

## CONTROLE D'UN REACTEUR INDUSTRIEL CATALYTIQUE OPERANT SELON UNE CONFIGURATION AUTO-THERMIQUE

Reçu le 10/02/1999 – Accepté le 17/04/2001

### Résumé

Dans cet article, on considère le contrôle d'un réacteur catalytique à lit fixe adiabatique, opérant selon une configuration auto-thermique. Le réacteur étudié est de type industriel et constitue le siège de la réaction d'oxydation du dioxyde de soufre ( $\text{SO}_2$ ), en vue de la production de l'anhydride sulfurique ( $\text{SO}_3$ ).

L'algorithme de contrôle utilisé est celui à commande prédictive généralisée (GPC). Une stratégie de contrôle couramment utilisée, pour les réacteurs à lit fixe catalytique, consiste à contrôler la température maximale catalytique afin d'éviter tout emballement ou extinction de la réaction chimique. Une autre stratégie de contrôle qu'on a étudiée est celle qui consiste à contrôler la capacité de production, ou rendement, du réacteur. Ces deux stratégies de contrôle ont été appliquées au réacteur. Il a été trouvé que la stratégie consistant à contrôler la capacité de production du réacteur était préférable à celle consistant à contrôler la température maximale catalytique.

**Mots clés :** réacteur, autothermique, adiabatique, catalyseur, réaction d'oxydation, commande prédictive généralisée.

### Abstract

The objective of the work is the control of an industrial catalytic fixed bed reactor. A common control strategy used for catalytic fixed bed reactor consists in controlling the maximum catalyst temperature in order to avoid the blow up and extinction of the chemical reaction. We have also studied a control strategy, which consists in controlling the reactor production capacity.

These two control strategies were applied to an industrial  $\text{SO}_2$  oxidation reactor, operating with a single fixed bed configuration and with an autothermal configuration. It was found that the control of the production capacity is better than the catalyst temperature control.

**Mots clés :** réacteur, autothermique, adiabatique, catalyseur, réaction d'oxydation, commande prédictive généralisée.

**C. BENDJAOUAHDOU**  
**M.S. KOUTCHOUKALI**  
Département de Chimie Industrielle  
Université Mentouri  
Constantine, Algérie  
**K. BELARBI**  
Département d'Electronique  
Université Mentouri  
Constantine, Algérie

### ملخص

يهدف عملنا إلى إيجاد وسيلة لمراقبة مفاعل صناعي ذي طبقة حافز ثابتة ويشغل حسب مظهر حراري ذاتي. قمنا بتصميم برنامج يسمح بمراقبة المفاعل يعتمد على طريقة التحكم التنبؤية المعممة. إن إستراتيجية المراقبة كثيرة الإستعمال فيما يخص المفاعل ذي طبقة حافز ثابتة، و التي تتمثل في مراقبة درجة الحرارة الأعظمية للحافز، هذا لغرض تقادي تزايد حرارة أو إطفاء التفاعل الكيماوي. كما قمنا بدراسة إستراتيجية مراقبة أخرى والتي تتمثل في مراقبة القدرة الإنتاجية للمفاعل. طبقت هاتين الإستراتيجيتين بنجاح على مفاعل صناعي لأكسدة ثاني أكسيد الكبريت و توصلنا إلى أن إستراتيجية مراقبة القدرة الإنتاجية أنجع من الإستراتيجية التي تراقب درجة حرارة الأعظمية للحافز.

**الكلمات المفتاحية:** مراقبة، مفاعل، مظهر حراري ذاتي، لا حراري، حافز التحكم التنبؤي المعمم. تفاعل تأكسد.

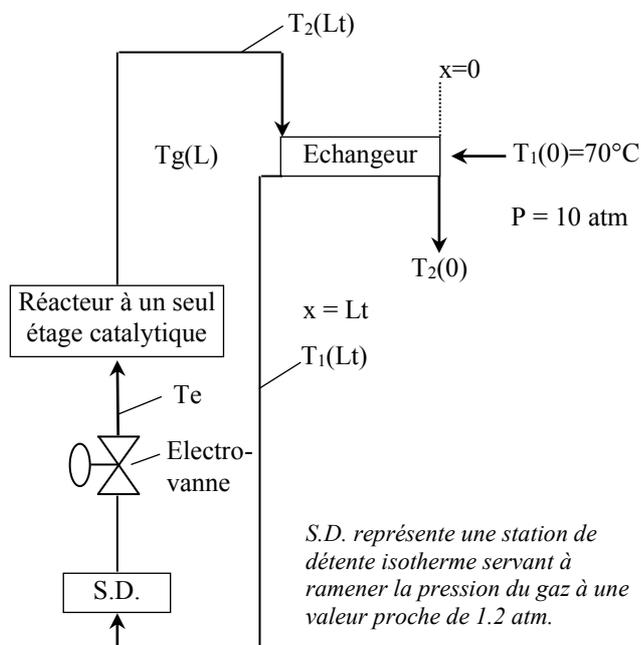
Le réacteur catalytique à lit fixe adiabatique est un type d'appareillage communément utilisé dans l'industrie chimique en vue de la mise en œuvre de divers procédés chimiques, tels que l'oxydation de l'anhydride sulfureux ( $\text{SO}_2$ ) pour l'obtention de l'anhydride sulfurique ( $\text{SO}_3$ ). Le réacteur, opérant selon une configuration auto-thermique, est couplé à un échangeur de chaleur, multitubulaire, où a lieu l'échange thermique entre l'effluent gazeux quittant le réacteur et la charge réactionnelle alimentant celui-ci. L'échangeur considéré dans cette étude est à un seul passage côté calandre.

L'opération auto-thermique consiste en la récupération de la chaleur générée par la réaction chimique afin de préchauffer la charge réactionnelle jusqu'à une température d'enclenchement de la réaction chimique.

Dans cette étude, on va coupler les deux modèles dynamiques du réacteur et de l'échangeur selon la configuration illustrée par la figure 1. On précisera les conditions limites et initiales en tenant compte du couplage auto-thermique. On appliquera l'algorithme de commande prédictive généralisée au procédé obtenu en vue de réaliser son contrôle.

### LE REACTEUR CATALYTIQUE A LIT FIXE ADIABATIQUE

Le réacteur catalytique à lit fixe adiabatique, typique, se présente sous forme d'une enceinte cylindrique de diamètre 8.6 mètres. Il est formé d'un empilement compact et immobile de grains catalytiques [1].



**Figure 1:** Réacteur catalytique autothermique.

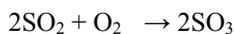
L'adiabaticité du réacteur est réalisée en recouvrant sa paroi extérieure par une couche d'un isolant thermique (ciment réfractaire). La paroi interne est isolée par une couche de briques réfractaires.

### Nature et caractéristiques du catalyseur employé

Les catalyseurs employés pour réaliser l'oxydation de l'anhydride sulfureux (SO<sub>2</sub>) sont à base de pentoxyde de vanadium (V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>), activé par un promoteur alcalin généralement le potassium avec, comme support, de la silice. Un point commun à tous ces catalyseurs est la fourchette de température à l'intérieur de laquelle ils sont actifs, comprise entre 400 et 650°C [2]. Au-delà de 650°C, le catalyseur employé commence à perdre ses qualités catalytiques.

### Expression de la cinétique de la réaction chimique

Le schéma réactionnel de l'oxydation du SO<sub>2</sub> est comme suit:



Cette réaction est fortement exothermique, presque totale, la pression opératoire étant voisine de celle atmosphérique. La variation d'enthalpie est importante, avoisinant 8.89 10<sup>4</sup> K.J/Kmole. L'expression de la cinétique est comme suit [3]:

$$r = \frac{K_1 \cdot P_1 \cdot P_2 \left[ 1 - \frac{P_3}{P_1 \cdot P_2^{1/2} \cdot K_p} \right]}{22.414 \left[ 1 + K_2 \cdot P_1 + K_3 \cdot P_3 \right]^2}$$

avec:

$$\begin{aligned} K_1 &= e^{[12.16 - (5473/T)]} \\ K_2 &= e^{[-9.953 + (8619/T)]} \\ K_3 &= e^{[-71.745 + (525265/T)]} \\ K_p &= e^{[(11300/T) - 10.68]} \end{aligned}$$

où  $r$  est la vitesse de la réaction (Kmole de SO<sub>3</sub>/kg.heure),  $T$  est la température de la phase solide catalytique (K), et  $P_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) les pressions partielles (atm).

### Le mélange réactionnel

Le mélange réactionnel, en phase gazeuse, alimente le réacteur d'une manière descendante. La production de l'anhydride sulfurique (SO<sub>3</sub>) a pour but la synthèse de l'acide sulfurique (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) par absorption de l'anhydride sulfurique dans l'acide sulfurique concentré, conduisant à la formation d'une molécule d'acide sulfurique. La composition molaire moyenne du mélange réactionnel, considérée dans notre étude, est telle que [2] N<sub>2</sub>: 79%, O<sub>2</sub>: 11% et SO<sub>2</sub>: 10%.

### Le point de fonctionnement du réacteur

Le point de fonctionnement du réacteur est défini par les valeurs suivantes [4]:

$$\begin{aligned} L &= 0.48 \text{ m}, & \lambda_e &= 0.465 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}, \\ D &= 8.6 \text{ m}, & \alpha &= 151 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}, \\ S &= 568 \text{ m}^2.\text{m}^{-3}, & \Delta H &= 8.89 \cdot 10^4 \text{ KJ/K mole}, \\ \varepsilon_c &= 0.5, & C_{p,eff} &= 2.1 \text{ KJ.Kg}^{-1}.\text{K}^{-1}, \\ \rho_u &= 620 \text{ Kg.m}^{-3}, & d_p &= 1.8 \text{ mm}, \\ n_g &= 47.65 \text{ Kmole.m}^{-2}.\text{h}^{-1}, \end{aligned}$$

La température du réacteur doit être supérieure à 430°C. La pression du mélange réactionnel gazeux d'alimentation est de 1.2 atmosphère.

## MODELE DYNAMIQUE DU REACTEUR

### Introduction

Il existe deux classes de modèles dynamiques décrivant le réacteur catalytique à lit fixe [5]:

- Le modèle pseudo homogène dans lequel les deux phases en présence sont supposées former une phase unique. Les bilans matières et enthalpiques sont alors établis en ne tenant compte que de cette seule phase.

- Le modèle hétérogène dans lequel la distinction est faite entre les deux phases et les bilans établis séparément.

Pour le réacteur à lit fixe industriel, le modèle hétérogène semble être le plus approprié [6].

### Le modèle

Dans le modèle dynamique global, seuls les gradients axiaux des grandeurs physiques seront pris en considération, les gradients radiaux ont été négligés. A l'échelle du grain catalytique, il a été supposé une température et une concentration uniformes.

Dans le but de simplifier le modèle dynamique global, K. Gosiewski [4] adopte les hypothèses suivantes:

#### Concernant les bilans de matière:

- Une répartition homogène des concentrations, ou fractions molaires, des réactifs dans chaque particule catalytique; absence de toute accumulation massique au sein de la

$$\text{phase gazeuse} \left( \frac{\delta C_i}{\delta t} \right) = 0.$$

- Tout terme spécifiant une dispersion axiale sera négligé. Ceci est une conséquence directe de l'occurrence d'un

écoulement piston à travers l'empilement catalytique.

Concernant les bilans thermiques:

- absence de toute accumulation de chaleur dans la phase

$$\text{gazeuse } \left( \frac{\delta Tg}{\delta t} \right) = 0;$$

- substitution de la conductivité thermique de la phase solide catalytique,  $\lambda_s$ , par la conductivité thermique globale effective,  $\lambda_e$ .

En tenant compte de ces simplifications, le modèle dynamique simplifié [4] s'écrit:

$$ngC_{pg} \left( \frac{\delta Tg}{\delta t} \right) + \alpha \cdot S(Tg - Tk) = 0 \quad (1)$$

$$\lambda_e \frac{\delta^2 Tk}{\delta x^2} - \rho u C_{ps} \cdot \frac{\delta Tk}{\delta x} + \alpha \cdot S(Tg - Tk) + \Delta H \cdot r \cdot \rho u = 0 \quad (2)$$

$$ng \frac{\delta C_i}{\delta x} + r_i \cdot \rho u = 0 \quad (i = 1, 2, 3) \quad (3)$$

Les équations (1) et (3) sont des problèmes différentiels du type de Cauchy, donc aisément intégrables par la méthode de Runge-Kutta du quatrième ordre. L'équation (2) a été résolue par la méthode implicite de Crank-Nicolson [7,8].

### Conditions initiales et aux limites

#### - Conditions initiales

Le modèle dynamique du réacteur est constitué d'un système de cinq équations aux dérivées partielles avec les variables dépendantes:  $Tg$ ,  $Tk$ ,  $C_1$ ,  $C_2$ , et  $C_3$ .

$Tk(x, 0) = Tg(x, 0) = f(x)$ ; ( $0 \leq x \leq L$ ) où  $f(x)$  est une distribution initiale arbitraire de la température, à travers le lit catalytique.

#### - Conditions aux limites

L'extrémité  $x = 0$  sera celle par où pénètre le mélange réactionnel dans la masse catalytique pour se dégager à l'autre extrémité  $x = L$ .

Pour  $x = 0$ , on a:

$$C_1(0, t) = C_{1in}(t).$$

$$C_2(0, t) = C_{2in}(t), \quad C_3(0, t) = C_{3in}(t),$$

$$\lambda_e \frac{\delta Tk}{\delta x} = (1 - \epsilon_c) \cdot h [Tk(0, t) - Tg_{in}]$$

$$ng \cdot C_{pg} \cdot [Tg_{in} - Tg(0, t)] = (1 - \epsilon_c) \cdot h [Tg_{in} - Tk(0, t)]$$

avec  $Tg(0, t) = Tg_{in}(t)$ .

Pour  $x = L$ , on a :

$$ng \cdot C_{pg} \cdot [Tg(L, t) - Tg_{out}] = (1 - \epsilon_c) \cdot h \cdot [Tg_{out} - Tk(L, t)] \cdot \frac{\delta Tk}{\delta x} = 0$$

### L'ÉCHANGEUR MULTITUBULAIRE

Il serait avantageux d'utiliser l'énergie dégagée par le réacteur pour préchauffer le mélange réactionnel gazeux alimentant le réacteur jusqu'à une température voisine de 400°C en le couplant directement à un échangeur de chaleur obtenant ainsi un système autothermique (Fig. 1). L'échangeur multitubulaire est très utilisé car il offre de grandes surfaces d'échange thermique dans un volume relativement réduit. Il existe plusieurs types d'échangeurs multitubulaires, selon le nombre de passage côté tube. La configuration la plus simple d'un échangeur multitubulaire

est celle de type 1-1 où l'on a un seul passage (de fluide) côté tubes et un seul passage côté calandre. Le dimensionnement de l'échangeur a été effectué de sorte à satisfaire le point de fonctionnement du réacteur.

Dans ce qui suit, nous présenterons un modèle dynamique pour cette dernière configuration.

### Modèle dynamique de l'échangeur

Dans ce modèle, les hypothèses suivantes ont été considérées:

1/ l'accumulation de la chaleur dans le calandre et dans les tubes est suffisamment élevée pour justifier toute omission de l'accumulation de chaleur dans les deux milieux gazeux.

$$\frac{\delta T_1}{\delta t} = 0 \quad \text{et} \quad \frac{\delta T_2}{\delta t} = 0$$

2/ La conduction axiale de chaleur le long de chaque tube est négligée.

Le modèle dynamique de l'échangeur [4] se présente comme suit:

$$v_1 \cdot C_{p1} \cdot \frac{\delta T_1}{\delta x} + (T_1 - T_i) \cdot \pi \cdot d_i \cdot h_i = 0 \quad (4)$$

$$(T_1 - T_i) \cdot \pi \cdot d_i \cdot h_i + (T_2 - T_i) \cdot \pi \cdot d_0 \cdot h_0 - \frac{\delta T_1}{\delta t} \cdot m_t \cdot C_{pt} = 0 \quad (5)$$

$$v_2 \cdot C_{p2} \cdot \frac{\delta T_2}{\delta x} + (T_2 - T_i) \cdot \pi \cdot d_0 \cdot h_0 + (T_2 - T_s) \cdot \pi \cdot d_e \cdot h_e = 0 \quad (6)$$

$$(T_2 - T_s) \cdot \pi \cdot d_e \cdot h_e - \frac{\delta T_s}{\delta t} \cdot m_s \cdot C_{ps} = 0 \quad (7)$$

### Conditions initiales et aux limites

#### ▪ Conditions initiales:

A l'instant  $t = 0$ , on a :

$$T_1(x, 0) = f_1(x), \quad T_2(x, 0) = f_2(x),$$

$$T_s(x, 0) = f_3(x), \quad T_i(x, 0) = f_4(x); \quad (0 \leq x \leq L_i)$$

Les fonctions  $f_1, f_2, f_3$  et  $f_4$  sont des distributions initiales de température.

#### ▪ Conditions aux limites:

L'échangeur opérant à contre courant, on a:

$$\text{à } x = 0 : T_1(0, t) = g_1(t), \quad \text{et à } x = L_t : T_2(L_t, t) = g_2(t)$$

avec  $x = 0$ , l'entrée du fluide froid 1 (Fig. 1).

L'obtention des quatre profils de température  $T_{1ij}$ ,  $T_{2ij}$ ,  $T_{sij}$  et  $T_{ij}$  se fera en appliquant la méthode de Runge-Kutta du quatrième ordre aux équations (4) à (7).

### MODELE DYNAMIQUE GLOBAL

Le modèle dynamique représentant le réacteur autothermique sera constitué du modèle dynamique du réacteur et de celui de l'échangeur multitubulaire. Dans ce qui suit, on va coupler les deux modèles dynamiques du réacteur et de l'échangeur (Fig. 1).

### Démarrage et fonctionnement du procédé autothermique

Une fois le réacteur ayant effectué un démarrage à froid et atteint un régime stationnaire, on fait en sorte que la température du gaz réactionnel,  $T_1(0)$ , soit de 70°C.

#### Conditions initiales du procédé autothermique

▪ Pour le réacteur:

A  $t = 0$ :

$$Tk(x, 0) = Tg(x, 0) = 440^\circ\text{C}; (0 \leq x \leq L).$$

• Pour l'échangeur:

$$\begin{aligned} T_1(x, 0) &= 70^\circ\text{C} & T_2(x, 0) &= 619^\circ\text{C} \\ T_i(x, 0) &= [T_1(x, 0) + T_2(x, 0)]/2 = 344.5^\circ\text{C} \\ T_3(x, 0) &= 619^\circ\text{C} (0 \leq x \leq L_i) \end{aligned}$$

### Conditions limites du procédé autothermique

• Concernant le réacteur:

Pour  $x = 0$ :

$$\begin{aligned} C_i(0, t) &= C_{i\text{in}}(t) \quad (i = 1, 2, 3) \\ Tg(0, t) &= T_1(L_i, t) = Te \\ \lambda e \frac{\delta Tk}{\delta x} &= 0 = (1 - \varepsilon_c) \cdot h \cdot [Tk(0, t) - Tg_{\text{in}}(t)] \end{aligned}$$

avec :  $Tg_{\text{in}}(t) = T_1(L_i, t) = Te$

$$\text{Pour } x = L: \quad \frac{\delta Tk}{\delta x} = 0$$

• Concernant l'échangeur:

$$T_1(0, t) = 70^\circ\text{C}, T_2(L_i, t) = Tg(L, t)$$

### LA METHODE DE COMMANDE GPC

Le calcul de la commande prédictive généralisée GPC est basée sur un modèle CARIMA (Controlled-Auto-Regressive-Integrated-Moving-Average):

$$A(q^{-1})y(t) = q^{-d} B(q^{-1})u(t) + C(q^{-1})e(t)/\Delta$$

$A(q^{-1}), B(q^{-1}), C(q^{-1})$  sont des polynômes en  $q^{-1}$ :

$$\begin{aligned} A(q^{-1}) &= 1 + a_1 q^{-1} + \dots + a_{na} q^{-na} \\ B(q^{-1}) &= b_0 + b_1 q^{-1} + \dots + b_{nb} q^{-nb} \\ C(q^{-1}) &= 1 + c_1 q^{-1} + \dots + c_{nc} q^{-nc} \end{aligned}$$

où  $y(t)$  et  $u(t)$  sont respectivement les grandeurs de sortie et de commande du système, l'une mesurée, l'autre calculée.  $q^{-1}$  est l'opérateur de retard,  $d$  est le retard entrée-sortie.

La GPC consiste à minimiser un critère de performance quadratique:

$$J = \sum_{j=n_1}^{n_j} \mu [y(t+j) - r(t+j)]^2 + \sum_{k=0}^{N_y-1} \lambda \Delta u(t+k-1)^2 \quad (8)$$

sous la contrainte  $\Delta u(t+j+Nu) = 0$ , où  $N_y \leq 1$  est l'horizon de sortie,  $Nu \leq N_y$  est l'horizon de contrôle;  $\mu$  et  $\lambda$  sont des paramètres de conception réels, non négatifs;  $r(t+g)$  est la trajectoire de référence future.

L'objectif de la commande est de rechercher la séquence optimale  $\Delta u(t+i-1)$  pour  $i=1, \dots, Nu$  qui minimise la fonction coût ( $J$ ). Dans ce contexte à horizon fuyant, à chaque instant d'échantillonnage, seul le premier incrément de commande est appliqué. Le prédicateur à  $J$  pas est obtenu en séparant les informations passées et futures par l'utilisation des deux équations diophantiennes suivantes:

$$C(q^{-1}) = E_j(q^{-1}) \cdot A(q^{-1}) \cdot \Delta(q^{-1}) + q^j \cdot F_j(q^{-1}) \quad (9)$$

$$E(q^{-1}) \cdot B(q^{-1}) = G_j(q^{-1}) \cdot C(q^{-1}) + q^j \cdot \Gamma_j(q^{-1}) \quad (10)$$

où  $E_j$  et  $F_j$  sont des polynômes définis de manière unique par division polynomiale de  $C$  par  $A\Delta$ ; le degré de  $E_j$  est  $j-1$  et  $F_j$  est le reste de cette division. Les  $G_j$  sont des polynômes définis de manière unique respectivement par la division polynomiale de  $E_j B$  par  $C$ ;  $\Gamma_j$  est le polynôme qui

contient les  $j-1$  premiers termes de la réponse indicielle de  $B/\Delta A$ . En associant judicieusement les équations (8), (9) et (10) on obtient le prédicateur sous forme matricielle:

$$Y(t) = G(t) \cdot \Delta \cdot U(t) + F(t)$$

Avec:

$$\begin{aligned} Y(t) &= [y(t+1/t), y(t+2/t), \dots, y(t+N_y/t)] \\ \Delta U(t) &= [\Delta u(t), \Delta u(t+1), \dots, \Delta u(t+N_u-1)]^T \\ F(t) &= [f(t+1), f(t+2), \dots, f(t+N_y)]^T \end{aligned}$$

La solution du problème d'optimisation est donnée par [9]:

$$\Delta U(t) = \{G(t)^T \mu J G(t) + \lambda I\}^{-1} \{R(t) - F(t)\}$$

### SIMULATION NUMERIQUE DU CONTROLE DU REACTEUR AUTO-THERMIQUE PAR LA METHODE GPC

Le réacteur est soumis à des perturbations de natures diverses, se matérialisant par des fluctuations aléatoires des paramètres opératoires tels que les fractions molaires des réactifs ou la température de la charge réactionnelle gazeuse. Afin de prévenir tout emballement ou extinction de la réaction chimique et d'éviter l'apparition de zones chaudes catalytiques susceptibles de causer une baisse notable de l'activité catalytique, une stratégie de contrôle couramment utilisée consiste à réguler la température maximale catalytique. Dans ce paragraphe, on appliquera cette stratégie en utilisant comme grandeur de commande le débit volumique traversant le lit catalytique. De plus, nous étudierons une autre stratégie qui consiste à contrôler la capacité de production du réacteur en utilisant également le débit volumique comme grandeur de commande. Nous analyserons les effets des perturbations sur le réacteur en boucle ouverte et en boucle fermée pour les deux stratégies.

Les perturbations que nous allons considérer sont principalement dues aux variations dans l'alimentation du réacteur.

#### Réacteur auto-thermique en boucle ouverte

La figure 2 illustre l'évolution dynamique de la température maximale catalytique et du taux de conversion. On constate que la température atteint une valeur stationnaire au bout de 1.5 heure et la conversion, une valeur de 63.9%.

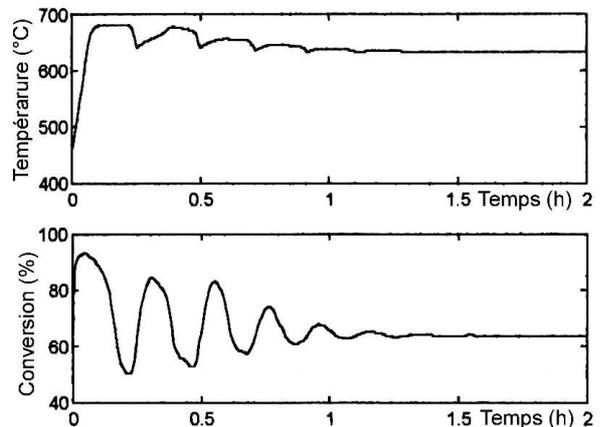
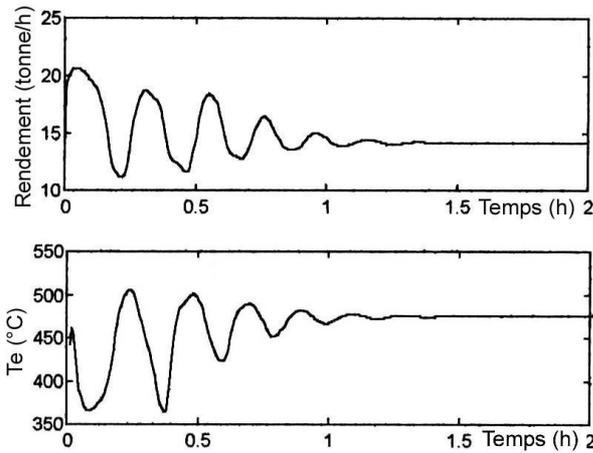


Figure 2: Réacteur en boucle ouverte sans perturbations.



**Figure 3:** Réacteur en boucle ouverte.

La figure 3 illustre l'évolution de la capacité de production du réacteur. Celle-ci atteint une valeur stationnaire de 14.14 tonnes/heure au bout de 1.5 heure. Les oscillations de la température maximale catalytique, de la conversion et du rendement s'expliquent par les oscillations de la température du gaz d'alimentation du réacteur ( $T_e$ ) qui sont dues au couplage du réacteur et de l'échangeur, et donc, à l'interdépendance qui existe entre les températures  $T_g(L)$  et  $T_e$  (Fig.1).

En conclusion, on peut d'affirmer que le réacteur autothermique est un système stable.

### Régulation de la température maximale catalytique

Le système (réacteur auto-thermique) à été identifié au moyen d'une séquence binaire pseudo-aléatoire (SBPA). Il a été trouvé que le système était du second ordre ( $n_a = 2$ ;  $n_b = 1$ ).

La fonction de transfert trouvée est telle que:

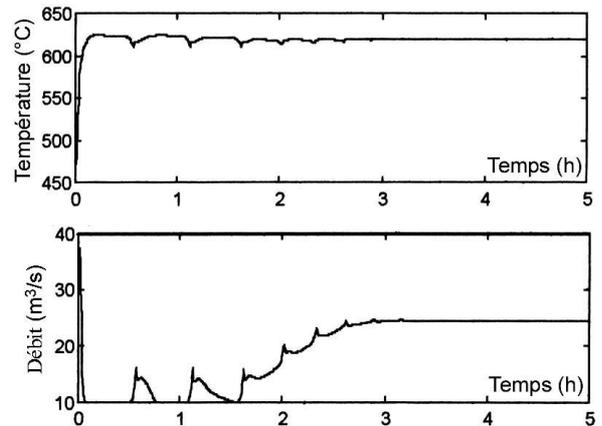
$$G(z^{-1}) = z^{-1} \cdot (0.417 + 0.34 \cdot z^{-1}) / (1 - 0.988 \cdot z^{-1} + 0.019 \cdot z^{-2}).$$

Après quelques essais, on a adopté les valeurs suivantes des paramètres de la GPC:  $N_1=1$ ;  $N_2=15$ ;  $\lambda=45$ ;  $Nu=1$ .

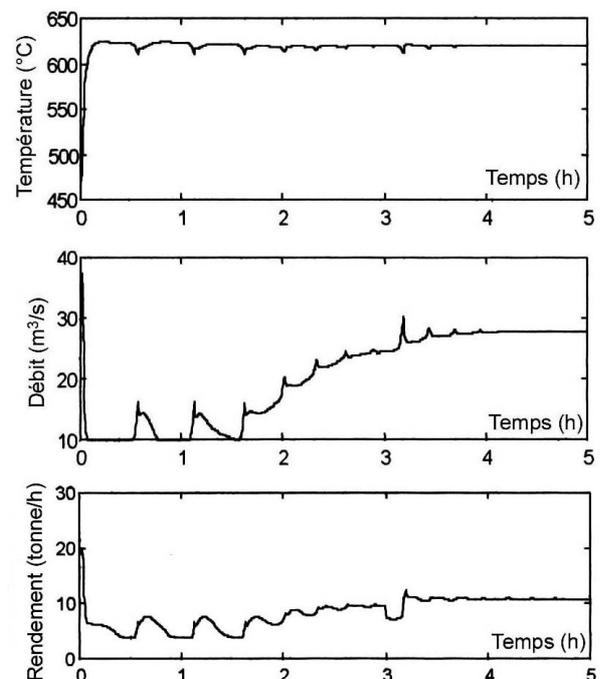
La figure 4 traduit le cas d'une régulation de la température maximale catalytique à 620°C. La sortie signal oscille faiblement autour de cette valeur avant de s'y stabiliser au bout de 2 heures. Les pics que présente le signal de contrôle sont dues aux oscillations de la température de la charge réactionnelle gazeuse ( $T_e$ ). Le signal de contrôle a été limité entre 37.45 et 10m<sup>3</sup>/s.

La figure 5 illustre le cas d'une régulation de la température maximale catalytique à 620°C, avec une perturbation relative à  $C_{1e}$  de -25%. On remarquera que l'algorithme de commande arrive à atténuer rapidement l'effet de la perturbation précitée. Les pics présentés par le signal de contrôle sont dus aux pics que présente l'évolution dynamique de la température de la charge réactionnelle gazeuse ( $T_e$ ). Le rendement du réacteur subit une baisse considérable. On peut, alors conclure que

malgré la réalisation de la régulation de la température maximale catalytique, le rendement du réacteur reste



**Figure 4:** Régulation de la température, sans perturbations.



**Figure 5:** Température de consigne: 620°C. Injection à 3h d'une perturbation sur  $C_{1e}$  ( $C_{1e} = 0.1$ ) durant 10 mn, valant -25°C.

totalément influençable par les perturbations relatives à la teneur des réactifs.

### Régulation du rendement du réacteur

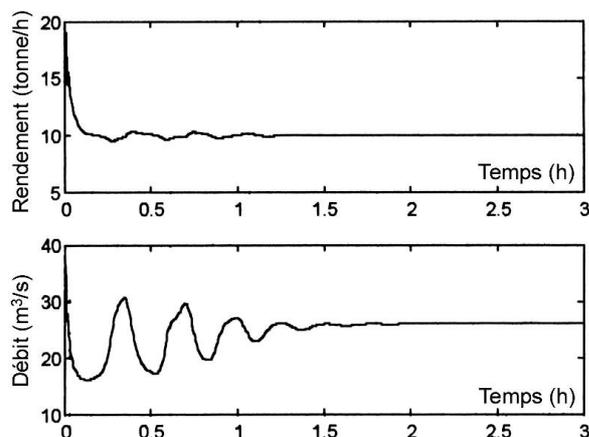
Pour le contrôle du réacteur, le capteur utilisé est un analyseur d'oxygène. Un tel dispositif analyse l'effluent gazeux quittant le réacteur afin de déterminer la teneur résiduelle en oxygène moléculaire. Le réacteur autothermique a été identifié en boucle ouverte. La fonction de transfert déterminée est:

$$G(z^{-1}) = z^{-1} \cdot (0.247 - 0.235 \cdot z^{-1}) / (1 - 0.78 \cdot z^{-1} - 0.189 \cdot z^{-2})$$

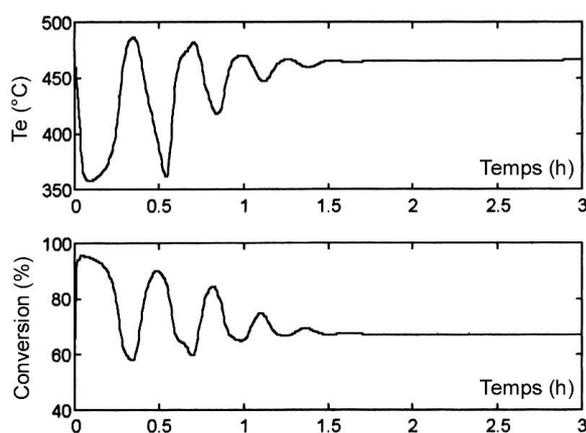
Les paramètres de la méthode GPC ont été posés tels que:

$$N_1 = 1, N_2 = 10, \lambda = 3, Nu = 1.$$

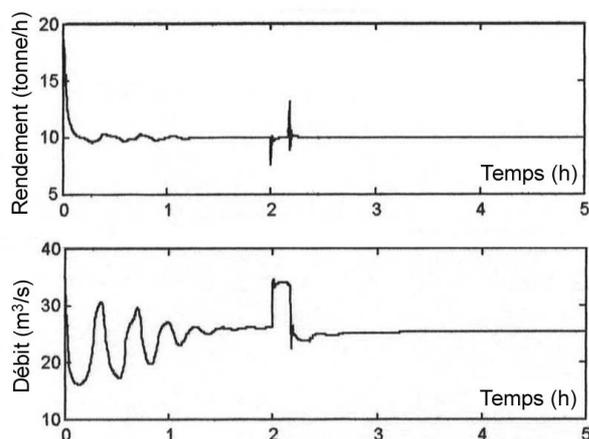
La figure 6 illustre le cas où la régulation, à 10 tonnes/heure, du rendement est appliquée, avec une période d'échantillonnage valant 30 secondes. La figure 7 montre clairement que les oscillation du signal de contrôle sont dues au oscillations de la température du gaz d'alimentation du réacteur, ( $T_e$ ).



**Figure 6:** Régulation à 10 tonnes/h, sans perturbations.

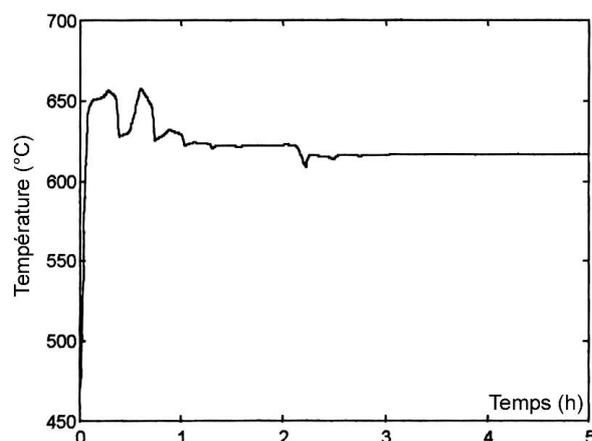


**Figure 7:** Température et conversion avec régulation de tonnage.



**Figure 8:** Régulation à 10 tonnes/h. Injection d'une perturbation sur  $C_{1e}$  ( $C_{1e} = 0.1$ ) à 2 h, durant 10 mn, valant  $-25^\circ\text{C}$ .

La figure 8 illustre le cas de la régulation de rendement du réacteur en présence d'une perturbation de  $-25\%$  sur  $C_{1e}$ . On note que l'algorithme de commande arrive à atténuer rapidement l'effet de la perturbation. Le signal de commande quant à lui, évolue d'une manière régulière. La température maximale catalytique comme, le montre la figure 9, subit une faible baisse sous l'effet de la perturbation injectée, avant de reprendre sa valeur stationnaire.



**Figure 9:** Régulation de rendement à 10 tonnes/h et injection d'une perturbation sur  $C_{1e}$  ( $C_{1e} = 0.1$ ) à 2 h, durant 10 mn, valant  $-25^\circ\text{C}$ .

## CONCLUSION

La version industrielle du réacteur catalytique à lit fixe qu'on a étudié présente une stabilité thermique considérable lors de son fonctionnement. Cette stabilité thermique se traduit par l'absence de tout emballement ou extinction de la réaction chimique. Les deux stratégies de contrôle appliquées au réacteur, à savoir la régulation de température maximale catalytique et celle du rendement du réacteur, ont donné des résultats acceptables. Malgré la capacité d'autorégulation que manifeste le réacteur, on relève que le rendement du réacteur fluctue notablement sous l'action des perturbations. En effet, pour des teneurs en réactifs inférieures aux nominales, le rendement subit des baisses très importantes, d'où la nécessité de réguler la capacité de production du réacteur.

Par ailleurs, la régulation de la température maximale catalytique n'impliquant pas la régulation du rendement du réacteur, ce qui constitue donc le principal inconvénient de cette stratégie de contrôle.

Pour un contrôle efficace de la version industrielle étudiée du réacteur catalytique à lit fixe, nous préconisons le recours à la régulation du rendement du réacteur, car une telle approche permet d'optimiser la production du réacteur en s'opposant aux effets des perturbations relatives aux teneurs des réactifs.

## Nomenclature

- $C_1$  : fraction molaire de  $\text{SO}_2$ .
- $C_2$  : fraction molaire de  $\text{O}_2$ .

$C_3$  : fraction molaire de  $SO_3$ .  
 $C_4$  : fraction molaire de  $N_2$ .  
 $C_{p_g}$  : chaleur spécifique molaire du gaz ( $J/mole.K^{-1}$ )  
 $C_{p_s}$  : chaleur spécifique massique du solide catalytique ( $J/mole.K^{-1}$ )  
 $C_i^*$  : fraction molaire d'un constituant  $A_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ), évaluée à la surface du grain catalytique.  
 $C_{p_{seff}}$  : chaleur spécifique massique effective du catalyseur ( $J/mole.K^{-1}$ ).  
 $D$  : diamètre du réacteur.  
 $d_p$  : diamètre équivalent moyen des particules catalytique (m).  
 $ng$  : débit molaire superficiel total d'alimentation ( $mole/m^2.s^{-1}$ ).  
 $H$  : coefficient de transfert thermique, par convection forcée, entre le gaz et le solide catalytique ( $W/m^2.K$ ).  
 $K_1, K_2, K_3$ : constantes de vitesse de la réaction.  
 $K_p$  : constante d'équilibre chimique.  
 $L$  : épaisseur du lit catalytique (m).  
 $PT$  : pression totale opératoire(atm).  
 $P_i$  : ( $i = 1, 2, 3$ ) pression partielle d'un constituant (atm).  
 $R$  : vitesse de la réaction chimique ( $mole/Kg.s^{-1}$ ).  
 $r_i$  : vitesse de la réaction chimique rapportée au constituant  $A_i$  ( $mole\ de\ A_i/Kg.s^{-1}$ ).  
 $S$  : surface spécifique du catalyseur ( $m^2/m^3$ ).  
 $T_g$  : température de la phase gazeuse ( $^{\circ}C$  ou  $K$ ).  
 $T_g(L)$  : température du gaz à la sortie du lit catalytique.  
 $T_k$  : température de la phase solide catalytique ( $^{\circ}C$  ou  $K$ ).  
 $\lambda_s$  : conductivité thermique du solides catalytique ( $W/m.K^{-1}$ ).  
 $\lambda_e$  : conductivité thermique effective du solide catalytique ( $W/m.K^{-1}$ ).  
 $\rho_u$  : masse volumique du lit catalytique ( $Kg/m^3$ ).  
 $\Delta H$  : variation d'enthalpie accompagnant la réaction chimique ( $J/mole$ ).  
 $\varepsilon_c$  : porosité du lit catalytique.  
 $d_i$  : diamètre interne d'un tube (m).  
 $d_o$  : diamètre externe d'un tube (m).  
 $d_s$  : diamètre interne de la calandre (m).  
 $d_e$  : diamètre équivalent de la calandre:  $d_e = d_s/N_t$ (m).  
 $ng_e$  : débit molaire total traversant l'échangeur.  
 $H_i$  : coefficient de transfert thermique par convection entre le gaz 2 et la surface interne de chaque tube ( $W/m^2.K^{-1}$ ).  
 $h_o$  : coefficient de transfert thermique par convection entre le gaz 2 et la surface externe de chaque tube ( $W/m^2.K^{-1}$ ).  
 $h_s$  : coefficient de transfert thermique par convection entre la paroi interne de la calandre et le gaz 2 ( $W/m^2.K^{-1}$ ).  
 $v_1$  : débit molaire du gaz 1 circulant à l'intérieur de chaque tube ( $mole/s$ ).  
 $v_2$ : débit molaire du gaz 2 circulant entre quatre tubes formant un carré ( $mole/s$ ).  
 $m_s$  : masse d'un mètre linéaire de la calandre ( $Kg/m$ ).  
 $m_t$  : masse d'un mètre linéaire de chaque tubes ( $Kg/m$ ).  
 $L_t$  : longueur de chaque tube (m).  
 $N_t$  : le nombre total des tubes logés à l'intérieure de la calandre.  
 $T_1$  : température du gaz 1 ( $^{\circ}C$ ).  
 $T_2$  : température du gaz 2 ( $^{\circ}C$ ).  
 $T_s$  : température de la calandre ( $^{\circ}C$ ).  
 $T_t$  : température de la paroi constitutive d'un tube ( $^{\circ}C$ ).

$T_1(0)$ : température du gaz 1(froid) à l'entrée des tubes.

$t$  : variable de temps (s).

$x$  : abscisse, dimensionnelle, comptée à partir de l'entrée du lit catalytique, et comptée à partir de l'entrée du gaz 1 pour l'échangeur (m).

### Indices:

1 : spécifie le dioxyde de soufre ( $SO_2$ ).

2 : spécifie l'oxygène moléculaire ( $O_2$ ).

3 : spécifie le dioxyde de soufre ( $SO_3$ ).

4 : spécifie l'azote moléculaire ( $N_2$ ).

$i$  : fait référence à un point du maillage.

$j$  : fait référence à une itération du temps.

$e$  : spécifie l'alimentation du réacteur.

$In$  : spécifie l'alimentation du réacteur.

$Out$ : spécifie la sortie du lit catalytique.

L'indice 1, fait référence au gaz 1, circulant à l'intérieur de chaque tube.

L'indice: 2, fait référence au gaz 2, circulant à l'extérieur des tubes (c'est-à-dire, à l'intérieur de la calandre).

### Exposant:

L'exposant «\*» spécifie une grandeur physique évaluée à la surface du grain catalytique.

## RÉFÉRENCES

- [1]- Shirma C.S. and Hughes R., "The behaviour of an adiabatic fixed bed reactor of the oxidation of carbon monoxid-I, "Chemical engineering science", vol. 34, pp. 613-624.
- [2]- Vidon B., "Calcul des réacteurs catalytiques production d'anhydride sulfurique", Encyclopédie: Technique de l'Ingénieur (J4030-1, J4030-8).
- [3]- Froment G.F and Bichoff K.B., "Chemical reactor analysis and design", Wiley, New York (1979).
- [4]- Krzysztof Gosiewski, "Dynamic modelling of industrial  $SO_2$  oxidation reactors. Part I. Model of 'hot' and 'cold' start-ups of the plant", *Chemical engineering and processing*, 32, (1993), pp. 111-129.
- [5]- Trambouze P., Van Landeghem H., Wauquier J.P., "Les réacteurs chimiques conception/calcul/mise en œuvre", Collection « Science et technique du pétrole », N°26 (1984).
- [6]- Villermaux J., "Génie de la réaction chimique, conception et fonctionnement des réacteurs", Technique et documentation (Lavoisier) (1982).
- [7]- M. Necati Özusk, "Heat conduction", John Wiley & Sons (1979).
- [8]- Suhas. V. Patankar, "Numerical heat transfer and fluid flow", Mc Graw-Hill (1980).
- [9]- Clarke D.W., Mohtadi C. and Tuffs P.S., "Generalized engineering predictive control - Part I, the basic algorithm", *Automatica*, Pergamon Journal Ltd., Vol. 23, N° 2, (1987), pp 137-148. □

