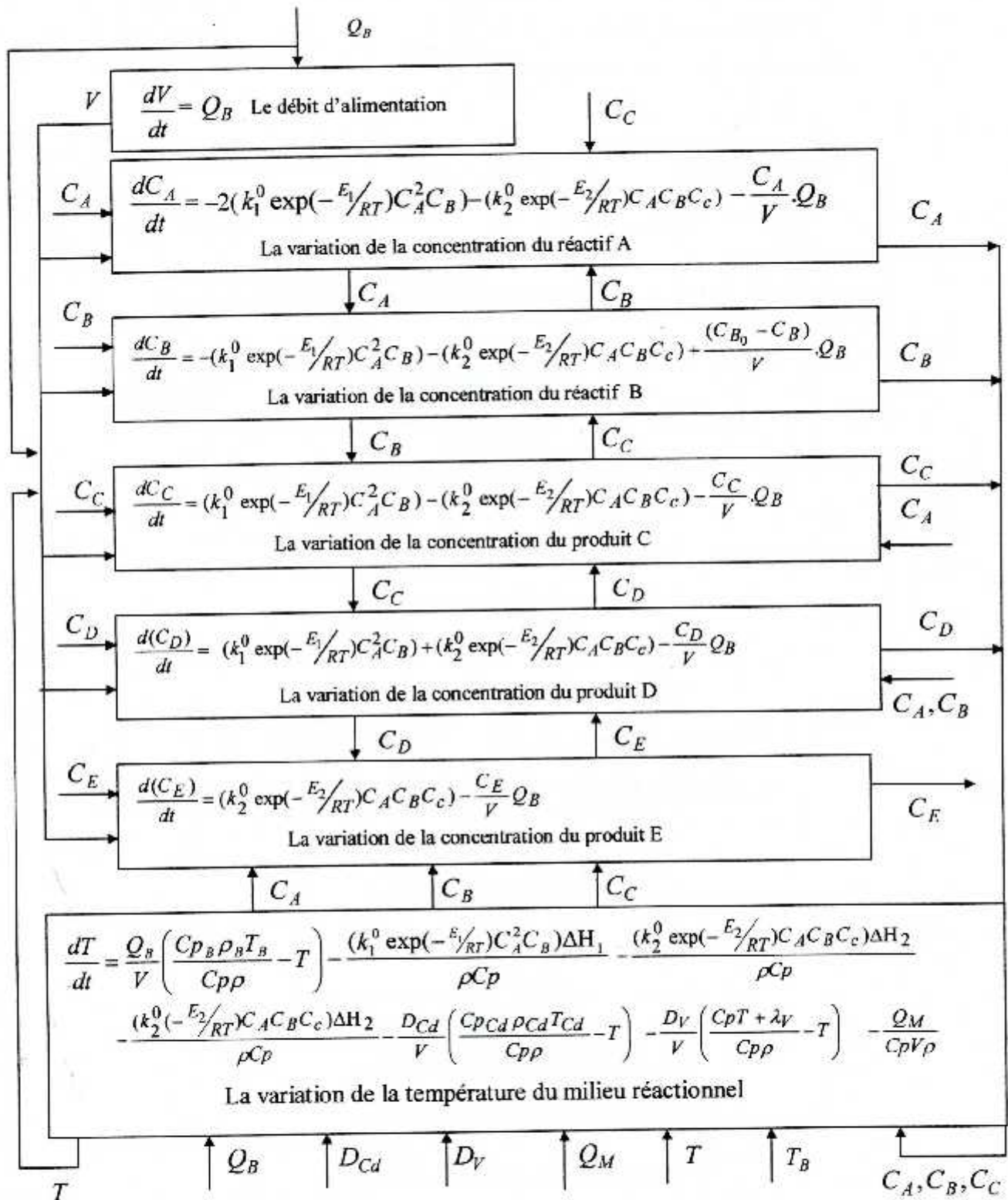


Fig 4-2 : Diagramme de courants pour le réacteur

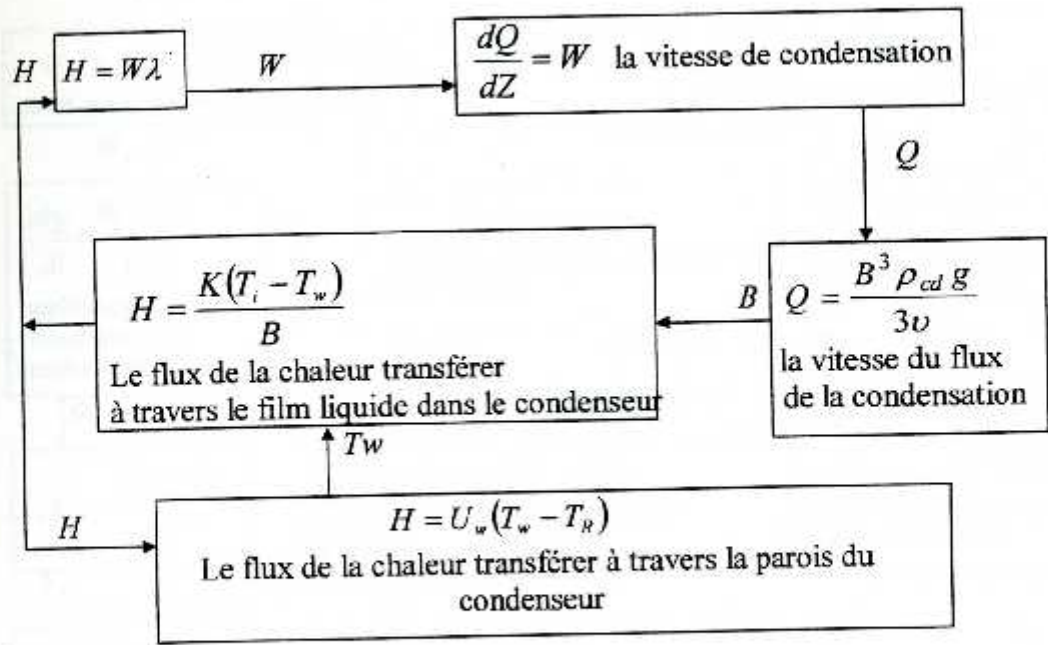


Fig 4-3: diagramme de courants du modèle de condensation

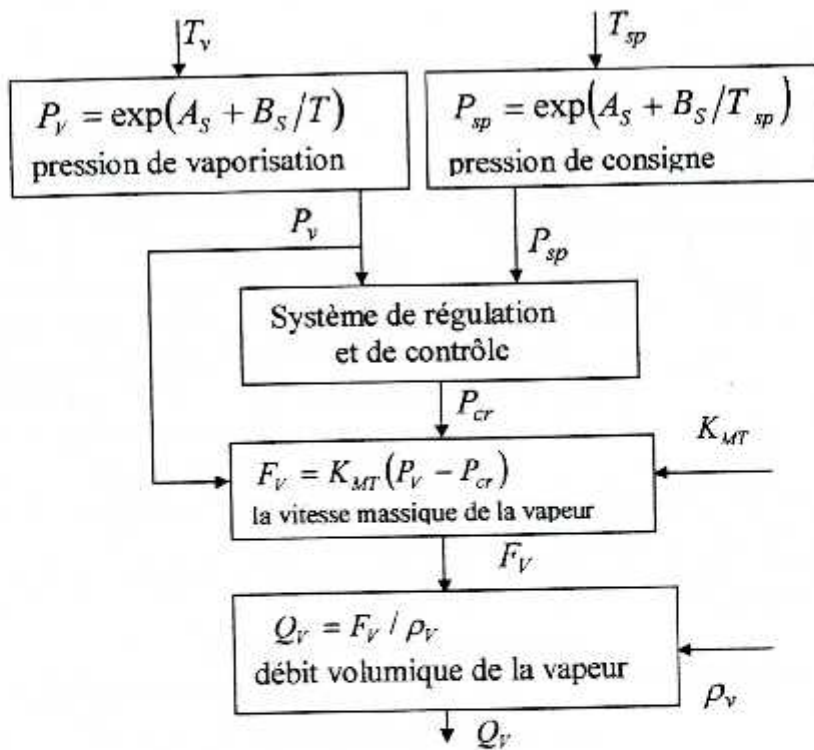


Fig4-4: diagramme de courants du modèle de vaporisation

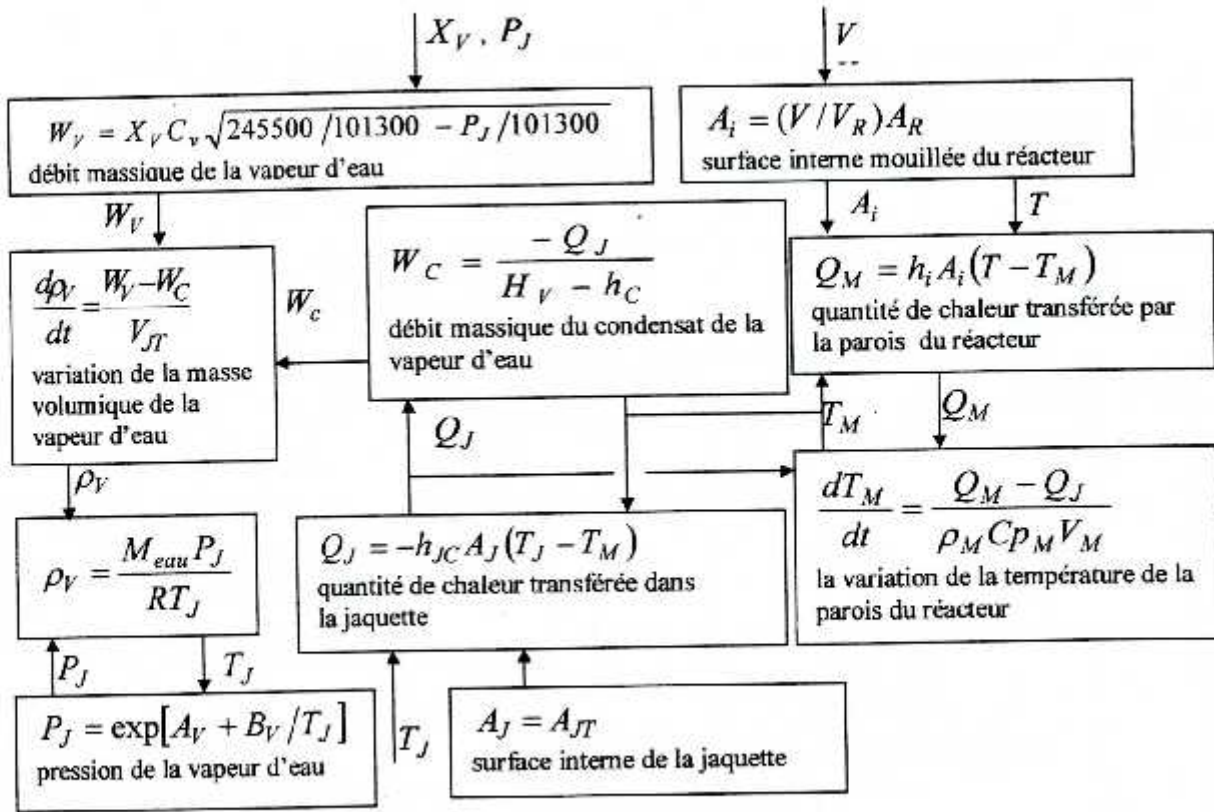


Fig4-5 : Diagramme de courants de l'opération du Chauffage.

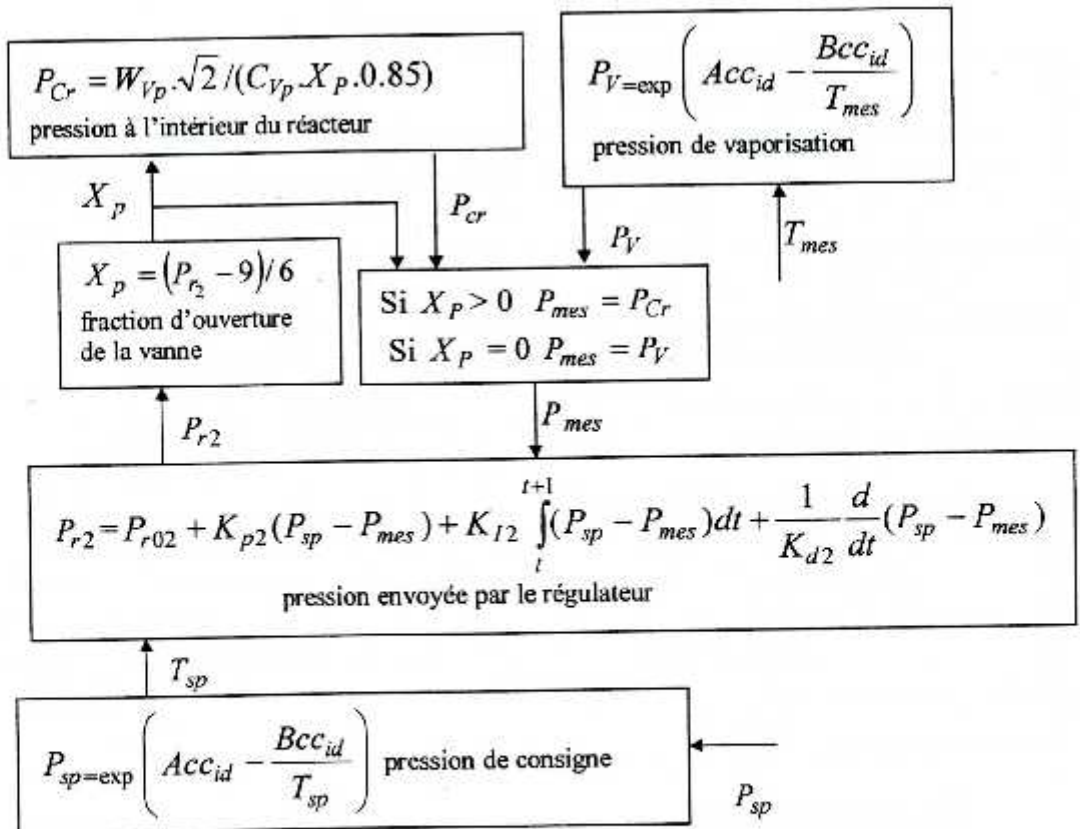


Fig 4-6 : Diagramme de courants, Commande action sur la pression

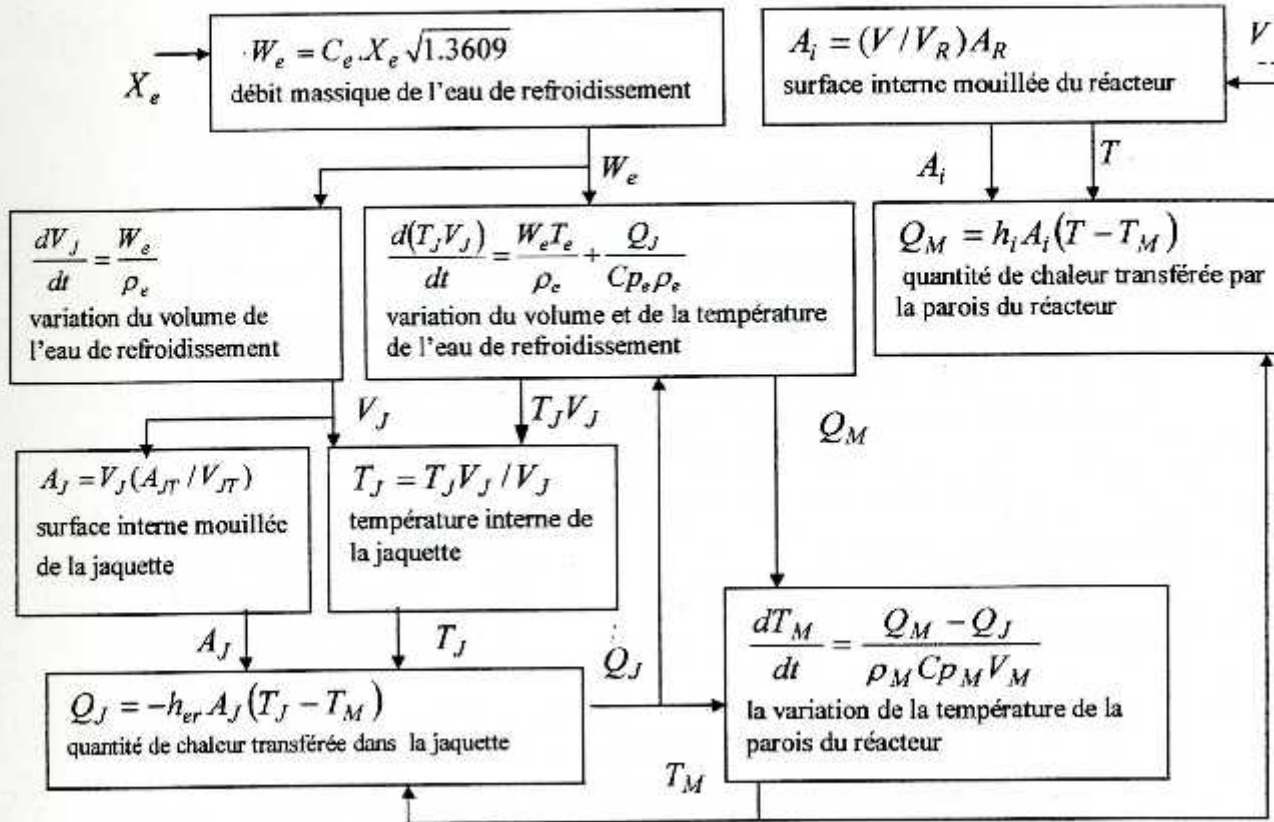


Fig4-7 : Diagramme de courants de l'opération du refroidissement , le cas de la jaquette non remplie.

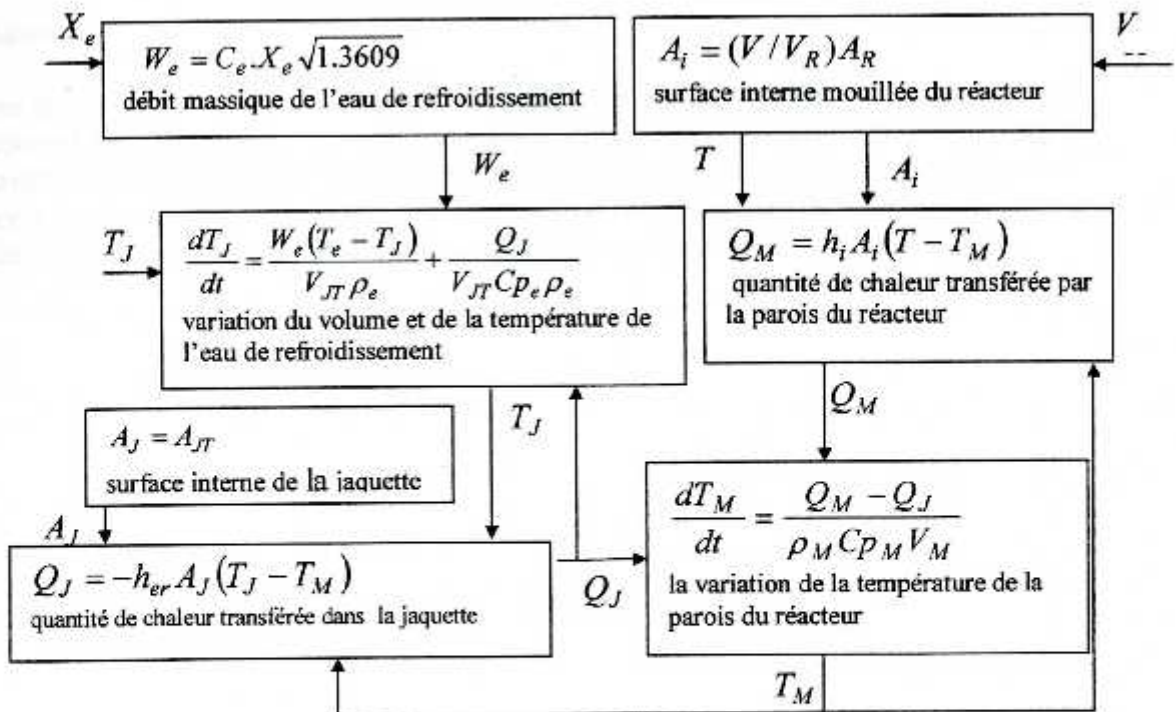


Fig 4-8 : Diagramme de courants de l'opération du refroidissement, le cas de la jaquette remplie.

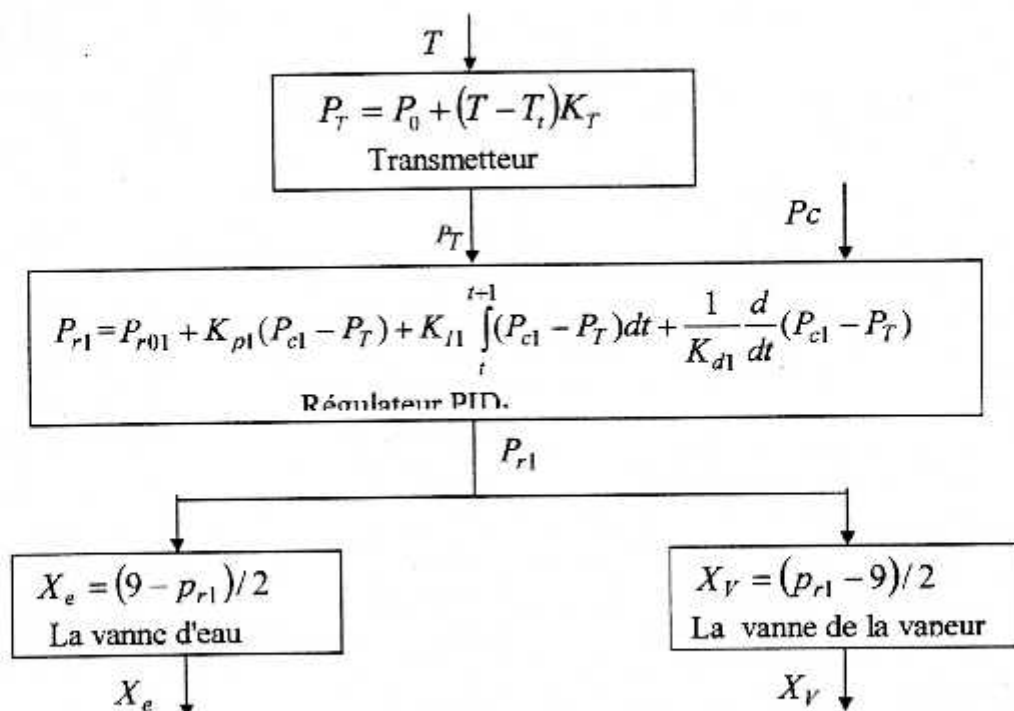


Fig 4-9:diagramme de courants de la commande des vannes

Conclusion:

Nous avons présenté dans ce chapitre une méthodologie de modélisation d'un réacteur semi-continu dans lequel une réaction de synthèse d'un produit chimique des mise en œuvre, cette modélisation est complétée par des digrammes de courant des différentes opérations. La conception de ce modèle, est une représentation du système réel, dans le but, d'analyser et de prédire le comportement du réacteur dans différentes situations.

Chapitre V

Introduction

La simulation

Avantages des programmes

Exemples de programmes

Particularités des programmes

Particularités des programmes

Particularités des programmes

La simulation

La simulation

La simulation

La simulation

La simulation

La simulation de la conduite du réacteur

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

Table des matières

CHAPITRE V

SIMULATION DE LA CONDUITE DU REACTEUR

Introduction

La simulation est une technique qui permet de visualiser le comportement d'un système, évaluer ses performances dans des conditions prédéterminées, étudier et optimiser son fonctionnement dans diverses situations.

Parmi ses avantages, on distingue, la minimisation de l'effort expérimental souvent coûteux et parfois inadéquat, tout en évitant le mauvais fonctionnement et les risques encourus (tels que l'inflammation, l'explosion etc..).

Le but de ce chapitre est d'étudier le fonctionnement de notre système (réacteur et chaîne de régulation) dans diverses situations afin d'optimiser le rendement en produit désiré 'C' et ainsi, permettre la sélectivité tout en évitant l'emballement de la température. Par cet effet, il faut résoudre numériquement les équations du modèle mathématique, obtenu dans le chapitre précédent.

La résolution numérique du système d'équations d'une description mathématique constitue le plus souvent un problème d'élaboration d'un algorithme de simulation.

V.1 Algorithmes de simulation

Dans les cas les plus simples, il est possible de résoudre analytiquement les systèmes d'équations. Lorsque le système est complexe, il est essentiel de construire un algorithme de simulation. Pour cela on a représenté les différentes opérations de chauffage, refroidissements (par le fluide caloporteur et par action sur la pression) et les conditions de marche du système sur un organigramme principale (fig. 6-1) et des organigrammes détaillés illustrés sur les figures (5-2, 5-3, 5-4 et 5-5)

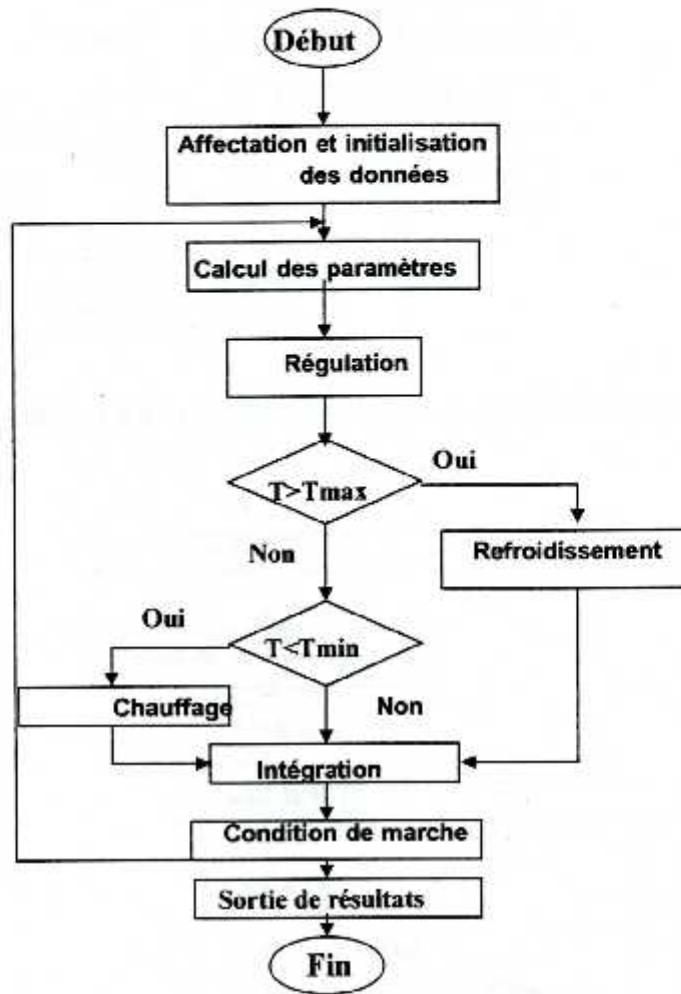


Figure 5-1 : Organigramme principale

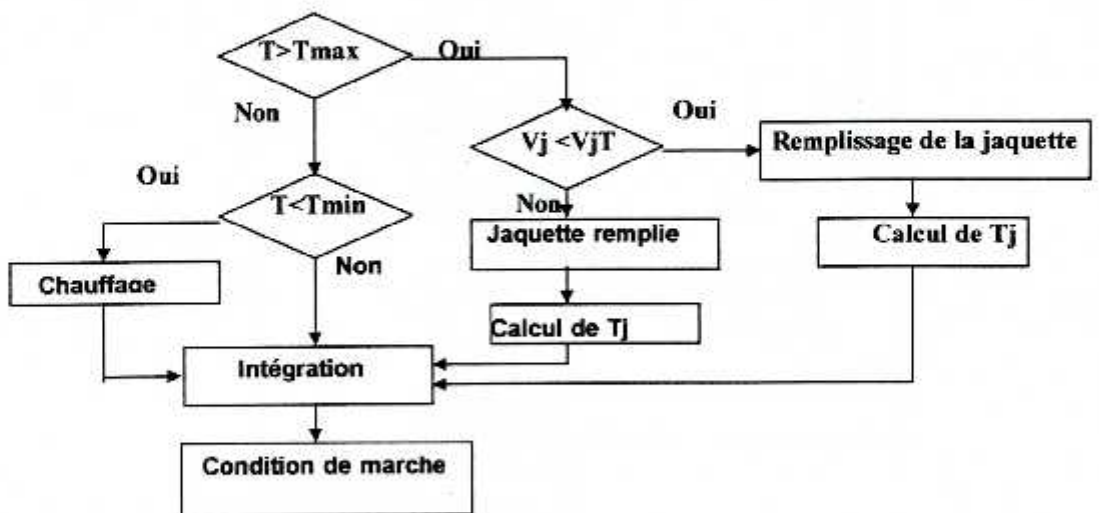


Figure 5-2 : Organigramme du refroidissement par jaquette

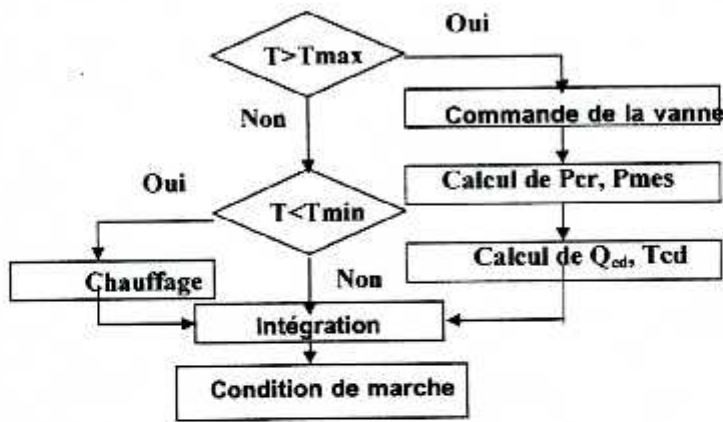


Figure 5-3: Organigramme du refroidissement, par action sur la pression

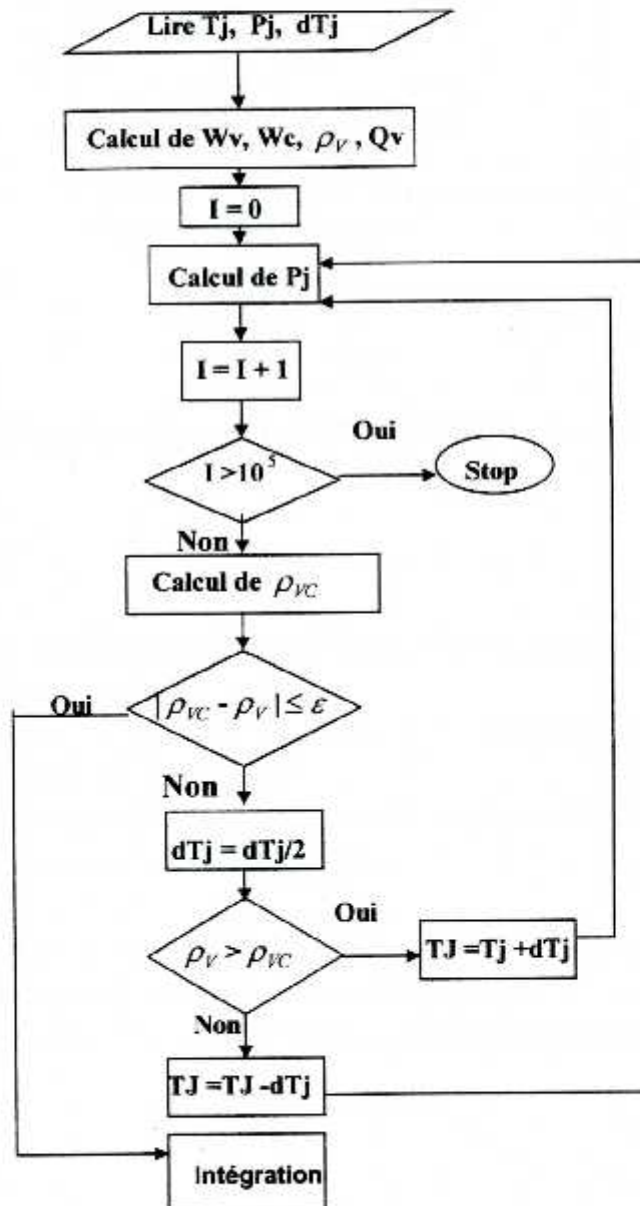


Figure 5-4: Organigramme du chauffage

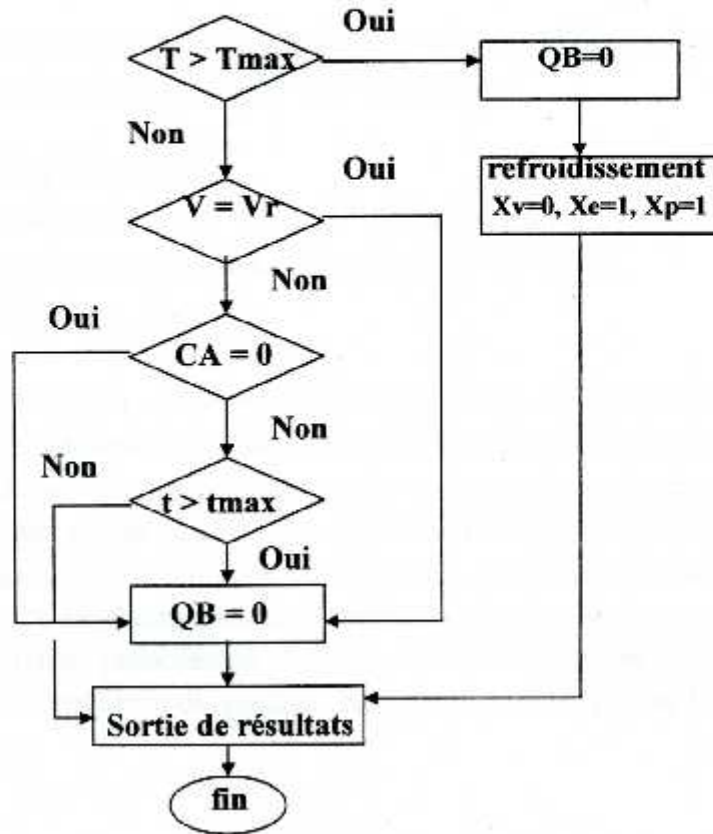


Figure 5-5: Organigramme des conditions de marche du système

V.2 Résolutions

Pour obtenir une solution au problème de la simulation, il est indispensable de faire des calculs à partir d'une solution analytique ou numérique.

A cause de la complexité et non-linéarité de problèmes de la simulation du processus, la plupart des solutions exigent le calcul numérique.

La résolution des équations différentielles de notre modèle est accomplie avec les méthodes numériques de *Runge-kutta*, et d'*Euler* couramment utilisées.

Afin d'obtenir des résultats concrets pour les différentes opérations, nous avons intégré le modèle résolu dans un programme informatique, écrit en langage fortran (voir annexe 4), suivant les diagrammes de courants et les organigrammes décrits précédemment.

V.3 La simulation

Pour vérifier la bonne marche du système de régulation de la température, on suivra à chaque fois l'évolution, en fonction du temps, des paramètres suivants:

- La températures ' T ' du mélange réactionnel,
- les concentrations des constituants A , B , C , D et E : (C_A, C_B, C_C, C_D et C_E),
- le rendement du produit ' C ' par rapport au réactif introduit ' B ' : ($R_{C/B}$),
- Le taux de conversion du réactif A : (X_A).

Le travail effectué consiste à simuler, en premier lieu un réacteur pilote décrit au chapitre précédant, puis celle d'une unité industrielle. Le premier point de départ de la simulation, est de valider les résultats obtenus par nos programmes, en les comparant avec ceux obtenus d'une étude antérieure[45]. Nous serons appelés par la suite, à étudier l'influence de la mauvaise évacuation de la chaleur sur la température du milieu, l'inconvénient du système fermé dans le cas de ses réactions exothermiques sans oublier la comparaison entre les deux systèmes de refroidissement indiqués précédemment. Enfin, on termine par une étude sur un réacteur industriel et de suivi de l'influence de quelques paramètres opératoires sur la stabilité thermique et sur la productivité.

V.3.1 Validation des résultats préliminaires

Pour faire une comparaison entre les résultats trouvés, et ceux de la littérature[8], afin d'ajuster les programmes réalisés, il faut disposer des données opératoires similaires à cette dernière. Les conditions opératoires préliminaires, les données cinétique, thermodynamique, physico-chimiques ainsi que d'autres constantes sont regroupées dans le tableau suivant :

Tableau 5.1: Données du problème [47,45]

$A_R (m^2)$	0.047	$V_M (m^3)$	0.19	$C_{pM} (J/gr.°K)$	0.5	$\rho_B (kg/m^3)$	866.7
$A_J (m^2)$	0.047	$V_R (l)$	0.8	$C_{pB} (J/gr.°K)$	1.89	$\rho (kr/m^3)$	866.7
$A_c (m^2)$	0.2	$V_J (m^3)$	0.35	$C_{pe} (J/gr.°K)$	4.18	$\rho_M (kr/m^3)$	8301.7
A_V	15.7	$V_0 (m^3)$	0.375	$C_p (J/gr.°K)$	2.	$\rho_e (kr/m^3)$	997.423
A_S	12.7	$C_{A0} (mol/l)$	7.2	$H_{er} (J/mol)$	375.	$\rho_V (kr/m^3)$	3.14
$B_V (°K)$	-4858	$C_{B0} (mol/l)$	0.003	$H_{ec} (J/mol)$	937.5	$K (W/m °K)$	1.2
$B_S (°K)$	2780	$C_{B0a} (mol/l)$	2.12	$H_V - h_c (J/mol)$	2184.44322	$Q_B (m^3/s)$	0.19E-04
$T_0 (°K)$	373.15	$T_e (°K)$	288.15	$H_i (J/mol)$	150.	$\Delta H_1 (J/mol)$	-95398.608
$T_B (°K)$	373.15	$T_w (°K)$	288.15	$Z (m)$	0.25	$\Delta H_2 (J/mol)$	-84765.392

Résultats et discussions

Afin d'éviter toutes perturbations sur les résultats dus au système de refroidissement-chauffage ou bien au mauvais contrôle de celui-ci, on a maintenu la température à 100 C°, c'est la température optimale d'après[45]. Les résultats obtenus sont représentés sous formes de courbes.

L'évolution des concentration de A et B sont regroupées dans la figure (5-8); celles des concentrations de C, D et E sont illustrées dans la figure (5-9).

Les figures (5-6 et 5-7), donnent respectivement l'évolutions des concentrations des substances A, B et C, D, E de l'étude de la référence[45].

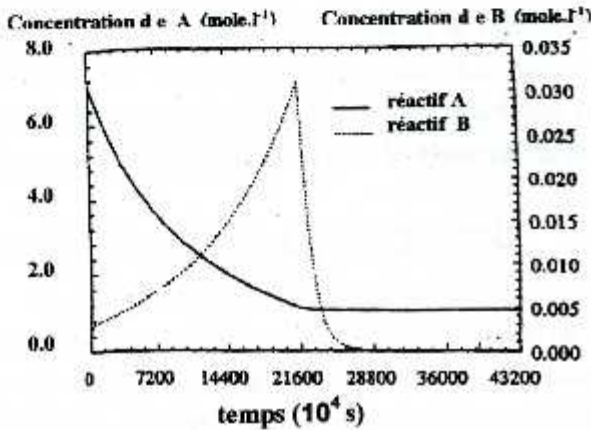


Figure 5-6 : évolutions des concentrations des réactifs. Référence [45]

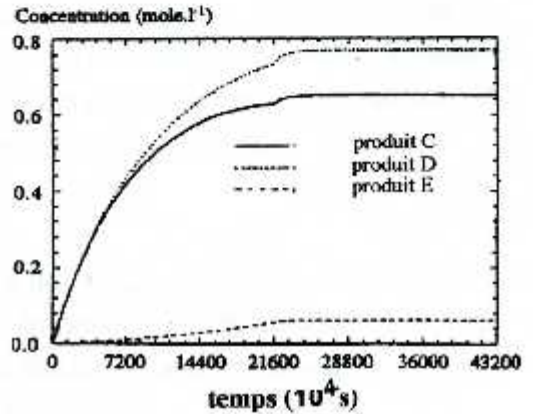


Figure 5-7 : évolutions des concentrations des produits. Référence [45]

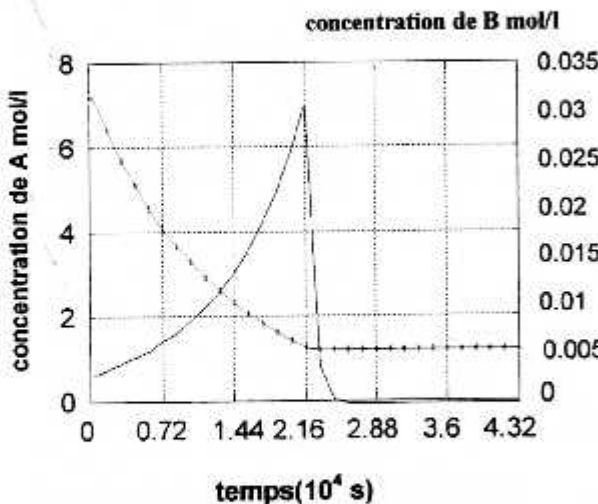


Figure 5-8 : Les évolutions des concentrations des réactifs. Simulation.

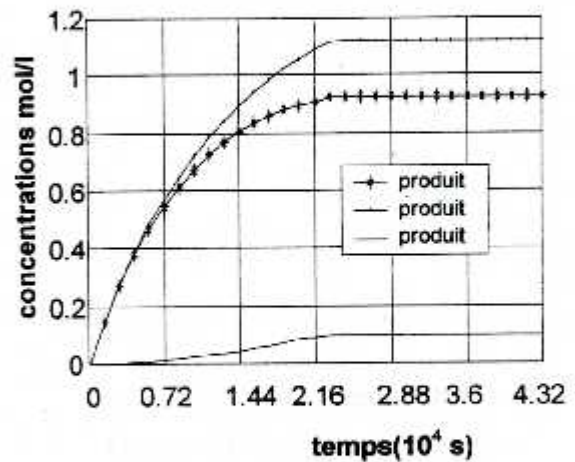


Figure 5-9 : Les évolutions des concentrations des produits. Simulation.

En observant les profils des courbes, on peut facilement remarquer qu'on est arrivé à des résultats relativement identiques avec ceux de la référence[45]. La seule différence est perçue dans les valeurs finales des concentrations des produits (C , D et E) où ces valeurs dans notre simulation atteignent respectivement (1.01 , 0.89 , 0.07 mol/l) mais pour le cas de la référence elles atteignent (0.80 mol/l pour C , 0.70 mol/l pour D et 0.05 mol/l pour E). Cela est dû au manque de quelques détails sur le cas de référence (le volume initial et le débit d'alimentation). Mais on peut dire que ces résultats sont satisfaisants, pour permettre de continuer les autres démarches.

V.3.2 Etude de la stabilité thermique du réacteur

Un réacteur sera instable chaque fois qu'une légère augmentation de la température de fonctionnement produira un accroissement de la vitesse de production de chaleur due à la réaction plus important que celui de la vitesse d'élimination de la chaleur. Il est indispensable de faire une étude sur la stabilité thermique avant toute production, pour voir le danger accompagné lors de la conduite des réactions exothermiques et l'importance dans ce cas, du réacteur semi-continu ainsi que le système du refroidissement bien contrôlé.

V.3.2.1 Utilisation d'un réacteur fermé:

On va par la suite, mélanger les deux réactifs A et B dès le départ, dans le réacteur qui ne comporte pas un système de refroidissement, et voir l'influence sur la stabilité thermique. L'évolution de la température et de la concentration du réactif B dans le réacteur en fonction du temps sont représentées sur les figures (5-10 et 5-11).

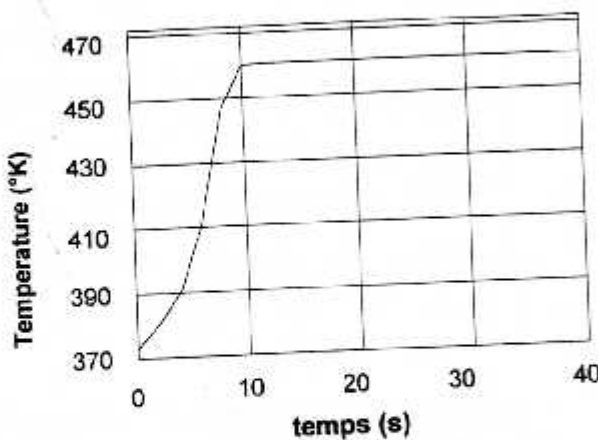


Figure 5-10: évolution de la température du mélange réactionnel en fonction du temps

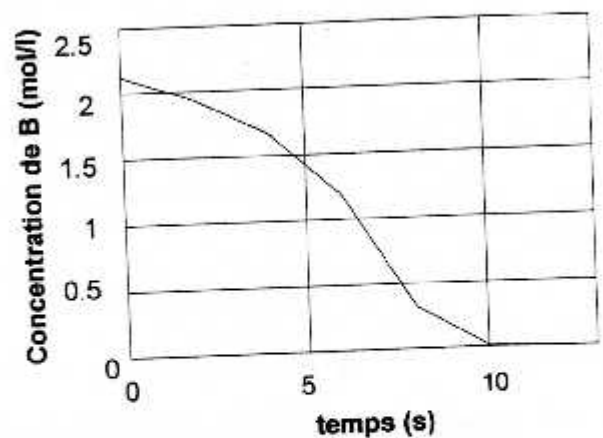


Figure 5-11: profil de concentration de B en fonction du temps

D'après ces figures on remarque clairement, que le réactif *B* réagit totalement dès les 10 premières secondes, avec une augmentation intense de la température qui atteint 187.00°C . On peut conclure, que cette réaction est très rapide, elle dégage une très grande quantité de chaleur indésirable. L'évacuation de l'excès de cette chaleur, et stabiliser la température à une valeur donnée avec une grande réponse deviennent irréalisables dans ce type de réacteur.

Devant cette grande vitesse de la consommation du réactif *B*, il faut utiliser un réacteur semi-continu, dans le quel on peut contrôler facilement le déroulement de la réaction, par le réglage du débit d'alimentation.

V.3.2.2 Influence du mauvais contrôle de la chaleur sur la stabilité thermique:

Pour faire cette étude, on a imaginé un réacteur semi-continu en marche adiabatique et on se propose de suivre l'évolution de la température du mélange réactionnel en fonction du temps.

Comme première tentative, nous allons choisir une température initiale de 100.00°C pour le mélange réactionnel et pour l'alimentation, ensuite une température de 25.00°C pour l'alimentation, tout en laissant la température initiale du mélange réactionnel à 100.00°C , et voir l'influence de ces changements sur les profils de la température et de la concentration. Les résultats obtenus sont représentés respectivement sur les figures (5-12, 5-13, 5-14 et 5-15)

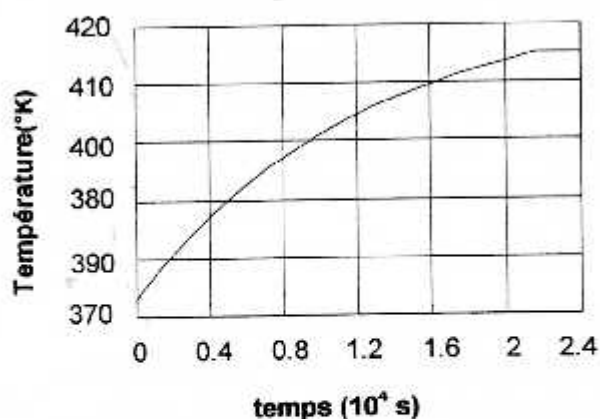


Figure 5-12: L'évolution de la température dans le réacteur en fonction du temps.
 $T_0, T_B=100^{\circ}\text{C}$

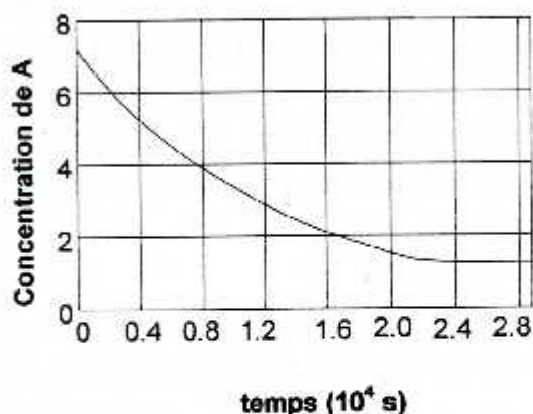


Figure 5-13: L'évolution de concentration du réactif A en fonction du temps.
 $T_0, T_B=100^{\circ}\text{C}$

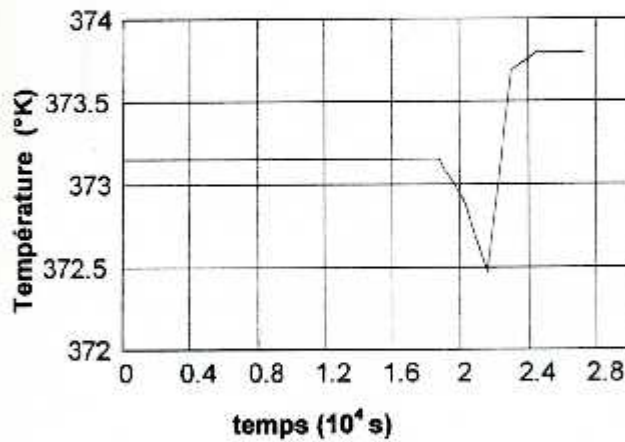


Figure 5-14: L'évolution de la température dans le réacteur en fonction du temps .
 $T_0=100^\circ\text{C}$, $T_B=25^\circ$

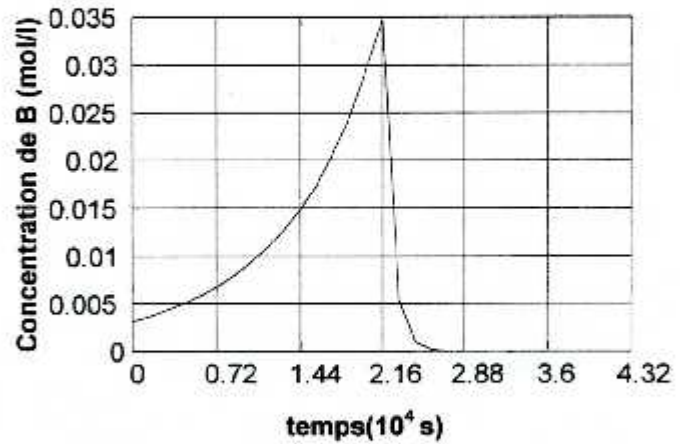


Figure 5-15: L'évolution de concentration du réactif B en fonction du temps.
 $T_0=100^\circ\text{C}$, $T_B=25^\circ$

La figure(5-12) montre qu'il y a une augmentation intensive de la température jusqu'à 142.00°C où la réaction est terminée.

Pour le deuxième cas (fig.5-13), avec une température d'alimentation de 25.00°C , on remarque une certaine stabilité de température autour de 100.00°C pendant 18720 s, une chute jusqu'à 99.32°C , puis une augmentation pour devenir stable à une valeur de 100.79°C après 25920 s. Les figures (5-14 et 5-15) expliquent bien ce changement de la température. La stabilité thermique (fig.5-14) à une valeur constante est due à l'évacuation de la chaleur produite, par le débit d'alimentation d'une basse température, la diminution est une conséquence de la diminution de la concentration du réactif A et l'augmentation grâce à la fermeture de la vanne d'alimentation (la source froide) avec toujours le déroulement de la réaction.

A titre de conclusion on peut dire que, dans ces conditions d'opération, l'alimentation froide a réglé le problème de l'augmentation progressive de la température dans le réacteur semi-continu, sans utilisation d'un système de refroidissement.

On augmente par suite la concentration d'alimentation en réactif B de 2.12 mol/l à différentes valeurs de concentration (03 mol/, 03.5 mol/ et 04 mol/l). Les résultats obtenus avec les nouvelles valeurs de la concentration de l'alimentation en réactif B sont représentés respectivement par les figures (5-16, 5-18, 5-20) pour les variations de la température et par les figures (5-17, 5-19, 5-21) pour les variations des concentrations du réactif B dans le mélange réactionnel en fonction du temps .

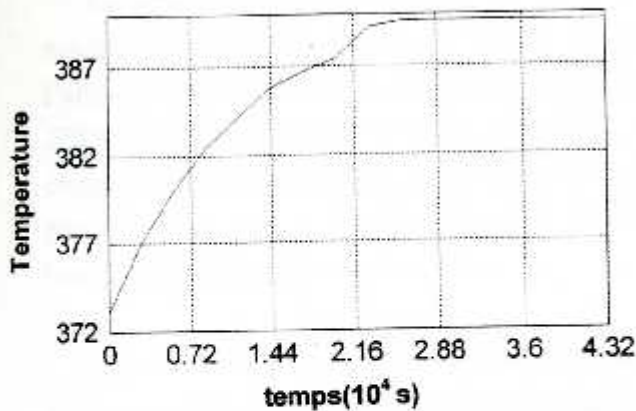


Figure 5-16 : L'évolution de la température dans le réacteur en fonction du temps .
 $T_0=100^{\circ}\text{C}$, $T_B =25^{\circ}$, $C_B=3 \text{ mol/l}$

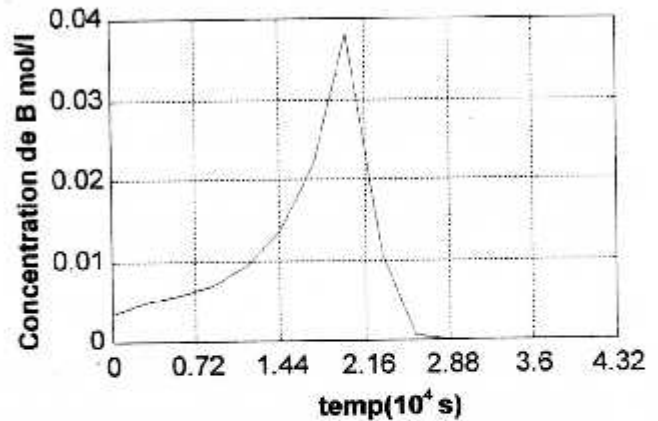


Figure 5-17: L'évolution de la concentration de B dans le réacteur en fonction du temps .
 $T_0=100^{\circ}\text{C}$, $T_B =25^{\circ}$, $C_B=3 \text{ mol/l}$

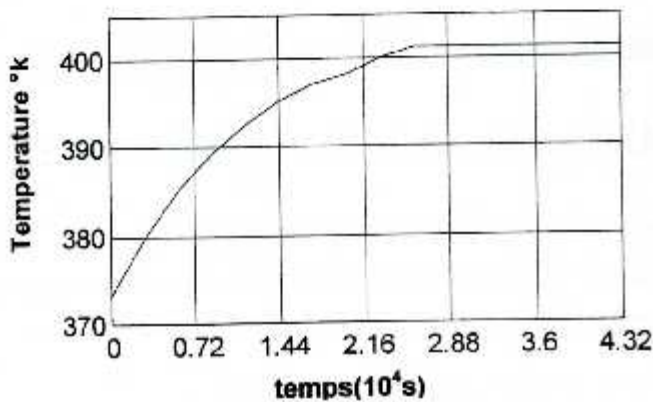


Figure 5-18 : L'évolution de la température dans le réacteur en fonction du temps .
 $T_0=100^{\circ}\text{C}$, $T_B =25^{\circ}$, $C_B=3.5 \text{ mol/l}$

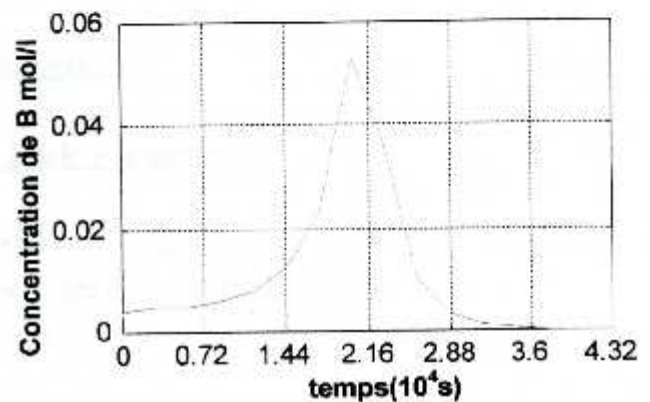


Figure 5-19 : L'évolution de la concentration de B dans le réacteur en fonction du temps .
 $T_0=100^{\circ}\text{C}$, $T_B =25^{\circ}$, $C_B=3.5 \text{ mol/l}$

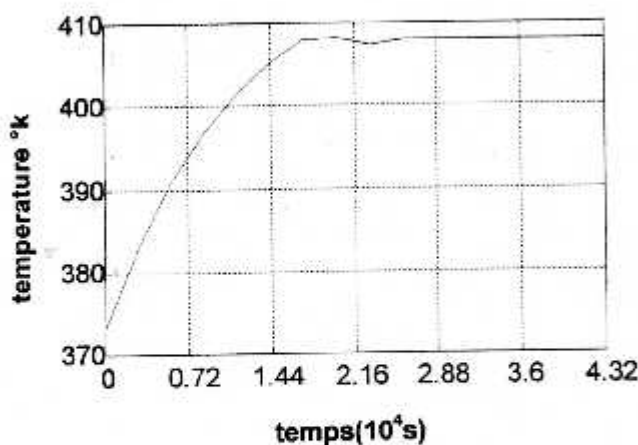


Figure 5-20 : L'évolution de la température dans le réacteur en fonction du temps .
 $T_0=100^{\circ}\text{C}$, $T_B =25^{\circ}$, $C_B=4 \text{ mol/l}$

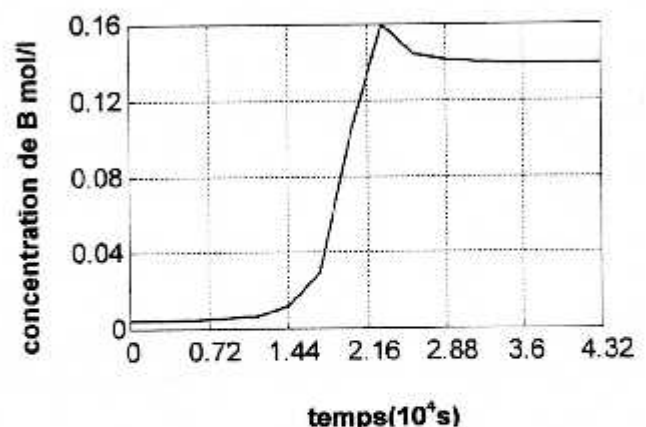


Figure 5-21 : L'évolution de la concentration de B dans le réacteur en fonction du temps .
 $T_0=100^{\circ}\text{C}$, $T_B =25^{\circ}$, $C_B=4 \text{ mol/l}$

On remarque d'après les figures (5-16, 5-18 et 5-20) que la température augmente d'une manière intensive et atteint une valeur maximum suivant la valeur de la concentration de l'alimentation en réactif B. La température du mélange réactionnel atteint 118°C, 231°C et 235°C respectivement pour les valeurs des concentrations : 3 mol/l, 3.5 mol/l et 4 mol/l. On constate que l'augmentation de la concentration du réactif B a influencé la quantité de chaleur produite lors de la réaction d'où la basse température d'alimentation (25°C) devient insuffisante pour refroidir le milieu.

En conclusion, la vitesse de refroidissement par l'alimentation froide est devenue très faible par rapport à la vitesse d'augmentation de la température lors de l'utilisation d'une concentration très grande en réactif B, le système de refroidissement est donc indispensable, dans les réactions rapides et très exothermiques afin d'éviter cette augmentation intense de la température.

V.3.3 Comparaison entre deux système de refroidissement :

V.3.3.1 L'utilisation du refroidissement par le fluide caloporteur:

On se propose d'utiliser le refroidissement du mélange réactionnel, par l'eau froide à travers la jaquette, et suivre l'évolution de la température en fonction du temps. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure (5-22)

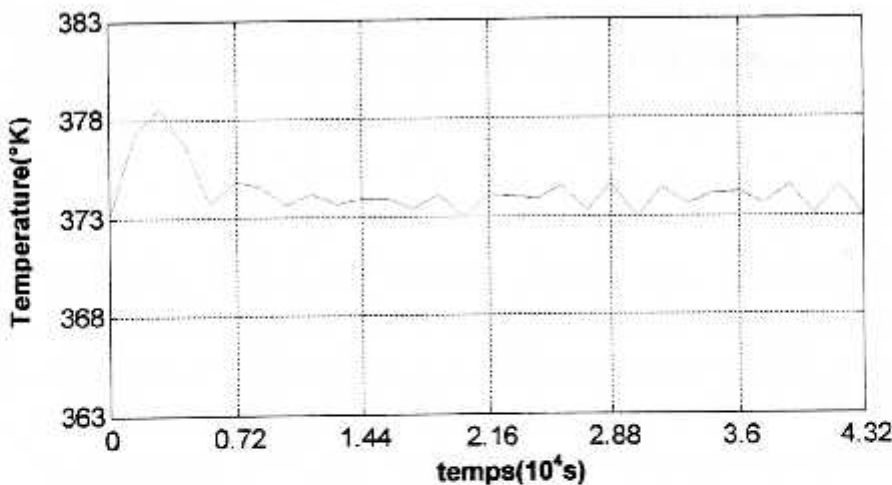
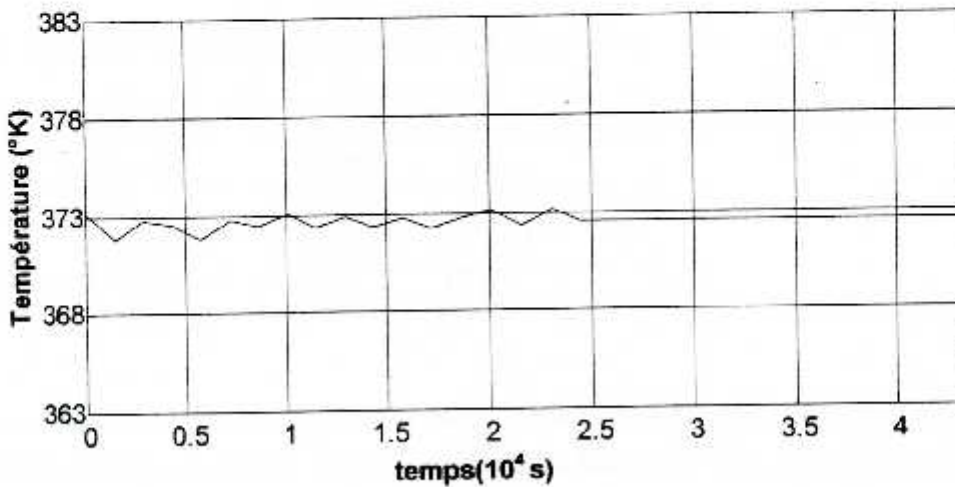


Figure 5-22: Variation de la température en fonction du temps .
Refroidissement par le fluide caloporteur.

Cette figure montre qu'il y a une déstabilisation de la température au début de la réaction, la température atteint 105.49 °C, puis une certaine stabilité jusqu'à la fin de l'opération.

V.3.3.2 Refroidissement par action sur la pression:

Dans ce cas, on utilise le refroidissement par le reflux de la vapeur du solvant condensée, dans le réacteur au lieu d'utiliser la jaquette, pour arriver aux résultats illustrés sur la figure (5-23).



**Figure 5-23: Variation de la température en fonction du temps .
Refroidissement par reflux.**

D'après la figure 5-23, on remarque une certaine stabilité de la température, au tour de 100°C, ce qui fait que le système de refroidissement et de contrôle, a réussi d'atteindre les objectifs visés.

Conclusion:

Il est bien clair, d'après les résultats obtenus que l'utilisation du système de refroidissement par reflux donne une stabilité de température autour de la température opératoire, mieux que, lors d'utilisation du refroidissement par le fluide caloporteur. Dans le premier système on remarque d'après la figure (5-23), une variation de température ($\Delta T = \pm 1^\circ\text{C}$) autour de 100°C puis atteindre une valeur constante (100°C) après 2500 S jusqu'à la fin de l'opération, mais dans le deuxième système la température augmente jusqu'à 105°C au début de l'opération puis varie avec une valeur de (+2 °C) autour de 100°C jusqu'à la fin de l'opération. Pour cela il est préférable d'appliquer le refroidissement par reflux au niveau industriel, surtout avec des réactions très rapides et fortement exothermiques.

V.3.4 Application industrielle:

La simulation d'un réacteur industriel, nous a conduit à étudier en premier lieu sa stabilité thermique, puis à la recherche des conditions opératoires optimales.

Les nouvelles données opératoires spécifiques à cette échelle, sont regroupées dans le tableau 5-2:

Tableau 5.2: Données spécifiques au réacteur industriel [45]

$A_R (m^2)$	18.3	$V_M (m^3)$	0.267
$A_J (m^2)$	18.6	$V_R (m^3)$	8.
$A_c (m^2)$	15.	$V_J (m^3)$	3.5
$Q_B (m^3/s)$	0.205	$V_0 (m^3)$	3.75
$T_w (°K)$	258.15	$Z(m)$	2.4

L'évolution des concentrations des produits et des réactifs, ainsi que le rendement en produit 'C' par rapport au réactif 'B' sont illustrés sur les figures (5-24, 5-25, 5-26, et 5-27).

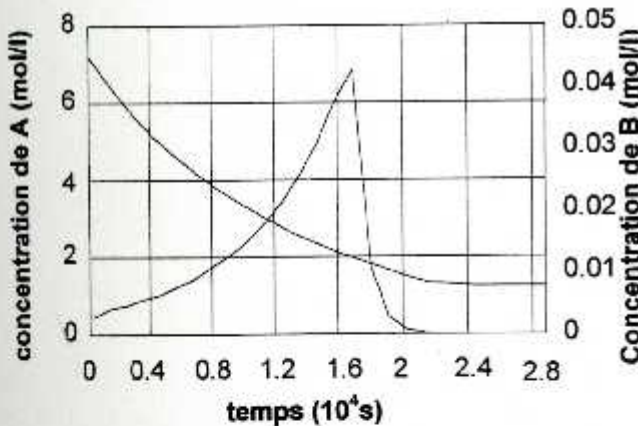


Figure 5-24: L'évolutions des concentrations des réactifs en fonction du temps

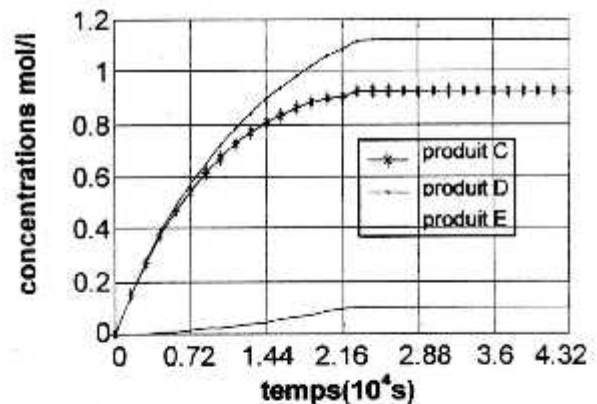


Figure 5-25: L'évolutions des concentrations des produits en fonction de la température.

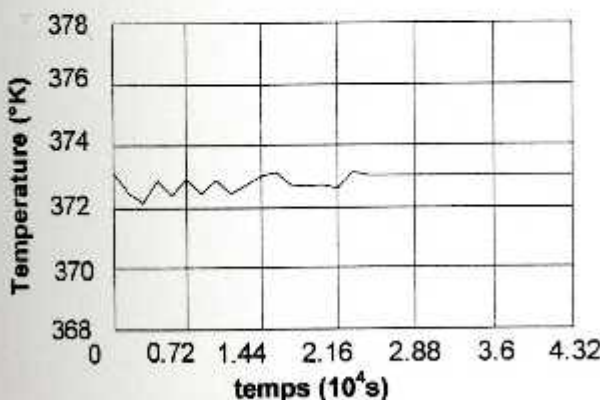


Figure 5-26: L'évolution de la température du mélange réactionnel en fonction du temps.

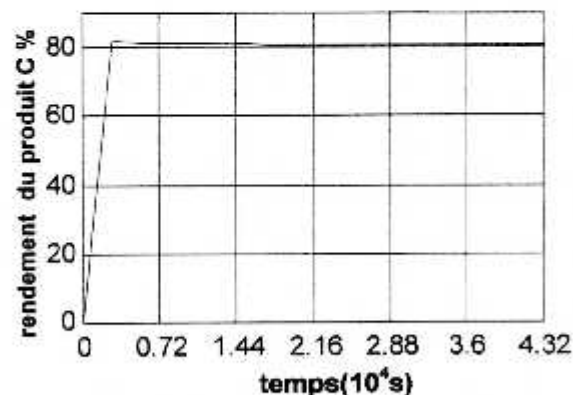


Figure 5-27: L'évolution du rendement en produit en fonction du temps.

D'après ces figures, la première remarque qu'il faut la prendre en considération est que le réacteur a subi une bonne stabilité thermique, la température du milieu réactionnel prend des valeurs autour de la température opératoire 100°C jusqu'à une stabilité totale après 24480 s, la fin de la réaction. On remarque aussi que le produit désiré C a atteint une concentration de 0.95 mol/l , avec un rendement de 80 %. Le réactif B est totalement consommé à la fin de la réaction tant que le réactif 'A' a atteint un taux de conversion de 66%. Ces résultats qui semblent acceptables nous ont permis d'optimiser le fonctionnement de ce réacteur, afin d'augmenter le rendement en produit demandé et éviter l'emballement thermique, c'est l'objet du suivant chapitre.

Chapitre VI

**Optimisation du fonctionnement
du réacteur industriel**

CHAPITRE VI**OPTIMISATION DU FONCTIONNEMENT DU REACTEUR INDUSTRIEL****Introduction**

On applique la méthode des plans d'expériences pour optimiser le fonctionnement du réacteur industriel, et étudier les effets des différents facteurs (paramètres) sur le rendement en produit 'C' par rapport au réactif 'B'.

Les facteurs choisis sont:

- la température du milieu réactionnel T en °K (facteur 1);
- le rapport entre la concentration initial du réactif A et la concentration d'alimentation en réactif B (facteur 2);
- le volume initial de la solution en réactif 'A' (facteur 3).

VI.1- Plans factoriels

Il s'agit de plans pour lesquels chacun des facteurs a pris deux niveaux.

Le plan réalisé est un 2^3 , trois facteurs et deux niveaux par facteur. Ce plan totalise $2^3 = 8$ essais.

Pour chacun des trois paramètres, on a choisi deux valeurs. Les valeurs choisis sont représenté dans le tableau suivant :

Tableau 6.2 : Les valeur des facteurs choisis:

	T	C_A / C_B	V0
Niveau haut	105°C	4	$\frac{3}{4} V_T$
Niveau bas	95°C	$\frac{1}{4}$	$\frac{1}{4} V_T$

VI.1.1 Matrice des effets

Pour calculer les effets de chacun des facteurs, on construit la matrice de calcul des effets (tableau 6.1) selon les règles que nous avons données au chapitre IV.

Tableau 6.2: Matrice des effets

Numéro De l'essais	Moyenne	Facteur 1	Facteur 2	Facteur 3	Interaction 12	Interaction 13	Interaction 23	Interaction 123	Rendement
1	+	-	-	-	+	+	+	-	49.83
2	+	+	-	-	-	-	+	+	48.69
3	+	-	+	-	-	+	-	+	49.74
4	+	+	+	-	+	-	-	-	48.98
5	+	-	-	+	+	-	-	+	54.75
6	+	+	-	+	-	+	-	-	50.82
7	+	-	+	+	-	-	+	-	97.09
8	+	+	+	+	+	+	+	+	97.60
Effets et interaction	62.1875	-0.665	11.165	12.8775	0.6025	-0.19	11.115	0.5075	
niveau -	95	1/4 V_T	1/4						
niveau +	105	3/4 V_T	4						

Le modèle mathématique adopté a priori est un polynôme tenant compte de la moyenne, les effets de chaque facteur et toutes les interactions entre les facteurs.

$$y = 62.1875 - 0.665x_1 + 11.165x_2 + 12.8775x_3 + 0.6025x_1x_2 - 0.19x_1x_3 + 11.115x_2x_3 + 0.5075x_1x_2x_3 \quad (6.1)$$

L'interprétation pourrait être la suivante, le facteur 1 et ses interactions avec les autres facteurs ont des effets négligeables devant les autres effets, ils sont considérés comme sans influences. Les deux autres facteurs et l'interaction entre eux ne peuvent pas être négligées.

Cette analyse permet de faire les recommandations suivantes, sachant que l'on cherche une grande valeur du rendement.

- 1) Il faut utiliser un grand rapport de concentration entre A et B.
- 2) Il est conseillé de prendre un grand volume initial, sans oublier que la grande quantité de volume initial avec un temps d'opération donné, va nous permettre d'utiliser une grande valeur du débit d'alimentation.

Par suite, avant de donner les recommandations convenables, pour résoudre le problème d'optimum sur le polynôme, on va appliquer la méthode de la programmation mathématique.

VII.1.2 Résolution du problème d'optimum:

Le problème à résoudre est le suivant :

Trouver le maximum de y sur le cube $-1 \leq x_i \leq +1$.

On peut résoudre ce problème par les méthodes classiques de la programmation mathématique, relatives à la recherche du maximum d'une fonction continue sur un ensemble assez régulier (en particulier fermé borné), comme le cube.

Schéma général de résolution :

. **Existence** : La fonction y étant continue sur un compact (fermé borné), elle y est bornée et elle atteint ses bornes; i.e. la solution existe.

. **Recherche du max.** : Deux cas se présentent :

- Le max. est atteint sur la frontière ($x_i = \pm 1$);
- Le max. est atteint à l'intérieur du cube : dans ce cas, le gradient de y s'annule.

→ Alors, Le maximum sera la plus grande valeur entre le maximum sur la frontière et, en cas d'existence, les maximums relatifs à l'intérieur (les zéros du gradient).

On applique le schéma général à (7.1) :

- L'existence est assurée par la continuité de y , et la compacité du domaine associé.

$$\overline{\text{grad}} . y = \begin{pmatrix} -0.665 + 0.6025.x_2 - 0.19.x_3 + 0.5075.x_2.x_3 \\ 11.165 + 0.6025.x_1 + 0.5075.x_1.x_3 + 11.115.x_3 \\ 12.8775 - 0.19.x_1 + 0.5075.x_1.x_2 + 11.115.x_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\partial y}{\partial x_1} \\ \frac{\partial y}{\partial x_2} \\ \frac{\partial y}{\partial x_3} \end{pmatrix} .$$

On fait le changement de variables :

$$\begin{cases} X_1 = x_1 + 21.9015 \\ X_2 = x_2 - 0.3744 \\ X_3 = x_3 + 1.1872 \end{cases}$$

$$\overline{\text{grad}} . y = 0 \Leftrightarrow \begin{cases} X_2 . X_3 = 0.8659 \\ X_1 . X_3 = 4.0015 \\ X_1 . X_2 = -4.6776 \end{cases}$$

Ce système n'admet pas de solutions vérifiant : $-1 \leq x_i \leq +1$;

Alors, $\overline{\text{grad}} . y \neq 0$, donc, le maximum est atteint sur la frontière.

Etude de y sur la frontière :

1^{er} cas : $x_1 = +1$

y devient : $y = 61.5225 + 11.7675 . x_2 + 12.6875 . x_3 + 11.6225 . x_2 . x_3$.

On applique le schéma général pour max. y sur l'ensemble : $-1 \leq x_2, x_3 \leq +1$.

$$\overline{\text{grad}} . y = \begin{pmatrix} 11.7675 + 11.6225 . x_3 \\ 12.6875 + 11.6225 . x_2 \end{pmatrix} \neq 0 \text{ pour } -1 \leq x_2, x_3 \leq +1.$$

Alors le maximum est atteint sur la frontière.

$$\begin{aligned} \{x_1 = +1, x_2 = +1\} &\rightarrow m_1 = 97.60 \\ \{x_1 = +1, x_2 = -1\} &\rightarrow m_2 = 50.82 \\ \{x_1 = +1, x_3 = +1\} &\rightarrow m_3 = 97.60 \\ \{x_1 = +1, x_3 = -1\} &\rightarrow m_4 = 48.98 \end{aligned}$$

On obtient : $M_1 = 97.60$ pour : $x_1 = x_2 = x_3 = +1$

2^{ème} cas : $x_1 = -1$

y devient : $y = 62.8525 + 10.5625.x_2 + 13.0675.x_3 - 11.6225.x_2.x_3$.

On applique le schéma général pour max. y sur l'ensemble : $-1 \leq x_2, x_3 \leq +1$.

$$\overline{\text{grad}} . y = \begin{pmatrix} 10.5625 - 11.6225.x_3 \\ 13.0675 - 11.6225.x_2 \end{pmatrix} \neq 0 \text{ pour } -1 \leq x_2, x_3 \leq +1.$$

Alors le maximum est atteint sur la frontière.

$$\begin{aligned} \{x_1 = -1, x_2 = +1\} &\rightarrow m_1 = 97.09 \\ \{x_1 = -1, x_2 = -1\} &\rightarrow m_2 = 54.75 \\ \{x_1 = -1, x_3 = +1\} &\rightarrow m_3 = 97.09 \\ \{x_1 = -1, x_3 = -1\} &\rightarrow m_4 = 49.74 \end{aligned}$$

On obtient : $M_2 = 97.09$ pour : $x_1 = -1, x_2 = x_3 = +1$

3^{ème} cas : $x_2 = +1$

y devient : $y = 73.3525 - 0.0625.x_1 + 23.9925.x_3 + 0.3175.x_1.x_3$.

On applique le schéma général pour max. y sur l'ensemble : $-1 \leq x_1, x_3 \leq +1$.

$$\overline{\text{grad}} . y = \begin{pmatrix} -0.0625 + 23.9925.x_3 \\ 12.8775 + 23.9925.x_1 \end{pmatrix} \neq 0 \text{ pour } -1 \leq x_1, x_3 \leq +1.$$

Alors le maximum est atteint sur la frontière.

$$\begin{aligned} \{x_2 = +1, x_3 = +1\} &\rightarrow m_1 = 97.60 \\ \{x_2 = +1, x_3 = -1\} &\rightarrow m_2 = 49.74 \\ \{x_2 = +1, x_1 = +1\} &\rightarrow m_3 = 97.60 \\ \{x_2 = +1, x_1 = -1\} &\rightarrow m_4 = 97.09 \end{aligned}$$

On obtient : $M_3 = 97.60$ pour : $x_1 = x_2 = x_3 = +1$

4^{ème} cas : $x_2 = -1$

y devient : $y = 51.0225 - 1.2675.x_1 + 1.7625.x_3 - 0.6975.x_1.x_3$.

On applique le schéma général pour max. y sur l'ensemble : $-1 \leq x_1, x_3 \leq +1$.

$$\overrightarrow{\text{grad}} . y = \begin{pmatrix} -1.2675 - 0.6975.x_3 \\ 1.7625 - 0.6975.x_1 \end{pmatrix} \neq 0 \text{ pour } -1 \leq x_1, x_3 \leq +1.$$

Alors le maximum est atteint sur la frontière.

$$\begin{aligned} \{x_2 = -1, x_3 = +1\} &\rightarrow m_1 = 54.75 \\ \{x_2 = -1, x_3 = -1\} &\rightarrow m_2 = 49.83 \\ \{x_2 = -1, x_1 = +1\} &\rightarrow m_1 = 50.82 \\ \{x_2 = -1, x_1 = -1\} &\rightarrow m_2 = 54.75 \end{aligned}$$

On obtient : $M_4 = 54.75$ pour : $x_2 = x_1 = -1, x_3 = +1$

5^{ème} cas : $x_3 = +1$

y devient : $y = 75.065 - 0.855.x_1 + 22.28.x_2 + 1.11.x_1.x_2$.

On applique le schéma général pour max. y sur l'ensemble : $-1 \leq x_1, x_2 \leq +1$.

$$\overrightarrow{\text{grad}} . y = \begin{pmatrix} -0.855 + 1.11.x_2 \\ 22.28 + 1.11.x_1 \end{pmatrix} \neq 0 \text{ pour } -1 \leq x_1, x_2 \leq +1.$$

Alors, pas de maximum relatif à l'intérieur.

6^{ème} cas : $x_3 = -1$

y devient : $y = 49.31 - 0.475.x_1 + 0.05.x_2 + 0.095.x_1.x_2$.

On applique le schéma général pour max. y sur l'ensemble : $-1 \leq x_1, x_2 \leq +1$.

$$\overline{\text{grad}} \cdot y = \begin{pmatrix} -0.475 + 0.095 \cdot x_2 \\ 0.05 + 0.095 \cdot x_1 \end{pmatrix} \neq 0 \text{ pour } -1 \leq x_1, x_2 \leq +1.$$

Alors, pas de maximum relatif à l'intérieur.

Conclusion :

Le maximum de y est : 97.60

Il est atteint pour :

$$\begin{cases} T = 105^\circ\text{C} \\ C_A / C_B = 4 \\ V_{A0} = 3/4 V_T \end{cases}$$

D'après nos résultats de simulation, on trouve que le rendement en produit C peut atteindre 97,6%. Théoriquement c'est un rendement satisfaisant, mais pratiquement, il faut voir quel est son intérêt économique devant les dépenses en énergie nécessaire au fonctionnement du système de refroidissement qui sert à évacuer la grande quantité de chaleur provoquée par la réaction afin de réaliser ce rendement. Sans oublier le coût du réactif A qui est utilisé en grande quantité ou bien le coût de la séparation des produits à la fin de la réaction.

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Au cours de ce travail, nous avons présenté une méthodologie de modélisation et de simulation du fonctionnement dynamique d'un réacteur semi-continu, qui se rencontre dans l'industrie pharmaceutique, possédant des réactions compétitives et fortement exothermiques. A travers cette étude, nous avons proposé un modèle mathématique qui repose sur les différents phénomènes ayant lieu dans le processus, en utilisant des lois fondamentales et des équations de base et en émettant quelques hypothèses simplificatrices qui n'altèrent en rien la qualité représentative du modèle, dans un objectif de visualiser le comportement du système, évaluer ses performances dans des conditions prédéterminées, étudier et optimiser son fonctionnement dans diverses situations, tout en évitant le mauvais fonctionnement.

Notre système est caractérisé par un certain nombre d'appareils (réacteur, agitateur, deux chaînes de régulations etc.) se trouvant en interactions. Pour connaître son comportement et ses performances dans différentes situations d'exploitation, nous avons représenté les différents processus par des équations mathématiques, qui, prises individuellement, sont simples, néanmoins, la variété des interconnexions entre les variables communes aux diverses équations rend l'ensemble généralement complexes à résoudre. L'ensembles de ces équation constituent un modèle mathématique représentatif aux à notre système. Afin d'obtenir des résultats concrets, pour ces différentes opérations, nous avons intégré le modèle résolue dans un programme informatique, écrit en langage fortran, suivant des diagrammes de courants et des organigrammes décrits dans les chapitres V et VI.

Dans un premier temps, une application a été pris à partir de la littérature comme problèmes tests, qui a permis la validation des résultats et l'ajustement du programme de la simulation. Pour vérifier la bonne marche du système de régulation de la température, on a suivi à chaque fois l'évolution, en fonction du temps, de la température du mélange réactionnel, les concentrations des produit et des réactifs, le rendement du produit ' C ' par rapport au réactif introduit ainsi que le taux de conversion du réactif A . Par la suite, nous avons étudié de la stabilité thermique, étudiés l'influence de la mauvaise évacuation de la chaleur sur la température du milieu, l'inconvénient du système fermé dans le cas de ses réactions exothermiques sans oublier la comparaison entre deux systèmes de refroidissement pour choisir la meilleur stratégie de contrôle de la température. Cette étude, nous a montré que le réacteur semi-continu avec un système de refroidissement et de contrôle bien adapté, est indispensable pour la mise en œuvre des réactions très exothermiques et très rapides. La température du caloporteur doit être choisie de façon à atteindre le maximum possible au début de la réaction, c'est-à-dire au moment où il faut chauffer rapidement le mélange réactionnel, à être basse quand la réaction se produit rapidement et à s'élever de nouveau pour terminer complètement la réaction.

Une autre application a été faite, pour étudier un réacteur industriel d'une synthèse pharmaceutique, en passant par le cas pilote qui a donné des résultats satisfaisants. L'analyse du comportement du système montre, que le rendement en produit désiré et l'emballement thermique sont étroitement liés aux différentes conditions opératoires de fonctionnement et au système de refroidissement utilisé. Il existe un compromis qui permettra une bonne productivité en produit désiré et évitera l'emballement de la température qui peut nuire aux opérateurs et aux différents équipements de l'installation. Par conséquent, on doit travailler à une température plus proche de celle d'activation de la première réaction (réaction principale) plutôt que celle de la deuxième réaction (réaction parasite).

A partir des résultats de la simulation, on peut facilement noter que les paramètres qui influent le plus sur le fonctionnement et sur la transformation (rendement, sélectivité), sont la température du réacteur et de l'alimentation, le taux d'addition du réactif, les concentrations initiales des réactifs, et le temps de l'opération.

L'optimisation des conditions du fonctionnement et du contrôle thermique à travers la pression par identification directe d'une loi de la pression de vapeur a été appliquée avec succès à la synthèse pharmaceutique industrielle. Les résultats montrent qu'il est possible d'augmenter la productivité du réacteur, sans oublier les limites qui ont une incidence économique importante. Il faut donc traiter les résultats de la simulation de façon à obtenir des renseignements relatifs aux coûts d'investissement, aux coûts d'exploitation du réacteur, aux coûts des matières premières, etc., afin d'évaluer ensuite les conditions opératoires.

Si l'analyse qui a été présentée ne peut toujours être appliquée en pratique, par suite du manque de certaines données fondamentales, de la complexité du système et ses lois qui gouvernent les phénomènes existants, qu'on ne pourra pas toutes les prendre en considération comme peuvent ne pas être toutes connues ou exactes, elle permet cependant de dégager les variables essentielles à considérer lors de l'étude du fonctionnement d'un réacteur chimique, et de présenter une méthodologie générale pour servir à résoudre un problème de simulation de ce réacteur.

BIBLIOGRAPHIE

Références bibliographiques

- [1] W.F.RAMIREZ, " Computational Methods For Process Simulation",
Ed. Butterworth, (1989)
- [2] J.P.GOURLIA, "Modélisation en génie des procédés", Technique de l'ingénieur, J 1022,
pp. J1022-1 à J1022-7, 1998.
- [3] J.HORAK et J.PASEK, " Conception des Réacteurs Chimiques Industriels sur la Base des
Données de Laboratoire ", Ed. EYROLLES, Paris, (1981).
- [4] K.NAJIM G.MURET, "optimisation et commande en génie des procédés",
Ed. Masson, (1987).
- [5] N.THERIEN, P.TESSIER, "Modélisation et simulation de la décomposition catalytique du
méthanol dans un réacteur à lit fixe", The Canadian Journal of Chemical Engineering,
Vol.65, December, (1987).
- [6] J.P.EUZEM et P.TRAMBOUZE, "Méthodologie pour l'extrapolation des Procédés
Chimiques", Ed. Technip, paris, (1993).
- [7] J.M.COULSON , J.F.RICHADSON et D.G.PEACK, «Chemical engineering, Volume- 3,
Chemical Reactor Design, Biothechnical Reaction Engineering including Computational
Techniques and Control », SD. Ed. PERGAMON PRESS, (1979).
- [8] J.SHYONG CHANG , W.T.HSEIH, " Optimization and control of semibatch reactors",
Ind.Eng.Chem.Res, 34, 545-556, (1995).
- [9] J.R.RICHARDS et les autres, "Perspectives on industrial reactor control", Chemical
Engineering Progress, pp. 32-36, October (1988).
- [10] L. T.BIEGLER, et les autres, "Chemical process simulation ", Chemical Engineering
Process, pp. 50-61, October 1989.
- [11] E.MIKOVICOVA, M.A.LATIFI, M.'SAAD et L.HEJDA, "PID adaptive control of the
temperature in batch and semi-batch chemical reactor",
Chem.Eng.Sc., Vol.51, No.11, pp.3139-3144, (1996).
- [12] M.ZELMAT, "Introduction aux principes des systèmes de commande",
Ed. O.P.U, Alger, (1995).
- [13] T. R. RHODEM, " Régulation analogique " Lycée Déodat de Séverac, Toulouse, (2000).
<http://www.educnet.education.fr/rnchimie>
- [14] D.Q.KERN , " PROCESS HEAT TRANSFER" , Ed. Mac Graw-Hill, (1950).
- [15] J.F.BOURGEOIS, "Automatisme et régulation des équipements thermiques",
Technique de l'ingénieur, BE 9590-1 à 9590-18, (1998).
- [16] M.M'SAAD, J. EYROLLES HEBASSIER, " Commande adaptative des systèmes",
Technique de l'ingénieur, S 7126-1 à 71426-25, (1998).
- [17] C.SOURISSE, " Principes des chaînes de régulation",
Technique de l'ingénieur, R 7090-1 à 7090-15, (1985).
- [18] B.OULD-BOUAMAMA, "Régulation automatique", cours proposés par l'A.R.P.E, (1998).
<http://www.univ-lille1.fr/~eudil/belk/dy371.htm>
- [19] DJ.ZEROUK, " Régulation digital de la température ", P.F.E, Université de Blida, Faculté
des Sciences de l'Ingénieur, Département d'électronique, (Algérie), (1991).

- [20] M. GACI, " Mathématiques et informatique ", Ed. Berti, (1991).
- [21] J. P. Demailly, "Analyse numérique et équations différentielles", Ed. O.P.U, (1994).
- [22] Jean Beuneu, Intégration numérique des équations différentielles ordinaires, école universitaire de Lille, (1999).
<http://www.univ-lille1.fr/~eudil/jbeuneu/equadif/integr.html>.
- [23] J.GOUPY, "Plans d'expériences ", Technique de l'ingénieur, P 230-1 à 23024, (2000).
- [24] J.GOUPY, "Plans d'expériences pour surfaces de réponse", édition DUNOD, (1999).
- [25] P.SCHIMMERLING, J.C.SISSON, A.ZAIDI T.W.WEBER, "Pratique des plans d'expériences", Ed. Lavoisier, Paris, (1998).
- [26] J.VILLERMAUX, "Génie de la Réaction Chimique, Conception et Fonctionnement des Réacteurs ", Ed. Lavoisier, (1985).
- [27] P.TRAMBOUZE, H.VANLANDEGHEM, J.P.WAUQUIER, "Les réacteurs chimiques, conception, calcul, mise en œuvre", Ed. Technip, paris, (1984).
- [28] P.WUITIER, "Le pétrole Raffinage et Génie Chimique", Tome -II, Ed. Technip, Paris, (1972).
- [29] F.COURET, "L'ingénieur chimiste et les bases de l'ingénierie des procédés", Ed. Ouest, (1992).
- [30] V.GARCIA, M.CABASSUD, M.V.LE LANN , L.PIBOULEAU et G.CASAMATTA, "Constrained optimization for fine chemical productions in batch reactors ", Chemical Engineering Journal, Vol.59, pp.229-241, (1995).
- [31] H.F.RASE , "Chemical reactor design for process plants, volume one, principles and techniques", Ed. John willey & sons, (1977).
- [32] O. LEVENSPIEL, "Chemical reactor engineering", Ed. John Wiley and Sons, (1989)
- [33] G.F. FROMENT et K.B.BISHOFF, "Chemical reactor analysis and design", Ed. John Wiley and Sons (1979).
- [34] W.L.LUYBEN, "Process Modeling, Simulation, and Control for Chemical Engineers", Ed. McGraw-Hill, (1973).
- [35] J.M.SMITH, "Chemical Engineering kinetics," Mc Graw-Hill, 3rd. Ed (1981).
- [36] A.AZZOUZ, "La réaction chimique", Ed. Berti, (1993).
- [37] P.WUITIER, "Le pétrole Raffinage et Génie Chimique ", Tome -I, Ed. Technip, Paris, (1972).
- [38] R.OUAHES, B.DEVALEZ, "Chimie Générale", deuxième Ed. SNED, Alger, (1981).
- [39] J.M.COULSON , J.F.RICHADSON et D.G.PEACK, "Chemical engineering, Volume- 1, heat and mass transfer ", Fifth Ed. Butterworth, (1998).
- [40] N.C.DEY, "heat engines and applied thermodynamics", Ed. Asia House, (1964).
- [41] K.CHANANE, " Simulation en régime permanent de l'unité plat-forming de la raffinerie d'Alger", Mémoire de Magister, Université de Blida, Faculté des Sciences de l'Ingénieur, Département de Chimie Industrielle, (Algérie), (2001).
- [42] J.SCHMIDT, " Transmission de la chaleur", Ed. O.P.U, (1993).
- [43] J.M.SMITH, "Introduction to chemical engineering thermodynamics ", Ed. Mc Graw-Hill, (1987).
- [44] R.B.BIRD, W.E.STEWART, E.N.LIGHTFOOT, " Transport phenomena", Ed. John willey & Sons, (1960).

- [45] C.TOULOUSE, J.CEZERAC, M.CABASSUD, M.V.LE LANN et G.CASAMATTA, "Optimisation and scale- up of batch chemical reactors : impact of safety constraints", *Chemical Engineering Science*, Vol.51, No.10, pp.2243-2252, (1996).
- [46] T.W.WEBER, "An introduction to process dynamics and control", Ed. John Willey & sons, (1973).
- [47] PERRY (R.H.) et GREEN (D.), "Perry's chemical engineer's handbook", Sixth Ed. Mac Graw-Hill, (1984).
- [48] H.DESPLANCHES, J.L.CHEVALIER, "Mélange de milieux pâteux de rhéologie complexe: théorie", *Technique de l'ingénieur*, J 3860-1 à 3860-20, (1999).
- [49] H.DESPLANCHES, J.L.CHEVALIER, "Mélange de milieux pâteux de rhéologie complexe: pratique", *Technique de l'ingénieur*, J 3861-1 à 3861-13, (1999).
- [50] Y. MAHDI, « Simulation Dynamique de la Conduite et de la Stabilité Thermique d'un Réacteur Semi-Fermé en Marche Non Isotherme », Mémoire de Magister, C.U. de Média, Institut de Mécanique, (Algérie), (2000).
- [51] M.ROUSTAN, "Agitation. Mélange, caractéristiques des mobiles d'agitation", *Technique de l'ingénieur*, J 3802-1 à 3802-10, 1997.
- [52] G.ARDITTI, "Technologie chimique industrielle. Production de la chaleur .Transfert de matière utilisant l'énergie", Tome 3, Ed. EYROLLES, (1972).
- [53] V.A.DORCHENKO, M.TBBAL, " Transferts de chaleur lors de changements de phase", Ed. O.P.U, (1995).
- [55] V.W.UHL, " Mixing , théory and practice, Volume 1", Ed. Academic press, New york, (1966).
- [54] R.G.E. FRANKS, " Modelling and Simulation In Chemical Engineering .", Ed. John Wiley and Sons ,(1972)
- [55] L.TABRIST, "Echangeur de chaleur à contact direct", *Technique de l'ingénieur*, BE 9565-1 à 9565-30, (1999).

ANNEXES

ANNEXE 1

ANNEXE 1

TECHNIQUE D'AGITATION ET DE MELANGE

Introduction

L'agitation d'une phase fluide est nécessaire pour réaliser un grand nombre d'opération du génie chimique. En ce qui concerne les réacteurs chimiques, l'agitation intervient très souvent avec des finalités très variées, dont les principales sont données ci-dessous [27] :

- homogénéisation d'une phase fluide (uniformité de concentration ou de température) ;
- création d'aire interfaciale entre deux phases fluides immiscibles ;
- maintien en suspension d'un solide divers au sein d'une phase fluide ;
- augmentation du transfert de chaleur entre une surface solide et une phase liquide ;

Dans tous les cas l'agitation a pour objet d'augmenter la turbulence du fluide .

L'homogénéisation est directement liée à la nature des écoulements engendrés au sein du milieu par le mode d'agitation choisi. La qualité d'un mélange résulte donc des interactions entre les propriétés rhéologiques du milieu, la géométrie de l'agitateur et les conditions de sa mise en œuvre[48].

1. Divers type d'agitation rotatifs :

Un agitateur rotatif est constitué d'un moteur imprimant par l'intermédiaire d'un arbre un mouvement de rotation à un mobile d'agitation qui brasse le fluide agiter.

Les principales formes rencontrées en pratique peuvent se classer en quatre catégories [27,48,49]:

- 1) Les agitateurs du type « hélice »
- 2) Ceux du type « turbine à pales»
- 3) Ceux à grand rayon d'action (ancres, grandes pales)
- 4) Et ceux mettant en œuvre le principe de la vis d'Archimède.

Ces diverses formes de mobiles sont représentées sur les figure A1.2 , A1.3, A1.4, et A1.5. Pour chaque type cité de mobile d'agitation, les tableaux donnent les caractéristiques géométriques (diamètre, nombre de pales, pas de l'hélice, etc.) ainsi que le nombre de pompage et le nombre de puissance en régime turbulent[51].

Le choix du type d'agitateur à mettre en œuvre dépendra évidemment de l'objectif visé, mais la viscosité du fluide à agiter sera également un élément primordial du choix, la figure A1.6 indique les domaines d'utilisation des divers types de mobiles en fonction de la viscosité.

2. Transfert de chaleur dans les réacteurs agitées :

Il est généralement nécessaire d'effectuer un transfert de chaleur entre le fluide réactionnel contenu à l'intérieur et l'extérieur du réacteur. Ce transfert est destiné, suivant les cas, à chauffer, refroidir ou à maintenir constante la température du milieu réactionnelle, sans oublier l'énergie d'agitation qui peut atteindre plusieurs kW/m^3 pour les mélanges ayant une viscosité effective élevée .

L'échange de chaleur peut s'effectuer soit en utilisant la parois de la cuve pourvue d'une double enveloppe dans laquelle circule le fluide caloporteur, soit en créant une surface d'échange, en immergeant un serpentin par exemple fig. A1.1 [27,48].

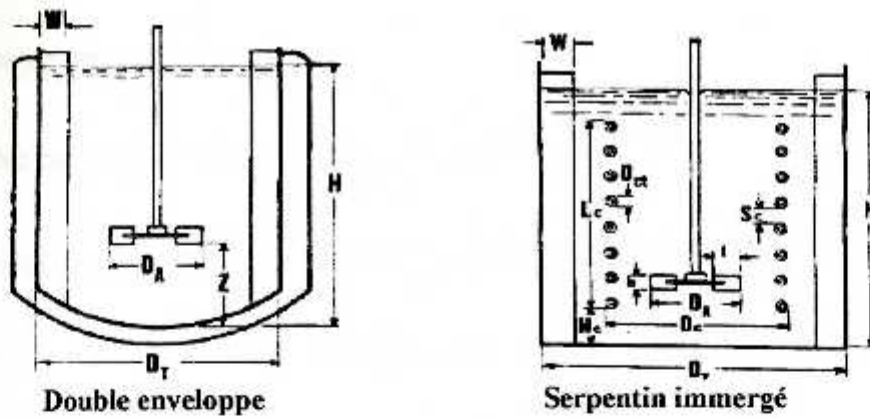


Fig. A1.1- Cuves correspondant à la configuration standard, équipées en vue du transfert de chaleur:

Pour effectuer les calculs de bilan enthalpique, il est nécessaire de connaître les coefficients de transfert de chaleur, en particulier le coefficient de transfert, du côté du fluide réactionnel. On peut trouver dans la littérature [46,48,49,51] de nombreuses corrélations permettant de calculer le coefficient de transfert correspondant à un système donné. Il existe un grand nombre de variantes possibles, car, un type d'agitateur mis en œuvre, on doit ajouter le type de surface d'échange utilisée (paroi, serpentin, tube etc. ...). D'une manière générale, les corrélations sont données sous forme dimensionnelle, faisant intervenir le plus souvent les nombres sans dimensions suivants[27] :

$$Nu = \frac{h_{int} D_T}{k}, \quad Re = \frac{N_R D_A^2 \rho}{\mu}, \quad Pr = \frac{C \mu}{k},$$

h_{int} : coefficient de transfert de chaleur entre le liquide de la cuve et le mur de la chemise,

D_T : diamètre du cuve, k : conductivité thermique,

N_R : la vitesse de rotation du rotor, D_A : le diamètre du rotor, ρ : la densité du fluide,

μ : la viscosité du fluide à la température moyenne, C : chaleur spécifique,

μ_w : la viscosité du fluide à la température de la surface d'échange de chaleur.

Pour plus de détails voir [46]

La plupart des corrélations permettant de calculer le nombre de *Nusselt*, et donc le coefficient de transmission thermique de surface.

$$Nu = \alpha (Re)^a (Pr)^b (vis)^c \quad (A.1.1)$$

$vis = \frac{\mu_w}{\mu}$ c'est le rapport des viscosités prises respectivement à la température de la paroi T_w

et au sein du fluide. Dans la plupart des corrélations les exposants a , b et c (sont influencés par le type d'écoulement) sont toujours proche des valeurs suivantes:

$$a = 0.5 \text{ à } 0.7, \quad b = \text{proche de } 0.3, \quad c = -0.1 \text{ à } -0.2$$

Par ailleurs, la constante numérique α (facteur de géométrie) est presque toujours comprise entre 0.1 et 1.

Nous donnerons ici deux équations :

$$\text{Cas d'une double enveloppe: } Nu = 0.75(Re)^{0.67} (Pr)^{0.33} (vis)^{-0.14} \quad (A1.2)$$

$$\text{Cas d'un serpentín immergé: } Nu = 0.17(Re)^{0.67} (Pr)^{0.37} \left(\frac{D_A}{D_T}\right)^{0.1} \left(\frac{D_C}{D_T}\right)^{0.5} (vis)^m \quad (A1.3)$$

$$\frac{D_A}{D_T} \text{ varié de } 0.25 \text{ à } 0.583 \quad m = -0.97 \quad \text{pour } \mu = 0.3 \text{ cpo, } m = -0.18 \quad \text{pour } \mu = 1000 \text{ cpc}$$

3. Le coefficient du transfert de la chaleur dû à l'agitation

Le tableau A.1.1, Résumé des corrélations recommandées pour le calcul du coefficient du transfert de la chaleur dû à l'agitation [46,51].

$$\text{L'équation générale: } \frac{h(L)}{k} = \alpha \left(\frac{\rho N D_A^2}{\mu}\right)^m \left(\frac{C_p \mu}{k}\right)^b \left(\frac{\mu_w}{\mu}\right)^c \cdot (\text{autre terme}) \quad (A1.4)$$

Tableau A.1.1 : Corrélations recommandées aux calculs du coefficient du transfert de la chaleur dû à l'agitation[.

Le type de l'agitateur	La surface du transfert	L'intervalle du nombre de Reynolds	L	α	m	b	c	Les autres termes
Turbine 6-pale plates (avec cloisons)	jaquette	10^3-10^5	D	0.73	0.65	0.33	0.24	-
	serpentín immergé	$400-1.5 \times 10^6$	d_{ct}	0.17	0.67	0.37	voir 1	G
	cloisons vertical	$10^3-2 \times 10^6$	d_{ct}	0.09	0.65	0.33	0.4	f
6-pales, inclinées (pales incurvées)	jaquette	10^3-10^6	D	0.68	0.67	0.33	0.14	-
Aucunes cloisons	serpentín immergé	10^3-10^6	d_{ct}	1.40	0.62	0.33	0.14	-
6-pales montées à 45°	jaquette	20-200	D	0.44 ^a	0.67	0.33	0.24	-
3-pales inclinées	jaquette	$2 \cdot 10^4-2 \cdot 10^6$	D	0.37 ^b	0.67	0.33	0.14	-
Hélices	jaquette	$2 \cdot 10^3$	D	0.54	0.67	0.25	0.14	-
Hélices marine	jaquette	$600-5 \cdot 10^5$	D	0.112	0.75	0.44	0.25	D
	serpentín immergé	$3 \cdot 10^2-2.6 \cdot 10^5$	d_{ct}	0.87	0.62	0.33	0.18	-
Ancre	jaquette	10-300	D	1.0	0.5	0.33	0.18	-
		300-40000	D	0.36	0.67	0.33	0.18	-

$$D = \left(\frac{D}{D_I}\right)^{0.4} \left(\frac{W_I}{D_I}\right)^{0.13}, \quad f = \left(\frac{D_A}{D}\right)^{0.33} \left(\frac{2}{n_{bv}}\right)^{0.2}, \quad G = \left(\frac{D_A}{D}\right)^{0.1} \left(\frac{d_{ct}}{D}\right)^{0.5}$$

W_I : largeur de la lame du rotor

1. $\ln c = -0.202 \ln(\mu - 0.357)$, avec μ en CP, $a = 0.535$ et $b = 0.33$

4. Critères de choix d'un agitateur

Chaque domaine industriel a une préférence pour un certains type d'agitateur qui paraît bien adapté aux particularités du produit et du procédé; le choix d'un nouvel appareil est donc effectué très empirique résulte de la difficulté à quantifier tous les paramètres qui définissent une bonne opération de mélange-agitation[48]. Un certain nombre d'indications concernant le choix du type de mobile à utiliser en fonction des caractéristiques du système considéré et /ou du phénomène à promouvoir par l'agitation [27]:

La viscosité du fluide, le temps de mélange, le transfert de chaleur, la possibilité d'évacuer l'énergie thermique dégagée au sein du milieu et la suspension d'un solide.

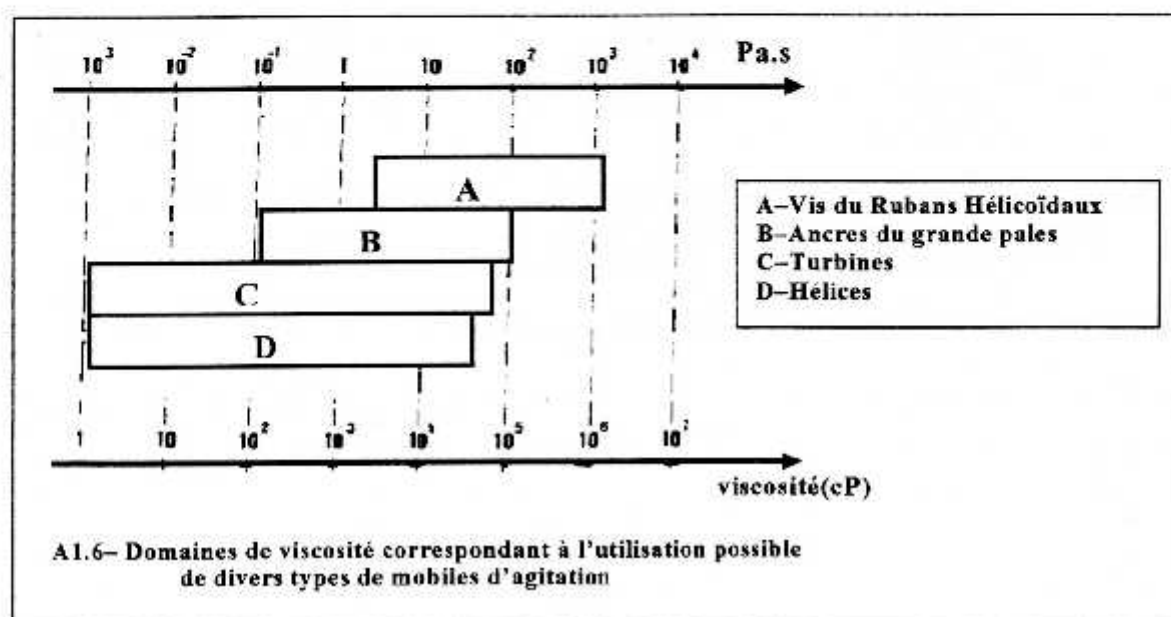
L'extrapolation est toujours délicate car la similitude géométrique implique, pour maintenir un même régime d'écoulement, une diminution de la vitesse de rotation qui entraîne une modification de la viscosité effective [48].

Nous avons rassemblés dans le tableau A1.2 les éléments comparatifs de choix pour les divers mobiles d'agitation en fonction de l'objectif recherché.

Tableau A1.2 : Critères de sélection des divers types d'agitations [27]

Type d'agitation	Phénomène à promouvoir par l'agitation								
	Homogénéisation d'une phase liquide μ_L en Pas.s			Contact gaz-liquide	Contact Liquide-liquide	Suspension de solide	Contact gaz-liquide-solide	Transfert	
	$< 10^{-1}$	10^{-1} à 10	> 10					A la paroi de la cuve	Avec serpentins ou tube immergés
Hélices ou pales inclinées	0	2	3	1	2	0	1	1	1
Turbines	0	1	3	0	0	1	0	1	1
Grandes pales	2	0	2	2	3	2	2	2	0
Ancre	2	0	2	3	3	3	3	0	3
Vis d'Archimède	3	2	0	3	3	3	3	2	1
Rubans hélicoïdaux	3	2	0	3	3	3	3	0	3

0 : généralement recommandé; 1 : adapté et relativement efficace; 2 : acceptable avec précaution; 3 : non adapté.



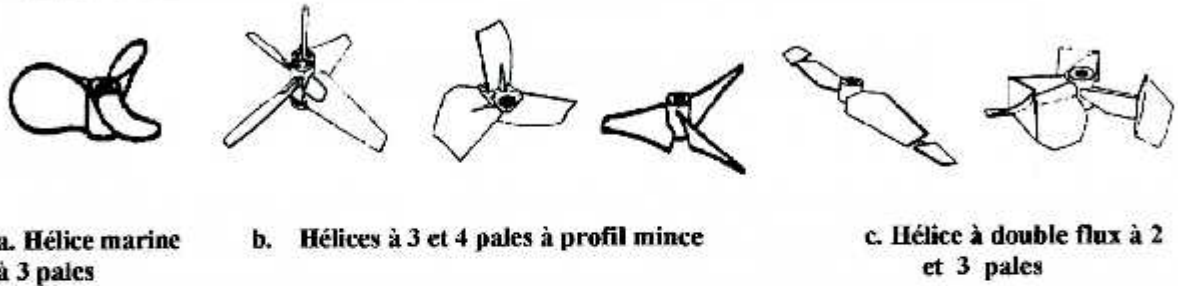


Fig. A1.2- Exemple d'agitateurs du type « hélice »

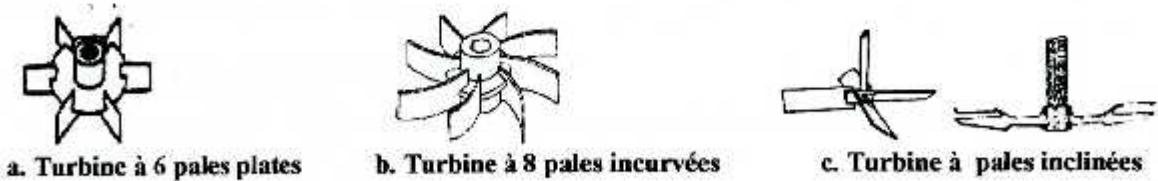


Fig. A1.3 - Exemples d'agitateurs du type « turbine »

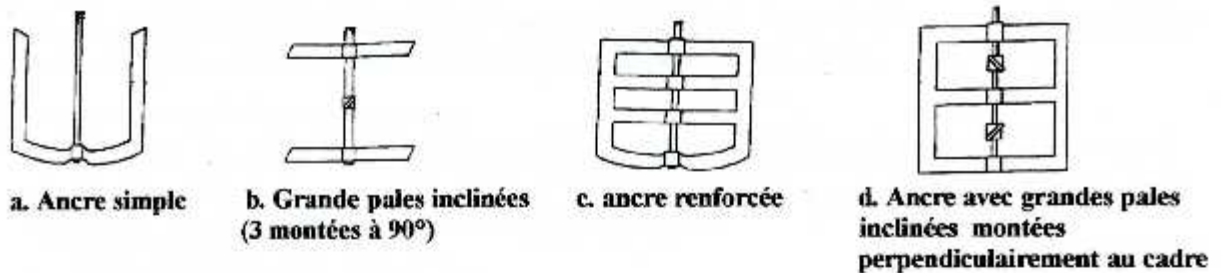


fig. A1.4—Exemples d'agitateurs à grand rayon d'action.

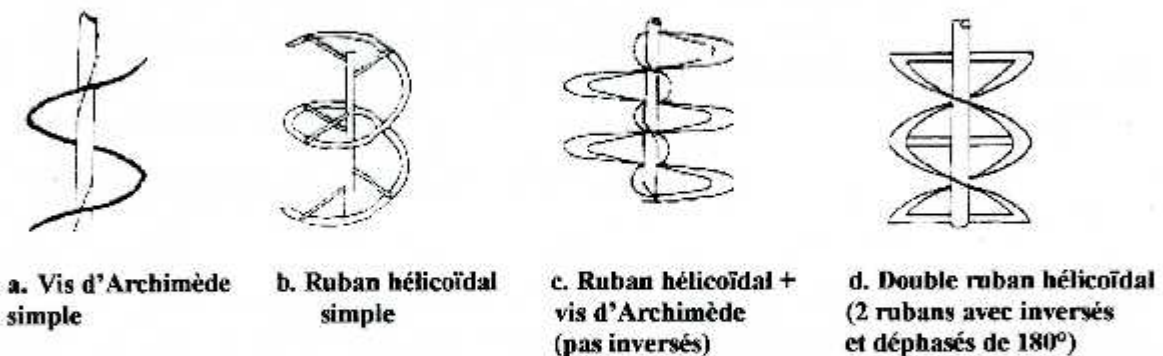


Fig. A1.5 - Exemples d'agitateurs du type « vis d'Archimède ».

ANNEXE 2**LES FLUIDES DE TRANSFERT THERMIQUE****Généralités**

Le chauffage immédiat (direct ou indirect) par fumées présente plusieurs inconvénients. Toutes les fois qu'il convient d'éviter une surchauffe et de procéder à un chauffage régulier (substances thermosensibles ou explosives par exemple) on utilise un mode de chauffage beaucoup plus souple, tel que celui qui consiste à faire appel à des caloporteurs qui reçoivent la chaleur fournie par une source primaire et la véhiculent jusqu'au point d'utilisation[52]. Une même substance peut être utilisée à l'état liquide ou en phase vapeur. Il convient à ce sujet de remarquer qu'un liquide ne peut céder que sa chaleur sensible, tandis qu'une vapeur en se condensant libère sa chaleur latente.

1. Les fluides de transfert thermique

On peut classer les fluides de transfert thermique selon le niveau thermique d'emploi : haute température et basse température.

1.1 Les fluides haute température (100 à 500 °C)

L'utilisation de certains fluides comme caloporteurs permet d'atteindre des températures qui, selon l'agent de chauffage en cause, sont de l'ordre de 350–400°C avec des substances organiques et d'un millier de degrés avec des sels fondus. Parmi les fluides chauds les plus utilisés dans le domaine des réactions chimiques on peut citer[27,52] :

- la vapeur d'eau (chaleur latente) ;
- le mélange eutectique : 75% de diphényloxyde et 25% de diphényle (chaleur sensible ou chaleur latente);
- les huiles d'origine animale, minérale ou synthétique ;
- les sels fondus (chaleur sensible).

1.1.1 Fluide thermique organiques Des produits chimiques définis tels que :

- a) *l'o.dichlorobenzène* pouvant être utilisé en phase liquide ou phase vapeur (jusque vers 250°C). Mais il faut éviter de l'employer en présence de l'aluminium.
- b) *le tétracyclodiphényle* qui peut être utilisé jusque vers 300°C.
- c) *des alkylbenzènes* s'utilise soit en phase liquide sous pression atmosphérique, soit en phase vapeur (jusqu'à 370 °C).

1.1.2 Fluides thermiques minéraux Ceux-ci sont :**a) Sels fondus**

les sels fondus sont des liquides entre les température de 150° et de 1200°C où on les utilise. Ils sont constitués par des mélanges de sels (chlorures, bromures, sulfates..) de sodium et de potassium. Un des mélanges très fréquemment utilisé, connu sous le nom de H.T.S (heat Transfert Salt) est ternaire. Sa composition (40% de NaNO_2 , 53% de KNO_3 et 7% de NaNO_3). Un autre mélange (47% de KOH et 53% de NaOH) fondant à 183 °C et pouvant être utilisé jusque vers 600°C.

b) Métaux fondus

Les métaux fondus et alliages qui permettent de chauffer à température élevées (de l'ordre de 700°C) sont choisis en raison de leur fusibilité. leurs principaux caractères sont :

Hg ($E_{760} = 375^{\circ}\text{C}$), Na 22% + K 78% ($E_{760} = 784^{\circ}\text{C}$),
 Pb ($E_{760} = 1730^{\circ}\text{C}$), Pb 44.5% + Bi 55.5% ($E_{760} = 1670^{\circ}\text{C}$),
 Na ($E_{760} = 883^{\circ}\text{C}$), Pb 38% + Sn 62% ($F = 183^{\circ}\text{C}$), Li ($E_{760} = 1317^{\circ}\text{C}$),

1.2 Les fluides basse température ($\leq 100^{\circ}\text{C}$)

Les fluides froids les plus utilisées dans le domaine qui nous intéresse sont :

- l'air (chaleur sensible) utilisable en chauffage direct ou indirect ;
- l'eau (chaleur sensible et éventuellement chaleur latente) ;
- les saumures (chaleur sensible) ;
- les fluides réfrigérants du type hydrocarbure fluoré et chloré (chaleur latente).

On dispose comme agents évacuateurs de chaleur, de sources primaires et de sources secondaires de froid.

Les sources primaires sont celles qui sont immédiatement utilisables (dans l'industrie on fait appel à l'air, à l'eau et à la glace). Leur emploi ne pose aucun problème particulier et permet d'abaisser la température des corps jusqu'au voisinage de la température ambiante.

Les sources secondaires de froid sont constituées par des saumures qui sont des liquides à bas point de congélation circulant en circuit fermé entre une machine à froid et le point d'utilisation, et auxquelles on doit faire appel lorsqu'on veut obtenir des températures inférieures à 0°C, leur utilisation permet d'atteindre des températures aux environs de -30°C.

- a) Pour des températures de l'ordre de -25°C, -30°C, les saumures sont des solutions aqueuses de sels (NaCl, CaCl₂, MgCl₂...) ou de substances organiques (méthanol, éthanol, glycol, glycérol.. utilisables au-dessus de leur point de congélation. Celui-ci est fonction de la concentration de la solution)
- b) Certaines substances organiques pures, telles que le chlorure de méthylène CH₂Cl₂ et le trichlorofluorométhane Cl₃FC qui se congèlent respectivement à -90°C et à -11 °C, sont, en raison de leurs caractéristiques thermiques, utilisées comme saumures lorsqu'il est nécessaire d'obtenir des refroidissements à des basses températures

2. Chauffage et refroidissement par l'eau

On utilisera de préférence l'eau, sous forme liquide ou vapeur, à cause de sa commodité d'emploi et de ses propriétés remarquables (capacité calorifique élevée, chaleur de vaporisation- condensation élevée).

L'eau chaude employée sous pression normale jusque vers 90°C. Pour dépasser cette température on fait souvent appel à la vapeur d'eau qui permet d'atteindre 200°C environ. Au-delà de cette température il peut y avoir parfois intérêt à utiliser l'eau surchauffée sous pression (eau surpressée). La température de l'eau (chaude ou surpressée) peut être réglée avec une plus grande précision et peut être dépasser 250°C. Cette dernière, introduite dans l'échangeur, se condense sur la paroi d'échange en abandonnant sa chaleur latente de condensation qui est grande, et s'écoule sous forme d'un condensat plus ou moins refroidi.

L'inconvénient majeur de l'utilisation de l'eau est du à sa tension de vapeur élevée ce qui interdit pratiquement son utilisation au delà de 250 °C. Par ailleurs, l'eau gèle à 0°C. Le domaine pratique d'utilisation de l'eau est donc limité par la fourchette 20 - 200 °C [27,52].

La chaleur totale de vaporisation de l'eau à θ °C, c'est-à-dire la quantité de chaleur nécessaire pour vaporiser 1 kg d'eau pris à 0°C est donc :

$$\lambda = q + r \quad (\text{A2.1})$$

En cas de surchauffe de la vapeur, toujours sous la même pression, il faut fournir au système une chaleur supplémentaire S , la quantité de chaleur devient ::

$$\lambda = q + r + s \quad (\text{A2.2})$$

Si C est la chaleur massique moyenne de l'eau entre 0°C et θ °C on a :

$$q = c\theta \quad (\text{A2.3})$$

et par suite : $\lambda = r + c\theta \quad (\text{A2.4})$

L'enthalpie spécifique de l'eau à θ °C est égale à $c\theta$, celle de la vapeur à la même température est :

$$H_v = r + c\theta \quad (\text{A2.5})$$

Si l'on condense la vapeur à θ °C et si on refroidit le condensat jusqu'à $t > 0$ °c, l'enthalpie du condensat est :

$$H_t = ct \quad (\text{A2.6})$$

La chaleur effective dégagée par la condensation à θ °C sous pression constante de 1kg de vapeur saturante et le refroidissement du condensat de θ °C à t est donc :

$$q = H_v - H_t \quad (\text{A2.7}).$$

ANNEXE 3

ANNEXE 3**THEORIE DE CONDENSATION ET PHYSIQUE D'EBULLITION****1. Description du phénomène**

le passage d'une substance de l'état gazeux (une vapeur) à l'état liquide est appelé condensation. Une vapeur pure est en équilibre thermique avec sa phase liquide si sa pression et sa température sont celles de saturation. Si la vapeur à cet état vient en contact avec une surface solide dont la température est inférieure à celle de saturation, une certaine masse liquide déborde sur la paroi froide[53].

Il y a essentiellement deux genres de condensation par surface, Condensation en film liquide et condensation en gouttes. On pourrait en définir une troisième, en parlant d'une condensation mixte, mais pratiquement le plus souvent on rencontre la condensation en film. la vapeur se condense sur une surface mouillable en y formant un film continu de liquide. Si, à l'inverse, le liquide ne mouille pas la surface solide, il se produit une condensation en gouttes; cette dernière n'étant possible qu'en présence d'une paroi hydrophobe[37].

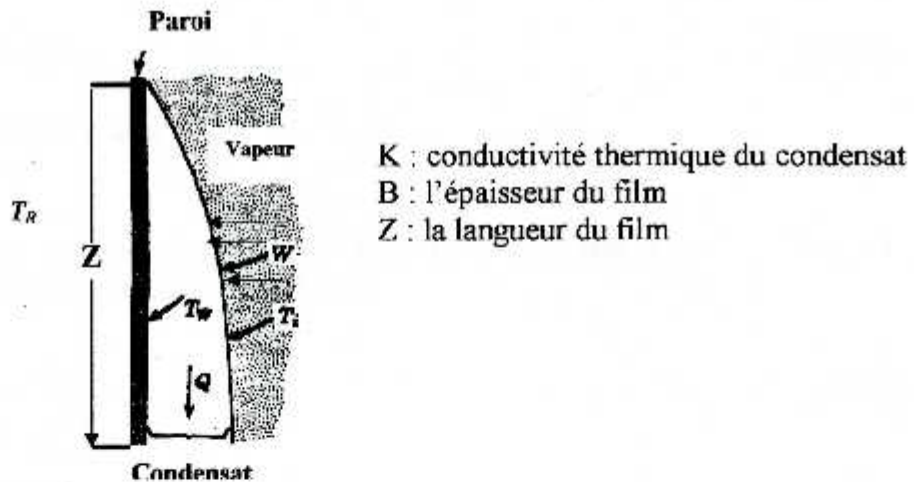
2. Condensation en film et théorie de Nusselt :

Figure A3.1 : Condensation en paroi vertical

Examinons une condensation en film sur une surface plane et verticale figure A3.1 ; c'est un modèle théorique fondamentale de la condensation en film s'écoulant en régime laminaire. La chaleur libérée lors de la condensation se transmet vers la surface froide à travers le film de condensat formé sur la paroi. Le transfert de chaleur n'est possible que par la conduction c'est à dire[53,54]:

$$H = K \frac{(T_s - T_w)}{B} \quad (A3.1)$$

Où, K : conductivité thermique du film (W/m.°C);

B : épaisseur du film, (m);

T_w : température de paroi, (°C)

T_i : température de saturation, supposée égale à celle de la vapeur contre la surface libre du film liquide, (°C);

H : le flux de la chaleur à travers le condensat .

D'autre part, selon la loi de convection on a :

$$q = h.(T_i - T_w) \quad (\text{A3.2})$$

Où, h : coefficient de transfert thermique

Le flux de chaleur à travers le mure est :

$$H = U_w(T_w - T_R) \quad (\text{A3.3})$$

Où, U_w : coefficient de transfert thermique à travers la surface d'échange ,

T_R : La température de refroidissement

Le flux de chaleur H est libéré par la condensation de la vapeur à la surface de condensation est de :

$$H = W\lambda \quad (\text{A3.4})$$

Où, W : la vitesse de condensation;

λ : la chaleur latente

L'épaisseur du film de condensat à différente valeur de Z peut être relia à la vitesse du flux Q de la condensation à ce niveau par la relation :

$$Q = \frac{\phi . g B^3}{3 . \mu} \quad (\text{A3.5})$$

Où , μ : viscosité dynamique;

ϕ : densité;

g : accélération de la pesanteur.

Le débit volumique du condensat introduit dans le mélange réactionnel est :

$$W = \frac{dQ}{dZ} \quad (\text{A3.6})$$

Le flux de chaleur est égal donc à :

$$q = \lambda . Q \quad (\text{A3.7})$$

3. Physique d'ébullition :

Une ébullition généralement s'accompagne de la formation de la vapeur dans le liquide qui atteint une température un peu supérieur à celle de saturation de même liquide à pression considérée. L'ébullition se caractérise par la formation de la vapeur se produisant dans tout le volume du liquide à cause d'un apport de chaleur. Les bulles de vapeur qui se forment contre les parois chauffées et à l'intérieur du volume liquide s'élèvent jusqu'à la surface libre du liquide[37,53].

3.1 Echange de chaleur en évaporation :

Lorsque l'agitation thermique dans un liquide devient importante, il se produit un départ des molécules sous forme de vapeur à l'interface liquide-vapeur. Le simple modèle traduit la relation entre la vitesse de la vapeur F_v d'un gaz avec la quantité de chaleur à échangée est de[34,43] :

$$\rho_v F_v = \frac{Q}{H_v - h_0} \quad (\text{A3.8})$$

Où, h_0 : enthalpie de liquide d'alimentation;

H_v : enthalpie de la vapeur sortie du cuve.

D'une manière différente, l'expression de la vitesse massique en fonction de la différence entre la pression de la vapeur et la pression de vaporisation est données par:

$$\dot{m}_v = \left(\frac{M_v}{2\pi RT} \right)^{1/2} (P_l - P_v) \quad (\text{A3.9})$$

avec R : constante des gaz parfaits,

M_v : masse molaire du liquide,

P_l et P_v : sont respectivement pression du liquide et de la vapeur au-dessus du liquide.

Si l'évaporation se produit dans une enceinte fermée, les molécules de vapeur s'accumulent et se condensent et la pression de la vapeur augmente. Si l'espace est ouvert les molécules de vapeur se déplacent par diffusion et par convection dans la phase gazeuse constituée du mélange air-vapeur, dans un repère fixe suivant la direction verticale, peut se séparer en deux termes :

- un terme convectif $X_v (\dot{m}_v + \dot{m}_{air})$ qui rend compte du mouvement d'ensemble des deux fluides;

- un terme de diffusion $- D_c \frac{dC_v}{dZ}$ qui se superpose au mouvement précédent (loi de Fick):

$$\dot{m}_v = - D_c \frac{dC_v}{dZ} + X_v (\dot{m}_v + \dot{m}_{air}) \quad (\text{A3.10})$$

avec: D_C (m^2/s) : coefficient de diffusion moléculaire de la vapeur d'eau dans l'air ou inversement,

C_V (kg/m^3) : concentration massique de la vapeur dans le mélange,

X_V : fraction molaire de la vapeur dans le mélange.

En remplaçant les concentrations par les pressions partielles, le mélange air-vapeur étant supposé idéal, c'est-à-dire sans interaction chimique, la relation (A3.10) devient :

$$\dot{m}_V = -D_C \left(\frac{M_V}{RT} \right) \frac{dP_V}{dz} + \frac{P_V}{P} \left(\dot{m}_V + \dot{m}_{air} \right) \quad (A3.11)$$

Envisageons le cas simple de la diffusion de la vapeur dans une couche stagnante d'air et une petite surface d'évaporation, le système étant à température et pression constante, l'expression (A3.11) devient :

$$\dot{m}_V = - \frac{D_C}{\left(1 - \frac{P_V}{P} \right)} \left(\frac{M_V}{RT} \right) \frac{dP_V}{dz} \quad (A3.12)$$

On simplifie le problème en considérant au-dessus de l'interface liquide/air, une sous couche laminaire, suivi d'une couche tampon et du courant turbulent. La vitesse massique de la vapeur évaporée est donnée par:

$$\dot{m}_V = k_C \left(\frac{M_V}{RT} \right) (P_{V_i} - P_{V_{gaz}}) \quad (A3.13)$$

avec K_C (m/s) le coefficient de transfert de masse relatif à la concentration.

Ou bien :
$$\dot{m}_V = K_{MT} (P_l - P_V) \quad (A3.14)$$

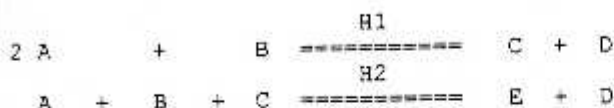
avec: K_{MT} est le coefficient de pseudo-transfert de mass coefficient.

ANNEXE 4

```

*****C
Programme de simulation d'un réacteur semi fermé C
*****C
Production d'un produit pharmaceutique de Sanofi Chimie *
Le système réactionnel : *
*
*
*

```



```

*****C
REAL K1, K2, dCA, dCB, dCC, dCD, dCE, temps, dT, dTj, dTm, densv
REAL CA, CB, CC, CD, CE, T, V, XA, H1, H2, Q, Qm, Qj, densv
REAL x11, k12, k13, k14, k21, k22, k23, k24, k31, k32, k33, k34
REAL x41, k42, k43, k44, k51, k52, k53, k54, k61, k62, k63, k64
REAL x71, k72, k73, k74, k81, k82, k83, k84
REAL ERV, ER, KC, KI, KDIER, IER, DELTA, DER, PC
REAL ERV2, ER2, KC2, KI2, KD2, IER2, DER2
REAL Tsp, Tmes, Tcd, dTr1, Pv, Patm, Kr2, Pr2, PKni, Hc, B, Qcd, Qv
REAL L
Integer A, n
dT(temps, T, CA, CB, CC) = (CpB*TB/Cp-T) * QB/V - (K1*CA**2*CB*H1 / (dens*Cp))
* -(K2*CA*CB*CC*H2 / (dens*Cp)) + (Cpcd*denscd*Tcd / Cp*dens-T) * Qcd/V
* -(denv*(Cp*T+Ltemps) / Cp*dens-T) * Qv / V - Qm / (dens*V*Cp)
dTj(temps, Tj) = (We*(Te-Tj) / (VjT*dense)) + Qj / (Cpe*dense*VjT)
dTm(temps) = (Qm-Qj) / (densm*Cpm*Vm)
dCA(temps, CA, CB, CC) = (-2*K1*CA**2*CB) - (K2*CA*CB*CC) - (QB*CA/V)
dCB(temps, CA, CB, CC) = (-K1*CA**2*CB) - (K2*CA*CB*CC) + (QB*(CB0-CB) / V)
dCC(temps, CA, CB, CC) = (K1*CA**2*CB) - (K2*CA*CB*CC) - QB*CC/V
dCD(temps, CA, CB, CC) = (K1*CA**2*CB) + (K2*CA*CB*CC) - QB*CD/V
dCE(temps, CA, CB, CC) = (K2*CA*CB*CC) - QB*CE/V
open(unit=1, file='r2.for', status='unknown')

```

AFFECTATION DES DONNEES

```

alpha1=1.38E09
alpha2=2.16E09
Accid=12.7
Bccid=2790
bouc=0.
bouc2=0.
av=-4858.
bv=15.7
Cpcd=1.5
Ce=20.
Cv=1.8
CpB=1.89
Cp=2.
Cpe=4.18
Cv=0.2
Ce=0.18
Cpm=0.5
dens=1066.7
denscd=866.7
dense=997.423
densT=866.7
densm=8301.7
denv=3.14
dTr1=1
E1=87870.
E2=92294.
ER2=0.
ER=0.
G=9.78
H1=-84765.392
H2=-95398.608
Hi=150.
hec=937.5
her=200.
h=0.009
Hvhc=2184.44322
intp1=-1.
intp4=-1.
K1=0.
K2=0.
Kr=2.
Kni=3.
k=397.

```

```

Kr=2.
Meau=18.
Patm=760.
P02=0.6
Pj=0.
Pcr=760.
Qcd=0.
Qv=0.
Qm=0.
R=8.314
Tsp=373.15
Tj1=0.
temps=0.
t1=0.
t2=0.
V=0.
Vj=0.
VjTj=0.
We=0.

```

INITIALISATION DES DONNEES

```

CA0=7.2
CB=0.003
CC=0.
CD=0.
CE=0.
CA=CA0
CB0=2.12
CC0=0.
CD0=0.
Cb0r=0.003
Cb0a=2.12
K1=0.
K2=0.
T=100+273.15
Te=20.+273.15
Tw=293.15
TB=25.+273.15
Tm=100.+273.15
Tj=100.+273.15
Vjt=0.35
AiT=0.047
Vm=0.19
Aet=Ait
V=0.
temps=0.
Vr=0.8
V0=.375
V=V0
QB=(Vr-V0)/(21600.)

```

Le choix du type du système

```

print*, ''
print*, ' faire entrer le type du réacteur utilisé'
print*, ' -----'
print*, ''
print*, ' 1: réacteur semi-fermé avec régulation parfaite'
print*, ' 2: réacteur fermé adiabatique'
print*, ' 3: réacteur semi-fermé adiabatique'
print*, ' 4: réacteur semi-fermé avec refroidissement par eau'
print*, ' 5: réacteur semi-fermé avec refroidissement par reflux'
print*, ' 6: réacteur semi-fermé industrielle'
print*, ' '
print*, ' le numéro du programme désiré n='
read*, n

write(1,*)''
write(1,*)' résultats de la simulation du réacteur'
write(1,*)''
write(1,99)

if(n.eq.1) then
QB=0.194E-04
Tj=T
Tm=T
elseif(n.eq.2) then
V0=0.8

```

```

V=0.8
CB=2.12
CbOr=2.12
CbOa=0.
CbO=0.003
QB=0.
m=2
elseif(n.eq.3) then
QB=0.194E-04
elseif(n.eq.4) then
Te=20.+273.15
Tb=100.+273.15
Tm=25.+273.15
Tj=20.+273.15
QB=0.19E-04
elseif(n.eq.5) then
ac=0.2
Cvp=30.
L=0.25
QB=0.194E-04
Uw=500.
Wvp=0.2
elseif(n.eq.6) then
ac=15.
Cvp=820.2
L=2.5
Tm=25.+273.15
Tj=20.+273.15
V0=6000.
Vr=8000.
V=VC
QB=(Vr-V0)/21600./1.05
Uw=550.
Wvp=5.2
end if
goto 110

```

Commande des vannes

```

100 Pt=3.+(T-300.)*12./200.
Pc=7.38
ERV=ER
KC=2.
KI=2.
KD=2.
DELTA=h
ER= (Pc-PT)
IER= IER+DELTA*ER
ERV=ER
DER=(ER-ERV)/DELTA
Pr=7.+KC*ER+KI*IER+1/KD* DER
if(Pr.gt.11) Pr=11.
if(Pr.lt.7.) Pr=7.
Xs=(Pc-9.)/2.
Xe=(9.-Pr)/2.
if(Xs.ge.1.) Xs=1.
if(Xs.le.0.) Xs=0.
if(Xe.ge.1.) Xe=1.
if(Xe.le.0.) Xe=0.
temps=temps+h
K1=alpha1*Exp(-E1/(R*T))
K2=alpha2*Exp(-E2/(R*T))
if(temps.gt.21600) then
QB=0.
elseif(V.ge.8000) then
QB=0.
end if
V=V+QB*h
if(n.eq.1) go to 60
if(n.eq.2) go to 60
if(n.eq.3) go to 60
if(T.ge.373.15) then
f=60.
go to 20
else
Qv=0.
Qcd=0.
end if
if(T.le.368.15) then

```

```

Qv=0.
Qcd=3.
go to 10
else
go to 60
endif

```

Opération de chauffage

```

10 Tj=128.+273.15
Pj=241509.32
if(Pj.ge.245500.) go to 40
Wv=Xs*Cv*sqrt(245500./101300.-Pj/101300.)
go to 41
40 Wv=0.
41 continue
Qj=-hec*Aet*(Tj-Tm)
Wc=-Qj/218316
ddensv=(Wv-Wc)/Vjt
densv=densv+0.000001*ddensv
intp2=-1.
intp3=-1.
dTj1=1.
i=0.
15 Pj=Exp(bv+av/Tj)
i=i+1.
if(i.gt.10000.)go to 70
dcalc=18.*Pj/((0.082*Tj)*101300.)
if(ABS(densv-dcalc).lt.10.) then
Ai=V*(Ait/Vr)
Qm=-hi*Ai*(Tm-T)
Qj-hec*Aet*(Tm-Tj)
m=1.
go to 60
endif
if(densv.gt.dcalc) go to 17
if(intp3.lt.0.) go to 16
dTj1-dTj1/2.
16 Tj=Tj-dTj1
intp2=1.
go to 15
70 Write(*,*)' densv est plus grande que dcalc
stop
17 if(intp2.lt.0.) go to 18
dTj1=dTj1/2.
18 Tj=Tj-dTj1
intp3=1.
go to 15

```

L'Opération de refroidissement

Opération de refroidissement par le controle de prèssion

```

20 if(n.eq.4) go to 600
psp= exp(Accid-Bccid/Tsp)
Tmes=T
Pv=exp(Accid-Bccid/Tmes)
Pmes=Pv+Pcr

```

Commande

```

ERV2=ER2
KC2=0.02
KI2=4.
KD2=50.
DELTA=h
ER2=(pmes-Psp)
IER2= IER2+DELTA*ER2
ERV2=ER2
DER2=(ER2-ERV2)/DELTA
Pr2=4.+KC2*ER2+KI2*IER2+1/KD2*DER2
if(Pr2.gt.8.) Pr2=8.
if(Pr2.lt.4.) Pr=4.
Xp=(Pr2-4.)/4.
if(Xp.ge.1.) Xp=1.
if(Xp.le.0.) Xp=0.1
Pcr=Cvp*0.85*sqrt(2.)/(Wvp*sqrt(Xp))
Pmes=Pcr
Qv=9.E-07*(Pv-Pmes)
if(Qv.le.0.) Qv=0.

```

Transfert de chaleur lors de condensation

```

Tw=293.15
Ti=373.15
Tr=373.15
densT=866700.
densv=3.14
Lt=334.4
Qcdm=0.
VisT=3.9E-07
loop=0.
140 EC=Uw*(Tr-293.15)
Vied=Hc/Lt
loop=loop+1.
if (loop.gt.10000.) go to 123
i=0.
do 5001 i=1,10
Qcdm=Qcdm+(Vied*L/10)
5001 continue
B=(Qcdm*3*visT/densT*g)**(1./3.)
Trcl=373.15-(Hc*B/1.2)
Qcd=Qcdm*L/(866700.)
if(abs(tr-trcl).lt.1.) go to 123
Tr=Tr-0.5
go to 140
123 Tcd=Tr
qq=Qv*0.036
Qcd=Qv*.0036
if (Qcd.gt.qq) Qcd=qq
if(Qv.le.0.) Qcd=0.
f=61.
m=2.
go to 60

```

___ Opération de refroidissement par la jaquette ___

```

600 We=Ce*Xe*sqrt(1.3609145352)
Wv=C.
Wc=C.
densv=0.
Pj=0.
Xs=0.
Vj=Vj+h*We/dense
if(intp4.lt.0.) then
m=3.
go to 30
else
m=4.
go to 61
endif

```

Jaquette non remplie

```

30 if(Vj.eq.0.) Tj=Te
Vj=Vj+h*We/dense
Ae=V*(Aet/Vjt)
if(Vj.ge.Vjt) THEN
intp4=1.
Vj=Vjt
go to 61
ELSE
Qj=-her*Ae*(Tj-Tm)
END IF
Ai=V*(Ait/Vr)
Qm=hi*Ai*(T-Tm)
Ai=V*(Ait/Vr)
Qj=her*Aet*(Tm-Tj)
go to 60

```

Jaquette remplie

```

61 We=Ce*Xw*sqrt(1.3609145352)/60.
Vj=Vjt
Qj=her*Aet*(Tm-Tj)
Ai=V*(Ait/Vr)
Qm=hi*Ai*(T-Tm)
go to 60

```

Integation

```

60 k11=h*dCA(temps, CA, CB, CC)
   k12=2*h*dCA(temps+h/2., CA+k11/2., CB+k11/2., CC+k11/2.)
   k13=2*h*dCA(temps+h/2., CA+k12/2., CB+k12/2., CC+k12/2.)
   k14=h*dCA(temps+h, CA+k13, CB+k13, CC+k13)

   k21=h*dCB(temps, CA, CB, CC)
   k22=2*h*dCB(temps+h/2., CA+k21/2., CB+k21/2., CC+k21/2.)
   k23=2*h*dCB(temps+h/2., CA+k22/2., CB+k22/2., CC+k22/2.)
   k24=h*dCB(temps+h, CA+k23, CB+k23, CC+k23/2.)

   k31=h*dCC(temps, CA, CB, CC)
   k32=2*h*dCC(temps+h/2., CA+k31/2., CB+k31/2., CC+k31/2.)
   k33=2*h*dCC(temps+h/2., CA+k32/2., CB+k32/2., CC-k32/2.)
   k34=h*dCC(temps+h, CA+k33, CB-k33, CC+k33)

   k41=h*dCD(temps, CA, CB, CC)
   k42=2*h*dCD(temps+h/2., CA+k41/2., CB+k41/2., CC+k41/2.)
   k43=2*h*dCD(temps+h/2., CA+k42/2., CB+k42/2., CC+k42/2.)
   k44=h*dCD(temps+h, CA+k43, CB+k43, CC+k43)

   k51=h*dCE(temps, CA, CB, CC)
   k52=2*h*dCE(temps+h/2., CA+k51/2., CB+k51/2., CC+k51/2.)
   k53=2*h*dCE(temps+h/2., CA+k52/2., CB+k52/2., CC+k52/2.)
   k54=h*dCE(temps+h, CA+k53, CB+k53, CC+k53)

   k61=h*dT(temps, T, CA, CB, CC)
   k62=2*h*dT(temps+h/2., T+k61/2., CA+k61/2., CB+k61/2., CC+k61/2.)
   k63=2*h*dT(temps+h/2., T+k62/2., CA+k62/2., CB+k62/2., CC+k62/2.)
   k64=h*dT(temps+h, T+k63, CA+k63, CB+k63, CC+k63)

   k71=h*dTm(temps)
   k72=2*h*dTm(temps+h/2.)
   k73=2*h*dTm(temps+h/2.)
   k74=h*dTm(temps+h)

   k81=h*dTj(temps, Tj)
   k82=2*h*dTj(temps+h/2., Tj+k81/2.)
   k83=2*h*dTj(temps+h/2., Tj+k82/2.)
   k84=h*dTj(temps+h, Tj+k83)

CA=CA+(k11+k12+k13+k14)/6.
CB=CB+(k21+k22+k23+k24)/6.
CC=CC+(k31+k32+k33+k34)/6.
CD=CD+(k41+k42+k43+k44)/6.
CE=CE+(k51+k52+k53+k54)/6.
rendC=(CC*V/(Cb0r*V0+(V-V0)*Cb0a-Cb*V))*100
Xa=((CA0*V0)-(CA*V))/(CA0*V0)
Ai=V*(Ait/Vr)
if(n.eq.1) go to 200
T=T+(k61+k62+k63+k64)/6.
if(n.eq.2) go to 200
if(n.eq.3) go to 200
if(m.eq.2) then
Tm=T
Tj=T
go to 200
end if
Pcr=0.
if(f.eq.61.) go to 200
Tm=Tm+(k71+k72+k73+k74)/6.
Qm=-hi*Ai*(Tm-T)
Qj=-hec*Aet*(Tj-Tm)
if(m.eq.3) then
Qm=hi*Ai*(T-Tm)
Vj=Vj+h*We/dense
Ae=Vj*(Aet/Vjt)
Qj=hec*Aet*(Tm-Tj)
VjTj=VjTj+h*((We*Te)+(Qj/(dense*Cpe)))
go to 62
end if
if(m.eq.4) then
Tj=Tj+(k81+k82+k83+k84)/6.
Qj=her*Aet*(Tm-Tj)
Qm=hi*Ai*(T-Tm)
end if
go to 200
62 if(Vj.eq.0.) then

```

```
Tj=Te
else
Tj=VjTj/Vj
end if
```

```
condition de marche du systeme
```

```
200 if(temps.ge.44640.) go to 128
    if(Cb.lt.0.) go to 128
    if(temps.gt.13.)then
        h=0.009
        go to 113
    end if
    if(temps.lt.bouc2)go to 100
110 bouc2=bouc2+2.
    go to 111
113 if(temps.lt.bouc) go to 100
    bouc=bouc-2880
111 write(1,112)temps,CA,CB,CC,CD,CE,T,Tj,Tm,V,rendC,XA
112 FORMAT(1X,1F8.1,5F8.4,1F8.2,2F8.2,1F12.4,2F12.4)
99  FORMAT(1H1,3X,'temps      CA      CB      CC      CD      CE
&      T      Tj      Tm      V      Renc      XA')
GO TO 100
128 stop
end
```




1455

رقم الجرد :
Depôt : رقم الفاتورة :
15/06/2002 : التاريخ :
Dpt. Ch. Ind. : الأصل :