

Méthode d'optimisation des réacteurs catalytiques hétérogènes

par P. Le Goff

(Laboratoire des sciences du génie chimique, CNRS-ENSIC, Institut National Polytechnique de Lorraine et Centre de Perfectionnement des Industries Chimiques, Nancy).



On présente les principes généraux de l'optimisation technico-économique des réacteurs catalytiques hétérogènes (à particules fixes, fluidisées ou transportées). Un modèle « simplissime », ne dépendant que d'un seul paramètre est proposé pour représenter la structure hydrodynamique de l'écoulement à travers le réacteur. Ce modèle inclut les divers types de structures : à court-circuit, à recyclage, à macro-mélangeage total ou partiel, à jet anisotrope dirigé sur la surface réactive, etc. L'expression générale de la « Consommation Opératoire Unitaire

d'Énergie Mécanique » (ou COUEM), exprimée en joule par kg de produit utile est établie. On étudie comment la COUEM varie en fonction des paramètres opératoires, notamment du critère de Reynolds, pour les principaux régimes de fonctionnement du réacteur :

- régime d'effets de volume : transport convectif - macro-mélangeage court-circuits,
- régime d'effets de surface : réaction chimique hétérogène ou transfert diffusif à travers la couche limite.

Les conditions auxquelles doit satisfaire tout réacteur, pour rendre négligeable le terme dû au freinage diffusif dans la couche limite, sont précisées.

On montre comment appliquer ces concepts à l'optimisation d'un réacteur à lit fixe, où on désire simultanément :

- maximiser le rendement de production,
- minimiser la consommation d'énergie,
- minimiser le coût de construction du réacteur.

On montre, pour terminer, que les réacteurs du futur, qui devront consommer de moins en moins d'énergie, ne devront plus être conçus pour opérer en régime de réaction chimique, mais devront admettre une certaine limitation de vitesse par un processus diffusif ou convectif.

Nomenclature

\dot{P}	flux de production ($\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$),	D	diffusivité ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$),
A	aire de la surface réactive (m^2),	Lf_d	critère de Le Goff diffusif,
k_d	conductance de transfert diffusif ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$),	Lf_r	critère de Le Goff thermique,
ρ	masse volumique ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$),	k_r	conductance de réaction chimique ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$),
w_b	titre massique du réactant à la bordure externe de la couche limite,	k_c	conductance de transport convectif,
w_a	titre massique du réactant au contact même de la surface réactive,	M	débit d'alimentation en matière première ($\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$),
\dot{e}_d	densité de puissance mécanique dégradée sur la surface A ($\text{watts} \cdot \text{m}^{-2}$),	N_r	Nombre d'Unités de Réaction,
u	vitesse linéaire d'écoulement ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$),	N_t	Nombre d'Unités de Transfert,
J_d	critère de Colburn diffusif,	N_{tr}	Nombre d'Unités de Transfert-Réaction,
Sc	critère de Schmidt,	N_c	Nombre d'Unités de Transport Convectif,
\dot{W}	puissance mécanique dégradée sur la surface A (watts),	η	rendement de production (efficacité du réacteur),
COUEM	Consommation Opératoire Unitaire d'Énergie Mécanique (joule/kg),	Ω	section droite du réacteur (m^2),
$f/2$	facteur de frottement,	d_p	diamètre de particule (mm),
Re	critère de Reynolds,	L	longueur du réacteur (épaisseur du lit de particules) (m),
ν	viscosité cinématique ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$),	K_1	} coefficients constants dans l'expression de la COUEM (joule/kg),
α	exposant de Re dans l'expression de $f/2$,	K_2	
β	exposant de Re dans l'expression de J_d ,	K_3	
γ	exposant de A dans l'expression de la COUEM,	K_4	
δ	exposant de Re dans l'expression de la COUEM,	K_5	
		K_6	
		K_f	} coefficient constant dans l'expression de $f/2$,
		K_j	

Exposé du problème

La présente étude concerne les réacteurs catalytiques hétérogènes fluide/solide, opérant en lit fixe, en lit fluidisé ou en lit transporté, en régime permanent et avec un fluide composé d'une seule phase*.

Nous nous proposons de déterminer le réacteur optimal, pour un flux de production \dot{P} imposé.

L'ingénieur responsable du projet d'un nouvel atelier de production chimique ne peut généralement pas dissocier l'optimisation du réacteur et celle du séparateur placé en aval dont la fonction est de séparer le produit désiré des sous-produits non-désirés ainsi que de l'excès de matière première à recycler (figure 1).

Par exemple, un réacteur ayant un fort taux de conversion et une grande sélectivité ne nécessitera qu'un séparateur peu efficace, donc peu coûteux, et inversement**.

Nous ne traiterons, ici, que l'optimisation du réacteur lui-même, tout en sachant pertinemment que les résultats de la présente étude devront s'intégrer dans un système plus complexe, en vue d'une optimisation globale.

Notre objectif sera de chercher à minimiser le coût « intégral » du réacteur, c'est-à-dire le coût qui résulte de l'intégration des coûts d'investissement (construction du réacteur) et des coûts d'exploitation, pendant une durée présumée de fonctionnement, choisie *a priori*, compte tenu d'une certaine règle d'amortissement du capital investi. Dans le coût d'exploitation, nous ne prendrons en compte que trois termes : le coût de la matière première, le coût de l'énergie mécanique \dot{W} dégradée dans le réacteur pour assurer l'écoulement et le mélangeage du fluide, et, enfin, le coût de tous les autres « intrants », que nous rassemblerons dans un 3^e terme constant (c'est-à-dire indépendant des consommations de matière et d'énergie).

Il est à remarquer que l'énergie thermique \dot{Q} apportée au réacteur (dans le cas d'une réaction endothermique) ou prélevée au réacteur

* Ceci est un extrait de la conférence plénière prononcée au symposium ISCRE-6 en mars 1980. Le texte complet, avec la discussion détaillée est publiée dans les Comptes rendus du symposium (5).

** Dans de nombreuses installations industrielles, le coût propre du réacteur est nettement inférieur à celui de l'ensemble des dispositifs de séparation des mélanges, placés en amont et en aval.

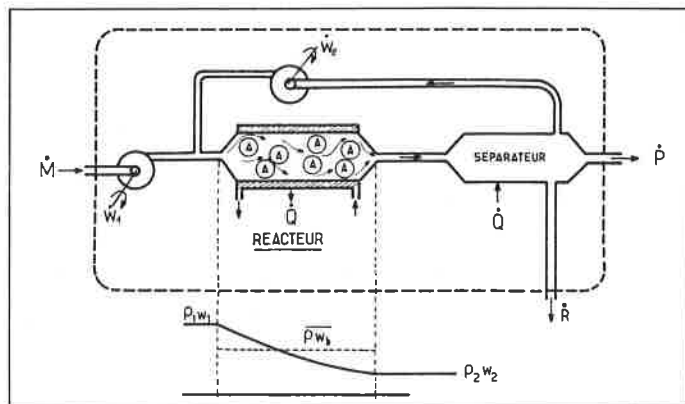


Figure 1. Schéma du réacteur et du séparateur qui lui est associé : ρw_b est la valeur moyenne de la concentration massique du réactif M à la bordure extérieure de la couche limite devant la surface A ($\dot{w} = \dot{w}_1 + \dot{w}_2$).

(dans le cas exothermique) n'intervient pas dans l'optimisation. Ce terme est, en effet, constant du fait de notre hypothèse d'un flux de production \dot{P} imposé.

La puissance mécanique \dot{W} dégradée dans le réacteur dépend essentiellement de l'« état » hydrodynamique du fluide dans le réacteur et tout particulièrement du régime d'écoulement au voisinage de la surface réactive. Nous sommes donc amenés à distinguer les 3 cas suivants :

- le régime de réaction chimique : dans le cas d'une réaction chimique extrêmement lente, c'est la cinétique de cette réaction qui impose le flux de production,
- le régime de diffusion : c'est le cas où le processus le plus lent est le transport diffusif à travers la couche limite qui avoisine la surface réactive,
- le régime de transport convectif : c'est le cas où le flux de production dépend des processus qui se déroulent dans le volume même du fluide en écoulement, à savoir : court-circuits, recyclage, macro-mélange...

Nous commencerons par l'étude du second cas.

1. Énergétique de la couche limite diffusionnelle

Supposons que le produit désiré P soit formé dans une réaction chimique très rapide sur la surface A, après que la molécule M ait traversé la couche limite diffusionnelle. Le flux de production est (en $\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$) :

$$\dot{P} = Ak_d(\rho w_b - O) \quad (I)$$

où ρw_b est la concentration massique moyenne du réactif M à la « bordure » externe de la couche limite. Nous la supposons, ici, constante sur toute la surface A. La conductance k_d est inversement proportionnelle à l'épaisseur de la couche limite (figure 2).

Soit, d'autre part, \dot{e}_d la densité de puissance mécanique (en $\text{watts} \cdot \text{m}^{-2}$) dégradée dans cette couche limite par les frottements du fluide. On sait que k_d est une fonction croissante de \dot{e}_d .

Pour obtenir un flux imposé \dot{P} , on a le choix entre :

- une grande surface A et une faible valeur de k_d (et donc aussi de \dot{e}_d),
- ou, au contraire, une petite surface A et une grande valeur \dot{e}_d , c'est-à-dire une forte dégradation d'énergie dans la couche limite.

Il s'agit donc bien d'un choix optimal entre une dépense d'équipement et une dépense opératoire.

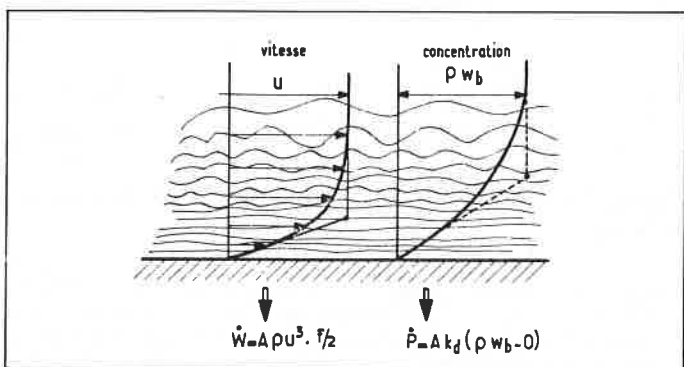


Figure 2. Flux de dégradation d'énergie et de transfert de matière.

1.1. Consommation opératoire unitaire d'énergie mécanique : \dot{W}/\dot{P}

Les résultats expérimentaux sur le transfert de matière sont habituellement présentés sous la forme d'un critère de Colburn j_d défini comme suit :

$$j_d \equiv \frac{k_d}{u} \cdot (\text{Sc})^{2/3} \quad (II)$$

où u est une vitesse, choisie arbitrairement, caractéristique de l'écoulement du fluide dans le réacteur.

D'autre part, la densité de puissance mécanique dégradée \dot{e}_d s'exprime en fonction du classique facteur de frottement, soit :

$$\dot{e}_d \equiv \frac{\dot{W}}{A} = \rho u^3 \cdot (f/2) \quad (III)$$

On en déduit l'expression du rapport \dot{W}/\dot{P} , qui est la Consommation Opératoire Unitaire d'Énergie Mécanique, COUEM, soit :

$$\text{COUEM} \equiv \frac{\dot{W}}{\dot{P}} = \frac{u^2}{w_b} \cdot \frac{\text{Sc}^{2/3} \cdot (f/2)}{j_d} \quad (IV)$$

Mais les deux phénomènes de transfert de matière et de transfert de quantité de mouvement (c'est-à-dire de dégradation d'énergie

mécanique) dans la couche limite ne sont pas indépendants. Ils sont liés par des analogies physiques profondes. Rappelons que la plus simple de ces analogies, celle dite de Colburn, énonce que les deux critères adimensionnels j_d et $f/2$, tout en variant en fonction du critère de Reynolds, restent égaux entre eux, soit (figure 3) :

$$j_d = f/2 = K_f \cdot \text{Re}^{-\alpha} \quad \text{avec} \quad \text{Re} \equiv \frac{ud}{\nu} \quad (V)$$

où d est une dimension caractéristique de la surface réactive : c'est le diamètre du tube d_t dans le cas d'un réacteur vide à paroi réactive ; c'est le diamètre des particules d_p dans le cas d'un réacteur à lit fixe ou fluidisé.

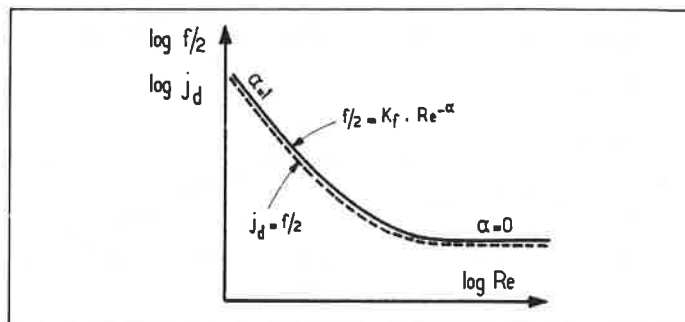


Figure 3. Cas de l'analogie de Colburn.

Nous supposons (provisoirement) que cette dimension d est une donnée, et que l'on fait varier l'aire réactive A en modifiant la longueur L du tube ou celle du lit poreux réactif.

Par substitution de V dans IV, on obtient l'expression suivante de la Consommation Opératoire Unitaire d'Énergie Mécanique :

$$\frac{\dot{W}}{\dot{P}} = K_1 A^{-\gamma} \quad \text{avec} \quad \gamma \equiv \frac{2}{1-\alpha} \quad (VI)$$

et

$$K_1 \equiv \dot{P}^\gamma K_f^{-\gamma} \rho \left[\frac{\nu}{d} \right]^3 \left[\frac{d}{\rho w_b D^{2/3} \nu^{1/3}} \right]^{1+\gamma} \quad (VII)$$

L'exposant γ peut théoriquement varier entre 2 (régime très turbulent) et $+\infty$ (cas du régime pleinement laminaire).

Pour un débit de production \dot{P} imposé, K_1 est une constante.

1.2. Écarts à l'analogie de Colburn : le critère de Lf

On sait (1) que l'analogie de Colburn n'est guère vérifiée que dans le cas de l'écoulement turbulent, piston, dans un tube cylindrique long, à parois lisses. Des écarts à cette analogie commencent à apparaître, dès que l'un des 5 mots-clés, en italiques ci-dessus, n'est plus respecté. Il s'agit notamment des cas où le transfert se fait dans les conditions suivantes :

- en régime laminaire,
- en écoulement avec mélange axial,
- dans un tube court, ou autour d'un obstacle,
- sur des parois rugueuses.

Dans tous ces cas, j_d est inférieur à $f/2$ *.

A titre d'exemple, la figure 4 montre les courbes, classiques, de transfert de matière et de quantité de mouvement entre un fluide et une particule sphérique isolée. La courbe supérieure donne le facteur de frottement par l'équation de Stokes-Newton généralisée (1) et les courbes en pointillés donnent le critère de Colburn J_d déduit de la formule de Froessling pour deux valeurs du

* Sauf, toutefois, dans le cas très exceptionnel, où le critère de Schmidt serait très inférieur à l'unité.

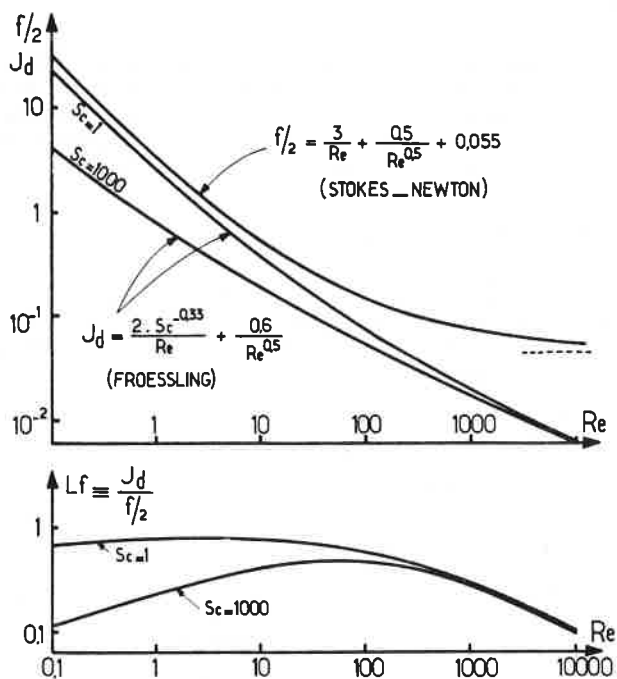


Figure 4. Transferts de matière et de quantité de mouvement à une sphère isolée.

critère de Schmidt. On voit que l'analogie de Colburn n'est pas respectée.

Deux auteurs (3) ont récemment proposé d'exprimer les écarts à l'analogie de Colburn, à l'aide d'un nouveau critère adimensionnel, qu'ils appellent Lf , pour rendre hommage à nos précédents travaux dans ce domaine (4).

Ils ont posé :

$$Lf_d \equiv \frac{J_d}{f/2} \quad \text{(VIII) } *$$

On voit que Lf a la signification d'un « rendement énergétique » : c'est le rapport d'un flux de transfert de matière à un flux de dégradation d'énergie.

La partie inférieure de la figure 4 montre que le critère de Lf passe par un maximum, tout en restant généralement compris entre 0,1 et 1.

1.3. Application aux particules fixes, fluidisées ou transportées

La figure 5 présente des réseaux de courbes de Lf en fonction de Re , pour des ensembles de particules sphériques, tels que nous les avons établis précédemment [(1) chapitre 7] à partir de données bibliographiques classiques.

Dans la partie supérieure se trouve le réseau de courbes pour un essai de particules très dispersées se comportant donc comme des particules isolées indépendantes les unes des autres. Le maximum de Lf , qui apparaît dans la zone intermédiaire ($Re \approx 10$ à 100) est bien accusé pour les liquides ($Sc \approx 1000$), mais presque inexistant pour les gaz TPN ($Sc \approx 1$).

Dans la partie inférieure se trouve le réseau de courbes pour le milieu poreux constitué d'un empilement de petites particules sphériques ($\epsilon = 0,4$). L'espace intermédiaire entre les 2 réseaux

* On définit de même pour le transfert de chaleur, le critère de Lf suivant : $Lf_t \equiv \frac{J_t}{f/2}$.

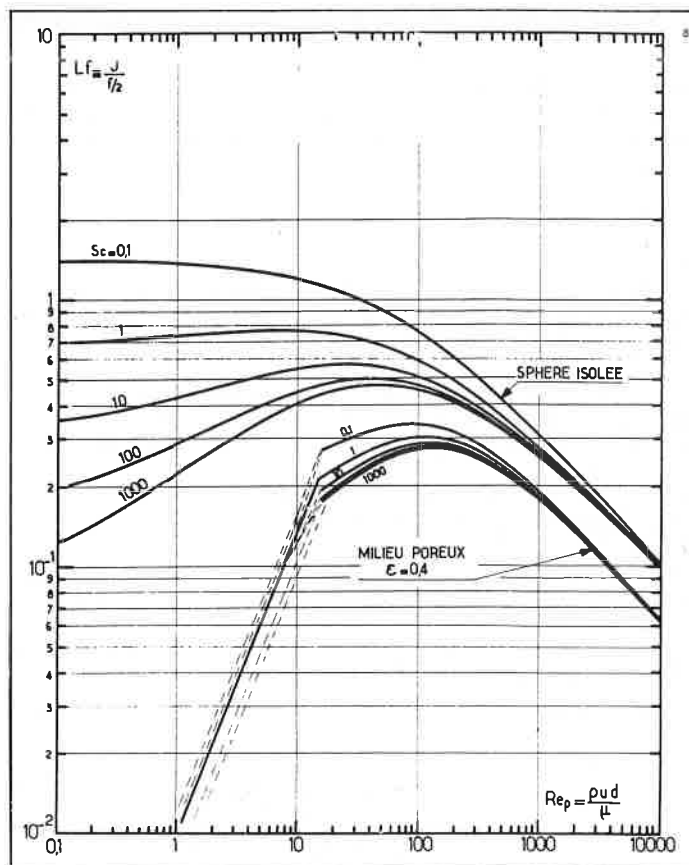


Figure 5. Critère de Lf exprimant l'écart à l'analogie de Colburn.

correspond à tous les ensembles fluidisés ou expansés à porosité variable entre 0,40 et 1. Le maximum de Lf est ici très accusé ; ceci est essentiellement dû à la chute brutale de k_d aux très faibles valeurs de Re , attribuée à la formation d'agrégats (6) ou de gros chenaux préférentiels (7) dans les empilements de très fines particules.

Dans un petit domaine de variation de Re , il est toujours possible « d'approximer » chacune de ces courbes par sa tangente locale. Cette approximation se traduit par les relations :

$$f/2 = K_f \cdot Re^{-\alpha} \quad \text{et} \quad J_d = K_j \cdot Re^{-\beta} \quad \text{(IX)}$$

Par substitution de IX dans IV, on en déduit l'expression de la Consommation Opératoire Unitaire d'Énergie Mécanique, soit en fonction de l'aire A , soit en fonction de Re . On trouve :

$$COUEM \equiv \frac{\dot{W}}{P} = K_2 \cdot A^{-\gamma} = K_3 \cdot Re^{+\delta} \quad \text{(X)}$$

avec :

$$\gamma = \frac{2 + \beta - \alpha}{1 - \beta} \quad \text{et} \quad \delta = 2 + \beta - \alpha$$

K_2 et K_3 sont des constantes dont les valeurs sont données en annexe.

Compte tenu des valeurs de α et β déduites de la figure 5, on voit que l'exposant γ vaut en moyenne : 5 à 7 en régime laminaire (avec une plage de variation entre 3 et 20) et il vaut en moyenne : 3 à 4 en régime très turbulent (avec une plage de variation de 2 à 5). L'exposant δ varie entre 1,5 à 2 en régime laminaire et 2 à 2,5 en régime très turbulent.

Dans tous les cas, la COUEM est une fonction décroissante de A et une fonction croissante de Re .

2. Énergétique du macro-mélangeage et des bi-passes

2.1. Le nombre d'unités de transfert-réaction

Plaçons-nous maintenant dans le cas général où la réaction chimique n'est pas infiniment rapide et où la concentration (ρw) du réactif n'est pas uniforme dans tout le volume, à la fois parce que la masse volumique ρ et le titre massique W varient de l'entrée à la sortie du réacteur. Soient $\rho_1 w_1$ et $\rho_2 w_2$ ses valeurs à l'entrée et à la sortie (figure 1). Soit $\overline{\rho w_b}$ sa valeur *moyenne*, sur la *bordure* extérieure de la couche limite diffusionnelle et soit $\overline{\rho w_a}$ sa valeur *moyenne* au contact même de la surface réactive A.

Écrivons qu'en régime stationnaire, le flux de production \dot{P} est donné par la triple relation écrite sur la 1^{ère} ligne de l'encadré n° 1 ci-dessous :

$\dot{P} = Ak_r \bar{\rho} \cdot \bar{w}_a = Ak_d \bar{\rho} (\bar{w}_b - \bar{w}_a) = Ak_c (\rho_1 w_1 - \overline{\rho w_b})$ (XI)		
↓	↓	↓
Conductance chimique	Conductance diffusionnelle	Conductance de transport convectif
↓	↓	↓
$N_r \equiv \frac{Ak_r \bar{\rho}}{\dot{M}}$	$N_d \equiv \frac{Ak_d \bar{\rho}}{\dot{M}}$	$N_c \equiv \frac{Ak_c \bar{\rho}}{\dot{M}}$ (XII)
Nombre d'unités de réaction	Nombre d'unités de transfert	Nombre d'unités de transport convectif

La 1^{ère} relation exprime que \dot{P} est donné par une réaction chimique du 1^{er} ordre, dont la « conductance » chimique est k_r .

La 2^e relation reprend l'expression (I) du paragraphe précédent et exprime que \dot{P} est proportionnel à la conductance diffusionnelle k_d .

La 3^e relation est originale : nous proposons en effet que, par analogie avec les deux cas précédents, les divers modes de transport convectif du réactif depuis l'entrée du réacteur, jusqu'à la bordure externe de la couche limite, soient représentés par un seul coefficient global k_c , qui aura également la signification et la dimension d'une conductance.

En multipliant chacune des 3 conductances par le rapport constant ($A\bar{\rho}/\dot{M}$) où \dot{M} est le débit massique entrant dans le réacteur, nous obtenons trois critères adimensionnels N_r , N_d , N_c , dont les 2 premiers sont bien connus : le second est le classique « Nombre d'Unités de Transfert » défini par Colburn il y a près de 50 ans, le premier est le « Nombre d'Unités de Réaction chimique », également utilisé assez fréquemment. Enfin le 3^e est un nouveau nombre, que nous proposons d'appeler, par analogie, le « Nombre d'Unités de Transport Convectif ».

Cette présentation symétrique des 3 phénomènes présente le grand intérêt de conduire à une relation très simple du rendement global de production du réacteur η défini comme suit :

$$\eta \equiv \frac{\dot{P}}{\dot{M} w_1} \quad (\text{XIII})$$

En effet l'élimination des concentrations entre les 3 relations de l'encadré 1 conduit à la relation suivante :

$$\frac{1}{\eta} = \frac{1}{N_r} + \frac{1}{N_d} + \frac{1}{N_c} \quad \text{avec} : \quad \frac{1}{N_r} + \frac{1}{N_d} = \frac{1}{N_{tr}} \quad (\text{XIV})$$

On peut considérer que l'inverse du rendement de production η du réacteur est une résistance globale, donnée par l'addition des 3 résistances partielles des processus linéaires en série.

Il sera souvent utile, pour les raisonnements ultérieurs, de grouper les deux premiers termes en un seul : N_{tr} est alors le « Nombre d'Unités de Transfert-Réaction ». Ce terme caractérise l'ensemble des phénomènes de *surface*, sur A, tandis que le 3^e terme caractérise les phénomènes de *volume*.

Ainsi, l'expression (XIV) se met encore sous la forme suivante :

$$\eta = \frac{N_{tr}}{1 + \frac{N_{tr}}{N_c}} \quad (\text{XV})$$

où le rapport N_{tr}/N_c servira précisément à évaluer l'importance relative des phénomènes de surface par rapport aux phénomènes de volume.

2.2. Un exemple : le réacteur soufflé à jets multiples

La figure 6 présente l'un des réacteurs les plus difficiles à modéliser : le lit peu épais de grosses particules soufflées par quelques puissants jets de gaz (\equiv multiple spouted bed). On y trouve simultanément :

- **des court-circuits** : certains filets de gaz traversent le réacteur sans entrer en contact avec les particules réactives,
- **du rétro-mélange** : une partie du gaz accompagne les particules en re-circulation, dans les espaces morts entre les buses d'injection,
- **une pression non uniforme** : la masse volumique du gaz est nettement plus forte à la sortie des buses.

Le concept de « Nombre d'Unités de Transport Convectif » permettra de modéliser globalement le phénomène.

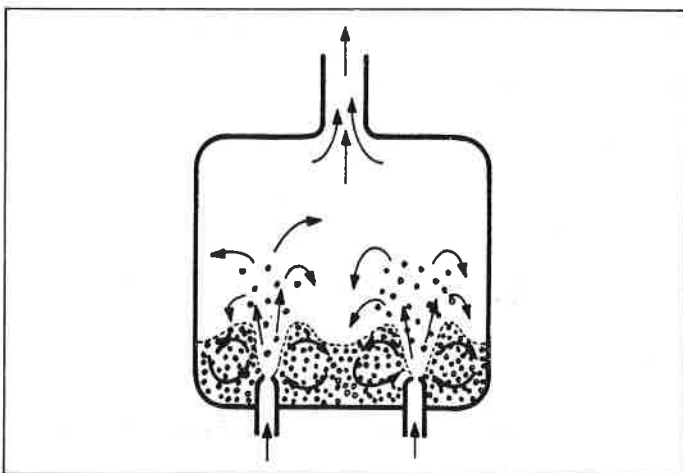


Figure 6. Lit soufflé à jets multiples.

2.3. Principales structures d'écoulement dans les réacteurs

Les principales structures hydrodynamiques correspondent à des valeurs remarquables du nombre N_c . Elles sont présentées sur la figure 7. Voici leurs principales propriétés :

- **le 1^{er} cas** : ($N_c \rightarrow \infty$) est celui d'une cellule où la surface réactive est frappée par un violent jet de gaz frais issu de la buse d'injection. Toutes les molécules entrent en contact avec la surface. La concentration $\overline{\rho w_b}$ est égale à $\rho_1 w_1$. L'aspiration est tellement forte que les molécules issues de cette surface sont immédiatement pompées (la pression en dehors du jet est très faible).
- **le 5^e cas** : ($N_c \rightarrow 0$) est celui d'une cuve à très fort court-circuit : presque tous les filets de fluide traversent le réacteur de l'entrée à la sortie, sans passer au contact de la surface réactive.

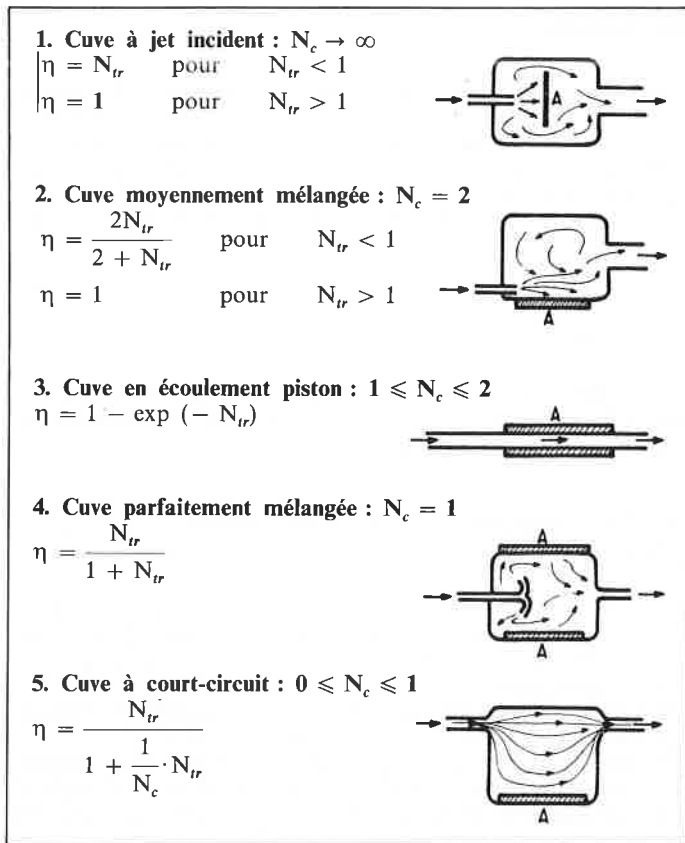


Figure 7. Les principales structures hydrodynamiques d'un réacteur hétérogène.

- le 4^e cas : ($N_c = 1$) est celui de la cuve parfaitement mélangée, classique : la masse volumique ρ et le titre massique w sont uniformes dans toute la cuve et égaux à leurs valeurs en sortie : $\overline{\rho w_b} = \rho_2 w_2$.
- le 2^e cas : ($N_c = 2$) est un important cas particulier des cuves qui sont moyennement mélangées, du fait de grands courants tourbillonnaires. $\overline{\rho w_b}$ est la moyenne arithmétique des concentrations d'entrée et de sortie : $\overline{\rho w_b} = \frac{1}{2}(\rho_1 w_1 + \rho_2 w_2)$.
- le 3^e cas est celui de la cuve en écoulement piston ($1 \leq N_c \leq 2$). C'est un autre cas extrêmement important de la famille des cuves

3. Bilan d'énergie mécanique

3.1. Expression générale de la « COUEM »

Nous sommes maintenant en mesure d'établir l'expression générale de la Consommation Opératoire Spécifique d'Énergie Mécanique, définie par le rapport : $COUEM \equiv \dot{W}/\dot{P}$. Nous y substituons l'expression III de \dot{W} et celle de \dot{P} déduite de XIII et XIV. Nous obtenons :

$$COUEM \equiv \frac{\dot{W}}{\dot{P}} = \frac{A \rho u^3 (f/2)}{\dot{M} w_1 \eta} \quad \text{soit encore :} \quad (XVI)$$

$$COUEM = \frac{A \rho u^3}{\dot{M} w_1} \cdot f/2 \cdot \left(\frac{1}{N_c} + \frac{1}{N_t} + \frac{1}{N_r} \right) \quad (XVII)$$

\downarrow convection
 \downarrow diffusion
 \downarrow réaction

Il est remarquable que la consommation d'énergie puisse ainsi se mettre sous forme de la simple addition de 3 termes (convection +

moyennement mélangées. Dans ce cas, le mélangeage est parfait radialement et nul axialement. On démontre classiquement que $\overline{\rho w_b}$ est la moyenne logarithmique des concentrations d'entrée et de sortie :

$$\overline{\rho w_b} = \frac{\rho_1 w_1 - \rho_2 w_2}{\text{Log} \left(\frac{\rho_1 w_1}{\rho_2 w_2} \right)} \quad (XVI)$$

La figure 8 montre le rendement de production en fonction du Nombre d'Unités de Transfert-Réaction N_{tr} pour diverses valeurs du paramètre N_c . On y reconnaît les divers cas du tableau précédent. La courbe inférieure est un exemple de réacteur avec un court-circuit partiel ($N_c = 0,5$). On trouve ensuite le fuseau classique, en hachuré, limité par les 2 cas extrêmes de la cuve parfaitement mélangée ($N_c = 1$) et de la cuve en écoulement piston. Un grand nombre de réacteurs expérimentaux tant industriels que pilotes, sont situés dans ce fuseau. Les deux courbes supérieures sont relatives au réacteur « moyennement » mélangé puis au réacteur à jet incident.

On trouvera ailleurs (5) une étude plus complète de la structure hydrodynamique des réacteurs.

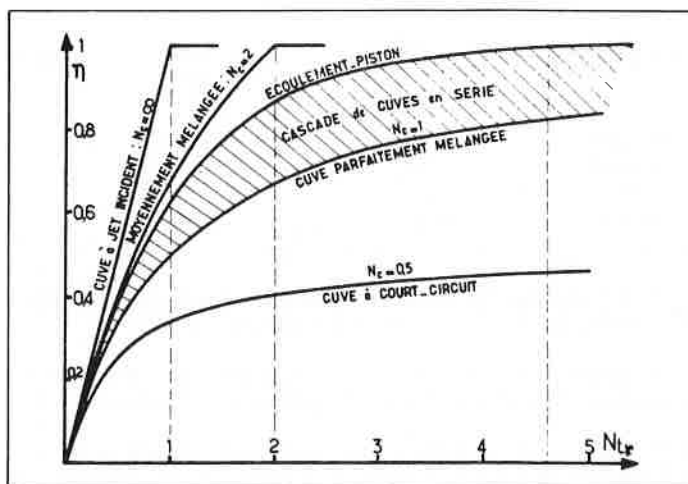


Figure 8. Rendement de production η , en fonction du Nombre d'Unités de Transfert-Réaction, pour diverses structures hydrodynamiques du réacteur.

diffusion + réaction), et non pas sous forme d'une combinaison non linéaire plus complexe. Cette additivité des 3 phénomènes va nous être précieuse pour distinguer facilement les 3 cas extrêmes où la consommation d'énergie viendra alternativement de chacun de ces 3 termes.

En explicitant u , $f/2$, N_t et N_r en fonction de Re , on obtient finalement 3 termes dont chacun est une fonction simple du critère de Reynolds. Tous calculs faits, on aboutit à :

$$COUEM = K_4 Re^{2-\alpha} + K_5 Re^{2+\beta-\alpha} + K_6 Re^{3-\alpha} \quad (XVIII)$$

où K_4 , K_5 , K_6 sont les coefficients constants donnés en annexe.

La figure 9 représente (réunis) les trois graphes des trois valeurs successives de la COUEM pour chacun des trois domaines opératoires. Il apparaît que la COUEM est toujours une fonction croissante de Re . De plus, l'exposant de Re croît lui-même avec Re puisqu'il passe de $(2 - \alpha)$ en régime de transport convectif à $(3 - \alpha)$ en régime de réaction chimique. Rappelons que $(-\alpha)$ est l'exposant de Re dans l'expression du facteur de frottement $f/2$ (figures 3 et 4); α varie entre 1 (régime laminaire et ≈ 0 (régime très turbulent).

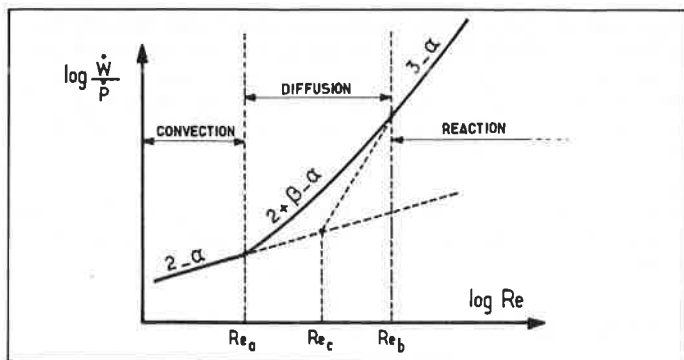


Figure 9. Les valeurs critiques de Re correspondant aux transitions entre les régimes de transport convectif, de diffusion et de réaction chimique sont respectivement les suivantes :

$$Re_a = \left[0,22 K_j \frac{A}{\Omega} \left(\frac{D}{v} \right)^{2/3} \right]^{1/\beta}, \quad Re_b = \left[\frac{1}{K_j} \cdot \frac{k_r d}{D} \cdot \left(\frac{D}{v} \right)^{1/3} \right]^{1/(1-\beta)}$$

$$Re_c = \frac{1}{4,6} \frac{AD}{\Omega v} \cdot \frac{k_r d}{D}$$

Les transitions entre ces 3 régimes sont données par les valeurs critiques Re_a , Re_b et Re_c dont les expressions sont données sur la figure 9.

3.2. Régimes de production

Sur la figure 10, nous avons représenté simultanément plusieurs grandeurs importantes, en fonction du critère de Reynolds, à

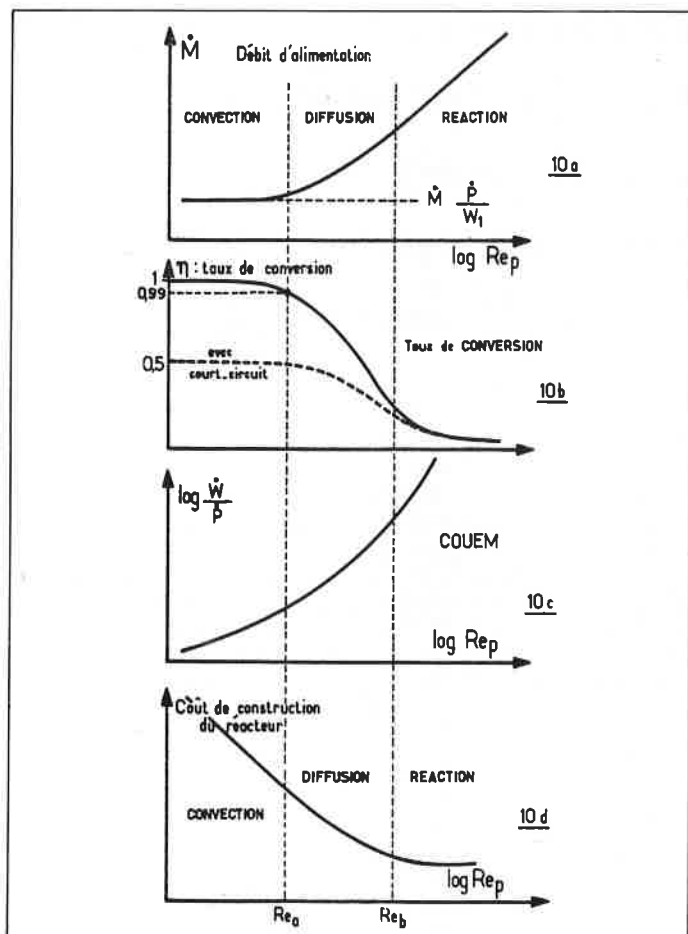


Figure 10.

savoir : le débit d'alimentation \dot{M} , le rendement de conversion η , COUEM, ainsi que le coût de construction du réacteur supposé fonction croissante de l'aire A de la surface catalytique (donc de la masse de catalyseur, pour une technique donnée).

Examinons successivement chacun des 3 régimes de production du réacteur.

a) Régime de transport convectif [$N_c \ll (N_i \text{ et } N_r)$]. Dans ce cas, les termes en $1/N_i$ et $1/N_r$ sont négligeables en comparaison du terme $1/N_c$. C'est le macromélangeage du cœur du fluide qui tient le principal rôle dans la consommation d'énergie.

La COUEM est alors indépendante des phénomènes de surface et elle est proportionnelle à $Re^{2-\alpha}$.

Le flux d'alimentation \dot{M} est constant et imposé par le flux de production : $\dot{M} = (\dot{P}/w_1)$.

b) Régimes de surface : [$N_c \gg (N_i \text{ et } N_r)$]. Dans ces cas, c'est le terme $1/N_c$ qui est négligeable devant $1/N_r$. La COUEM dépend principalement des phénomènes qui ont lieu sur ou au voisinage de la surface A . Deux sous-cas doivent alors être distingués :

• le régime de réaction chimique ($N_r \ll N_i$). Le flux de production \dot{P} est alors limité par la réaction chimique, qui est lente. Le flux d'alimentation est proportionnel à Re :

$$\dot{M} = \frac{\rho \Omega V}{d} Re \quad (XIX)$$

et la COUEM croît comme $Re^{3-\alpha}$.

• le régime de transfert diffusif ($N_i \ll N_r$). Le flux de production est limité par la résistance diffusifonnelle de la couche limite. \dot{M} croît moins vite que proportionnellement à Re . La COUEM croît comme $Re^{2+\beta-\alpha}$.

3.3. Inventaire des 5 cas de base

Sur la figure 11, nous avons représenté en abscisses les 3 régimes de production, en fonction de Re , avec leurs 2 valeurs de transition Re_a et Re_b .

Nous avons, d'autre part, porté en ordonnée, sur ce même graphe, les valeurs de Re qui correspondent aux limites classiques des régimes d'écoulement :

• régime « laminaire » pour $Re < Re_1$, pour lequel l'exposant α est égal à 1 et l'exposant β est généralement un peu inférieur à 1 : $\beta \approx 0,7 \pm 0,2$.

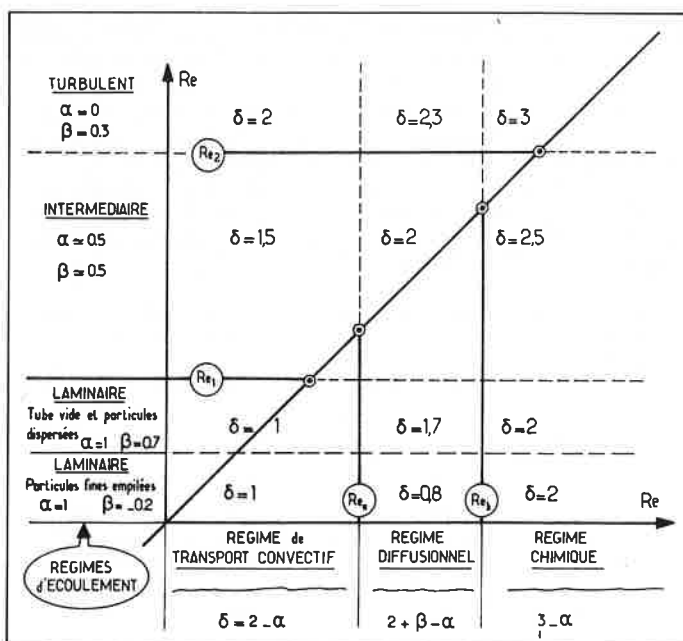


Figure 11. Régimes de production.

Nota : il est toutefois important de noter que l'exposant β est négatif, de l'ordre de $-0,2$, dans le cas particulier des lits fixes et des lits fluidisés de fines particules (voir paragraphe 1.3).

● régime « turbulent » pour $Re > Re_2$, pour lequel l'exposant α est nul ou tout au moins proche de zéro : $\alpha = 0,1 \pm 0,1$ et $\beta = 0,3 \pm 0,2$.

● régime « intermédiaire » (pour $Re_2 < Re < Re_1$) où les exposants α et β sont égaux ou tout au moins très voisins : $\alpha = 0,5 \pm 0,1$; $\beta = 0,5 \pm 0,1$.

Sur l'axe porté par la 1^{ère} diagonale de la figure 11, se placent les 4 points correspondant aux 4 valeurs caractéristiques de Re : Re_a , Re_b , Re_1 , Re_2 . On notera que ces 4 points ne sont pas nécessairement placés dans l'ordre où ils figurent sur ce graphe. En effet, pour un fluide donné, Re_a dépend du rapport A/Ω , donc de la forme géométrique du réacteur. D'autre part, pour une réaction chimique de conductance k , donnée, on peut jouer sur la dimension

d (par exemple sur le diamètre des particules) pour modifier Re_b . On peut donc modifier les valeurs Re_a et Re_b , non seulement pour les rendre égales l'une à l'autre, comme expliqué en (42), mais aussi pour les déplacer par rapport à Re_1 et Re_2 , ce qui changera la disposition relative et la longueur des 5 segments, ainsi découpés sur la première diagonale.

Dans chacun des 5 domaines ainsi séparés par les 4 valeurs critiques de Re , nous avons porté la valeur « locale » de l'exposant δ défini par (voir équation X) :

$$COUEM = K_3 \cdot Re^\delta \quad (XX)$$

On voit que δ peut varier entre 0,8 et 3, mais qu'il est généralement compris entre 2 et 3. De toute façon, cet exposant δ est toujours une fonction croissante de Re .

4. Optimisations énergétique et économique

L'ensemble des courbes de la figure 10 permet une discussion simple du problème énergéico-économique de la conception du « meilleur » réacteur et de ses conditions optimales de fonctionnement. Il n'est pas possible de proposer, ici, une méthode de recherche de l'optimum des optimums dans le cas général, car les variables sont trop nombreuses et les critères d'optimisation trop divers.

Nous ne donnerons ci-après que quelques indications qualitatives sur 3 cas typiques à titre d'exemples. Un exemple numérique a été traité dans une publication précédente (6).

4.1. 3 exemples typiques

(pour un flux de production \dot{P} imposé)

1^{er} exemple : supposons que le catalyseur soit très onéreux mais que la matière première M soit de faible valeur. On aura donc intérêt à concevoir un réacteur d'aire catalytique A aussi faible que possible même en acceptant un gaspillage de matière première, donc un faible rendement η . On décidera donc d'opérer en régime chimique. Mais pour minimiser quand même le gaspillage de M , on opérera au minimum du régime chimique, c'est-à-dire au point Re_b . Ceci aura, de plus, l'avantage de correspondre au minimum de consommation d'énergie : c'est donc un double optimum.

2^e exemple : supposons qu'au contraire la matière première M soit très onéreuse. Il ne saurait être question de la gaspiller et le rendement η devra impérativement être aussi proche que possible de l'unité. Il conviendra donc d'opérer en régime de convection sans court-circuit ($N_c > 1$). Mais, dans ce cas, deux critères seront en opposition : pour minimiser la consommation \dot{M} , on aurait intérêt à choisir Re aussi grand que possible soit en Re_a . Alors que pour minimiser la COUEM, on serait conduit à choisir Re aussi petit que possible. Un arbitrage entre ces deux objectifs sera nécessaire. Le choix de la valeur optimale de Re dépendra des « valeurs » respectivement attribuées par le décideur à la matière première \dot{M} et à l'énergie \dot{W} utilisée (2).

3^e exemple : considérons la synthèse des deux cas précédents, ce qui est d'ailleurs le cas le plus fréquemment rencontré. Supposons que l'on désire *simultanément* :

- minimiser le coût de l'équipement (c'est-à-dire la surface réactive A),
- maximiser le rendement η ,
- minimiser la COUEM : \dot{W}/\dot{P} .

D'après les raisonnements des 2 précédents exemples, il conviendrait, dans le cas présent, de se placer simultanément aux points Re_a et Re_b . Le premier objectif sera donc de rapprocher ces deux points jusqu'à les confondre en un seul Re_c quand cela sera possible, comme expliqué figure 9. On obtiendra ainsi simultanément : $\eta = 1$ et $\dot{M} = \dot{M}_{\min}$ (figure 10).

Le 2^e objectif sera de chercher les conditions qui minimisent Re_c , afin de minimiser la COUEM.

4.2. Application à un réacteur à lit fixe

Appliquons les concepts précédents à un réacteur catalytique à lit fixe ($\varepsilon = 0,4$) fait d'un empilement de grosses particules ($d_p > 1$ mm) très peu poreuses. Nous prendrons deux cas, celui d'un mélange gazeux dont le critère de Schmidt est égal à un et celui d'un mélange liquide, avec $Sc = 1000$. Les résultats de nos calculs sont rassemblés dans l'encadré suivant :

Conditions de suppression du régime diffusionnel dans un réacteur à lit fixe

avec : $\varepsilon = 0,4$, $d_p > 1$ mm.

- pour un gaz ($\nu/D = 1$)

$$Re_a = 1,6 \left(\frac{L}{d_p} \right)^2, \quad Re_b = 1,0 \left(\frac{k_r d_p}{D} \right)^2$$

$$Re_a \geq Re_b \Rightarrow \frac{L}{d_p} \geq 0,80 \frac{k_r d_p}{D}$$

- Pour un liquide ($\nu/D = 1000$)

$$Re_a = 8 \cdot 10^{-5} \left(\frac{L}{d_p} \right)^2, \quad Re_b = 7 \cdot 10^{-3} \left(\frac{k_r d_p}{D} \right)^2$$

$$Re_a \geq Re_b \Rightarrow \frac{L}{d_p} \geq 9,5 \frac{k_r d_p}{D}$$

Re_a est la valeur du critère de Reynolds à la limite supérieure du régime de convection. Re_a n'est fonction que du rapport L/d_p où L est l'épaisseur du lit catalytique.

Re_b est la valeur de Re à la limite inférieure du régime de réaction chimique. Re_b est une fonction du critère adimensionnel $k_r d_p / D$, parfois appelé « critère de Biot chimique ». Pour une réaction chimique de conductance k_r , donnée (donc, par exemple, à température donnée) Re_b est une fonction croissante du diamètre de particule d_p .

● Supposons qu'un premier objectif soit de *supprimer le régime diffusionnel* intermédiaire (source inutile de dégradation d'énergie) en faisant :

$$Re_a = Re_b = Re_c$$

dont les expressions sont données dans l'encadré.

Considérons, à titre d'exemple, une réaction avec un gaz ayant un critère de Biot chimique k_r/d égal à 100, effectuée sur des particules de 3 mm de diamètre : il faudra que le lit ait une

épaisseur minimale de 240 mm pour que le régime de diffusion disparaisse et que l'on ait :

$$Re_a = Re_b = Re_c \approx 10\,400$$

Cette condition est facile à réaliser. Pour les lits de particules d'épaisseur inférieure à 240 mm, les valeurs Re_a , Re_c , Re_b sont placées dans cet ordre croissant, comme sur la figure 10.

Supposons maintenant que ce même réacteur opère en phase liquide, avec $Sc = 1\,000$.

En supposant que l'on ait, encore ici, $Biot = 100$ et des particules de 3 mm, il faudrait un lit de particules de 2,85 mètres d'épaisseur pour supprimer le régime de diffusion.

En conclusion, on voit qu'il est relativement facile de supprimer le régime de diffusion dans le cas des gaz, surtout pour les réactions lentes (k_r petit), mais il est presque impossible de le faire pour les réactions en phase liquide, surtout pour les réactions ioniques qui sont très rapides.

● Supposons maintenant qu'un deuxième objectif soit de minimiser à la fois Re_a et Re_b , afin de diminuer la COUEM. Les relations de l'encadré montrent que pour atteindre ces objectifs, il faudra minimiser à la fois le diamètre d_p des particules et le rapport L/d_p . En conséquence, le réacteur optimal, préconisé par le raisonnement ci-dessus, serait la *galette infiniment mince faite de particules infiniment petites*, contenue dans un réacteur de section droite, infiniment large, comme montré sur la figure 12b.

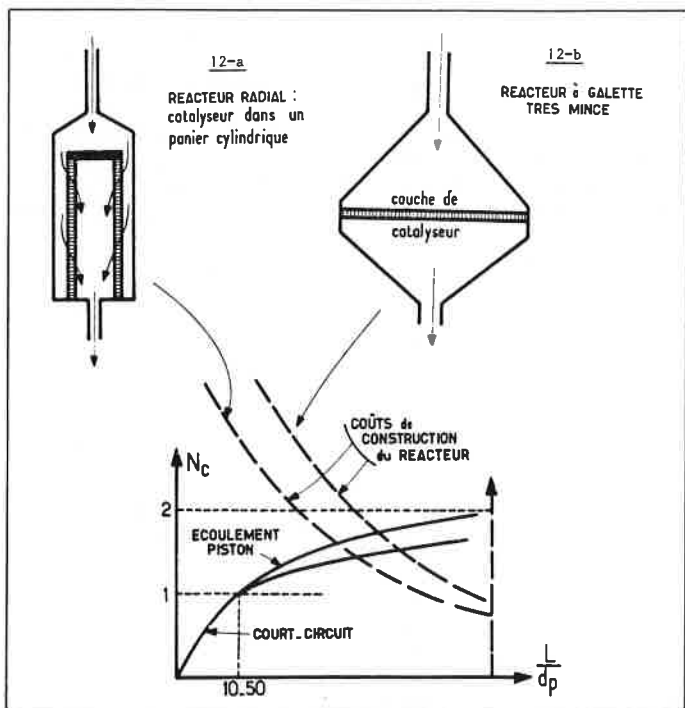


Figure 12. Réacteurs à couche mince de catalyseur.

Ceci n'est évidemment qu'un idéal asymptotique, résultant d'une optimisation théorique, mais il a cependant l'intérêt de montrer la direction dans laquelle les efforts doivent être portés.

Dans la pratique, la dimension minimale des particules d'un catalyseur sera déterminée par des contraintes techniques (de fabrication, de colmatage, d'entraînement,...). L'épaisseur L du lit catalytique sera déterminée par les contraintes suivantes :

a) si le rapport L/d_p est trop faible, l'épaisseur L ne reste pas uniforme, et il se forme des chemins préférentiels par où le fluide s'écoule en *court-circuitant* le contact avec le solide : le Nombre d'Unités de Transport Convectif N_c devient inférieur à 1 (figure 12). Il ne nous est pas possible de donner ici une valeur absolue et générale du minimum de L/d_p , qui évite ces court-circuits. On peut

seulement énoncer que cette valeur est habituellement comprise entre 10 et 50.

b) de plus, pour une masse donnée de catalyseur, le coût de construction d'un réacteur est une fonction croissante de sa section droite. C'est pourquoi on réalise plutôt maintenant des réacteurs à *écoulement radial* (figure 12a) où la couche mince de catalyseur est contenue dans un panier cylindrique, lui-même contenu dans un corps de colonne de forme classique et donc moins onéreux.

4.3. Conséquences pour la recherche du réacteur optimal

a) Il faudra abandonner le régime chimique

Tant que l'énergie n'a pas été considérée comme une grandeur précieuse, les ingénieurs concevaient les réacteurs avec des vitesses d'écoulement des fluides suffisamment grandes pour éviter tout freinage diffusif ou convectif : les réacteurs, ainsi conçus pour fonctionner en régime chimique, étaient de petite dimension ; leur coût de construction était donc faible, mais leur consommation d'énergie était forte.

Il n'est pas inutile de rappeler que, toutes choses égales par ailleurs, le régime chimique est toujours obtenu pour les plus grandes valeurs du critère de Reynolds, comme le montre la figure 10. C'est donc dans ce régime que la *consommation opératoire d'énergie* est, en valeur relative, la plus grande. Nous avons montré (5) qu'elle représente toujours 10 à 30 % du coût total optimisable.

On peut certainement prévoir que la tendance, au cours des prochaines années, sera de dessiner des réacteurs de dimensions plus grandes, donc plus onéreux, mais consommant moins d'énergie. Pour ce faire, il faudra probablement *accepter que le réacteur ne fonctionne plus en régime chimique, mais avec un certain freinage convectif ou diffusif*. La méthode de raisonnement développée ici permet précisément d'effectuer l'arbitrage optimal entre ces facteurs. (Notons que le fait d'abandonner le régime chimique, entraînera en général une diminution de la sélectivité. Et ceci devra aussi être pris en compte).

Bien entendu, cette conclusion n'est valable que pour un état donné de la technologie. Il sera évidemment toujours préférable de chercher à diminuer simultanément les dimensions du réacteur et sa consommation d'énergie... Mais ceci est un objectif de recherche scientifique et technique, et non plus un problème d'optimisation économique.

b) Attention aux courts-circuits

Cherchant ainsi à réduire la chute de pression du fluide à la traversée d'un lit poreux, fixe ou fluidisé, on sera naturellement conduit à concevoir des réacteurs qui, pour une masse donnée de catalyseur, seront de plus en plus minces et donc de plus en plus larges. Mais une mince « galette » de particules est instable, elle est le siège de bulles, de renardages, donc de forts courts-circuits de la réaction désirée. Le modèle mathématique ici proposé prend en compte ces phénomènes, et permet d'évaluer l'influence, néfaste, de ces courts-circuits sur le bilan énergétique du système.

c) Faire mieux que l'écoulement piston

On considère habituellement, en génie chimique, que, pour un Nombre d'Unités de Transfert-Réaction donné, c'est le réacteur en écoulement piston qui a le plus fort rendement, donc la plus faible consommation d'énergie. Mais ceci suppose implicitement que la masse volumique du fluide est uniforme dans toute une section droite du réacteur.

La présente étude montre qu'il est théoriquement possible d'obtenir un rendement encore meilleur, grâce à une distribution anisotrope du fluide (supposé gazeux) en le dirigeant préférentiellement vers les surfaces réactives. Il existe déjà des réacteurs de laboratoire fonctionnant selon ce principe, mais, à notre connaissance, encore aucun réacteur industriel.

Conclusion : le domaine étudié et ses limites

Rappelons que nous avons étudié l'optimisation d'une classe restreinte de réacteurs chimiques, fonctionnant dans des conditions précises :

- il s'agit de réacteurs *hétérogènes* fluide-solide, avec *un seul* fluide en écoulement,
- le réacteur opère en régime *permanent*,
- le flux de production \dot{P} est *imposé*,
- la *sélectivité* de la réaction est supposée constante.

L'optimisation porte alors sur le taux de conversion η (\equiv au rendement) du réacteur. Il s'agit de minimiser la dépense totale, qui est la somme pondérée du coût de construction du réacteur, lui-même (fonction de l'aire de la surface réactive), du coût de la matière première et du coût de l'énergie mécanique dégradée, qu'elle provienne de la chute de pression du fluide ou d'un agitateur rotatif.

Remarque 1 : du fait que le flux de production \dot{P} est imposé, le flux de chaleur apporté (réaction endothermique) ou emporté (réaction exo-thermique) est à peu près constant. Il n'intervient pas dans l'optimisation.

Remarque 2 : habituellement, la température de fonctionnement d'un réacteur est choisie, soit pour une raison cinétique ou

thermodynamique (par exemple : limitation par une réaction concurrente), soit pour une raison technique (limitation par la durée de vie du catalyseur), mais rarement pour une raison énergétique. C'est pourquoi nous ne l'avons pas fait intervenir dans la présente optimisation.

Remarque 3 : nous avons supposé que le produit P était formé dans une réaction unique du premier ordre. Cette importante restriction nous a permis d'exprimer la consommation d'énergie sous une forme remarquable : la forme d'une simple addition de trois termes (convection + diffusion + réaction). Cette additivité des 3 phénomènes a été fort précieuse pour discuter les conditions optimales de 'fonctionnement. Le lecteur, qui souhaiterait transposer la présente méthode au cas plus général d'une cinétique d'ordre quelconque, se heurterait sans doute à de grandes difficultés de calcul. Nous lui recommandons de commencer plutôt par assimiler sa réaction à une réaction équivalente du 1^{er} ordre, afin de conserver la linéarité du système. Il lui sera toujours facile d'introduire ensuite un terme correctif d'écart à la linéarité. Cette procédure approximative est d'autant plus justifiée que la réaction chimique elle-même n'est pas l'objet principal de la présente étude ; elle n'est qu'une donnée constante du problème.

A ces réserves près, la plupart des concepts présentés dans ce travail sont suffisamment généraux pour être transposables à d'autres types de réacteurs.

Bibliographie

(1) P. Le Goff, (Coordonnateur) « Énergétique industrielle », Éditeur : Technique et Documentation, Lavoisier, Paris. Vol. 1, « Analyse thermodynamique et mécanique des économies d'énergie » (1979).

(2) Vol. 2 « Analyse économique et optimisation des procédés » (1980).

(3) J. M. Engasser et C. Horvath, *Ind. Eng. Chem. Funds*, 1975, **14**, 107.

(4) P. Le Goff, *Chim. et Industrie-Génie Chimique*, 1970, **103**, 1805 et 103, 1959.

(5) P. Le Goff, *Chem. Eng. Science*, 1980, **35**, 2029-2063, Proceeding of ISCRE-6, Nice, mars 1980.

(6) P. Le Goff et N. Midoux, *Comptes rendus du « 1^{er} Congreso Mediterraneo de ingeniera quimica »*, Barcelone, 21-24 novembre 1978.

Le profil

- Vous êtes ingénieur-chimiste ou équivalent.
- Vous êtes dynamique, aimez les contacts et les déplacements.
- Vous êtes un homme de terrain, vous aimez la vente.
- Vous avez quelques années d'expérience de laboratoire et de vente.
- Vous avez 32 ans minimum.
- Vous pratiquez l'anglais, avez des connaissances en Basic, en électronique.

Le poste

Spectra-physics France vous propose un poste de **chef des ventes** dans sa Division physico-chimique. Rattaché directement au Directeur de la filiale, il aura la mission suivante :

- animer et gérer un groupe de vente,
- développer la clientèle,
- gérer son budget annuel,
- coordonner les efforts de vente et d'après-vente sur tout le territoire français.

Nous offrons

- une rémunération intéressante,
- une voiture, frais de déplacement remboursés,
- un voyage en Californie tous les 3 ans environ,
- un plan d'achat d'actions,
- un cadre de travail agréable (cafétéria, etc.).

Envoyez votre C.V. avec photo et prétentions à **Spectra-physics France ZA de Courtabœuf, BP 28, 91941 Les Ulis Cedex.**