

MODELISATION ET OPTIMISATION DE LA CONDUITE THERMIQUE D'UNE REACTION EXOTHERMIQUE DANS UN REACTEUR DISCONTINU

H. Cherifi, N. Moulaï-Mostefa*, M. Krea, A. Korichi
Institut des Sciences de L'Ingénieur
Centre universitaire Yahia Fares, Ain d'Heb, 26001 Médéa, Algérie.
* Fax:025.58.11.55, Email: moulai_nadji@yahoo.fr

RESUME

On s'est intéressé dans cette présente étude à la conduite optimale d'une réaction exothermique irréversible ayant lieu dans un réacteur semi-fermé. L'objectif est de déterminer par expérience et par simulation les conditions opératoires de fonctionnement qui assurent une bonne stabilité thermique du système. On a utilisé la méthodologie des plans d'expérience et précisément, une modélisation en surface de réponses (RSM) pour l'optimisation des conditions opératoires. Globalement, l'analyse du comportement du système a montré que la température du mélange réactionnel est étroitement liée aux différentes conditions opératoires. Les plans d'expérience de type criblage ont permis d'une part, de découvrir les facteurs les plus influents sur les différentes réponses et d'autre part, de restreindre le nombre d'expériences conduisant à un fonctionnement optimal. Il a été démontré à travers cette étude la capacité satisfaisante du modèle de simulation pour décrire le comportement dynamique réel du réacteur pilote.

Mots clés : réacteur discontinu, conduite thermique, réaction exothermique, optimisation, plans d'expérience.

NOMMENCLATURE

A : surface d'échange (m^2); C_A , C_B et C_C : concentrations respectives de A, B et C (mole/l); E : énergie d'activation (J/mole); R : constante des gaz parfaits (J.mole $^{-1}$.°K); k : constante de vitesse ($m^3.kmol^{-1}.s^{-1}$); Q : flux thermique (J/s); Q_B : débit d'alimentation de B (m^3/s); T : température du mélange réactionnel (°K); T_j : température dans la jaquette (°K); T_A , T_B et T_c : températures respectives de A, B et l'eau à l'entrée (°K); ΔH : chaleur de réaction (J/mole); U : coefficient global de transfert (J/s.m 2 .°K); V : volume du réacteur (m^3), W_e : débit de l'eau de refroidissement (m^3/s); r : vitesse de la réaction (mole/m 3 .s).

INTRODUCTION

La conduite optimale des réacteurs discontinus pose un problème difficile à maîtriser. Cette difficulté provient, d'une part, de la nature discontinue des modes opératoires et d'autre part, du caractère polyvalent des réacteurs [1, 2]. Ces appareils sont particulièrement utilisés en chimie fine et en pharmacie. Malheureusement, la conduite en température de ces systèmes pose des problèmes majeurs : ils sont en effet non stationnaires et non linéaires, à cause en grande partie de l'exothermicité des réactions qui ont lieu [3, 4]. En effet, le comportement cinétique et thermique des réactions, qui sont généralement exothermiques, est souvent mal maîtrisé. Quand la chaleur dégagée par le procédé est supérieure à la capacité d'évacuation de ses calories par un système approprié, il est nécessaire de faire appel à un système fiable et performant de réglage de la température afin d'éviter l'accumulation de la chaleur qui peut provoquer un emballement thermique. Pour assurer une rentabilité et une qualité meilleure, il est impératif d'améliorer l'automatisation de ces réacteurs tout en respectant leur caractère flexible et polyvalent [5, 6]. Par manque de moyens de mesure en ligne des concentrations et de modèles cinétiques de la transformation, le contrôle des réacteurs discontinus se restreint le plus souvent à un contrôle de la température du mélange réactionnel qui nécessite une modélisation parfaite et rigoureuse [7]. Cette démarche permet de construire un outil mathématique reliant les sorties d'un système à ces entrées

On s'est intéressé dans cette présente étude à la conduite optimale d'une réaction exothermique irréversible ayant lieu dans un réacteur semi-fermé en phase liquide. La première partie de ce travail est théorique et, elle consiste en une modélisation et une simulation dynamique. Elle est consacrée à l'étude du comportement thermique et le suivi de la cinétique la réaction. Quant à la deuxième partie, elle expérimentale, consacrée au suivi du comportement thermique de la réaction de synthèse exothermique.

Une méthodologie expérimentale a été appliquée pour l'optimisation des conditions opératoires, elle est basée sur l'utilisation d'un plan d'expériences. Ces techniques permettent de définir de manière expérimentale, la relation entre chacune des réponses et les différents facteurs étudiés. Au regard de notre objectif, on a opté pour l'utilisation d'une modélisation en surface de réponses (RSM), s'appuyant sur le plan D-Optimal [8]. Ces méthodes, permettent de réduire le nombre d'expériences et le coût de la recherche d'une nouvelle formule. Elles permettent en outre, de tirer d'un nombre d'essais donné un maximum d'informations crédibles concernant l'influence des facteurs et leur maîtrisabilité.

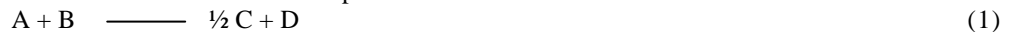
L'objectif est de déterminer par expérience et par simulation les conditions opératoires de fonctionnement qui assurent une bonne production tout en évitant une élévation de température dans le réacteur. Cette simulation passe d'abord par la construction d'un modèle mathématique regroupant les différentes équations qui traduisent les flux d'énergie et de matière ayant lieu dans le système; elle passe ensuite par la résolution numérique de ces dernières. La concentration en produit désiré et la température du milieu réactionnel ont été considérées comme réponses du système à optimiser.

2. DESCRIPTION ET MISE EN EQUATIONS DU SYSTEME

2.1. Description du système

Il s'agit d'un réacteur semi fermé avec une réaction exothermique ($\Delta H = - 5.8 \cdot 10^5$ j/mole) en phase liquide pour la production d'un certain produit C à partir des réactifs A et B [9].

La stœchiométrie de la réaction étudiée est donnée par :



L'équation cinétique et du premier ordre par rapport aux deux réactifs A et B.

$$r = k C_A C_B = k_1^0 \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) C_A C_B \quad (2)$$

2.2. Mise en équations du système

La mise en équations du système nécessite une analyse détaillée du processus. Les équations mathématiques constituant le modèle sont relatives aux bilans massique et énergétique, à la cinétique chimique et aux phénomènes de transfert thermique.

$$\frac{dV}{dt} = Q_B \quad (3)$$

$$\frac{dC_A}{dt} = -r - \frac{C_A}{v} Q_B \quad (4)$$

$$\frac{dC_B}{dt} = -2r + \frac{(C_{B0} - C_B)}{v} Q_B \quad (5)$$

$$\frac{dC_C}{dt} = \frac{1}{2} r - \frac{C_C}{v} Q_B \quad (6)$$

$$\frac{dT}{dt} = \frac{Q_B (T_{B0} - T)}{v} - \frac{r \Delta H}{r C_p} - \frac{Q}{v r C_p} \quad (7)$$

$$\frac{dT_j}{dt} = \frac{w_e (T_e - T_j)}{v_{jt} r_e} + \frac{Q}{V} \quad (8)$$

$$Q = UA(T - T_j) \quad (9)$$

Pour la résolution numérique des équations différentielles régissant les bilans de matière et d'énergie, la méthode de Runge-Kutta-Merson d'approximation de 4^{ème} ordre s'avère la plus adéquate. Le programme de résolution numérique est conçu en langage Turbo Pascal.

2.3. Etude expérimentale

Le dispositif expérimental consiste en un réacteur semi fermé en acier inoxydable d'une capacité de $5.78 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3$ comme le montre la Figure 1. La température du milieu réactionnel est ajustée par l'intermédiaire d'un mono fluide caloporteur (eau) circulant dans la jaquette d'une capacité de $6.2 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3$. Le débit du fluide injecté dans la jaquette est commandé par une ouverture manuelle du robinet d'eau de ville. Le réactif B à la température T_B est introduit dans la cuve avec un débit volumique Q_B à l'aide d'une pompe de type Smatec RS 232. L'agitation du milieu réactionnel est assurée par un agitateur mécanique IKA- Werke de type RW20 équipé d'une tige en verre. La température du mélange réactionnel est mesurée à l'aide d'un thermocouple Iomega de type DPS 800.

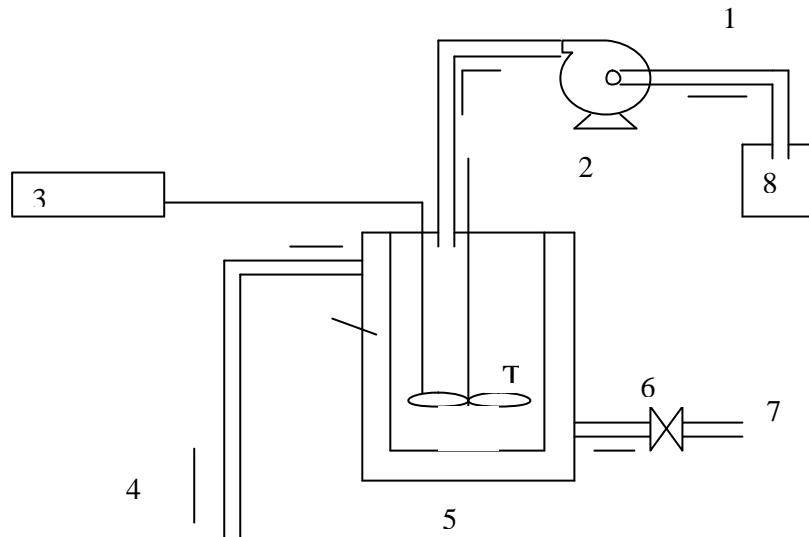


Figure 1. Dispositif expérimental (1. alimentation du réacteur, 2. pompe, 3. thermocouple, 4. sortie d'eau de refroidissement, 5. réacteur, 6. robinet, 7. entrée d'eau de refroidissement, 8. réservoir d'alimentation en réactif).

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1. Analyse du fonctionnement du système:

On a considéré une simulation, avec des conditions préliminaires, où fonctionne la régulation, donc le système de refroidissement, pour l'évacuation de la chaleur produite par la réaction. On a évalué l'influence de certains paramètres opératoires (débit d'addition des réactifs, débit du fluide caloporteur, concentration initiale des réactifs, température initiale d'entrée du fluide caloporteur et l'agitation) sur les performances du réacteur. Pour cela, on a réalisé quatre expériences dont les conditions expérimentales sont données dans le Tableau 1.

Tableau 1. Conditions opératoires des quatre expériences.

Expériences	T (°k)	T _e (°k)	T _A (°k)	T _B (°k)	Q _B (m ³ /s)	We (m ³ /s)	C _A (mol/l)	C _B (mol/l)
01	286	285	286	286	$1.1 \cdot 10^{-7}$	$5 \cdot 10^{-6}$	0.8	1.2
02	286	285	285	286	$1.1 \cdot 10^{-7}$	$5 \cdot 10^{-6}$	1.6	2.4
03	290	289	290	290	$2.2 \cdot 10^{-7}$	$0.1 \cdot 10^{-6}$	1.6	2.4
04	290	289	290	290	$2.2 \cdot 10^{-7}$	$0.1 \cdot 10^{-6}$	0.8	1.2

La Figure 2 regroupe les profils de température du mélange réactionnel en fonction du temps pour différentes concentrations initiales du réactif. L'examen de cette figure montre que l'évolution de la température en fonction du temps passe par deux étapes, une augmentation d'abord jusqu'à une valeur maximale ensuite une baisse jusqu'à une température proche de la température ambiante. L'effet de la concentration initiale des réactifs sur l'évolution de la température est le même que celui du débit d'alimentation. Dans les deux cas, il s'agit d'une

variation de la quantité des réactifs et donc une variation de la cinétique de réaction ($r = kC_A C_B$). Si on augmente les concentrations initiales (C_{A0} ; C_{B0}) ou bien le débit d'addition Q_B , automatiquement la vitesse de la réaction augmente, ce qui implique une augmentation de la quantité de chaleur libérée. Ce qui conduit à une élévation de la température du milieu réactionnel. Le refroidissement rapide du mélange réactionnel est dû à l'écart important entre la température de l'eau de refroidissement circulant dans la jaquette et celle du mélange réactionnel. L'augmentation des concentrations initiales engendre donc une augmentation de la vitesse de réaction et par conséquent une augmentation du rendement de la réaction.

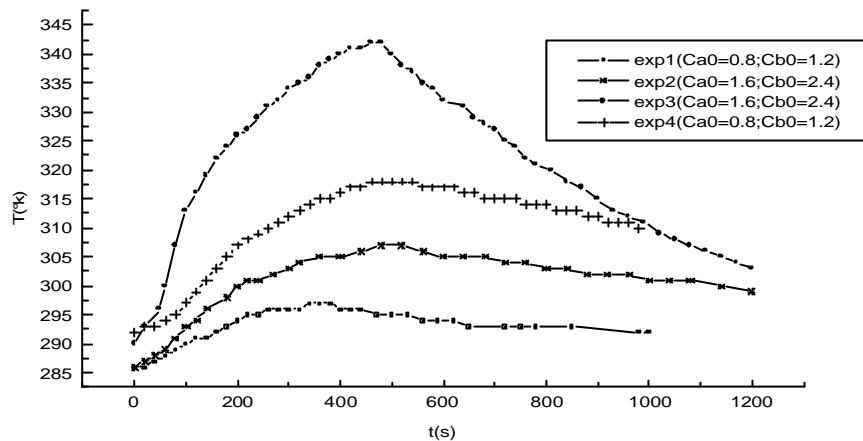


Figure 2. Influence de la concentration initiale des réactifs sur l'évolution de la température du mélange réactionnel avec le temps.

La Figure 3 illustre l'évolution de la température en fonction du temps pour deux valeurs du débit d'eau de refroidissement We . On remarque que la température du mélange réactionnel évolue différemment quand on varie le débit d'eau de refroidissement.

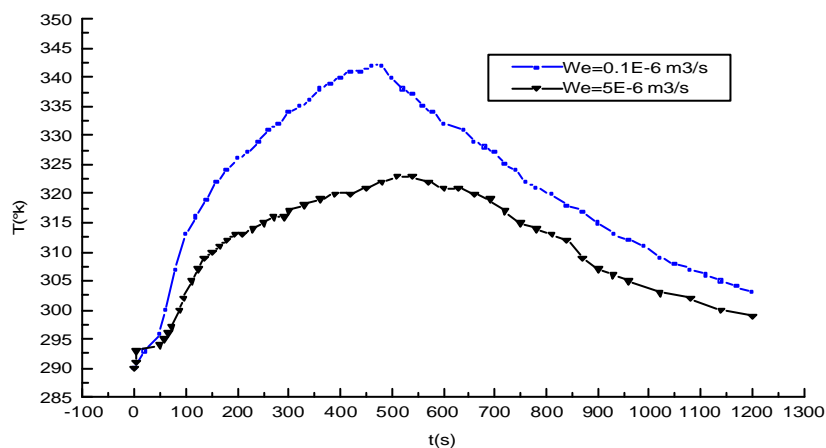


Figure 3. Effet de la variation du débit d'eau de refroidissement sur l'évolution des paramètres de sortie en fonction du temps.

Un écart de température important est enregistré entre les deux courbes au bout de 500 s (fin de la réaction) où la température du milieu réactionnel atteint une valeur de 342°k pour la première expérience ($We=0.1 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$) et 322°k pour la deuxième expérience ($We=5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$), puis une chute jusqu'à une température ambiante pour les deux expériences. Donc, on peut conclure que la température du milieu réactionnel est inversement proportionnelle au débit. Ceci est expliqué aussi par l'intensité du flux de chaleur échangé entre le milieu réactionnel et l'eau de refroidissement dans la jaquette, plus le débit d'eau de refroidissement est grand, plus la chaleur emportée par ce dernier sera grande et inversement.

Pour étudier l'influence de l'agitation, on a réalisé trois expériences. Les deux premières sont réalisées avec agitation ($n = 4$, et $n = 7$ tours/s), tandis que la troisième est réalisée sans agitation et sous les mêmes conditions opératoires que les deux premières. La Figure 4 représente l'évolution de la température en fonction du temps où l'on enregistre un écart entre les courbes réalisées avec ou sans agitation. Le coefficient de transfert de chaleur avec agitation est nettement supérieur à celui sans agitation. Ceci est dû d'une part, à l'intensification des transferts de chaleur par convection forcée entre le mélange réactionnel et la paroi interne du réacteur et d'autre part à la diffusion moléculaire à l'intérieur du mélange lui-même. Donc l'agitation joue un rôle très important dans l'aspect cinétique et surtout dans le transfert de chaleur. L'agitation n'influe pas uniquement sur le comportement thermique mais aussi sur la cinétique de la réaction.

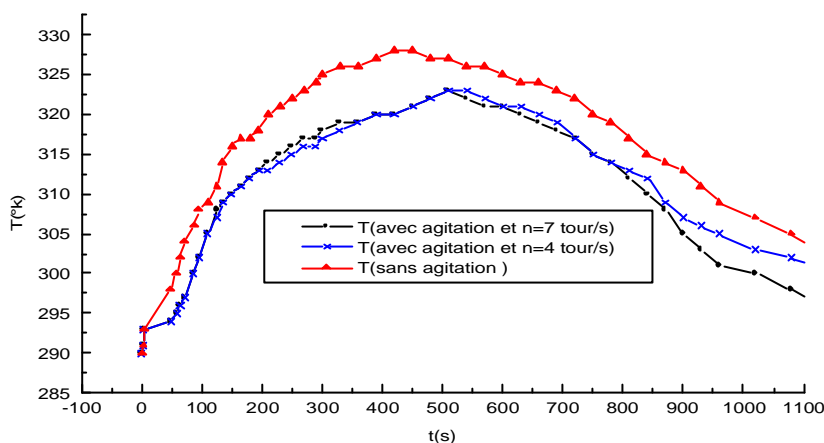


Figure 4. Influence de l'agitation sur l'évolution de la température du mélange réactionnel

3.2. Optimisation des conditions opératoires

L'objectif est d'obtenir un meilleur contrôle de la température dans le réacteur et une concentration en produit maximale. Pour cette étude, on a sélectionné les facteurs qui semblent avoir un effet sur notre système, à savoir: la concentration initiale de A, C_{A0} ; la concentration initiale de B, C_{B0} ; le débit d'entrée de B, Q_B ; le débit de l'eau de refroidissement, W_e ; la température initiale d'entrée du réactif B, T_B ; la température initiale d'entrée du réactif A, T_A et la température initiale d'entrée de l'eau de refroidissement, T_e . L'intervalle des valeurs admises pour ces facteurs a été déduit des essais préliminaires effectués. A l'issue d'une étude de l'effet propre de chacun des facteurs sur les réponses, on a retenu W_e et Q_B comme étant les facteurs les plus influents. Une matrice d'expériences dérivant du plan de mélange D-optimal, avec deux facteurs variables, et grâce à laquelle on peut effectuer les essais, a été établie (Tableau 2).

Tableau 2. Matrice d'expériences.

Exp N°	W_e (m^3/s)	Q_B (m^3/s)	C_{A0} (mol/l)	C_{B0} (mol/l)	T_e (°k)	T_A (°k)	T_B (°k)	T (°k) Sim	T (°k) Exp	C_c (mol/l)
1	$5 \cdot 10^{-6}$	$0,11 \cdot 10^{-7}$	1,6	2,4	289	290	290	310,69	313	0,299
2	$5 \cdot 10^{-6}$	$3,3 \cdot 10^{-7}$	1,6	2,4	289	290	290	331,81	332	0,3
3	$1 \cdot 10^{-7}$	$3,3 \cdot 10^{-7}$	1,6	2,4	289	290	290	362,59	361	0,3
4	$1 \cdot 10^{-7}$	$1,1 \cdot 10^{-7}$	1,6	2,4	289	290	290	355,64	357	0,3
5	$2,5 \cdot 10^{-6}$	$2,2 \cdot 10^{-7}$	1,6	2,4	289	290	290	329,2	332	0,15

L'introduction des résultats des cinq essais dans le plan d'expériences, avec les deux facteurs retenus comme les plus influents sur le processus, a fourni les paramètres conduisant à un fonctionnement optimum (Tableau 3).

Tableau 3. Paramètres de fonctionnement optimaux.

w_e (m ³ /s)	Q_B (m ³ /s)	T (°k)	C_c (mol/l)
$1 \cdot 10^{-7}$	0.33	344,092	0,3001

Une expérience réalisée avec ces deux conditions optimales a conduit à une température réactionnelle maximale T de 362°k. Avec ces mêmes paramètres, on a obtenu, par simulation, la concentration maximale à la fin de réaction : $C_c = 0,3$ mol/l. Ces deux valeurs (T et C_c) sont donc en bonne concordance avec celles obtenues par le plan d'expériences. Le faible écart de température (18°C) traduit le bon choix des conditions opératoires et justifie le plan d'expériences utilisé.

3.3. Validation du modèle numérique

Les résultats expérimentaux ont été confrontés aux résultats numériques déduits par le modèle mathématique adopté pour ce type de réactions. L'évolution de la température du milieu réactionnel en fonction du temps de réaction, est représentée sur la Figure 5. Sur cette figure, sont portées les valeurs théoriques (simulation) et expérimentales de la température dans le réacteur. A titre indicatif, la température dans la jaquette déduite par simulation est aussi représentée.

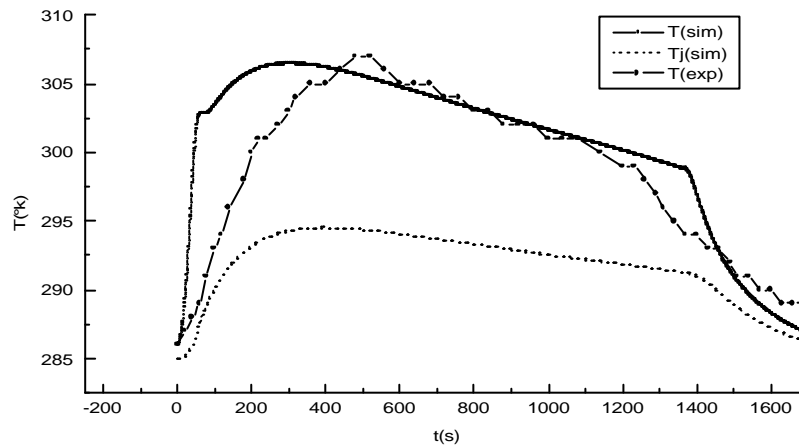


Figure 5. Profils de la température dans le réacteur par simulation et par expérimentation

La comparaison des résultats expérimentaux et ceux calculés par notre modèle, montre un faible écart entre les valeurs de la température simulée et celle déduite expérimentalement. Ceci dit, si les conditions opératoires sont bien définies, il est possible d'appliquer le modèle de calcul proposé pour déterminer avec une marge d'erreurs minime les profils de la température dans un réacteur chimique.

4. CONCLUSION:

Dans ce travail, on s'est proposé d'étudier par simulation et par expérience le fonctionnement dynamique d'un réacteur discontinu lors du déroulement d'une réaction exothermique et irréversible en considérant les échanges énergétiques ayant lieu entre le milieu réactionnel et la jaquette.

Globalement, l'analyse du comportement du système a montré que la stabilité thermique et le rendement en produit sont étroitement liés aux différentes conditions opératoires. Il existe un compromis qui, permettra une bonne productivité et évitera l'emballement de la température. Une augmentation sensible des concentrations initiales des réactifs ou du débit d'alimentation peut provoquer l'emballement du réacteur. La présence de certaines défaillances techniques peut provoquer l'emballement de la température et une chute du rendement. Un suivi rigoureux des conditions opératoires est nécessaire. Les plans d'expérience de type criblage ont permis d'une part, de découvrir les facteurs les plus influents sur les différentes réponses et d'autre part, de restreindre le nombre d'expériences conduisant à un fonctionnement optimal. Par ailleurs, il a été démontré à travers cette étude la capacité satisfaisante du modèle de simulation pour décrire le comportement dynamique du réacteur.

REFERENCES

- [1] Luyben, W. L., "Process modeling, simulation and control for chemical engineering", International Student Ed., Mc Graw Hill, New York (1987).
- [2] Penguaud H., Valette R., «Modélisation de la dynamique des procédés discontinus», Entropie, 210 (1998), pp 15-20.
- [3] Le Lann M. V., Cabassud M., Casamata G., "Modeling, optimization and control of batch chemical reactors in fine chemical production", Annual reviews in control, 23 (1999), pp 25-34.
- [4] Toulouse C., Cabassud M., Le Lann M. V., «Opérations optimales dans les réacteurs discontinus sous contraintes de fonctionnement», Entropie, 210 (1998), pp 79- 95.
- [5] Diallo M. B., Kara L., Porte C., Delcroix A., «Pilote chimique polyvalent modulaire automatisé, Etude de sécurité et mise en oeuvre d'une architecture de commande», Hygiène et sécurité de travail, 171 (1998), pp 113-125.
- [6] Miklovicova E., Latifi M. A., M'Saad M., Hejda I., "PID adaptative control of the temperature in batch and semi batch chemical reactors", Chem. Eng. Sci., 51:11 (1996), pp 3139-3144.
- [7] Louleh Z., Cabassud M., Le Lann M. V., "A new strategy for temperature control of batch reactors: experimental application", Chem. Eng. J., 75 (1999), pp 11-20.
- [8] Morgenthaler S., Schumacher M. M., "Robust analysis of a response surface design", Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems 47:1 (1999) pp 127-141.
- [9] Grau M. D., Nougés J. M., Puigjaner L., "Batch and semibatch reactor performance for an exothermic reaction", Chem. Eng. Process. 39 (2000), pp. 141-148.