



Ecole Nationale Polytechnique
Département de Génie Chimique

Thèse de Doctorat en Sciences

Option : Génie Chimique

Présentée par :

HENINI Ghania

Ingénieur d'Etat en Chimie Industrielle de l'Université Dr Yahia Fares, Médéa
Magister en Génie des Procédés de l'Université Dr Yahia Fares, Médéa

Intitulé

Développement d'outils pour le suivi et le contrôle optimal des réacteurs discontinus

Soutenu publiquement devant le jury composé de :

Présidente :	DERRICHE Ratiba	Professeur	ENP, Alger
Rapporteur :	SOUAHI Fatiha	Professeur	ENP, Alger
Examineurs :	BENDJABALLAH-LALAOUI Nadia	MCA	USTHB, Alger
	BOUAZIZ Mohamed Nadjib	Professeur	Univ., Médéa
	ILLOUL Rachid	MCA	ENP, Alger
	KREA Mohamed	Professeur	Univ., Médéa

ENP 2013

Dédicace

Je dédie ce modeste travail à :

- *Mes chers parents, d'abord*
 - *Mon mari, père de ma fille*
- *Ma fille Ritedj Amalia*
 - *Mes frères est sœurs*
- *Tous ceux et celles qui me sont chers*
 - *Avec toute mon affection*
- *A tous ceux qui m'ont soutenu de près ou de loin.*

Remerciements

Au terme de cette thèse, je tiens à remercier, en premier lieu, **ALLAH Le Tout Puissant** qui m'a donné la santé, la force, le courage et la patience pour bien mener ce travail.

Cette étude a été réalisée sous la direction de Madame **Fatiha SOUABI**, Professeur à l'Ecole Nationale Polytechnique. Je tiens à lui témoigner ma profonde gratitude pour la bienveillance dont elle a toujours fait preuve à mon égard, pour le temps important qu'elle a consacré à cette étude, pour son extrême patience et sa disponibilité. Ses conseils, ses compétences dans plusieurs domaines et ses qualités humaines ont grandement contribué aux résultats obtenus. J'espère que beaucoup après moi auront la chance de l'avoir comme encadrant.

Je suis très reconnaissante envers **Mme Ratiba DERRICHE**, Professeur à l'Ecole Nationale Polytechnique, pour avoir accepté de présider le jury.

Que Madame **Nadia BENDJABALLAH-LALAOUI**, Maitre de Conférences à l'USTHB, Messieurs **Mohamed Nadjib BOUAZIZ** et **Mohamed KREA**, Professeurs à l'Université de Médéa et Monsieur **Rachid ILLOUL**, Maitre de Conférences à l'Ecole Nationale Polytechnique, reçoivent toute ma reconnaissance et mon profond respect pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant d'examiner mon travail

J'exprime ma profonde gratitude à Monsieur le Professeur **Michel Cabassud** de l'IUT Génie Chimique de Paul Sabatier de Toulouse, pour m'avoir accueillie au sein de son laboratoire (Génie Chimique UMR 5503 CNRS/INPT/UPS).

Un grand merci à Monsieur **Hassan HAMMOURI** qui m'a permise d'effectuer un séjour dans son laboratoire (LAGEP) à Lyon pour faire quelques expériences nécessaires à la réalisation de cette étude.

Enfin, je ne saurais terminer sans oublier de remercier mon père, ma mère et mon mari et tous ceux qui m'ont encouragée et supportée tout au long de cette recherche.

"تطوير الأدوات اللازمة لرصد ومراقبة الأمثل للمفاعلات دفعة"

ملخص

هذا العمل يتناول السلوك الحراري للذئيفة مفاعل مزدوج دفعة مزودة نوع التدفئة / التبريد أحادية السوائل. يدور مع معدل تدفق ثابت، من خلال سترة. يتم توفير التدفئة والتبريد على التوالي بواسطة قضيب التدفئة واثنين من المبادلات الحرارية لوحة. ويستند في التحكم في درجة الحرارة على استراتيجية لإدارة الوزن من خلال تحليل وحدة حرارية حدود تدفق الحرارة ودرجة الحرارة من تعديل للسهم الواحد على قوة التدفئة هو سعر الافتتاح صمام ثلاثي الانجراف نحو ممر مبادل. وقد استخدم مفاعل 1 لتر للتحقق من صحة المحاكاة في هذه الدراسة وبشكل متوازن وهذا نموذج محاكاة للمفاعل - وقد تم تطوير النظام الحراري. درسنا نوع من السيطرة المتقدمة والتنبؤية مراقبة وظيفية مع سياسة التحكم المتتالي. وتشير الدراسة إلى أن تطبيق هذه الخوارزمية يعطي نتائج جيدة وذلك مع الأخذ بعين الاعتبار القوى المحركة للأجهزة مختلفة بشكل كبير على تحسين نوعية الركوب. وبالإضافة إلى ذلك وتطبيق الحرارة لدفع حدوث تفاعل كيميائي طارد للحرارة يدل على أن التنبؤ وإدراج الحرارة في نموذج يمكن أن يحسن النتائج. وأظهرت هذه الدراسة أيضا أن قياس الجاذبية وتقنيات الكروماتوغرافي (CPG) يمكن تطبيقها على السيطرة على ردود فعل البلمرة في الكالوري حل في مفاعل دفعة واحدة.

كلمات مفاتيح: دفعة مفاعل كيميائي، سلوك الحرارة نظام تدفق الحرارة التنبؤية مراقبة وظيفية

"Développement d'outils pour le suivi et le contrôle optimal des réacteurs discontinus"

Résumé

Ce travail concerne la conduite thermique d'un réacteur discontinu à double-enveloppe équipé d'un système de chauffage/refroidissement de type mono-fluide. Ce mono-fluide circule, avec un débit constant, à travers la double enveloppe. Le chauffage et le refroidissement sont assurés respectivement par un crayon chauffant et deux échangeurs de chaleur à plaques. Le contrôle de la température du mélange réactionnel est basé sur une stratégie de gestion des appareils thermiques par analyse des flux thermiques limites et la modulation de la température du mono-fluide par action soit sur la puissance de chauffe soit sur le taux d'ouverture de la vanne à trois voies qui dérive le mono-fluide vers l'échangeur.

Un réacteur de 1 litre a été utilisé pour valider en simulation cette étude et parallèlement, un modèle de simulation de l'ensemble réacteur – système thermique a été développé. Nous avons étudié un type de commande avancée, la commande prédictive fonctionnelle (CPF) avec une politique de régulation en cascade. L'étude montre que l'application de l'algorithme donne de bon résultat et que la prise en compte des dynamiques des différents appareils améliore fortement la qualité de conduite. De plus, l'application à la conduite thermique d'une réaction chimique exothermique montre que la prédiction et la prise en compte du dégagement de chaleur dans le modèle permet d'améliorer les résultats obtenus. La présente étude a démontré aussi que les techniques gravimétrique et chromatographique (CPG) peuvent être appliquées pour contrôler les réactions de copolymérisation en solution dans un réacteur calorimétrique batch.

Mots clés : Réacteur chimique discontinu, Conduite thermique, Système mono-fluide, Flux thermique, Commande prédictive fonctionnelle

"Development of tools for monitoring and optimal control of batch reactors"

Abstract

This work deals with thermal control of a jacketed batch reactor equipped with a mono-fluid heating/cooling system. Mono-fluid flows, at constant flow rate, through the jacketed reactor. Heating and cooling are assured respectively by electric resistance and two plate heat exchangers. Reactor temperature control is based on a thermal device management strategy by limit thermal flux analysis and modulation of the mono-fluid temperature by acting on the heating power or on the opening degrees of air-to-open valve that delivers the mono-fluid to heat exchanger. A one-liter pilot plant reactor is used for simulation validation and concurrently a simulation model that reproduces the behavior of the reactor and its heating/cooling system was developed. One advanced algorithm control are used, the predictive functional control (PFC) with cascade control. This study shows that the technique give good results and dynamic consideration of each apparatus improve the controllability. In addition thermal control of an exothermic reaction shows that the prediction and consideration of heat generated in the model improve the results.

This study also showed that the gravimetric and chromatographic techniques (GPC) can be applied to control the copolymerization reactions in solution in a batch reactor calorimeter.

Keywords: Batch chemical reactor, Thermal control, Mono-fluid system, Thermal flux, Predictive functional control.

Nomenclature

Lettres romaines

A	Surface d'échange	(m)
C(n)	Consigne à l'instant n	(--)
C _i	Concentration des constituants i	(mole.l ⁻¹)
C _p	Chaleur spécifique	(kJ.kg ⁻¹ K ⁻¹)
C _s	Matrice des coefficients stoechiométriques	(--)
cstr	Pseudo constante de temps	(--)
d	Retard du système	(--)
d _{cin}	Diamètre interne de la conduite	(m)
d _{cex}	Diamètre externe de la conduite	(m)
d _{cri}	Diamètre interne de la tige du crayon chauffant	(m)
d _{croi}	Diamètre de la résistance électrique du crayon chauffant	(m)
d _{cro}	Diamètre externe de la tige du crayon chauffant	(m)
D _{agit}	Diamètre de l'arbre de l'agitateur	(m)
D _{cpale}	Diamètre de l'arbre de la contre-pale	(m)
D _{fr}	Diamètre du fond sphérique du réacteur	(m)
D _{ipr}	Diamètre interne du réacteur	(m)
D _{iped}	Diamètre externe de la double-enveloppe	(m)
D _{fc}	Débit du mono-fluide qui circule dans le circuit thermique	(m ³ .s ⁻¹)
E _j	Energie d'activation de la réaction j	(J.mole ⁻¹)
ep(n)	Différence objet-modèle	
epr	Epaisseur de la paroi du réacteur	(m)
epde	Epaisseur de la paroi de la double-enveloppe	(m)
Fc	Débit molaire d'alimentation en réactifs	(mole.s ⁻¹)
F _{fc}	Débit volumique maximal du mono-fluide circulant dans la double-enveloppe	(m ³ .s ⁻¹)
G _{ch}	Gain statique du crayon chauffant	(°C)
H*	Horizon du passé de la différence objet modèle	(--)
H _{r1}	Premier point de l'horizon de coïncidence du régulateur PFCM	(--)
H _{r2}	Second point de l'horizon de coïncidence du régulateur PFCM	(--)
H _{r11}	Premier point de l'horizon de coïncidence du régulateur PFC1	(--)
H _{r22}	Second point de l'horizon de coïncidence du régulateur PFC1	(--)
H _{ch}	Horizon de coïncidence du régulateur PFCc	(--)
H _{ef}	Horizon de coïncidence du régulateur PFCf	(--)
H _{eg}	Horizon de coïncidence du régulateur PFC1	(--)
H _{fr}	Hauteur du fond du réacteur	(m)
H _{ref}	Hauteur de référence, représente la distance entre le haut du réacteur et la surface libre du mélange réactionnel	(m)
H _{fde}	Hauteur du fond de la double-enveloppe, représente la distance entre le haut de la double-enveloppe et la zone où la double-enveloppe commence à s'arrondir	(m)
H _c (T _c)	Enthalpie spécifique de la coulée à la température	(kJ.kg ⁻¹)
h _{fi} (T _l ^l)	Enthalpie de formation du constituant liquide i	(kJ.kg ⁻¹)
H _i (T _r)	Enthalpie du constituant i à la température T _r	(kJ)
K ⁰ _j	Constante de vitesse de la réaction j (l'unité dépend de l'ordre global de la réaction)	
K	Gain du réacteur dans le cas PFCM	(--)
K _c	Gain statique relatif à la coulée des réactifs	(--)
K _{Qr}	Gain statique relatif au dégagement de la chaleur	(--)
K _r	Gain du réacteur dans le cas du PFC1	(--)
L _{crint}	Longueur de la tige du crayon chauffant	(m)
L _{crext}	Longueur externe de la tige du crayon chauffant	(m)

Nomenclature

L_{resis}	Longueur de la résistance électrique du crayon chauffant	(m)
L_c	Longueur de la conduite j	(m)
m	Masse	(kg)
M_c	Masse molaire de la coulée	(kg.mole ⁻¹)
M_i	Masse molaire du corps i	(kg.mole ⁻¹)
N	Nombre de bacs dans la double-enveloppe	(--)
n	Nombre de bacs dans la conduite	(--)
nc	Nombre des constituants présents dans le mélange réactionnel	(--)
n_i	Nombre de mole du corps i	(mole)
n_{trci}	Nombre de mailles	(--)
N_u	Horizon de prédiction sur la commande	(--)
N_y	Horizon de prédiction sur la sortie	(--)
P_m	Périmètre mouillé de la double-enveloppe	(m)
P_{elec}	Puissance fournie par la résistance électrique	(kJ.s ⁻¹)
p_{ere}	Période d'échantillonnage	(s)
Q_{ech}	Perturbation générée par l'introduction de la coulée de réactifs et le dégagement de chaleur par la réaction chimique	(kJ.s ⁻¹)
Q_{maxch}	Flux thermique maximal apporté au mono-fluide par le crayon chauffant	(kJ.s ⁻¹)
Q_{minch}	Flux thermique minimal apporté au mono-fluide par le crayon chauffant	(kJ.s ⁻¹)
Q_{maxef}	Flux thermique maximal apporté au mono-fluide par l'échangeur à l'eau froide	(kJ.s ⁻¹)
Q_{minef}	Flux thermique minimal apporté au mono-fluide par l'échangeur à l'eau froide	(kJ.s ⁻¹)
Q_{maxeg}	Flux thermique maximal apporté au mono-fluide par l'échangeur à l'eau glycolée	(kJ.s ⁻¹)
Q_{mineg}	flux thermique minimal apporté au mono-fluide par l'échangeur à l'eau glycolée	(kJ.s ⁻¹)
Q_r	Vitesse de dégagement de chaleur par la réaction chimique	(kJ.s ⁻¹)
r_j	Vitesse de la réaction j	(mole.l ⁻¹ .s ⁻¹)
R_{ch}	Retard au niveau du crayon chauffant	(--)
R_{ech1}	Retard au niveau de l'entrée de l'échangeur de chaleur	(--)
R_{ech2}	Retard au niveau de la sortie de l'échangeur de chaleur	(--)
R_r	Retard au niveau du réacteur	(--)
S_p	Section de passage à l'intérieur de la double-enveloppe	(m ²)
tr_{bf}	Temps de réponse en boucle fermée	(s)
tr_{bo}	Temps de réponse en boucle ouverte	(s)
t_{ech}	Période d'échantillonnage de la boucle maître	(s)
t_{echs}	Période d'échantillonnage de la boucle esclave	(s)
T	Température	(K)
T_{icons}	Température de la consigne à l'entrée de la double-enveloppe	(K)
$U(q)$	Variable de contrôle	(kJ.s ⁻¹)
u_x	Vitesse de l'écoulement dans l'échange de chaleur	(m.s ⁻¹)
$u(t)$	Variable de commande à l'instant t	(--)
$u_m(t)$	Variable de commande de référence	(--)
U	Coefficient global de transfert de chaleur	(kJ.m ⁻² .s ⁻¹ .K ⁻¹)
$U_p(n)$	Fraction de la puissance de chauffe	(--)
U_{B1}	Première fonction de base en échelon pour le régulateur PFCM	(--)
U_{B2}	Deuxième fonction de base en échelon pour le régulateur PFCM	(--)
U_{B11}	première fonction de base en échelon pour le régulateur PFC1	(--)
U_{B22}	deuxième fonction de base en échelon pour le régulateur PFC1	(--)

Nomenclature

V	Volume	(m ³)	
v(t)	Vecteur de perturbation	(--)	
y(t)	Sortie du procédé	(--)	
$\hat{y}(t)$	Sortie prédite du procédé	(--)	
y _c (t)	Consigne à suivre par la sortie du procédé	(--)	
y _m	Sortie du modèle	(--)	
y _{m,l}	Sortie libre du modèle		(--)
y _{m,f}	Sortie forcée du modèle	(--)	

Lettres grecques

α_{ij}	Ordre associé au constituant i dans la réaction j	(--)	
α_{ch}	Constante de la dynamique du crayon chauffant	(--)	
α_D	Constante de la dynamique de décomposition	(--)	
α_r	Constante de la dynamique du réacteur	(--)	
$\alpha(Dfc)$	Constante de la dynamique de l'échangeur de chaleur	(--)	
β	Fraction de la puissance de chauffe maximale du crayon chauffant ou bien du débit du mono-fluide	(--)	
Δ	Opérateur de différentiation	(--)	
λ	Conductivité thermique	(kJ.m ⁻¹ .s ⁻¹ .K ⁻¹)	
λ_{ch}	Paramètre qui conditionne la rapidité du ralliement de la consigne dans le cas du crayon chauffant	(--)	
$\lambda(Dfc)$	Paramètre de convexité	(--)	
λ_{ech}	Paramètre qui conditionne la rapidité du ralliement désirée dans le cas de l'échangeur de chaleur	(--)	
λ_r	Paramètre qui conditionne la rapidité du ralliement de la consigne pour le réacteur	(--)	
ρ	Masse volumique	(kg.m ⁻³)	
τ_{ch}	Constante du temps du crayon chauffant	(s)	
τ_r	Constante du temps du réacteur	(s)	
τ_{ech}	Constante du temps de l'échangeur de chaleur	(s)	
μ	Coefficient de pondération de la commande	(--)	
μ_i	Viscosité dynamique	(kg.m ⁻¹ .s ⁻¹)	

Indices

agit	Agitateur
c	Coulée
ch	Crayon chauffant
cond,pcond	Conduite-paroi de la conduite
cpale	Contre-pale
de	Double enveloppe
ech	Echangeur de chaleur
ef	Eau froide
eg	Eau glycolée
ext	Extérieur
ext,pcond	Milieu extérieur - paroi de la conduite
fc	Fluide caloporteur (mono-fluide)
fc,pde	Fluide caloporteur - paroi double enveloppe
fc,res	Fluide caloporteur - résistance électrique
fc,pch	Fluide caloporteur - paroi de la tige du crayon chauffant

Nomenclature

fde	Fond de la double enveloppe
fr	Fond du réacteur
lphase	Phase de fonctionnement
pde	Paroi double enveloppe
pr	Paroi du réacteur
pr,ext	Paroi du réacteur – milieu extérieur
pr,fc	Paroi du réacteur - fluide caloporteur
pch,ext	Paroi de la tige du crayon chauffant – milieu extérieur
pj	Paroi de la plaque j
res	Résistance électrique
r,pr	Mélange réactionnel – paroi du réacteur
r	Mélange réactionnel

Notations

E.C.P	Echangeur de chaleur à plaques
H(p)	Fonction de transfert du régulateur PFCM
Hc(p)	Fonction de transfert relatif à la température de coulée
He(p)	Fonction de transfert relatif à la température d'entrée de la double enveloppe
H _{Qr} (p)	Fonction de transfert relatif au dégagement de chaleur
M _{ch}	Modèle interne pour le crayon chauffant
M _{chδ}	Modèle de perturbation pour le crayon chauffant
M _e	Modèle interne relatif à la température d'entrée de la double enveloppe
M _{Qr}	Modèle interne relatif au dégagement de chaleur
M _δ	Fonction de transfert du modèle de perturbation
PFC1	Régulateur maître pour calculer la consigne
PFCc	Régulateur au niveau du crayon chauffant
PFCf	Régulateur au niveau de l'échangeur à eau froide
PFCg	Régulateur au niveau de l'échangeur à eau glycolée
PFCM	Régulateur maître pour faire la supervision

Abréviations

APCS	Adaptive Predictive Control System
A/N	Analogique/Numérique
DOM	Différence Objet Modèle
IMC	Commande par modèle interne
N/A	Numérique/Analogique
NO	Normalement ouverte
PID	Régulateur proportionnel – intégral – dérivé
PFC	Commande prédictive fonctionnelle
PPC	Commande prédictive paramétrique
T.O.R	Tout Ou Rien
STC	Self Tuning Control
SAC	Stable Adaptive Control

Constantes

g	Accélération de la pesanteur (9.81)	(m.s ⁻²)
R	Constante des gaz parfaits (8.32)	(J.mole ⁻¹ .K ⁻¹)
π	3.14	

Nombres adimensionnels

$$\text{Re} = \frac{V_{fc} \cdot Deq \cdot \rho_{fc}}{\mu_{fc}}$$

Nombre de Reynolds

$$\text{Pr} = \frac{Cp_r \cdot \mu_r}{\lambda_r}$$

Nombre de Prandtl

$$\text{Gr} = \frac{Deq^3 \rho_{fc}^2 \cdot g \cdot \beta \cdot |Tj - Tfc|}{\mu_{fc}^2}$$

Nombre de Grashof

$$\text{Nu} = U_{j,fc} \left(\frac{Deq}{\lambda_{fc}} \right)$$

Nombre de Nusselt

Liste des Figures

Figure I.1 : Trajectoire de référence exponentielle du premier ordre	11
Figure I.2 : Entrées et sorties de base	13
Figure I.3 : Chauffage direct – Refroidissement direct.....	15
Figure I.4 : Chauffage en série – Refroidissement direct	16
Figure I.5 : Chauffage indirect – Refroidissement direct	16
Figure I.6 : Chauffage indirect – Refroidissement indirect	17
Figure I.7 : Chauffage en série – Refroidissement indirect	18
Figure I.8 : Chauffage en série – Refroidissement en série	18
Figure II.1 : Installation pilote du réacteur et son environnement thermique	22
Figure II.2 : Montage expérimental avec les liaisons réacteurs / micro-ordinateur	27
Figure II.3 : Caractéristiques du système acquisition/commande	28
Figure II.4 : Organigramme général de communication entre les différents sous- Programmes	28
Figure III.1 : Schéma général du procédé à modéliser	31
Figure III.2 : Paramètre géométriques associés au réacteur, à son mobile d'agitation et à sa double enveloppe	32
Figure III.3 : Modélisation de la double-enveloppe	37
Figure III.4 : Schéma des transferts de chaleur dans le bac <i>i</i> de la double-enveloppe.....	38
Figure III.5 : Schéma simplifié du crayon chauffant.....	41
Figure III.6 : Schéma représentatif de l'utilisation d'un échangeur de chaleur	43
Figure III.7 : Schéma représentatif des écoulements des deux fluides dans l'échangeur à Plaques.....	45
Figure III.8 : Modélisation de l'écoulement du fluide entre deux plaques	45
Figure III.9 : Modélisation du transfert de chaleur dans les conduites	48
Figure III.10 : Modélisation de la vanne à trois voies.....	50
Figure III.11 : Organigramme de simulation dynamique de la conduite thermique d'un réacteur discontinu à double-enveloppe.....	54
Figure III.12 : Evolution des températures de l'eau pure: Simulation de chauffage par 1000 W.....	55
Figure III.13 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de chauffage par 2000 W	56
Figure III.14 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de refroidissement par eau froide à 250 l/h	56
Figure III.15 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de refroidissement par eau froide à 750 l/h	56
Figure III.16 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de refroidissement par eau glycolée à 250 l/h	57
Figure III.17 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de refroidissement par eau glycolée à 750 l/h	57
Figure III.18 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par chauffage à 1000 W	58
Figure III.19 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par chauffage à 2000 W.....	58

Liste des figures

Figure III.20 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par refroidissement à L'eau froide à 250 l/h	59
Figure III.21 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par refroidissement à L'eau froide à 750 l/h	59
Figure III.22 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par refroidissement à L'eau glycolée à 250 l/h	59
Figure III.23 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par refroidissement à L'eau glycolée à 750 l/h	60
Figure III.24 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation de chauffage par 2000 W.....	62
Figure III.25 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation de refroidissement par eau glycolée.....	62
Figure III.26 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation sans chauffage et sans refroidissement	62
Figure III.27 : Comparaison des températures du mélange réactionnel lors du chauffage, lors du refroidissement et sans ces deux opérations.....	63
Figure III.28 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation de chauffage sans coulée des réactifs à 57 °C.....	64
Figure III.29 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation de chauffage sans coulée des réactifs à 77 °C.....	64
Figure III.30 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel (même charge massique) : Simulation de chauffage sans coulée des réactifs à 57 °C.....	65
Figure III.31 : Comparaison des températures du mélange réactionnel sans coulée des Réactifs.....	65
Figure III.32 : Comparaison des températures lors du chauffage du mélange réactionnel avec coulée des réactifs et sans coulée à 57 °C.....	65
Figure IV.1 : Organigramme dans le cas de l'utilisation du crayon chauffant.....	70
Figure IV.2 : Organigramme dans le cas de l'utilisation de l'échangeur de chaleur à eau froide.....	70
Figure IV.3 : Organigramme dans le cas de l'utilisation de l'échangeur de chaleur à eau Glycolée.....	71
Figure IV.4 : Représentation du système en boucle fermée	73
Figure IV.5 : Schéma représentatif du réacteur et de sa double-enveloppe dans un système de chauffage/refroidissement mono-fluide.....	73
Figure IV.6 : Schéma représentatif de la décomposition du modèle interne	76
Figure IV.7 : Diagramme bloc de fonctionnement du crayon chauffant	89
Figure IV.8 : Modélisation de l'échangeur de chaleur	92
Figure IV.9 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}) et du milieu réactionnel (T_r)	101
Figure IV.10 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons})	102
Figure IV.11 : Evolution de la variable manipulée (β).....	102
Figure IV.12 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le Superviseur.....	102
Figure IV.13 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}) et du milieu réactionnel (T_r).....	103

Liste des figures

Figure IV.14 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons})	104
Figure IV.15 : Evolution de la variable manipulée (β).....	104
Figure IV.16 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le Superviseur.....	104
Figure IV.17 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}) et du milieu réactionnel (T_r).....	105
Figure IV.18 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons})	106
Figure IV.19 : Evolution de la variable manipulée (β).....	106
Figure IV.20 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le Superviseur.....	106
Figure IV.21 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r).....	107
Figure IV.22 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons})	108
Figure IV.23 : Evolution de la variable manipulée en fonction du temps	108
Figure IV.24 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le Superviseur.....	108
Figure IV.25 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r).....	109
Figure IV.26 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons})	109
Figure IV.27 : Evolution de la variable manipulée (β).....	110
Figure IV.28 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le régulateur (U_q)	110
Figure IV.29 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r): $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$	111
Figure IV.30 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons}): $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$	111
Figure IV.31 : Evolution de la variable manipulée en fonction du temps: $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$	111
Figure IV.32 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le superviseur: $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$	112
Figure IV.33 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r): $Q_{ech} = 0.06$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$	112
Figure IV.34 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons}): $Q_{ech} = 0.06$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$	112
Figure IV.35 : Evolution de la variable manipulée en fonction du temps: $Q_{ech} = 0.06$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$	113
Figure IV.36 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le	

Liste des figures

superviseur: $Q_{ech} = 0.06$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$	113
Figure IV.37 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r): $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 1$, $K_{Qr} = 1$	113
Figure IV.38 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons}): $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 1$, $K_{Qr} = 1$	114
Figure IV.39 : Evolution de la variable manipulée en fonction du temps: $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 1$, $K_{Qr} = 1$	114
Figure IV.40 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le superviseur : $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 1$, $K_{Qr} = 1$	114
Figure V.1 : Schéma du système expérimental (réacteur calorimétrique).....	116
Figure V.2 : Photo de thermobalance Mettler U16 Moisture Analyzer.....	118
Figure V.3 : Profils de température lors de la phase de chauffage (1 ^{er} essai).....	120
Figure V.4 : Profils de température lors de la phase de chauffage (2 ^{ème} essai).....	120
Figure V.5 : Profils de température lors de la copolymérisation (1 ^{er} essai).....	120
Figure V.6 : Profils de température lors de la copolymérisation (2 ^{ème} essai).....	121
Figure V.7 : Variation de la conversion en fonction du temps (1 ^{er} essai).....	121
Figure V.8 : Variation de la conversion en fonction du temps (2 ^{ème} essai).....	121
Figure V.9 : Photo chromatographie en phase gazeuse.....	122
Figure V.10 : Courbe d'étalonnage en chromatographie.....	124
Figure V.11 : Variation de la conversion en fonction du temps pour MMA (1 ^{er} essai).....	124
Figure V.12 : Variation de la conversion en fonction du temps pour AVc (1 ^{er} essai).....	124
Figure V.13 : Variation de la conversion en fonction du temps pour MMA (2 ^{ème} essai)...	125
Figure V.14 : Variation de la conversion en fonction du temps pour AVc (2 ^{ème} essai).....	125

Liste des figures

Liste des Tableaux

Tableau I.1 : Etudes réalisées sur les systèmes mono-fluide.....	19
Tableau I.1 suite : Etudes réalisées sur les systèmes mono-fluide.....	20
Tableau II.2 : Gestion des vannes Tout ou Rien	25
Tableau III.1 : Discrétisation horizontale de l'écoulement	47
Tableau III.2.a : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation du Réacteur	51
Tableau III.2.b : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation de la double-enveloppe.....	51
Tableau III.2.c : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation du crayon chauffant	51
Tableau III.2.d : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation des échangeurs de chaleur.....	51
Tableau III.2.e : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation des Conduites	52
Tableau III.3 : Paramètres cinétiques des trois réactions de synthèse du cyclopentanediol..	61
Tableau III.4 : Paramètres physiques des différents constituants	61
Tableau IV.1 : Caractéristiques principales des régulateurs du réacteur.....	98
Tableau IV.2.a : Paramètres de réglage du PFCM et PFC1	100
Tableau IV.2.b : Paramètres de réglage du PFC _c	100
Tableau IV.2.c : Paramètres de réglage du PFC _f et PFC _g	100
Tableau V.1 : Formules, Fournisseurs et masses de différents composés de nos Copolymérisations	117
Tableau V.2 : Conditions expérimentales pour la copolymérisation de MMA/AVc	118
Tableau V.3 : Valeurs du temps de rétention.....	122

DEDICACE	i
REMERCIEMENTS	ii
RESUME	iii
NOMENCLATURE.....	iv
LISTE DES FIGURES.....	ix
LISTE DES TABLEAUX.....	xiii
TABLE DES MATIERES.....	xiv
INTRODUCTION GENERALE	1

Chapitre I : Analyse Bibliographique

I.1. INTRODUCTION	4
I.2. PRESENTATION DES TRAVAUX EFFECTUES	4
I.3. LES TECHNIQUES DE COMMANDE APPLIQUEES A LA CONDUITE THERMIQUES DES REACTEURS DISCONTINUS.....	7
I.3.1. Introduction.....	7
I.3.2. Commande par contre réaction	7
I.3.3. Commande par anticipation	7
I.3.4. Commande en cascade	8
I.3.5. Commande adaptative.....	9
I.3.6. Commande prédictive	9
I.3.6.1. Commande prédictive fonctionnelle (PFC)	10
I.3.6.2. Structuration et calcul de la variable manipulée	12
I.3.6.3. Auto-compensateur polynomial	14
I.3.6.4. Principe de la décomposition	14
I.4. PRESENTATION DES SYSTEMES MONOFLUIDE	14
I.4.1. Introduction.....	14
I.4.2. Présentation des principales configurations du système mono-fluide	15
I.4.2.1. Chauffage direct-refroidissement direct.....	15
I.4.2.2. Chauffage en série-refroidissement direct	15
I.4.2.3. Chauffage indirect-refroidissement direct.....	16
I.4.2.4. Chauffage indirect-refroidissement indirect	17
I.4.2.5. Chauffage en série-refroidissement indirect	17
I.4.2.6. Chauffage en série-refroidissement en série	18
I.4.3. Utilisation des systèmes mono-fluide	19
I.5. CONCLUSION.....	20

Chapitre II : Dispositif expérimental et présentation des modules d'acquisition et de commande

II.1. INTRODUCTION.....	21
-------------------------	----

II.2. DISPOSITIF EXPERIMENTAL	21
II.2.1. Réacteur	21
II.2.2. Les pompes	22
II.2.3. Système de chauffage/refroidissement	23
II.2.3.1. Crayon chauffant	23
II.2.3.2. Les échangeurs de chaleur à plaques	23
II.2.4. Instrumentation	24
II.2.4.1. Les capteurs	24
II.2.4.2. Les actionnaires	25
II.3. SYSTEME DE REGULATION	26
II.3.1. Interface entre le réacteur et micro-ordinateur	26
II.3.2. Acquisition des données et commandes des actionneurs	26
II.3.3. Développement des logiciels pour la validation en simulation	28
II.4. CONCLUSION	29

Chapitre III : Développement du simulateur dynamique

III.1. INTRODUCTION	30
III.2. SIMULATEUR DYNAMIQUE	30
III.2.1. Modélisation du procédé	30
III.2.1.1. Géométrie du réacteur et de sa double enveloppe	32
III.2.1.2. Modélisation du réacteur	32
1. Bilan de matière sur le milieu réactionnel	33
2. Bilan thermique sur le milieu réactionnel	34
3. Modélisation de la double enveloppe	37
4. Bilan thermique sur la paroi du réacteur	39
5. Bilan thermique sur la paroi de la double enveloppe	39
III.2.1.3. Modélisation de la boucle thermique	40
1. Modélisation du crayon chauffant	40
2. Modélisation des échangeurs de chaleur	43
3. Modélisation des conduites	48
4. Modélisation de la vanne à trois voies	49
III.2.2. Stratégie de la résolution numérique	50
III.3. METHODE DE PROGRAMMATION	53
III.4. VALIDATION DU SIMULATEUR	55
III.4.1. Validation du simulateur avec de l'eau pure	55
III.4.2. Validation du simulateur avec une synthèse chimique	60
III.4.2.1. Simulation avec coulée	61
III.4.2.2. Simulation sans coulée	64
III.5. CONCLUSION	66

Chapitre IV : Système de supervision et algorithme de commande

IV.1. INTRODUCTION.....	67
IV.2. STRATEGIES DE GESTION POUR LA CONDUITE THERMIQUE DES REACTEURS DISCONTINUS.....	67
IV.2.1. Stratégies de gestion des systèmes de chauffage/refroidissement monofluide	67
IV.2.2. Stratégies de conduite thermique par analyse des flux thermique limites	67
IV.2.2.1. Calcul des flux thermique limites	68
1. Flux thermique limites du crayon chauffant.....	68
2. Flux thermique limites des échangeurs de chaleur.....	68
IV.3. LOGICIEL DE COMMANDE.....	71
IV.3.1. Utilisation de la commande prédictive fonctionnelle.....	71
IV.3.1.1. Introduction	71
IV.3.1.2. Stratégie de la régulation.....	72
IV.3.1.3. Développement des différents algorithmes de contrôle	73
1. Présentation du niveau de régulation “1”	73
2. Présentation du niveau de régulateur “0”	88
IV.3.2. Présentation des régulateurs.....	97
IV.4. VALIDATION DU SYSTEME DE SUPERVISION ET DE LA POLITIQUE DE REGULATION	100
IV.4.1. Conduite thermique sans réaction chimique	100
IV.4.2. Conduite thermique avec réaction chimique.....	103
IV.4.3. Etude de sensibilité des paramètres de réglage de la commande prédictive Fonctionnelle	107
IV.5. CONCLUSION.....	115

Chapitre V : Copolymérisation de méthacrylate de méthyle et acétate de vinyle

V.1. INTRODUCTION.....	116
V.2. PRESENTATION DU MONTAGE EXPERIMENTAL.....	116
V.2.1. Sécurité	117
V.3. EXPERIENCES ET ANALYSE.....	117
V.3.1. Description des manipulations.....	117
V.3.2. Suivi de la réaction	118
V.3.3. Vidange du réacteur.....	119
V.3.4. Résultats des manipulations et exploitation.....	119
V.4. CHROMATOGRAPHIE EN PHASE GAZEUSE.....	122
V.5. CONCLUSION	125
CONCLUSION GENERALE	126
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	
ANNEXES	

Table des matières

Annexe 1. Calcul des propriétés physiques et thermodynamiques de l'eau et de l'éthylène glycol à 50% et calcul des coefficients de transfert de chaleur

Annexe 2. Propriétés des produits chimiques et la partie calibration

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

Comme toute industrie chimique, l'industrie de chimie fine et de spécialités est devenue aujourd'hui l'un des piliers de l'industrie chimique.

Les polymères, les produits fins et de spécialité, molécules généralement complexes (fabriquées en plusieurs étapes réactionnelles) et à forte valeur ajoutée, correspondent généralement à des tonnages limités.

Les propriétés d'usage des polymères (telles que viscosité, résistance à la rupture, élasticité, pouvoir adhésif, malléabilité...) sont souvent reliées à leurs caractéristiques moléculaires qui dépendent elles-mêmes fortement des conditions opératoires (température, concentration en monomère, type d'amorceur, vitesse d'agitation, débit de fluide caloporteur, alimentation en différents composants dans le cas de procédés semi continus...). Les conditions opératoires ont également une influence sur la durée de la réaction. Ainsi, les produits évoluent très rapidement et ont généralement une durée de vie très courte. La création d'ateliers polyvalents et l'organisation de productions par lots et par compagne sont donc couramment répandues.

Une grande partie de la production s'effectue dans des réacteurs discontinus ou semi continus. Ces réacteurs présentent une grande polyvalence du fait que l'on peut y mettre en œuvre la plupart des réactions et qu'ils présentent une grande efficacité sur le plan cinétique puisque tout au long de la réaction les réactifs sont à la concentration optimale (**Kanatas et al.**, (1987)). Cependant leur inconvénient est qu'ils nécessitent de nombreuses manipulations et donc entraînent des frais de fonctionnement élevés.

Face à des critères de marchés de plus en plus stricts, la rentabilité des installations est devenue un enjeu important pour les ingénieurs de procédés. Le contrôle des réacteurs discontinus ou semi continus, représente une étape très importante qui conditionne le succès de l'activité.

Vu la complexité des réactions rencontrées dans les domaines de chimie fine et de spécialités et la difficulté de mesurer en ligne les concentrations du mélange réactionnel, le contrôle des réacteurs discontinus ou semi continus, reste un problème de contrôle thermique.

Ce contrôle thermique est un problème difficile à maîtriser. La difficulté provient d'une part, de la nature discontinue des modes opératoires, et d'autre part, du caractère polyvalent de ces réacteurs. Le régulateur doit ainsi faire face à de brusques changements de points de consigne et s'adapter à des modes opératoires différents. La gestion rigoureuse d'un profil de température est un enjeu important. En effet, de celle-ci dépend l'amélioration de la productivité des réacteurs, le contrôle des réactions secondaires et donc la qualité des produits et enfin la reproductibilité des lots. Pour gérer rigoureusement un profil de température, il est impératif d'améliorer l'automatisation de ces réacteurs.

Un autre paramètre qui conditionne la bonne conduite thermique de ces réacteurs est le système de chauffage/refroidissement qui équipe le réacteur. Ce système doit être performant pour qu'il puisse répondre aux exigences opératoires. La nature du système thermique joue un rôle important car le contrôle de la température du mélange réactionnel se fait indirectement en agissant sur une variable de ce système (débit du fluide caloporteur à l'entrée de la double enveloppe dans un système multifluide ou bien sa température dans un système mono-fluide).

Jusqu'à présent, les travaux ont considéré un réacteur discontinu dont le système thermique est basé sur l'utilisation alternative de différents fluides (eau chaude - eau froide - eau glycolée). Même si ce type de réacteur est le plus utilisé dans l'industrie, sa conduite reste malgré tout complexe. En effet, tout changement de fluide thermique s'accompagne nécessairement d'une purge de la double enveloppe, ce qui induit pendant ces phases des dynamiques non maîtrisées. D'autre part, le passage d'un fluide à un autre s'accompagne

également de changement de températures brutales qui peuvent nuire à la finesse de la régulation. Notons enfin, que la gestion de différents fluides thermiques pose des problèmes de supervision complexes. Pour pallier ces problèmes causés par un système à fluides alternés, nous avons donc envisagé la mise en place d'un procédé dont l'environnement thermique était différent : il s'agit du *réacteur à système de chauffage/refroidissement par mono-fluide*. Ce procédé est de plus en plus utilisé dans l'industrie. En particulier, les industries de chimie pharmaceutique se tournent vers ce type d'installations, car elles ont l'avantage de contribuer à la propreté requise pour la production de principes actifs. Les avantages du mono-fluide sont nombreux. On peut noter les plus évidents :

- Un fluide unique, le plus souvent organique, non toxique et non inflammable, pour le chauffage et le refroidissement des réacteurs
- Une souplesse d'utilisation liée au fait que l'on peut gérer continuellement la température du fluide à l'entrée de la double enveloppe
- L'absence de purge intermédiaire.

Dans le cadre de ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés à la conduite automatique d'un réacteur pilote discontinu à double enveloppe, équipé d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide. L'automatisation de cette conduite est assurée par l'utilisation des techniques de commande avancée.

Cette thèse est composée de cinq chapitres:

Le premier chapitre est consacré à la présentation d'une analyse bibliographique dans laquelle nous présentons les principaux travaux dans le domaine de la conduite des réacteurs discontinus ainsi les principaux algorithmes de commande utilisés pour le contrôle de ces appareils. Dans les paragraphes suivants, nous présentons les systèmes de chauffage/refroidissement mono-fluide, ses principales configurations et leur utilisation.

Dans *le deuxième chapitre*, nous présentons le dispositif expérimental qui nous a permis de valider la politique de contrôle. Ce dispositif est entièrement automatisé, conçu à l'échelle pilote au sein du laboratoire de Génie Chimique à Toulouse autour d'un réacteur discontinu en verre à double enveloppe, relié à un micro-ordinateur pour réaliser les différentes tâches du contrôle automatique. La modulation de la température du mono-fluide est assurée par la mise en place pour le chauffage, d'un crayon chauffant, et pour le refroidissement, de deux échangeurs de chaleur à plaques, l'un utilisant l'eau froide et l'autre l'eau glycolée comme utilitaires de refroidissement.

Le troisième chapitre est consacré à la présentation du simulateur dynamique développé qui est décrit par un ensemble d'équations différentielles et algébriques qui traduisent mathématiquement le comportement dynamique du procédé. Ce simulateur nous a permis d'analyser l'influence des paramètres de réglage des différents algorithmes de commande et par conséquent d'éviter la réalisation d'un nombre considérable d'expériences. Les derniers paragraphes de ce chapitre sont consacrés à la validation de ce simulateur en boucle ouverte suivant des échelons de chauffage et de refroidissement. Ces résultats montrent que le simulateur reproduit fidèlement le comportement thermique réel du dispositif expérimental étudié par (**Bouhenchir**, (2000)).

Dans *le quatrième chapitre*, nous présentons dans une première partie le système de supervision adopté pour réaliser la conduite du réacteur et de son système thermique. La stratégie de gestion des appareils du circuit thermique est basée sur une analyse des flux thermiques, calculés en ligne pour le mono-fluide et les différents appareils. La deuxième partie est consacrée à la présentation et le développement de l'algorithme de commande avancée sous une politique de régulation, la commande prédictive fonctionnelle, (*CPF*, conçue par **Richalet** (1993)), sous une politique de régulation en cascade. Le dernier paragraphe de ce chapitre est consacré à la validation en simulation pour la conduite thermique du réacteur. Il s'agit des simulations de conduite thermique suivant des profils de

Introduction générale

température type chauffage – maintien – refroidissement. Ces simulations sont réalisées pour valider à la fois le simulateur dynamique, le système de supervision et l'algorithme de régulation.

Dans *le cinquième et dernier chapitre*, nous présentons les résultats obtenus expérimentalement pour la conduite thermique et gravimétrique pour le procédé de copolymérisation.

Dans une conclusion générale, nous essayons de dégager les principaux résultats et établissons un bilan général de cette étude.

CHAPITRE I

ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE

I.1. INTRODUCTION

I.2. PRESENTATION DES TRAVAUX EFFECTUES

I.3. LES TECHNIQUES DE COMMANDE APPLIQUEES A LA CONDUITE THERMIQUE DES REACTEURS DISCONTINUS

I.3.1. Introduction

I.3.2. Commande par contre réaction (feedback control)

I.3.3. Commande par anticipation (feed forward control)

I.3.4. Commande en cascade

I.3.5. Commande adaptative

I.3.6. Commande prédictive

I.3.6.1. Commande prédictive fonctionnelle

I.4. PRESENTATION DES SYSTEMES MONOFLUIDE

I.4.1. Introduction

I.4.2. Présentation des principales configurations du système mono-fluide

I.4.3. Utilisation des systèmes mono-fluide

I.5. CONCLUSION

Résumé : Après une introduction générale sur la conduite thermique des réacteurs discontinus et semi continus, nous présentons dans la première partie de ce chapitre les différents travaux effectués dans ce domaine suivi d'une présentation des différents types de régulateurs utilisés et nous nous intéresserons particulièrement aux régulateurs avancés tels que la commande prédictive et leur application pour le contrôle des procédés dans l'industrie chimique. La dernière partie sera consacrée à la présentation des systèmes de chauffage/refroidissement par mono-fluide.

I.1. Introduction

Une compétition grandissante pour la production de produits de haute qualité à faibles coûts a mis une pression considérable sur les ingénieurs de procédés pour faire fonctionner les installations industrielles existantes de façon plus efficace et utiliser ces mêmes procédés pour la production de différents composés.

L'automatisation a permis d'améliorer les installations industrielles, ceci en partie du fait de l'extraordinaire développement des microprocesseurs durant ces dernières années, qui ont provoqué des changements importants dans la conception des systèmes de commande. Leurs performances et leur faible coût les rendent aptes à prendre intégralement en charge les aspects commande avec des performances supérieures à celles des régulateurs analogiques. La commande des procédés industriels par ordinateur a maintenant plus de 30 ans et a fait de gros progrès, tant sur le plan du matériel que sur le plan des méthodes grâce à la capacité de calcul des micro-ordinateurs, des techniques de commandes performantes peuvent être développées.

Par ailleurs, la fabrication des polymères, des produits de chimie fine ont maintenus et même augmenté l'utilisation des réacteurs discontinus. En raison de la complexité du mélange réactionnel et la difficulté de mesurer en ligne les compositions chimiques, le contrôle de ces réacteurs est un problème de contrôle de la température du mélange réactionnel (**Friedrich et Perne**, (1995), **Graichen et al.**, (2006)). Un bon contrôle de ces procédés est souvent difficile à réaliser (**Juba et Hammer**, (1986), **Arpornwichanop et al.**, (2005)). La difficulté provient d'une part de la nature discontinue des modes opératoires et d'autre part du caractère polyvalent de l'appareil. Le régulateur doit ainsi faire face à la fois à de brusques changements de points de consigne et doit s'adapter à des modes opératoires différents. L'emploi de régulateurs classiques tels que les régulateurs *PID*, n'est pas adapté à ce type de procédés qui comporte de fortes variations de dynamiques, bien que ces régulateurs soient utilisés à grande échelle dans le monde industriel. En effet, l'emploi de tels régulateurs nécessite de nombreux réglages à effectuer à chaque changement d'opération, ce qui est fastidieux pour un procédé comme le réacteur batch. L'apparition de nouvelles techniques de commande avancée, telles que la commande à base de modèle et la commande adaptative contribue à améliorer le contrôle thermique de ces réacteurs.

Les performances de la régulation sont aussi liées au système de chauffage/refroidissement associé au réacteur (**Berber**, (1995)). Le système de chauffage/refroidissement joue bien évidemment un rôle très important dans l'évolution de la température du mélange réactionnel, il est donc nécessaire d'avoir un système thermique adéquat qui n'ajoute pas par son inefficacité des problèmes physiques supplémentaires à la conduite du réacteur.

I.2. Présentation des travaux effectués

Dans le cadre de la thèse de **Bouhenchir**, (2000), la conduite thermique d'un réacteur discontinu entouré d'une double enveloppe et équipé d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide a été effectuée à l'aide de deux commandes avancées, la commande adaptative prédictive généralisée avec double modèle de référence avec une politique de régulation en pseudo-cascade et la commande prédictive fonctionnelle permettant l'estimation de la vitesse de dégagement de chaleur. Les deux algorithmes de commande sont basés sur l'écriture des bilans thermiques en régime permanent pour un procédé qui possède des équipements thermiques avec des dynamiques variées. Une validation expérimentale a été

effectuée sur un réacteur pilote de 1 litre muni du système de chauffage/refroidissement mono-fluide.

Notre travail de thèse fait suite au problème de l'application de la commande prédictive fonctionnelle à la conduite thermique des réacteurs discontinus équipés d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide. C'est donc la continuité de l'étude de H. Bouhenchir. La première partie de ce travail a été consacrée au développement d'un simulateur pour le fonctionnement dynamique du procédé ainsi qu'au développement d'un algorithme de supervision basé sur l'analyse des flux thermiques limites, calculés en ligne pour le mono-fluide lors de son passage à travers les différents appareils du circuit thermique. La deuxième partie de nos travaux a consisté, tout d'abord, à l'étude de la technique de commande prédictive fonctionnelle (*PFC*: Predictive Functional Control) avec une politique de régulation en cascade puis, à effectuer une étude de sensibilité des paramètres de synthèse de l'algorithme de commande prédictive fonctionnelle. La validation en simulation est réalisée pour différents profils de températures. La dernière partie a été consacrée à une conduite thermique et gravimétrique pour le procédé de copolymérisation dans un réacteur discontinu.

Depuis plusieurs années, la conduite thermique des réacteurs discontinus ou semi discontinus, fait l'objet de nombreux travaux de thèse. Dans ces travaux, différents algorithmes de commande et de stratégie de contrôle ont été utilisés.

Rafalimanana, (1990) avait pour objectif la conduite thermique d'un réacteur semi continu à double enveloppe équipé d'un système de chauffage/refroidissement multi-fluide. La stratégie de conduite thermique est basée sur le choix du fluide caloporteur disponible à une température fixe, et la détermination par le régulateur de son débit à l'entrée de la double enveloppe. Pour réaliser le double objectif régulation/asservissement, un algorithme de commande adaptative prédictive généralisée basé sur un modèle mathématique de représentation ou bien "modèle boîte noire" a été développé. Les résultats de ces travaux ont eu une grande réussite en particulier pour le contrôle thermique d'une réaction exothermique dans un réacteur pilote de 2 litres, par contre pour des réacteurs de tailles industrielles, la conduite thermique a présenté des limites dues à la forte inertie thermique de ces derniers.

Jarupintusphon, (1992) a développé un programme de supervision et a substitué le modèle de représentation de l'algorithme de commande adaptative prédictive généralisée utilisé par **Rafalimanana**, (1990) par un modèle de connaissance simplifié basé sur l'écriture des bilans thermiques au sein du mélange réactionnel et de la double enveloppe. Ce modèle est aussi utilisé pour estimer le dégagement de chaleur d'une réaction exothermique. L'application du nouvel algorithme et de la technique de supervision a été réalisée à la fois sur un réacteur pilote de 2 litres et sur un réacteur industriel en acier émaillé de 1000 litres, les deux réacteurs étant équipés d'un système multi-fluide. L'application de cette technique sur le site industriel a mis en évidence l'intérêt du modèle de connaissance en particulier pour éviter les dépassements de consigne.

Gaudy, (1992) a utilisé un système de chauffage/refroidissement mono-fluide pour la conduite thermique d'un réacteur pilote de 1 litre. Le contrôle de la température du mélange réactionnel lors du suivi d'un profil de consigne, est réalisé en agissant soit sur la puissance de chauffe du crayon chauffant soit sur les débits des utilités de refroidissement au niveau de deux échangeurs de chaleur à plaques. Concernant le contrôle thermique de ce procédé, deux structures de régulation ont été étudiées. D'une part une régulation en boucle simple utilisant

comme régulateur soit l'algorithme de commande adaptative généralisée à double modèle de référence (*GPCMR*) soit un régulateur Proportionnel-Intégral-Dérivé (*PID*), d'autre part une régulation en cascade, en utilisant comme régulateur maître le *GPCMR* et comme régulateurs esclaves des *PID*.

Cette étude a montré que l'utilisation en boucle simple comme régulateur maître le *GPCMR* donne des résultats satisfaisants par rapport à un *PID*. De plus, pour la régulation en cascade, l'association d'un *GPCMR* comme régulateur maître et de *PID* comme régulateurs esclaves a donné de très bons résultats.

Le travail de **Louleh**, (1996) concerne la conduite thermique d'un réacteur discontinu de 16 litres équipé d'un système de chauffage /refroidissement regroupant à la fois le multi-fluide et le mono-fluide. Pour réaliser la conduite thermique de ce procédé, il a également utilisé le (*GPCMR*). Dans ce travail, la variable de commande est interprétée comme le flux thermique que doit échanger le fluide caloporteur circulant dans la double enveloppe avec le milieu réactionnel. Ce flux thermique permet de choisir le fluide caloporteur adéquat ainsi que de calculer son débit à partir d'un programme de supervision basé sur l'analyse des capacités thermiques limites calculées en ligne pour chaque fluide. L'application de cette méthode de supervision a permis d'obtenir de bons résultats.

Dans le travail d'**Ettegui**, (1999) l'objectif était la conduite thermique d'un réacteur discontinu à double enveloppe équipé d'un système multi-fluide. Le contrôle de la température du milieu réactionnel est réalisé par le choix du fluide caloporteur et par action sur son débit. Pour se faire, un algorithme de commande prédictive non linéaire et un système de supervision des fluides caloporteurs, qui incorporent un modèle physique non linéaire du réacteur pour effectuer des supervisions sur son comportement, ont été développés. Cette méthodologie a été appliquée principalement en simulation, une validation expérimentale a été effectuée sur un réacteur de 16 litres.

Par la suite le travail de thèse de **Xaumier**, (1999) avait pour objectif d'effectuer une étude de sensibilité pour les paramètres de synthèse de l'algorithme de commande prédictive non linéaire et de valider ses performances expérimentalement sur le réacteur de 16 litres. Ce travail a également porté sur l'estimation en ligne du dégagement de chaleur lors de la mise en œuvre de réactions chimiques exothermiques afin d'introduire cette information dans le modèle utilisé par l'algorithme de commande pour effectuer les prédictions.

Dans le travail de **Mezghani**, (1999) l'objectif était de développer un modèle nominal pour la commande indépendamment de la nature du fluide caloporteur mis en jeu. En reprenant la stratégie développée par **Louleh**, (1996) la commande est interprétée comme le flux thermique que doit échanger le fluide caloporteur avec le mélange réactionnel. Ce flux permet alors de choisir le fluide caloporteur adéquat, puis de calculer son débit en se basant sur la modélisation des échanges thermiques et l'analyse des flux thermiques limites, calculés en ligne pour chaque fluide caloporteur. Deux types de commande prédictive ont été élaborés et étudiés en simulation et expérimentalement. D'une part une commande prédictive linéaire conventionnelle par analyse des fonctions de sensibilité usuelle et d'autre part une commande prédictive itérative. Ce dernier type de commande prend en compte les données entrées/sorties de l'expérience précédente, ce qui permet d'améliorer les performances en poursuite et régulation de l'expérience courante.

I.3. Les techniques de commande appliquées a la conduite thermique des réacteurs discontinus

I.3.1. Introduction

Les procédés discontinus occupent une place importante pour la synthèse de produits chimiques à haute valeur ajoutée. En ce qui concerne la qualité des produits et vue l'impossibilité d'un suivi analytique en ligne, le maintien de la température du milieu réactionnel à sa valeur de consigne est un enjeu primordial. Cela fait que le contrôle thermique des réacteurs discontinus, appareil prépondérant pour la synthèse, est un problème important à maîtriser pour l'industrie chimique.

Le choix d'une loi de contrôle est totalement conditionné par la connaissance à priori de l'opération mise en jeu. Cependant, la littérature propose de nombreux algorithmes de régulation. Dans cette analyse bibliographique, nous nous présenterons quelques algorithmes tels que la commande par anticipation (feed forward control), la commande par contre réaction (feedback control), la commande en cascade (cascade control), la commande adaptative (adaptive control) et la commande prédictive (prédictive control).

I.3.2. Commande par contre réaction (feedback control)

La commande par contre réaction (feedback control) est basée sur deux termes: la consigne à suivre par la sortie du processus et la perturbation qui affecte le processus. Dans une telle commande, la valeur de sortie du processus, à contrôler est tout d'abord comparée à la valeur de consigne. En fonction de la valeur de l'erreur, le régulateur calcule la valeur de la commande ou bien de la variable de contrôle pour ramener la sortie du processus à sa valeur de consigne. L'un des régulateurs qui représente bien la commande par contre réaction est le régulateur *PID*. Ce régulateur n'est pas adapté pour contrôler des procédés à fortes variations de dynamiques, comme c'est le cas pour les réacteurs discontinus (**Dostál et al.**, (2009), **Dostál et al.**, (2004), **Dostál et al.**, (2011), **Matusu et Prokop**, (2010). En effet, l'emploi de tels régulateurs, nécessite de nombreux réglages à effectuer à chaque changement d'opération (**Bouhenchir**, (2000)).

I.3.3. Commande par anticipation (feedforward control)

La commande par contre réaction ne peut jamais être parfaite, puisqu'on n'agit sur la variable de commande que lorsque l'on a détecté l'effet d'une perturbation. La commande par anticipation répond à ce problème. L'idée étant de mesurer les perturbations et de prendre une décision avant que leur effet ne se fasse sentir sur le procédé. En commande par anticipation, on mesure la valeur de la variable à contrôler, et on utilise un modèle du procédé pour en déduire l'action sur la variable de commande (**Kubalcik et Bobal**, (2010)).

Dans leurs travaux, (**Jutan et Uppal**, (1984)) ont étudié le contrôle de température d'une réaction exothermique, en associant à la boucle de contre-réaction, une boucle de contrôle par anticipation. Un bilan thermique est utilisé pour obtenir le correcteur d'anticipation. Une seule variable de commande est utilisée, représente à la fois la pression de la vapeur et le débit de fluide froid. Cette variable est modifiée par un algorithme de contrôle par anticipation pour composer la chaleur dégagée par la réaction. Cette stratégie de contrôle n'est pas robuste et très sensible aux variations du modèle. L'amélioration proposée, consiste à développer un estimateur en ligne de la chaleur dégagée par la réaction en fonction des différentes températures mesurées sur l'installation (milieu réactionnel, fluides). Connaissant le modèle donnant la chaleur dégagée (modèle du premier ordre), il est alors facile de l'utiliser

dans une structure de commande par anticipation couplée à une structure de commande par contre réaction (*PID*). Ils ont conclu que l'association des algorithmes de commande par anticipation et par contre réaction est meilleure qu'un régulateur *PID* et qu'elle répond de manière plus stable aux changements du procédé. De plus, le réglage de ce type de régulateur est moins sensible aux erreurs de modélisation.

Juba et Hammer, (1986) ont proposé une commande combinant les actions de contre réaction et d'anticipation en supposant que la structure de l'équation décrivant le dégagement de la quantité de chaleur est connue.

Malgré les performances acquises, il faut noter que la commande par anticipation présente certains inconvénients. Ainsi, les perturbations doivent être mesurées en ligne, ce qui n'est pas toujours possible. Un modèle est nécessaire pour connaître la manière dont les variables commandées dépendent des variables de commande et des perturbations.

I.3.4. Commande en cascade

Dans une régulation en cascade, on utilise une variable de commande et plus d'une mesure. Considérons le cas du contrôle de la température d'une réaction exothermique dans un réacteur discontinu équipé d'un système de chauffage/refroidissement. Suivant (**Corriou**, (1996)), parmi les perturbations possibles, on peut citer le débit et la température de l'alimentation en réactifs, la température du fluide caloporteur et bien sur la chaleur dégagée par la réaction. Dans une commande simple par contre réaction, pour contrôler la température du milieu réactionnel, on mesure la température du milieu réactionnel et pour maintenir la température du milieu réactionnel à sa valeur de consigne, on compare cette valeur à la consigne et on fait varier soit la température du fluide caloporteur à l'entrée de la double enveloppe dans un système mono-fluide, soit son débit dans un système multi-fluide. Lorsqu'on agit sur le débit ou bien sur la température, cette action n'a pas une conséquence immédiate à cause de la dynamique du transfert de chaleur à travers la paroi du réacteur et de son inertie thermique. Pour éviter cet inconvénient, on peut améliorer le système de régulation en effectuant deux mesures de températures, une mesure pour la température du mélange réactionnel et une autre mesure pour la température du fluide caloporteur au sein de la double enveloppe. La mesure dans la double enveloppe réagira beaucoup plus vite que celle au sein du réacteur. La mesure principale est celle de la température au sein du réacteur, on appelle cette boucle "maître" ou primaire. La température du milieu réactionnel est transmise à un régulateur qui reçoit une consigne extérieure fournie par l'utilisateur. Les perturbations sont détectées plus tôt grâce à la mesure dans la double enveloppe qui agit sur un autre régulateur, le régulateur de cette boucle a comme consigne la sortie du régulateur primaire. Pour cette raison, cette boucle qui utilise la température dans la double enveloppe est appelée "esclave" ou secondaire. En conclusion, le régulateur en cascade est le plus simple des régulateurs de type hiérarchique où un régulateur maître dit à l'esclave ce qu'il a à faire (**Astolfi et al.**, (2008)).

Marroquin et Luyben, (1972) ont testé quatre régulateurs non linéaires dans une politique de régulation en cascade pour contrôler une réaction chimique exothermique de chloration de l'éthylène en éthylène dichlorure, réalisée dans un réacteur discontinu. En faisant varier le gain de la boucle esclave en fonction de l'erreur au niveau de la boucle maître, ils ont trouvé que ce système de contrôle donne de bonnes performances par rapport à l'utilisation de régulateurs linéaires.

I.3.5. Commande adaptative

Dans les problèmes de commande adaptative, un problème d'estimation des paramètres intervient. Si les paramètres sont constants, le gain des algorithmes d'estimation converge vers zéro, tandis que si les paramètres sont variables dans le temps, l'algorithme doit être capable de suivre leurs variations. D'après (**Corriou**, (1996)) on peut distinguer deux types de commande adaptative :

La commande adaptative indirecte dans laquelle on procède d'abord à une estimation des paramètres du modèle, puis on calcule le régulateur.

La commande adaptative directe dans laquelle on estime directement les bons paramètres du régulateur.

La commande adaptative impose de respecter de nombreuses précautions : convergence des paramètres du modèle du procédé et robustesse de l'algorithme d'identification en ligne, stabilité de la commande à chaque instant (**Ioannou** et **Fidan**, (2006)). Pour un modèle mathématique réaliste de la production du PVC, (**Kiparissides** et **Shah**, (1983)) ont étudié en simulation deux techniques de régulations adaptatives, le régulateur auto-ajustable (STC: Self Tuning Control) et le régulateur adaptatif stable (SAC: stable Adaptive Control). Ces deux techniques ont montré une grande robustesse et ont donné d'excellentes qualités de contrôle que ce soit pour l'évolution de la température du mélange réactionnel ou du taux de conversion en PVC, par régulation de la chaleur échangée au niveau de la double enveloppe.

Cluett et al., (1985) présentent, une étude réalisée en simulation concernant le contrôle du réacteur de PVC utilisé par (**Kiparissides** et **Shah**, (1983)). Dans cette étude, ils ont appliqué un système de commande adaptative prédictive, (APCS: Adaptive Predictive Control System), pour contrôler ou bien la température du milieu réactionnel ou bien le taux de conversion en PVC. Leurs objectifs étaient donc d'obtenir soit un bon suivi de consigne par la température masse soit un taux de conversion constant. Les résultats obtenus ont montré que APCS permet d'avoir un bon suivi de consigne accompagné d'une forte oscillation de la variable de commande, mais ce problème est résolu par l'introduction d'un facteur de pondération dans la loi de commande.

Toujours concernant la conduite thermique des réacteurs discontinus de polymérisation, (**Tzouanas** et **Shah**, (1989)) ont utilisé la commande adaptative par placement de pôle. L'objectif était de contrôler soit la masse moléculaire moyenne, soit le taux de conversion du monomère. Les performances de ce système ont été comparées à celle obtenues par l'utilisation de la commande généralisée à minimum de variance et d'un régulateur *PID* à gain constant. Les résultats obtenus expérimentalement et en simulation montrent la nécessité à la fois de faire des mesures en ligne dans l'industrie de polymérisation et l'utilisation d'un régulateur adéquat tel que la commande adaptative par placement de pôle.

I.3.6. Commande prédictive

La commande prédictive est une technique de régulation basée sur l'utilisation explicite d'un modèle du procédé pour prédire les sorties sur un horizon de prédiction futur en fonction des valeurs futures de la commande. Les valeurs de commande à appliquer sont obtenues par minimisation des écarts entre les futures valeurs de la sortie et les valeurs désirées sur un horizon de prédiction, (**Özkan et al.**, (2006)). Dans cette étude, nous nous intéresserons seulement à la commande prédictive linéaire et plus particulièrement à la commande prédictive fonctionnelle.

I.3.6.1. Commande prédictive fonctionnelle (PFC)

1. Définition

La commande prédictive fonctionnelle, *PFC*, est une technique de régulation conçue par (**Richalet**, (1993)). Elle doit son nom, "fonctionnelle" au fait que son élaboration est basée sur une analyse fonctionnelle de tout le processus. Cette analyse comprend une expertise, l'analyse du procédé et l'analyse des besoins. Cette méthode applique la même philosophie que la commande prédictive généralisée de (**Clarke et al.**, (1987))

Comme toute commande prédictive, l'objectif de la commande optimale recherchée sur l'horizon de la commande H_c

$$U_{opt}^T(n) = [u(n), u(n+1), u(n+2), \dots, u(n+H_c)] \quad (I.1)$$

Est celui qui minimisera l'écart entre les sorties prédites

$$\hat{y}_p^T(n) = [\hat{y}_p(n), \hat{y}_p(n+1), \hat{y}_p(n+2), \dots, \hat{y}_p(n+H_2)] \quad (I.2)$$

Et les valeurs désirées qui correspondent à une trajectoire de référence

$$\hat{y}_r^T(n) = [\hat{y}_r(n), \hat{y}_r(n+1), \hat{y}_r(n+2), \dots, \hat{y}_r(n+H_2)] \quad (I.3)$$

Sur l'horizon de prédiction H_2

"n" représente le temps normalisé (à savoir temps (t) divisé par la période d'échantillonnage

$$t_{ech} : n = \left(\frac{t}{t_{ech}} \right)$$

Les caractéristiques de la commande prédictive fonctionnelle sont les suivantes:

- Modèle interne
- Trajectoire de référence
- Critère quadratique
- Horizon de coïncidence

2. Modèle interne

Le modèle interne doit effectuer les prédictions de la sortie du processus. Il simule le comportement du processus, en utilisant une méthode adaptée qui va relever des techniques de modélisation et d'identification qui dépend du processus lui-même. Parmi les modèles les plus utilisés on peut citer (**Bourebia**, (2011))

- **Modèle aux différences finies discrètes :**

$$y_p(p) = \sum_i a_i y(n-i) + \sum_j b_j u(n-d-j) + \sum_k c_k v(n-k) \quad (I.4)$$

- **Représentation d'état**

$$X(n+1) = AX(n) + BU(n) + GV(n) \quad (I.5.a)$$

$$Y_p(n) = CX(n) + W(n) \quad (I.5.b)$$

• Représentation par convolution

$$Y_p(n) = \sum_i a_i u(n-i) \tag{I.6}$$

En réalité, il n'y a aucune restriction sur le choix du modèle. Il peut être linéaire ou non-linéaire, stationnaire ou non stationnaire, à paramètres constants ou estimés en ligne, la technique de résolution dépend de la nature du modèle utilisé.

3. Trajectoire de référence

Le ralliement de la consigne se fait par l'intermédiaire d'une trajectoire de référence réinitialisation à chaque instant sur la sortie réelle du processus (Abel et Marquardt, (2003)). Il est usuel de choisir comme trajectoire de référence un premier ordre afin de rallier la consigne en douceur, selon la relation

$$y_r(n+i) = C(n+i) - \lambda^i (C(n) - y_p(n)) \tag{I.7}$$

Avec :

$C(n)$: Consigne à suivre à l'instant n

$C(n+i)$: Consigne future à l'instant $(n+i)$

i : Point de l'horizon de coïncidence

$y_p(n)$: Sortie du procédé à l'instant n

$y_r(n+i)$: Trajectoire de référence à l'instant $(n+i)$

λ : Paramètre qui conditionne la rapidité désirée du ralliement, suivant (Richalet, (1993)) $\lambda = \exp\left(\frac{-3t_{ech}}{trbf}\right)$, où t_{ech} est la période d'échantillonnage et $trbf$ représente le temps

de réponse en boucle fermée (s) : représente le temps de réponse pour atteindre 95% de la variation totale à une sollicitation sous forme d'échelon en entrée.

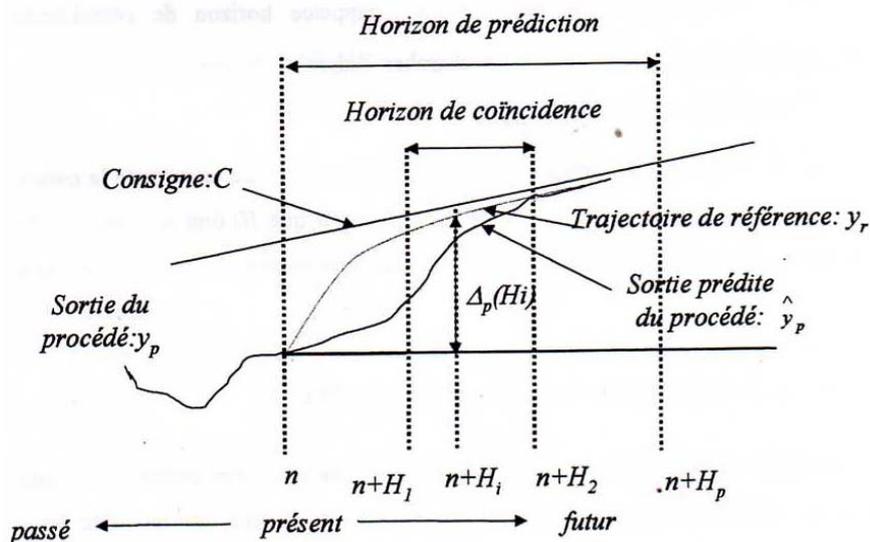


Figure I.1 : Trajectoire de référence exponentielle du premier ordre

4. Critère quadratique

La formulation générale du critère quadratique est donnée par :

$$CRIT = J = \sum_i (y_r(n+i) - \hat{y}_p(n+i))^2 \quad (I.8)$$

Les valeurs futures de la commande $U_{opt}^T(n)$ recherchées, minimiseront un critère, $J(u, \hat{y}_p, y_r)$. Ce sont les valeurs de la commande qui donnent le comportement des sorties prédites \hat{y}_p le plus proche possible des valeurs de la trajectoire de référence prédite y_r .

5. Horizon de coïncidence

La minimisation du critère quadratique porte en réalité sur une partie réduite de l'horizon du temps de prédiction, $i=[0,1,\dots,h_2-1,h_2]$, appelée horizon de coïncidence $i=[H_1,H_1+1,\dots,H_2-1,H_2]$, sur lequel on va chercher l'identité du comportement de la prédiction et de la trajectoire de référence (**Bourebria**, (2011)).

I.3.6.2. Structuration et calcul de la variable manipulée

Suivant (**Richalet**, (1993)), tout système dynamique, stable linéarisable localement, décrit par une équation différentielle ou récurrente, soumis à une sollicitation de l'entrée, possède une réponse qui comporte deux termes :

- Une solution libre dite lâchée ou homogène, de l'équation du modèle sans second membre.
- Une réponse forcée de l'équation du modèle avec second membre, avec conditions initiales nulles.

1. Equation de commande

On considère une trajectoire de référence exponentielle de premier ordre, donnée par l'équation (I.7) et un point de coïncidence H_i compris entre les points H_1 et H_2 de l'horizon de prédiction. L'incrément de l'évolution désirée $\Delta_p(H_i)$ est donné par l'équation suivante :

$$\Delta_p(H_i) = y_r(n+H_i) - y_p(n) \quad (I.9)$$

Que l'on peut écrire sous la forme suivante en tenant compte de l'équation (I.7) :

$$\Delta_p(H_i) = C(n+H_i) - \lambda^{H_i}(C(n) - y_p(n)) - y_p(n) \quad (I.10)$$

A un instant courant n , on va donc pouvoir décrire le comportement futur du modèle soumis à une suite de commandes $u(n), \dots, u(n+i)$. Pour un point de coïncidence H_i l'équation de la loi de commande est donnée par la relation suivante :

$$y_r(n+H_i) - \hat{y}_p(n+H_i) = 0 \quad (I.11)$$

Avec $\hat{y}_p(n+H_i)$ représente la sortie du procédé prédite à l'instant $(n+H_i)$ qui est donnée par l'équation suivante:

$$\hat{y}_p(n+H_i) = y_{m,l}(n+H_i) + y_{m,f}(n+H_i) + y_p(n) - y_m(n) \quad (I.12)$$

Avec :

$y_m(n)$: Sortie du modèle à l'instant n

$y_{m,l}(n+H_i)$: Sortie lâchée à l'instant $(n+H_i)$

$y_{m,f}(n+H_i)$: Sortie force à l'instant $(n+H_i)$

A partir des équations (I.7), (I.10), (I.11) et (I.12), l'équation de la loi de commande sera donnée par l'équation suivante :

$$\Delta_p(H_i) = C(n+H_i) - \lambda^{H_i}(C(n) - y_p(n)) - y_p(n) = y_{m,l}(n+H_i) + y_{m,f}(n+H_i) + y_p(n) - y_m(n) - y_p(n) \quad (I.13)$$

2. Structuration de la variable manipulée

La commande prédictive fonctionnelle utilise des variables de commande futures structurées. Les variables de commande futures sont structurées par une combinaison linéaire de n_B fonctions de base U_{Bk} selon l'équation suivante.

$$u_m(n+i) = \sum_{k=1}^{n_B} \mu_k(n) U_{Bk}(i) \quad i \geq 0 \quad (I.14)$$

La détermination de la structuration de U_m , consiste à chercher les coefficients μ_k , $k \in [1, \dots, n_B]$ à chaque instant n mais seul $u_m(n)$ est appliqué au procédé:

$$u_m(n) = \sum_{k=1}^{n_B} \mu_k(n) U_{Bk}(0) \quad (I.15)$$

Où les termes μ_k représentent les facteurs de pondérations.

Cette équation montre qu'une fonction de base au moins doit satisfaire $U_{Bk}(0) \neq 0$ pour éviter que la variable de commande soit nulle.

Comme le montre la Figure I.2, suivant **Richalet** par superposition linéaire, chaque fonction de base induit une sortie de base.

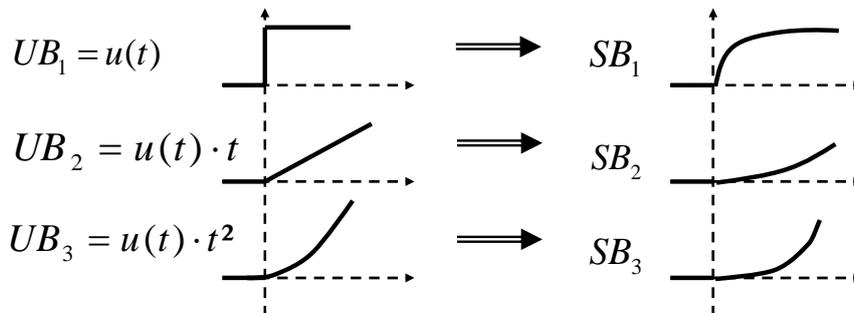


Figure I.2 : Entrées et sorties de base

I.3.6.3. Auto-compensateur polynomial

La procédure d'auto-compensation dans la commande prédictive fonctionnelle, permet d'ajuster la prédiction de la sortie du processus donnés par le modèle interne, qui évolue uniquement sous l'influence de la variable manipulée.

La solution consiste à utiliser la Différence Objet Modèle (DOM), qui est l'erreur, $ep(n)$, entre la sortie réelle du procédé, $y_p(n)$, et la sortie du modèle interne, $y_m(n)$:

$$ep(n) = y_p(n) - y_m(n) \quad (I.16)$$

Avec la procédure d'extrapolation, une prédiction de la DOM à l'instant $(n + H_i)$, $ep(n + H_i)$, peut être effectuée à partir des valeurs passées $ep(n - i)$, $0 \leq i \leq H^*$. Si on suppose que : $\Delta_{ep}(n + H_i) = ep(n + H_i) - ep(n)$

L'équation de base du contrôle par le PFC donnée par (1.13) devient :

$$\Delta_{ep}(H_i) = \Delta_m(H_i) + \Delta_{ep}(n + H_i) \quad (I.17)$$

L'incrément prédit dans la DOM, $\Delta_{ep}(n + H_i)$ est utilisé donc pour corriger soit la trajectoire de référence soit la sortie du modèle.

I.3.6.4. Principe de la décomposition

La technique de la commande prédictive fonctionnelle utilise un modèle interne qui évolue librement et indépendamment du processus. Cette stratégie de « modèle indépendant » crée un problème de robustesse lorsque le modèle est instable. Afin de résoudre ce problème, la technique du PFC propose le principe de « décomposition du modèle ».

Ce principe consiste à décomposer le modèle instable en deux parties stables : l'une de ces parties est alors utilisée comme modèle interne pour le PFC et l'autre partie est prise en compte par la procédure d'auto-compensation d'une façon appropriée (Bourebria, (2011)).

I.4. Présentation des systèmes mono-fluide

I.4.1. Introduction

La conduite thermique des réacteurs discontinus ou semi continus dépend fortement du système de chauffage/refroidissement utilisé pour piloter la température du mélange réactionnel. Dans le cadre de notre travail de thèse, nous avons mis en place un système de chauffage/refroidissement mono-fluide.

Parmi les nombreux avantages de ce système, on peut citer les suivants :

- Un seul fluide pour le chauffage et le refroidissement, ce qui permet d'éliminer les problèmes d'inter-contamination entre les différentes utilités;
- Une évolution continue de la température de la double enveloppe, cela évite les problèmes de chocs thermiques;
- L'absence de purge ce qui élimine les problèmes de discontinuité;
- Des performances quasi constantes de transfert thermique;

Nous présentons dans cette partie, tout d'abord les principales configurations des systèmes mono-fluides, puis leur utilisation dans des différents travaux de recherche.

I.4.2. Présentation des principales configurations du système mono-fluide

I.4.2.1. Chauffage direct – Refroidissement direct

Ce système suppose l'utilisation directe de deux sources de fluides caloporteurs à températures fixées: une source chaude et une source froide. Ces sources sont de même nature que le fluide caloporteur circulant dans la double-enveloppe, pour permettre que chacune d'elles soit mélangée directement au mono-fluide comme présenté sur la Figure (I.3). De plus, afin de garder un débit constant dans la double enveloppe, une quantité équivalente à celle entrante est enlevée du circuit thermique. Cet excès, dont la température est égale à celle de sortie de la double-enveloppe, nécessite la mise en place d'un système de recyclage qui ramène sa température à celle de la source utilisée. L'intérêt de ce procédé est d'avoir directement la température désirée du mono-fluide à l'entrée de la double-enveloppe, en agissant sur les vannes de chaud ou de froid suivant les besoins. Ce procédé peut être considéré comme le système thermique idéal, si les capacités de refroidissement et de chauffage des sources sont suffisantes (**Gaudy**, (1992), **Josep et al.**, (2003), **Gentilcore**, (2000), **Gentric**, (1999)).

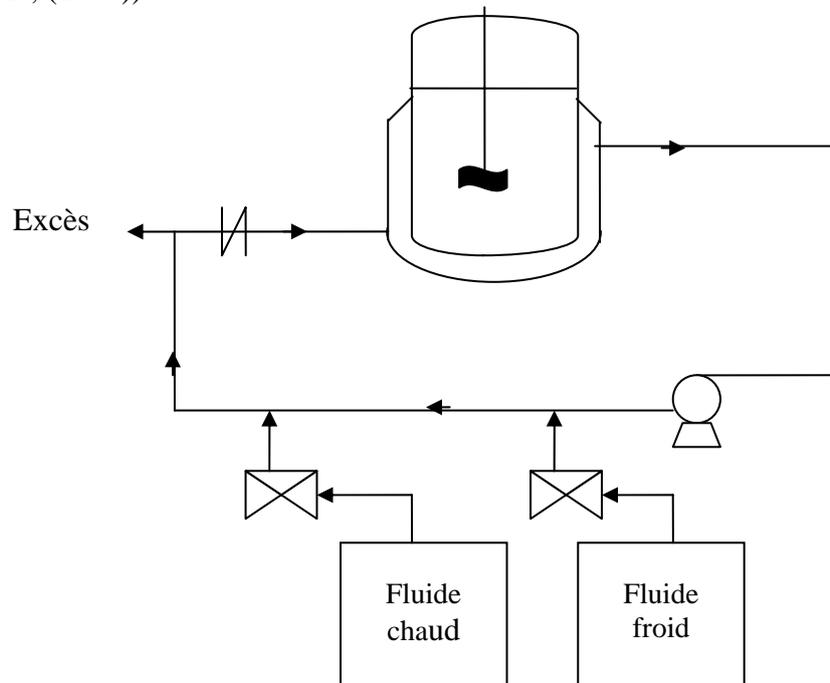


Figure I.3 : Chauffage direct – Refroidissement direct (**Gaudy**, (1992))

I.4.2.2. Chauffage en série – Refroidissement direct

Ce système est basé sur le principe d'une utilisation directe d'une source froide et la mise en place en série d'un élément de chauffe sur le circuit thermique, comme le montre la Figure (I.4). Cet élément est par exemple un crayon chauffant. Lorsque le mode de chauffage est sollicité, le mono-fluide passe à travers cet élément à son débit maximal. La régulation du mode de chauffe se fait par la modulation de la puissance de chauffe du crayon chauffant.

Pour ce procédé, les actionneurs sont donc, la vanne de refroidissement et la puissance de chauffe. Ce système est une alternative largement employée à la première solution du fait de la rapidité de chauffage de la résistance électrique et de sa facilité de contrôle (**Friedrich et Perne**, (1995), **Fletcher**, (1987)).

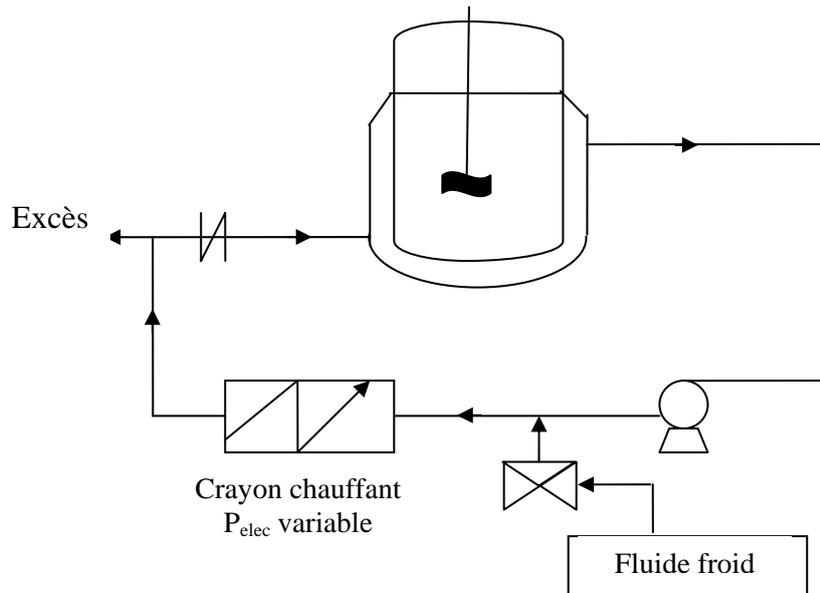


Figure I.4 : Chauffage en série – Refroidissement direct (**Friedrich et Perne**, (1995))

I.4.2.3. Chauffage indirect – Refroidissement direct

Comme le montre la Figure (I.5), le principe est pratiquement le même que pour le procédé décrit précédemment à la différence que le crayon chauffant est constamment en fonctionnement à sa puissance maximale. Grâce à une vanne proportionnelle par exemple ou un by-pass, on agit sur le débit du mono-fluide qui doit passer dans cet élément et non plus sur la puissance de chauffe. Cette configuration reste théorique, puisque dans la pratique, le chauffage instantané d'une partie du fluide peut provoquer d'une part un retard dans la réponse du système et le contrôle du procédé devient difficile, et d'autre part l'évaporation du volume résiduel du mono-fluide si le mode de chauffage n'est pas sollicité durant une longue période (**Chilton et al.**, (1944)).

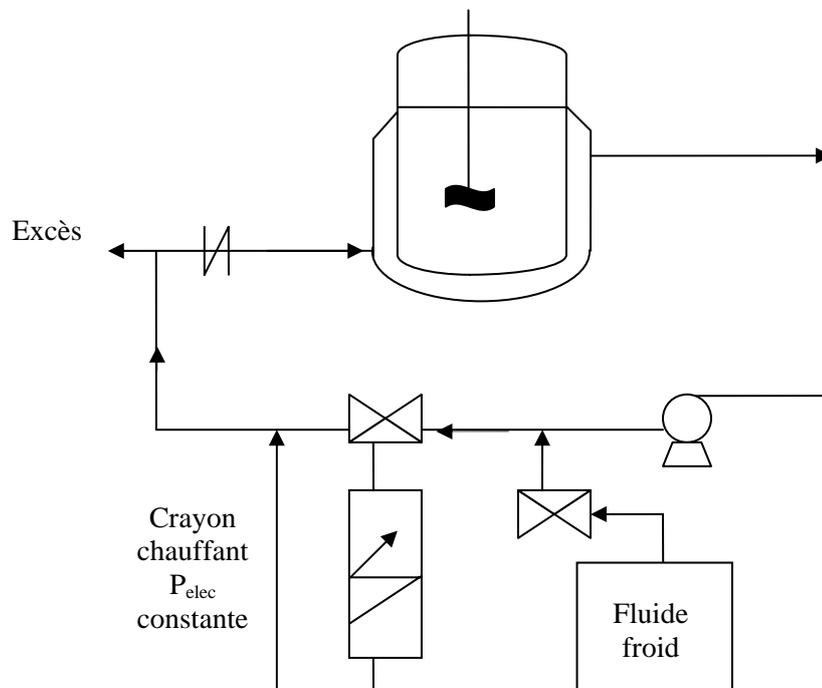


Figure I.5 : Chauffage indirect – Refroidissement direct (**Chilton et al.**, (1944))

I.4.2.4. Chauffage indirect – Refroidissement indirect

Ce système repose sur la mise sur le circuit thermique d'une manière indirecte, de différents éléments thermiques (par exemple un échangeur de chaleur et un crayon chauffant) comme le montre la Figure (I.6). L'intérêt de ce système est de n'avoir qu'un seul type d'actionneurs : la vanne proportionnelle qui agit sur le débit du mono-fluide circulant dans les différents appareils thermiques. La puissance de chauffe du crayon chauffant et le débit de froid de l'échangeur de chaleur sont donc activés en permanence et on agit sur le débit partiel de fluide qui dérive vers l'appareil (**Kanatas et al.**, (1987), **Juba et Hammer**, (1986), **Kern**, (1950)).

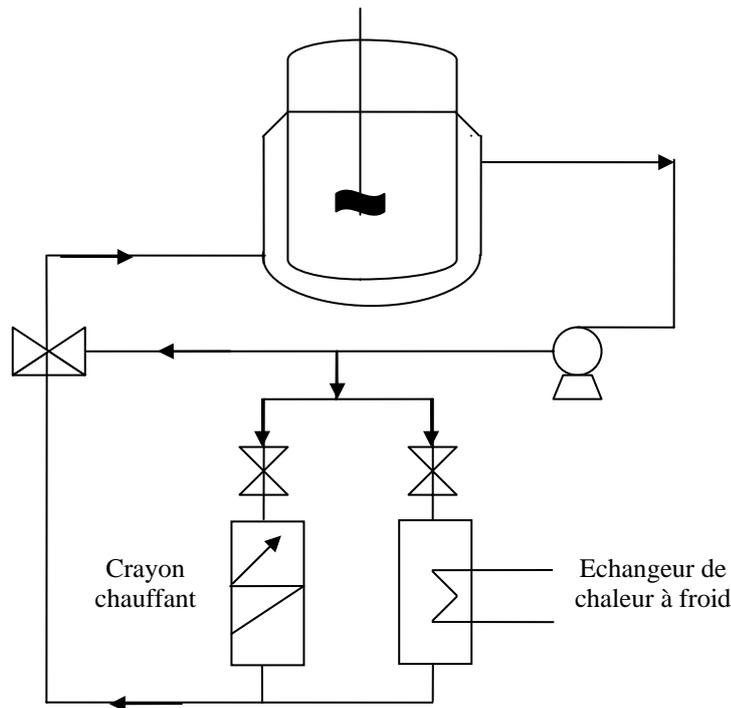


Figure I.6 : Chauffage indirect-Refroidissement indirect (**Kern**, (1950))

I.4.2.5. Chauffage en série – Refroidissement indirect

Comme la montre la Figure (I.7), l'élément de chauffe est cette fois-ci, monté en série sur le circuit thermique. Donc pour ce procédé, les actionneurs sont à la fois la vanne proportionnelle qui agit sur le débit du mono-fluide qui doit passer dans l'échangeur de chaleur et la puissance de chauffe (**Chilton et al.**, (1944), **Dirion et al.**, (1995)).

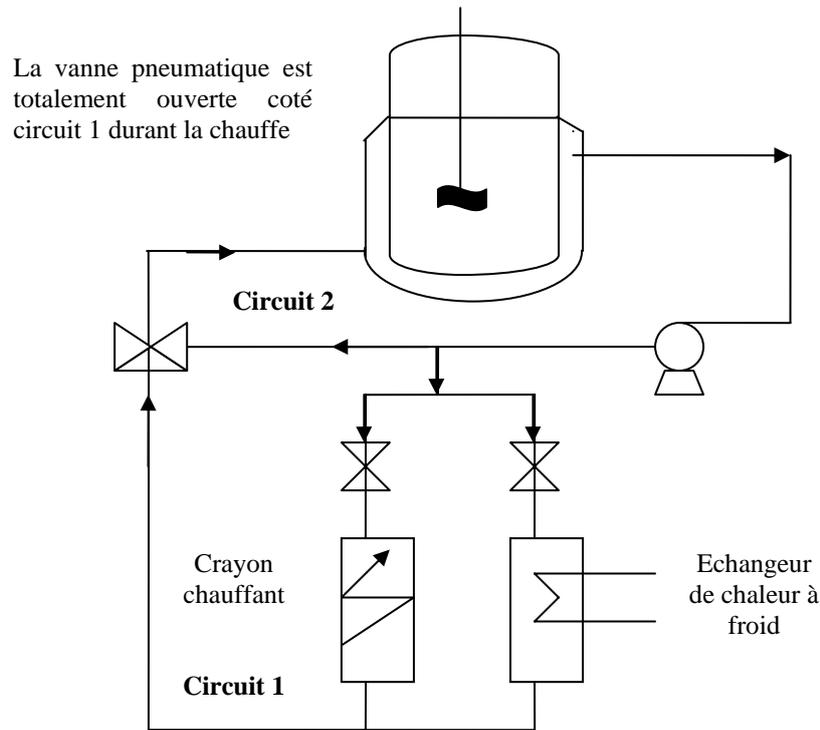


Figure I.7 : Chauffage en série – Refroidissement indirect (Chilton *et al.*, (1944))

I.4.2.6. Chauffage en série – Refroidissement en série

Ce système propose la mise en place des différents appareils thermiques en série Figure (I.8). A la différence du système précédent, les actionneurs sont donc la vanne de refroidissement (modifiant le débit de l'utilité de refroidissement au niveau de l'échangeur) et la puissance de chauffe (Chylla et Haase, (1993), Kiparissides et Shah, (1983), Tyner *et al.*, (1999)).

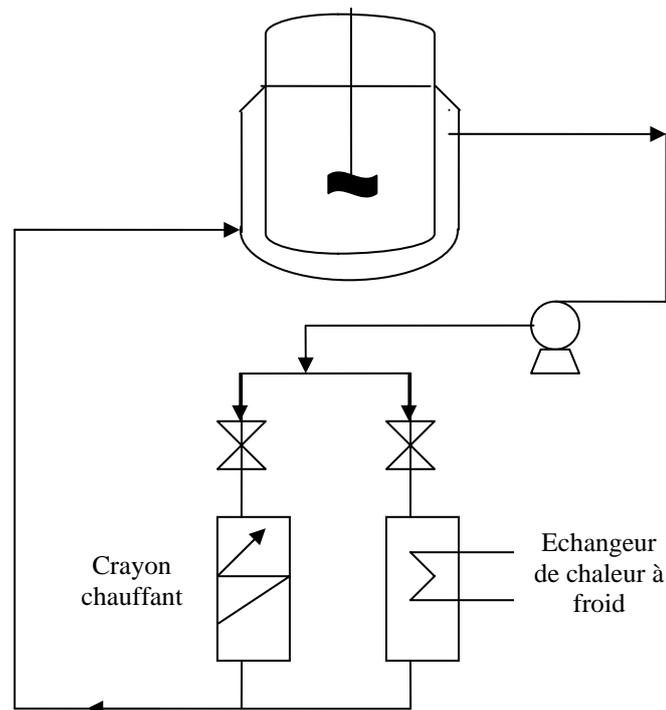


Figure I.8 : Chauffage en série – Refroidissement en série (Chylla et Haase, (1993))

I.4.3. Utilisation des systèmes mono-fluide

De nombreux auteurs ont étudié les systèmes mono-fluides que ce soit dans le domaine du contrôle thermique des réacteurs ou dans le cadre d'études calorimétriques sont présentés dans le tableau (I.1) suivant :

Tableau I.1 : Etudes réalisées sur les systèmes mono-fluide

Auteurs	Système de chauffage/refroidissement	But des travaux
Bourne, (1981), Josep et al., ((2003)	Injection directe d'huile chaude et d'huile froide dans le circuit thermique	Pour déterminer la puissance consommée par un agitateur « impeller » dans un réacteur agité.
Kiparissides et Shah, (1983), Legat, (2004)	Système mélangeant directement deux fluides (un chaud et un froid) dans un bac de mélange.	Pour contrôler la polymérisation du chlorure de vinyle.
Chylla et al, (1993), Clarke-Pringle et al., (1997), Gentilcore, (2000), Gentric, (1999)	Injection directe de vapeur ou d'eau froide dans le circuit thermique.	Pour contrôler la température de polymérisation dans des réacteurs agités à double-enveloppe.
Tyner et al., (1999), Fletcher, (1987)	Injection directe des utilités froide et chaude en même temps dans le circuit thermique	Pour contrôler la température dans des réacteurs agités à double-enveloppe.
Liptak, (1986), Chilton, (1944)	Chauffage est assuré par un échangeur à vapeur monté en série et le refroidissement par injection directe d'eau froide.	Pour le contrôle thermique des réacteurs.
Machado et al., (1998), Friedrich et Perne, (1995)	Le chauffage est assuré par un échangeur de chaleur à plaques monté en série et utilisant la vapeur comme utilitaire de chauffage tandis que le refroidissement est assuré par injection direct d'eau froide dans le circuit thermique.	Pour le contrôle thermique des réacteurs discontinus de polymérisation.
Gentilcore, (2000), Le Lann et al., (1995)	Le premier système consiste à injecter directement la vapeur dans le circuit thermique et le second type consiste à faire passer le mono-fluide dans un échangeur de chaleur placé en série utilisant la vapeur comme utilité de chauffage.	Pour étudier la prédiction du temps de chauffage et de refroidissement des réacteurs discontinus.
Carloff et al., (1994), Kanatas et al., (1987)	Un échangeur de chaleur et deux résistances électriques montées indirectement sur le circuit thermique.	Pour développer des études calorimétriques en réacteur agités.

Tableau I.1 suite : Etudes réalisées sur les systèmes mono-fluide

Auteurs	Système de chauffage/refroidissement	But des travaux
Gentric et al. , (1999), Kern , (1950)	Deux échangeurs de chaleur montés indirectement sur le circuit thermique l'un utilise l'eau chaude et l'autre l'eau froide.	Pour optimiser le temps final de la polymérisation du Styrène et α -methylstyrène.
Balland et al. , (1999), Juba et Hammer , (1986)	Deux échangeurs de chaleur chaude et froide montés indirectement sur le circuit thermique.	Dans le cadre des études sur l'estimation des paramètres cinétiques et thermiques des réactions chimiques.
Cheik-Ali et al. , (1989), Chylla et Haase , (1993)	Le chauffage et le refroidissement sont assurés par deux échangeurs de chaleur montés en série sur le circuit thermique.	Pour avoir un nouvel outil d'extrapolation des procédés de chimie fine.
Defaye et al. , (1993), Kiparissides et Shah , (1983)	Deux résistances électriques et d'un refroidisseur tubulaire à eau froide en série.	Pour contrôler la réaction de polymérisation.
Bouhenchir et al. , (2000), Chilton et al. , (1944), Dirion et al. , (1995)	Deux échangeurs de chaleurs montés indirectement sur le circuit thermique pour le refroidissement et pour le chauffage un crayon chauffant monté en série.	Afin d'améliorer le contrôle thermique des réacteurs discontinus.

I.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une analyse bibliographique des différents outils de base nécessaires pour réaliser notre travail. Dans les premiers paragraphes, nous avons présenté les principaux régulateurs qui feront l'objet de notre étude et nous nous sommes intéressés particulièrement à la présentation de l'algorithme de commande avancée (la commande prédictive fonctionnelle). Les derniers paragraphes ont été consacrés aux systèmes de chauffage/refroidissement en particulier le système mono-fluide pour présenter leurs principales configurations avec les différents travaux effectués sur les réacteurs discontinus équipés du système mono-fluide.

CHAPITRE II

DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET PRESENTATION DES MODULES D'ACQUISITION ET DE COMMANDE

II.1. INTRODUCTION

II.2. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

II.2.1. Réacteur

II.2.2. Les pompes

II.2.3. Système de chauffage/refroidissement

II.2.4. Instrumentation

II.3. SYSTEME DE REGULATION

II.3.1. Interface entre le réacteur et le micro-ordinateur

II.3.2. Acquisition des données et commande des actionneurs

II.3.3. Développement des différents logiciels pour la validation en simulation

II.4. CONCLUSION

Résumé : Dans ce chapitre nous présentons dans la première partie, le dispositif expérimental conçu à une échelle pilote au sein du Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse pour mener cette étude. Ce dispositif est construit autour d'un réacteur discontinu en verre à double enveloppe d'une capacité de 1 litre, équipé d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide. Le chauffage et le refroidissement du mono-fluide sont assurés par la mise en place d'un crayon chauffant et deux échangeurs de chaleur à plaques. Dans la deuxième partie nous présentons les différents modules d'acquisition et de commande développés pour faire une interface de communication entre l'ordinateur et les différents instruments de mesure et d'action.

II.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous décrivons le dispositif expérimental équipé d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide.

En pratique, il existe divers systèmes de chauffage/refroidissement utilisés pour le contrôle thermique de ces réacteurs. Dans cette étude, nous nous intéressons au système dit mono-fluide. Le système mono-fluide consiste à faire circuler dans la double-enveloppe du réacteur un seul fluide caloporteur à débit constant. La température du milieu réactionnel est contrôlée en agissant sur la température du fluide caloporteur afin de suivre un profil de consigne imposé, soit optimal (déterminé à priori) soit provenant d'un mode opératoire industriel classique (dans le cas d'une réaction chimique, ce mode opératoire comporte trois phases distinctes : Préchauffage, réaction avec maintien de la température, refroidissement).

L'enchaînement de ces différentes phases de fonctionnement nécessite la mise en place d'appareils thermiques tels que des échangeurs de chaleur, crayon chauffant. Nous décrivons également les différents programmes permettant l'interfaçage du procédé réel avec un micro-ordinateur sur lequel nous avons implanté les différents algorithmes de contrôle.

II.2. Dispositif expérimental

Le montage expérimental est présenté sur la Figure (II.1). Ce réacteur pilote va nous servir de support pour l'étude de la conduite d'un réacteur avec un environnement thermique mono-fluide.

II.2.1. Réacteur

Le réacteur pilote est en verre d'une capacité effective de 1 litre et d'une masse de 2.2 kg. Le corps du réacteur est de forme cylindrique et à fond sphérique, il a un diamètre intérieur de 82 mm, un diamètre extérieur de 100 mm, une hauteur de 204 mm et une surface d'échange (milieu réactionnel / paroi du réacteur) de 0.039 m². Le réacteur est muni d'une double-enveloppe de 5 mm d'épaisseur, avec un diamètre extérieur de 125 mm et un volume de 0.15 litre.

Le couvercle du réacteur possède quatre orifices : le premier sert de passage pour l'axe de l'agitateur, le second est utilisé pour introduire les réactifs, le troisième est réservé au capteur de température du milieu réactionnel et le quatrième au capteur de pression dans le réacteur.

Pour assurer une parfaite homogénéité du milieu réactionnel, le réacteur est muni d'un agitateur de type "impeller" dont le diamètre de l'arbre est de 10 mm et le diamètre des pales de 41 mm. La vitesse d'agitation est variable et peut être réglée manuellement. Dans notre cas les simulations sont effectuées avec une vitesse d'environ 260 tour.mn⁻¹ qui assure une bonne agitation.

Remarque :

On utilise un agitateur "impeller", mais différents types d'agitateurs (rushton, ancre,...) peuvent cependant être adaptés sur l'arbre du moteur.

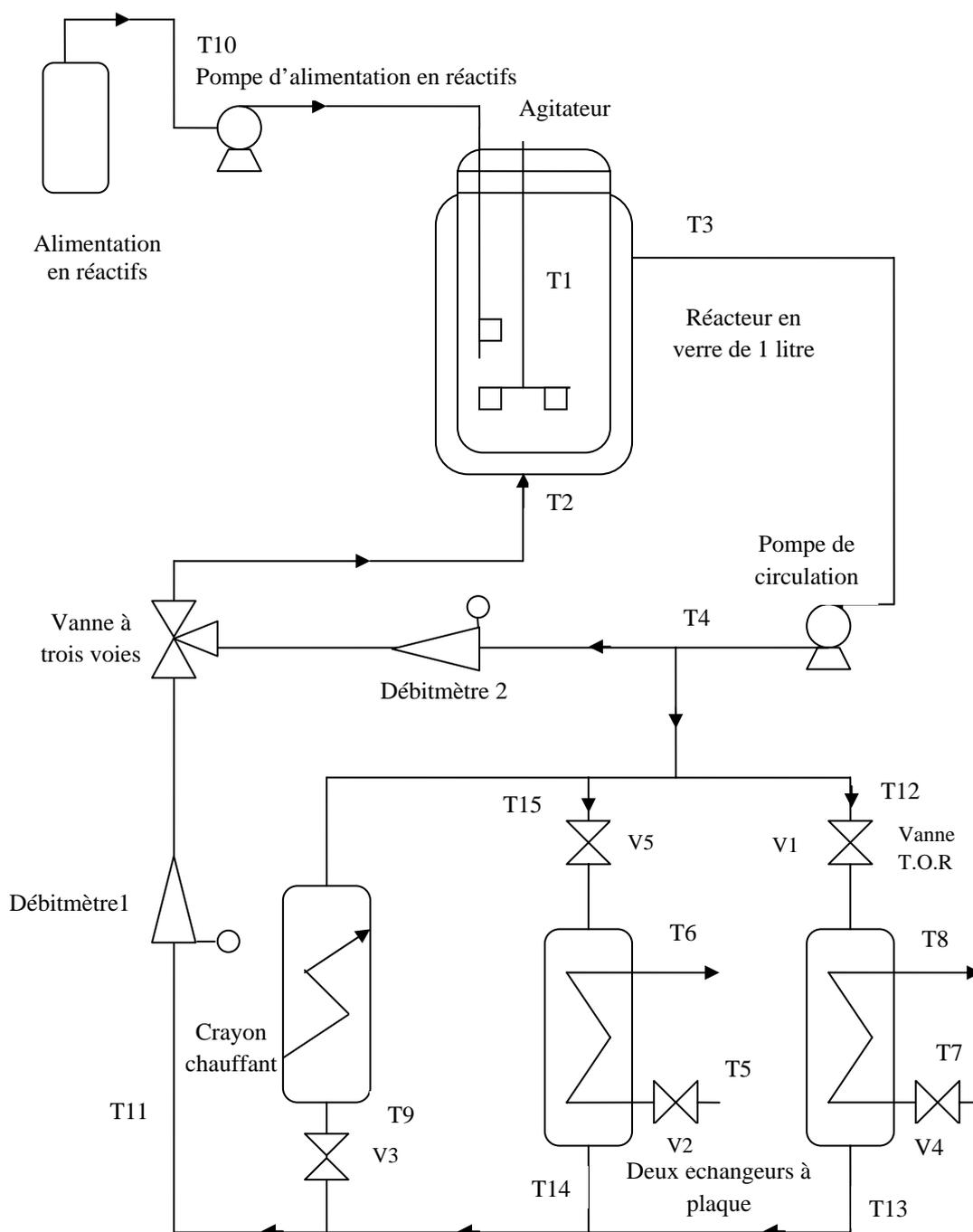


Figure II.1 : Installation pilote du réacteur et son environnement thermique.

II.2.2. Les pompes

Deux pompes sont installées :

- Une pompe à piston "DOSAPRO" permet la coulée de réactifs liquides dans une plage de débit de 0 à 336 cm³/h.
- Une pompe à engrenage sur le circuit principal assure la circulation du mono- fluide dans la boucle thermique à un débit maximal de 1500 l/h.

II.2.3. Système de chauffage / refroidissement :

Un fluide caloporteur utilisable dans la gamme de température -35°C à 110°C a été choisi. Il s'agit d'un mélange eau / éthylène glycol à 50% ou simplement eau glycolée. Ce fluide caloporteur fréquemment utilisé pour des systèmes de laboratoire a les propriétés d'avoir un bon pouvoir calorifique, propreté et sécurité d'incendie accru et pas de changement de phase durant le chauffage / refroidissement, et une viscosité qui n'accuse pas de trop grandes variations avec la température. En effet, à 0°C sa viscosité est de $0.5 \cdot 10^{-3}$ Pa.s et à 100°C elle est égale à $0.3 \cdot 10^{-3}$ Pa.s, d'où le maintien d'un débit constant dans la boucle thermique (**Gaudy**, (1992)).

Le mono-fluide circule dans une boucle thermique qui peut contenir 10 litres de liquide. Pour faire varier sa température, différents éléments ont été mis en place comme indiquée sur la Figure (II.1). Ces éléments vont être présentés dans la suite.

II.2.3.1. Crayon chauffant

Le crayon chauffant est monté en série sur le circuit thermique. Il s'agit d'une tige en acier à l'intérieur de laquelle est placée une résistance électrique. La longueur de cette résistance est de 310 mm, elle a un diamètre de 26 mm et une masse de 0.5 kg. La résistance électrique permet de fournir une puissance électrique maximale de 2000 watts.

II.2.3.2. Les échangeurs de chaleur à plaques

Depuis leurs introductions dans le monde industriel en 1930, les échangeurs de chaleur à plaques se sont considérablement améliorés. Ils sont devenus à la fois économiques et flexibles.

Ils offrent une alternative économique par rapport aux traditionnels échangeurs tubulaires.

De part sa conception, un échangeur à plaques est constituée d'un ensemble de plaques métalliques embouties au travers desquelles s'effectue le transfert de chaleur entre deux fluides. Un joint par plaque assure l'étanchéité ainsi que la répartition sans mélange des fluides, alternativement dans les canaux formés par deux plaques adjacentes.

L'emboutissage des plaques a pour raisons principales.

- de favoriser la turbulence du fluide s'écoulant entre elles ;
- d'assurer une tenue correcte à la pression exercée par les fluides.

Ce type d'échangeur présente par ailleurs un faible encombrement, son faible volume de rétention lui confère un temps de réponse très court. Mais c'est surtout pour ses avantages thermiques qu'un échangeur à plaques est intéressant, en particulier pour les échanges de chaleur entre liquides. Grâce à ses caractéristiques (coefficient d'échange thermique élevé, fonctionnement à contre-courant) ce type d'échangeur permet des écarts de températures très faibles entre les deux fluides. On peut ainsi transférer plus de 90 % de la chaleur physiquement transmissible au moyen d'un seul échangeur (**Gaudy**, (1992), **Bouhenchir**, (2000)).

Les échangeurs de chaleurs à plaques sont largement utilisés dans différents domaines d'applications, à savoir les domaines de produits laitiers, boissons, procédés agro-alimentaires et l'industrie pharmaceutique.

Deux échangeurs de chaleurs à plaques sont installés d'une façon indirecte sur la boucle thermique. L'un utilise, comme utilités de refroidissement, l'eau froide à une température de 15°C et un débit maximal de 1500 l/h et l'autre utilise, un mélange

eau/éthylène glycol à 50 % en poids à une température de -10°C et un débit maximal de 1500 l/h.

II.2.4. Instrumentation

L'installation est équipée de capteurs et d'actionneurs dont la description est présentée ci-après.

II.2.4.1. Les capteurs

i) Capteurs de température

Quinze sondes à résistances de platine $100\ \Omega$ (PT100 ohms) de précision 0.1°C sont utilisées pour mesurer les températures suivantes :

- $T_{\text{réacteur}}$: Température du milieu réactionnel (T1) ;
- T_{ede} : Température du mono-fluide à l'entrée de la double-enveloppe (T2) ;
- T_{sde} : Température du mono-fluide à la sortie de la double-enveloppe (T3) ;
- T_{eboucle} : Température du mono-fluide à l'entrée de la boucle thermique (T4) ;
- T_{eegechg} : Température de l'eau glycolée à l'entrée de l'échangeur à eau glycolée (T5) ;
- $T_{\text{se echg}}$: Température de l'eau glycolée à la sortie de l'échangeur à eau glycolée (T6) ;
- T_{eefechf} : Température de l'eau froide à l'entrée de l'échangeur à eau froide (T7) ;
- T_{sefechf} : Température de l'eau froide à la sortie de l'échangeur à eau froide (T8) ;
- T_{scrchauf} : Température du mono-fluide à la sortie du crayon chauffant (T9) ;
- $T_{\text{coulée}}$: Température des réactifs coulés (T10) ;
- T_{sboucle} : Température du mono-fluide à la sortie de la boucle thermique (T11) ;
- $T_{\text{emoneochf}}$: Température du mono-fluide à l'entrée de l'échangeur à eau froide (T12) ;
- $T_{\text{smoneochf}}$: Température du mono-fluide à la sortie de l'échangeur à eau froide (T13) ;
- T_{smonechg} : Température du mono-fluide à la sortie de l'échangeur à eau glycolée (T14) ;
- T_{emonechg} : Température du mono-fluide à l'entrée de l'échangeur à eau glycolée (T15) ;

Chacune des sondes de température est reliée à un convertisseur transmetteur de mesure programmable à base de microprocesseur. Le convertisseur / transmetteur transforme le signal fourni par la sonde en une tension entre -10 et 10 volts, directement proportionnelle à la valeur de la température mesurée dans la gamme - 40 à 200°C ou bien 0 à 100°C en fonction du choix effectué. Cette tension est ensuite appliquée aux entrées d'un afficheur numérique pour la lecture instantanée de la valeur de la température ainsi que d'une carte d'acquisition (A/N) pour son traitement numérique par le micro-ordinateur.

ii) Capteurs des débits du mono-fluide

Le débit du mono-fluide est mesuré instantanément aux différents points de l'installation par deux débitmètres de type Brooks – Rosemount. Ces deux débitmètres sont destinés à :

- mesurer le débit du mono-fluide circulant dans la boucle thermique (ou boucle principale), c'est-à-dire, dans les échangeurs de chaleurs ou le crayon chauffant (débitmètre 1) ;
- mesurer le débit du mono-fluide dans la boucle secondaire (débitmètre 2).

Les débits instantanés du mono-fluide sont transformés par ces débitmètres en impulsion électrique dont la fréquence est proportionnelle à la valeur du débit. Ces impulsions sont ensuite appliquées à l'entrée d'un convertisseur débitométrique qui les convertit en tension électrique 0-10 volts. Cette tension est ensuite transmise à une carte d'acquisition (A/N) pour

son traitement par le micro-ordinateur. Notons que le convertisseur débitmétrique est muni d'un afficheur qui indique la valeur du débit instantané en litre par (l/h).

II.2.4.2. Les actionneurs

La régulation des deux débits du mono-fluide ainsi que la gestion des appareils nécessitent l'utilisation d'une vanne proportionnelle ainsi que de vannes Tout Ou Rien (T.O.R).

i) Vanne proportionnelle

Il s'agit d'une vanne pneumatique à trois voies de type Kammer Sereg vannes SA. Cette vanne est destinée à régler le débit du mono-fluide qui doit passer dans l'un des deux échangeurs de chaleur durant les phases de refroidissement. Elle est totalement fermée sur le circuit secondaire (by-pass). C'est une vanne mélangeuse/répartitrice puisqu'elle permet de répartir le mono-fluide en deux courants et de les mélanger pour garder un débit de circulation constant dans la double-enveloppe cette vanne est connectée à un convertisseur électropneumatique, qui traduit une intensité comprise entre 4 et 20 mA provenant de la carte de commande (convertisseur N/A) en une tension de 0 à 10 volts puis en une pression 0 et 10 bars.

ii) Vanne Tout Ou Rien : T.O.R

La gestion des différents appareils (crayon chauffant et échangeur de chaleur à plaques) est réalisée par la mise en place d'électrovannes implantées sur le dispositif expérimental. Ces électrovannes sont alimentées par l'air comprimé à 6 bars. Cinq vannes Tout Ou Rien à boule de ¼ de tour sont alimentées en 220 volts. Ces vannes sont en inox 316 L et d'un diamètre de passage de 15 mm. Leur ouverture et fermeture sont pilotées par une carte de commande (convertisseur N/A) du micro-ordinateur. Un relais statique à isolation galvanique convertit la tension de - 10 à 10 volts issus de cette carte en fermeture ou en ouverture du circuit à utiliser pour la gestion des appareils.

Sur le dispositif expérimental, cinq vannes sont destinées à effectuer cette gestion (voir Figure II.1).

- **Vanne 1** : Vanne située à l'entrée de l'échangeur utilisant l'eau froide, côté mono-fluide.
- **Vanne 2** : Vanne située à l'entrée de l'échangeur utilisant l'eau glycolée, côté eau glycolée.
- **Vanne 3** : Vanne située à la sortie du crayon chauffant.
- **Vanne 4** : Vanne située à l'entrée de l'échangeur utilisant l'eau froide, côté eau froide.
- **Vanne 5** : Vanne située à l'entrée de l'échangeur utilisant l'eau glycolée, côté mono-fluide.

Les trois vannes Tout Ou Rien (V1, V3 et V5) sont utilisées pour faire passer le mono-fluide à travers les éléments de la boucle thermique et les autres (V2, V4) contrôlent les entrées des deux utilitaires de refroidissement dans les échangeurs de chaleur.

Les différentes situations, pour chacune des vannes Tout Ou Rien durant les 3 phases de fonctionnement, sont données dans le tableau (II.1).

Tableau II.1 : Gestion des vannes Tout ou Rien (**Gaudy**, (1992), **Bouhenchir**, (2000))

Spécifications/vannes T.O.R	V1	V2	V3	V4	V5
Utilisation du crayon chauffant	F	O	F	O	F
Utilisation de l'échangeur à eau froide	O	O	O	O	F

Utilisation de l'échangeur à eau glycolée	F	O	O	O	O
---	---	---	---	---	---

Remarque : F : vanne fermée ; O : vanne ouverte ;

Les vannes V2 et V4 sont ouvertes durant tous les essais (simulation) puisque les échangeurs de chaleur marchent en permanence.

La vanne V3 est de type N.O (normalement ouverte) par mesure de sécurité c'est-à-dire (F : ouverte et O : fermée).

II.3. Système de régulation

La mesure est le système de commande permettent, entre autre, le contrôle de la qualité et de l'exactitude d'une production, la surveillance de bon fonctionnement d'un procédé, l'analyse des divers paramètres d'un ensemble industriel en vue d'optimiser son fonctionnement et la commande des opérations en vue d'obtenir une régulation ou un accroissement de la sécurité du fonctionnement d'un système.

Le système de régulation est un micro-ordinateur destiné à recueillir les informations des divers capteurs et à les traiter afin d'envoyer les ordres nécessaires pour agir sur le procédé. En effet, ce calculateur est destiné à travailler en temps réel : des convertisseurs (A/N) et (N/A) peuvent être installés dans l'unité de base pour contrôler et mesurer les variables logiques et analogiques. Les systèmes acquisition, de traitement de l'information et de commande sont reliés également à une armoire de commande comportant les afficheurs et les commandes pour le fonctionnement en mode manuel.

II.3.1. Interface entre le réacteur et micro-ordinateur

Le dispositif expérimental est relié à un micro-ordinateur. Ce micro-ordinateur possède des cartes entrée/sortie permettant d'une part l'acquisition de signaux analogiques provenant des capteurs et d'autre part l'envoi de signaux analogiques vers les actionneurs.

II.3.2. Acquisition des données et commandes des actionneurs

Un schéma de l'ensemble des connections entre le micro-ordinateur et le réacteur est donné sur la Figure (II.2). Les signaux émis par les capteurs ou reçus par les actionneurs sont incompatibles avec un ordinateur : ce sont des signaux analogiques alors que l'ordinateur ne peut manipuler que des données numériques. C'est la carte *RTI820* qui assure la conversion des signaux analogiques émis par les capteurs en valeur numérique ou de la commande numérique envoyée par l'ordinateur en signal analogique destiné aux actionneurs. Celle-ci est reliée directement pour ces opérations à un panneau *STB-HL02* (panneau pour des tensions) (**Gaudy**, (1992), **Bouhenchir**, (2000)). En raison de leur spécificité, d'autres panneaux de communication peuvent être utilisés suivant les besoins de l'utilisateur.

Le nombre d'entrées et des sorties de la carte dépendent du panneau utilisé. Le panneau *STB-HL* a la capacité de mesurer directement de fortes tensions issues des 20 voies d'entrée analogique et de commander les 4 voies de sortie analogique. Ce panneau consiste en un ensemble de décodeurs, multiplexeurs et divers amplificateurs.

Les capteurs sont reliés à des modules de type *5B32* et *5B34* qui transforment les signaux émis par les capteurs en tension comprise entre -10 et 10V. De même, les actionneurs sont reliés à des modules de type *5B39* qui transforment la tension émise par la carte *RTI820* en une intensité comprise entre 4 et 20 mA à destination de ces actionneurs. Ces différents modules sont branchés sur une carte de connexion reliée à la carte *RTI820* comme le montre la Figure (II.3) (**Gaudy**, (1992), **Bouhenchir**, (2000)).

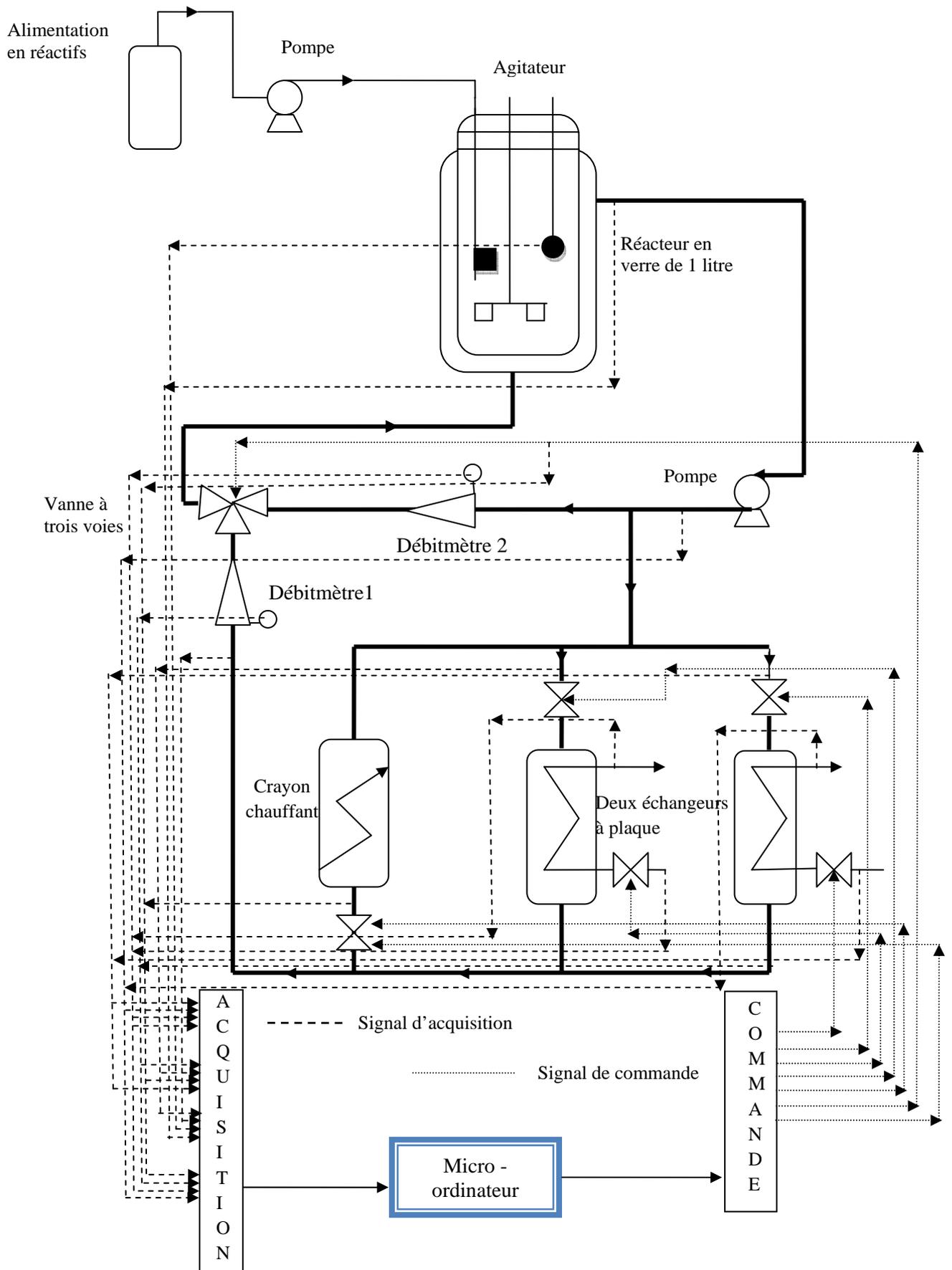


Figure II.2 : Montage expérimental avec les liaisons réacteurs / micro-ordinateur.

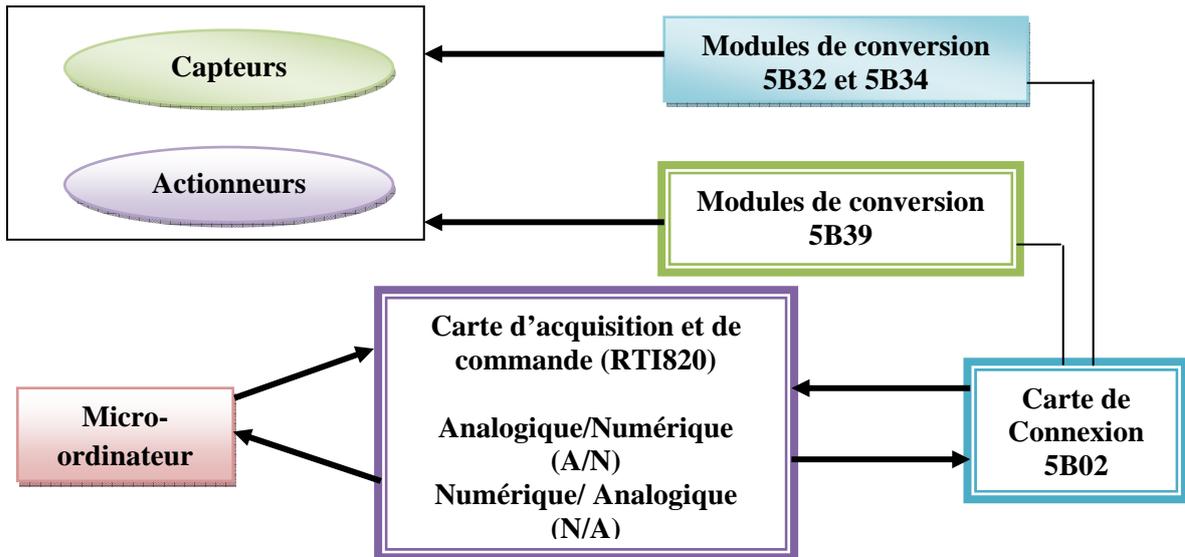


Figure II.3 : Caractéristiques du système acquisition/commande

II.3.3. Développement des différents logiciels pour la validation en simulation

Nous avons réalisé un logiciel (entièrement écrit en Fortran) pour effectuer les différentes tâches du système de conduite de l'unité pilote. Ce programme implanté sur micro-ordinateur, est composé de plusieurs parties :

- 1°/- sous-programme d'acquisition permettant d'acquérir toutes les mesures réalisées sur le procédé ;
- 2°/- sous-programme modèle permettant de calculer le profil de consigne, les propriétés physiques, les coefficients d'échanges thermiques, les flux thermiques limites ;
- 3°/- sous-programme de contrôle dans lequel l'algorithme de contrôle thermique est implanté ;
- 4°/- sous-programme de supervision (gestion automatique des appareils) ;
- 5°/- sous-programme de commande permettant de calculer la variable manipulée et le pilotage des actionneurs ;

Ces sous programmes communiquent entre eux de façon à acquérir toutes les informations disponibles sur le procédé. Le schéma du logiciel est présenté sur la Figure (II.4).

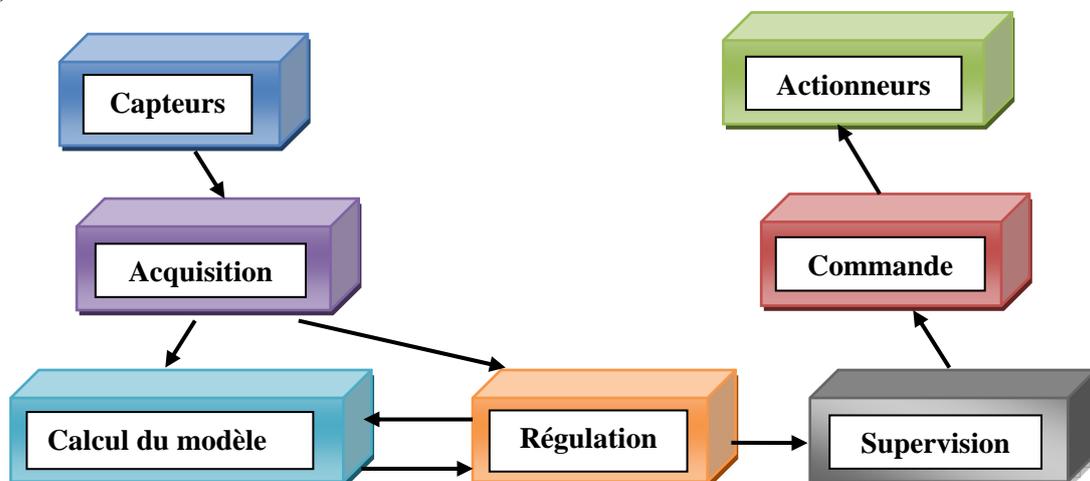


Figure II.4 : Organigramme général de communication entre les différents sous-programmes

II.4. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté le dispositif expérimental sur lequel nos simulations ont été faites. Ce dispositif, construit autour d'un réacteur en verre de 1 litre équipé d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide, est entièrement automatisé, et nous a permis de valider à la fois le simulateur dynamique et la méthodologie de contrôle.

CHAPITRE III

DEVELOPPEMENT DU SIMULATEUR DYNAMIQUE

III.1. INTRODUCTION

III.2. SIMULATEUR DYNAMIQUE

III.2.1. Modélisation du procédé

III.2.2. Stratégie de la résolution numérique

III.3. METHODE DE PROGRAMMATION

III.4. VALIDATION DU SIMULATEUR

III.5. CONCLUSION

Résumé : Dans ce chapitre nous présentons une description de la structure du simulateur. Le comportement dynamique du réacteur discontinu utilisé au cours de ce travail est modélisé par un jeu d'équations différentielles provenant des bilans de matière et thermiques sur le milieu réactionnel et la double enveloppe faisant intervenir une description des transferts de chaleur, entre le fluide caloporteur circulant dans la double enveloppe, la paroi de la double enveloppe, la paroi du réacteur et le mélange réactionnel.

Par la suite, la stratégie de résolution numérique des équations différentielles issues de la modélisation du procédé. Pour simuler l'ensemble du procédé, on a étudié la réponse à un échelon de chauffage ou de refroidissement de la température du milieu réactionnel. A un instant donné, on a modifié les conditions de fonctionnement des appareils (puissance de chauffe pour le crayon chauffant, débit de mono-fluide qui circule dans l'un des deux échangeurs de chaleur).

On a enregistré l'évolution des températures milieu réactionnel et des températures d'entrée et de sortie de la double enveloppe au cours du temps.

La deuxième validation on a introduit une réaction chimique dans le réacteur et on a étudié le rendement de cette réaction lors du chauffage et du refroidissement. On a enregistré l'évolution des concentrations des constituants du mélange réactionnel et la température de celui-ci au cours du temps.

III.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons le simulateur dynamique développé dans le cadre de ce travail. Dans la première partie une description détaillée des équations, conduisant au développement du modèle de simulation est présentée. Les équations sont basées sur l'écriture en régime transitoire des bilans thermiques et de matière au sein du milieu réactionnel et sur la prise en compte des termes de transfert de chaleur entre le mono-fluide circulant dans la double-enveloppe, la paroi du réacteur, le milieu réactionnel (**Rafalimanana**, (1990), **Jarupintusophon**, (1992), **Gaudy**, (1992), **Louleh**, (1996), **Ettedgui**, (1999), **Xaumier**, (1999), **Bouhenchir**, (2000), **Cezerac**, (1995)) et les éléments extérieurs (crayon chauffant, échangeurs de chaleur et les conduites qui transportent le mono-fluide) situés sur le circuit thermique du procédé. De part sa conception, le simulateur développé peut rendre compte du comportement thermique de tout réacteur agité muni d'un système thermique mono-fluide quel que soit le mode de fonctionnement du réacteur (discontinu ou semi-continu), sa taille et le matériau dont il est constitué. Par la suite nous présentons également la stratégie de résolution numérique utilisée pour la résolution des équations issues de la modélisation du procédé.

III.2. Simulateur dynamique

Depuis longtemps déjà, on utilise l'ordinateur dans la conception de l'ensemble du procédé pour la simulation, c'est-à-dire pour représenter virtuellement un fonctionnement réel. La mise en place d'un simulateur dynamique du réacteur discontinu présente plusieurs intérêts, tout d'abord, les principaux objectifs d'un programme de simulation sont les suivants :

- résoudre des équations de bilan matière et énergie pour chacun des réacteurs et chacune des opérations unitaires impliquées.
- calculer les caractéristiques des courants en tout point de l'installation.
- déterminer les éléments nécessaires au calcul complet de l'ensemble
- estimer les coûts et profits
- optimiser les conditions de fonctionnement.

De plus, le simulateur nous permet de simuler des conditions opératoires différentes avant de réaliser les expériences sur l'unité pilote et de tester différentes stratégies de régulations. Ainsi, si des problèmes de sécurité (perte du contrôle thermique, emballement de réacteur ...) ou autres surviennent, on peut alors intervenir sur certains paramètres de l'algorithme de contrôle pour pallier à des tels dangers, avant de passer à l'implantation sur le procédé réel (**Xaumier**, (1999)). Le simulateur permet de limiter le nombre d'expériences effectuées sur une installation pilote ou industrielle. Par ailleurs, le simulateur a pour but de valider la faisabilité de la stratégie développée que ce soit sur une installation de taille industrielle ou à l'échelle de laboratoire.

III.2.1. Modélisation du procédé

Un schéma simplifié du procédé simulé est donné sur la Figure (III.1), il permet notamment de visualiser deux sous-ensembles. Le premier représente le cœur du procédé, il s'agit d'un réacteur en verre dans lequel se déroulent les réactions chimiques envisagées, entouré d'une double enveloppe dans laquelle circule le monofluide (mélange eau/éthylène glycol à 50% en poids) à un débit constant de 1000 l/h, qui permet le chauffage ou le refroidissement du milieu réactionnel. Le second sous-ensemble représente la boucle thermique, il contient un crayon chauffant d'une puissance maximale de 2000 watt, ainsi que deux échangeurs de chaleurs à plaques, l'un utilise eau froide à une température de 15°C (source froide) et l'autre le mélange eau/éthylène glycol à 50% en poids à une température de

-10°C (source très froide). Ces appareils sont reliés entre eux par des conduites qui transportent le mono-fluide et qui jouent un rôle important dans la dynamique du procédé par le retard qu'ils causent ainsi que du fait des pertes thermiques avec le milieu extérieur.

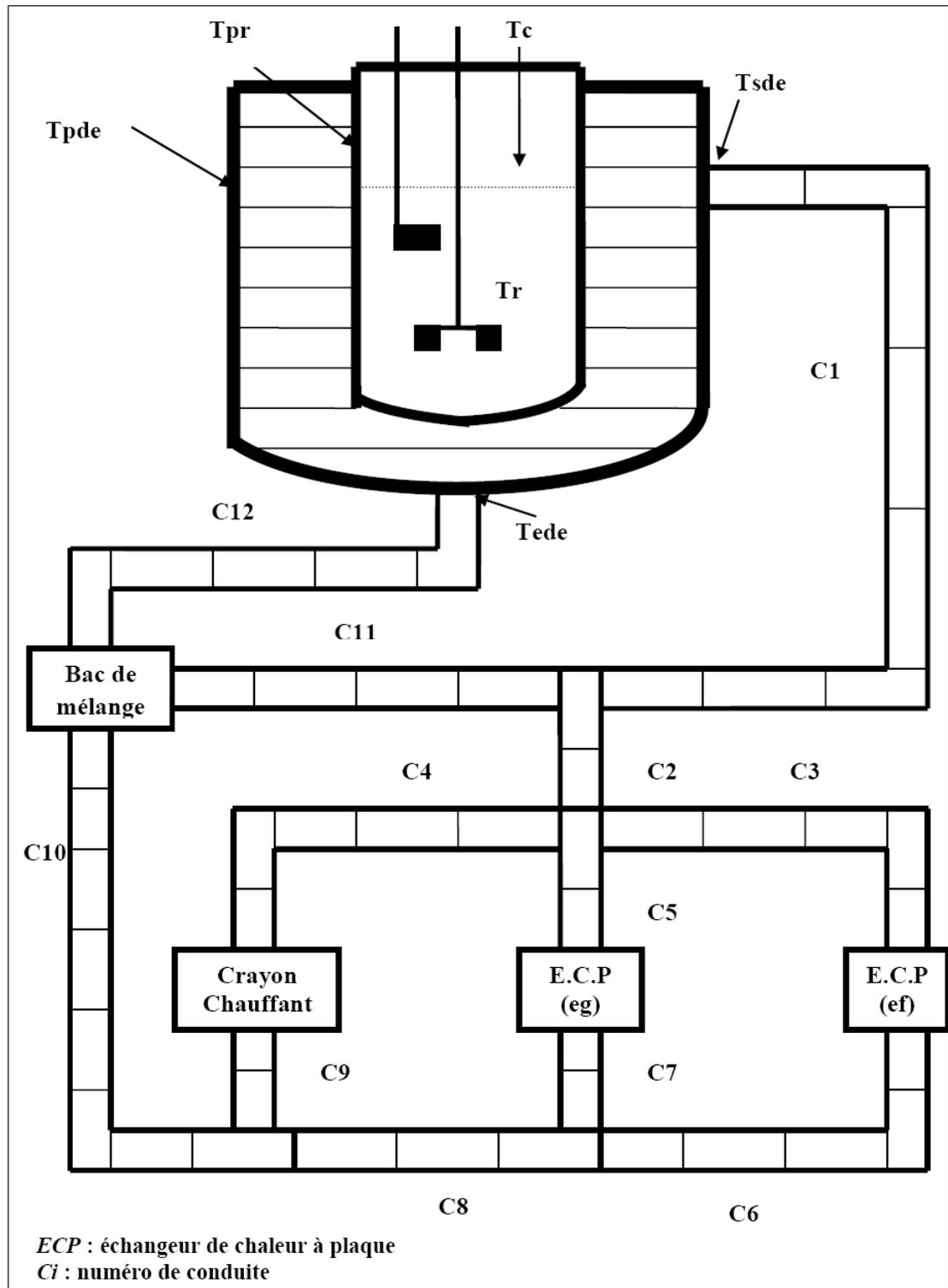


Figure III.1 : Schéma général du procédé à modéliser

III.2.1.1. Géométrie du réacteur et de sa double enveloppe

La Figure (III.2) représente l'ensemble des données géométriques associées au réacteur, à son mobile d'agitation et à sa double enveloppe. Le réacteur est assimilé à une cuve cylindrique à fond sphérique.

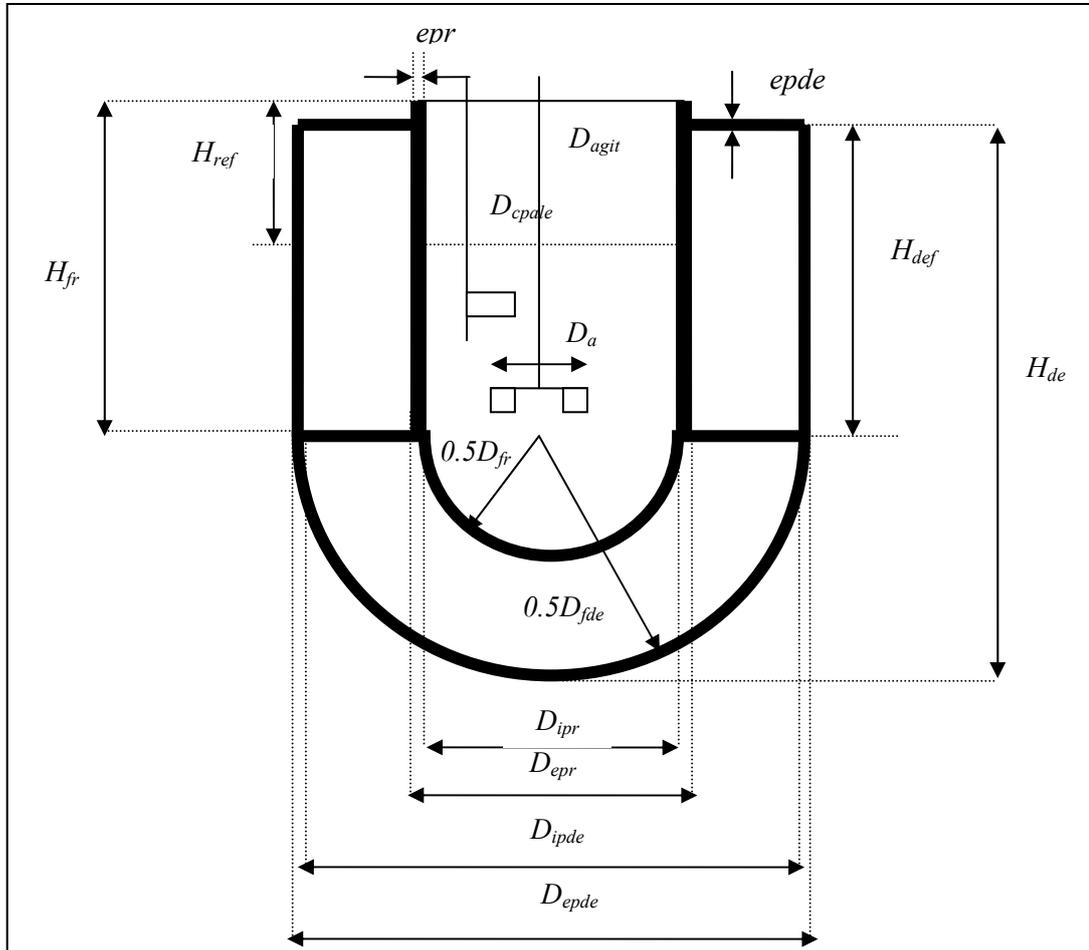


Figure III.2 : Paramètre géométriques associés au réacteur, à son mobile d'agitation et à sa double-enveloppe

III.2.1.2. Modélisation du réacteur

Le modèle du réacteur est établi avec les hypothèses de base suivantes :

- le réacteur est considéré comme parfaitement agité, avec homogénéité de la température au sein du milieu réactionnel ;
- les propriétés physico-chimiques du mélange et du réacteur sont constantes dans l'intervalle de températures considérées.

Dans le cas où on utilise de l'eau comme mélange réactionnel, ces propriétés sont réévaluées à chaque pas de calcul comme des fonctions de la température du milieu réactionnel (voir annexe 1) ;

- la retenue vapeur (ciel gazeux) est négligeable devant la retenue liquide ;
- les réactions ont lieu dans un milieu liquide pseudo-homogène ;
- dans le cas où des réactions seraient mises en jeu, les chaleurs de réactions sont prises en compte ;
- les cinétiques de réaction sont supposées telles que :
 - les constantes de vitesse suivent une loi d'Arrhenius

- les lois de vitesses s'expriment sous forme de produit des concentrations des différents réactifs.

1. Bilan de matière sur le milieu réactionnel

Pour des réactions mises en œuvre de façon discontinue ou semi-continue, les vitesses de réactions sont régies par la loi d'Arrhenius et s'expriment sous la forme suivante :

$$r_j = k_j^0 \exp\left(-\frac{E_j}{R T_r}\right) \prod_{i=1}^{nc} C_i^{\alpha_{ij}} \quad (\text{III.1})$$

Avec α_{ij} : Ordre associé au constituant i dans la réaction j .

C_i : Concentration du constituant i (mole/l) ;

E_j : Énergie d'activation de la réaction j (J/mole) ;

k_j^0 : Constante de vitesse de la réaction j (l'unité dépend de l'ordre global de la réaction j) ;

n_c : Nombre de constituants présents dans le mélange réactionnel ;

R : Constante des gaz parfaits ($R = 8.32$ J/mole.K) ;

r_j : Vitesse de la réaction j en (mole/l.s) ;

T_r : Température du milieu réactionnel (K).

Les différentes grandeurs physiques caractéristiques du mélange réactionnel telles que la densité, la viscosité, ... etc. sont définies de la façon suivante :

- La masse totale m_r (kg) du milieu réactionnel est la somme des masses de tous les constituants présents dans le réacteur à l'instant t :

$$m_r = \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i \quad (\text{III.2})$$

M_i : Masse molaire du corps i (kg/mole) ;

n_i : Nombre de moles du corps i (mole).

- La masse volumique du milieu réactionnel ρ_r (kg/m³) est estimée en supposant que les différents constituants forment un mélange idéal. Le volume total $\frac{m_r}{\rho_r}$ (m³) est égal à la somme des volumes partiels, selon :

$$\frac{m_r}{\rho_r} = \sum_{i=1}^{nc} \frac{n_i M_i}{\rho_i} \quad (\text{III.3})$$

Ce qui peut écrire également :

$$\frac{1}{\rho_r} = \sum_{i=1}^{nc} \frac{n_i M_i}{m_r} \cdot \frac{1}{\rho_i} \quad (\text{III.4})$$

Les propriétés physico-chimiques du mélange sont obtenues en utilisant des règles de mélange et sont des fonctions des compositions du mélange.

Pour la chaleur spécifique Cp_r (kJ/kg.K), la conductivité thermique λ_r (kJ/m.s.K) et la viscosité μ_r (kg/m.s), on utilise les lois suivantes :

$$Cp_r = \frac{1}{m_r} \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i Cp_i \quad (\text{III.5})$$

$$\lambda_r = \frac{1}{m_r} \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i \lambda_i \quad (\text{III.6})$$

$$\mu_r^3 = \frac{1}{m_r} \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i \mu_i^3 \quad (\text{III.7})$$

Les différentes valeurs ρ_i , Cp_i , λ_i , et μ_i relatives aux corps purs sont fournies comme données au programme de simulation et sont supposées être constantes dans la gamme de températures considérée.

Le bilan de la matière sur chaque constituant i du mélange réactionnel pour les réactions mises en œuvre dans un réacteur discontinu ou semi-continu s'écrit :

[Débit d'accumulation du constituant i] = [Débit d'introduction du constituant i] + [Débit de transformation du constituant i]

$$\frac{dn_i}{dt} = f_c x_i + \sum_{j=1}^{nr} C_s(i, j) r_j \frac{m_r}{\rho_r} 10^3 \quad i = 1, \dots, nc \quad (\text{III.8})$$

Où :

C_s : Matrice des coefficients stœchiométriques des différentes réactions ;

f_c : Débit molaire d'alimentation en réactifs liquides (mole/s) ;

x_i : Fraction molaire du constituant i dans la coulée de réactifs.

2. Bilan thermique sur le milieu réactionnel

Le bilan thermique sur le milieu réactionnel s'écrit, en tenant compte de l'échange thermique avec la paroi du réacteur et de l'enthalpie de la coulée suivant :

$$\left[\begin{array}{l} \text{Accumulation de la} \\ \text{chaleur dans le réacteur} \end{array} \right] = \left[\text{Chaleur de la réaction} \right] + \left[\text{Chaleur échangée avec la paroi du réacteur} \right] + \left[\begin{array}{l} \text{Chaleur fournie par} \\ \text{la coulée des réactifs} \end{array} \right]$$

Bilan enthalpique sur le milieu réactionnel :

$$\frac{d(H_r(T_r))}{dt} = -U_{r,pr} A_{r,pr} (T_r - T_{pr}) + f_c H_c(T_c) \quad (\text{III.9})$$

Avec :

$A_{r,pr}$: Surface d'échange entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur (m²) ;

$H_c(T_c)$: Enthalpie spécifique de la coulée à la température T_c (kJ/kg) ;

$H_r(T_r)$: Enthalpie du mélange réactionnel à la température T_r (kJ) ;

$$H_r(T_r) = \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i H_i(T_r) = \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i \left(h_{f,i}(T^*) + \int_{T^*}^{T_r} Cp_i dT \right) \quad (\text{III.10})$$

$h_{f,i}(T^*)$: Enthalpie de formation du constituant liquide i à la température T^* (kJ/kg) ;

$H_i(T_r)$: Enthalpie du constituant i à la température T_r (kJ/kg) ;

T_c : Température de la coulée (K) ;

T_{pr} : Température de la paroi du réacteur (K) ;

T_r : Température du milieu réactionnel (K) ;

T^* : Température à l'état standard ($T^*=298.15K$) ;

$U_{r,pr}$: Coefficient partiel d'échange de chaleur entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur (kJ/m².s.K).

$$\frac{d(H_r(T_r))}{dt} = \sum_{i=1}^{nc} M_i \left[h_{f,i}(T^*) + \int_{T^*}^{T_r} C_{p_i} dT \right] \frac{dn_i}{dt} + \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i \frac{d}{dt} \left[\int_{T^*}^{T_r} C_{p_i} dT \right] \quad (III.11)$$

$$\frac{d(H_r(T_r))}{dt} = \sum_{i=1}^{nc} M_i \left[h_{f,i}(T^*) + C_{p_i}(T_r - T^*) \right] \frac{dn_i}{dt} + \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i C_{p_i} \frac{dT_r}{dt} \quad (III.12)$$

Le terme $\frac{dn_i}{dt}$ est remplacé par son expression, d'après l'équation (III.8), ce qui donne :

$$\frac{dH_r(T_r)}{dt} = \sum_{j=1}^{nr} r_j \frac{m_r}{\rho_r} \left[\sum_{i=1}^{nc} M_i (h_{f,i}(T^*) + C_{p_i}(T_r - T^*)) C_s(i, j) \right] + A + \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i C_{p_i} \frac{dT_r}{dt} \quad (III.13)$$

Avec :

$$A = f_c \left[\sum_{i=1}^{nc} x_i M_i [h_{f,i}(T^*) + C_{p_i}(T_r - T^*)] \right]$$

Le terme $\sum_{i=1}^{nc} M_i (h_{f,i}(T^*) + C_{p_i}(T_r - T^*)) C_s(i, j)$ représente l'enthalpie $\Delta H_{r,j}$ de la réaction j à la température T_r :

$$\frac{d(H_r(T_r))}{dt} = \sum_{j=1}^{nr} r_j \frac{m_r}{\rho_r} \Delta H_{r,j}(T_r) 10^3 + f_c \left[\sum_{i=1}^{nc} x_i M_i [h_{f,i}(T^*) + C_{p_i}(T_r - T^*)] \right] + \sum_{i=1}^{nc} n_i M_i C_{p_i} \frac{dT_r}{dt} \quad (III.14)$$

D'autre part, l'enthalpie de la coulée peut être exprimée par :

$$f_c H_c(T_c) = f_c \sum_{i=1}^{nc} x_i M_i [h_{f,i}(T^*) + C_{p_i}(T_c - T^*)] \quad (III.15)$$

Le bilan énergétique à partir de l'équation (III.9) peut alors s'écrire :

$$\sum_{i=1}^{nc} n_i M_i C_{p_i} \frac{dT_r}{dt} = - \sum_{j=1}^{nr} r_j \frac{m_r}{\rho_r} \Delta H_{r,j}(T_r) 10^3 - U_{r,pr} A_{r,pr} (T_r - T_{pr}) + f_c \sum_{i=1}^{nc} x_i M_i [C_{p_i}(T_c - T_r)] \quad (III.16)$$

Et comme $\sum_{i=1}^{nc} n_i M_i C_{p_i} = m_r C_{p_r}$ et $\sum_{i=1}^{nc} x_i M_i C_{p_i} = M_c C_{p_c}$

C_{p_r} : Capacité calorifique du milieu réactionnel (kJ/kg.K) ;

C_{p_c} : Chaleur spécifique de la coulée (kJ/kg.K).

M_c : Masse molaire de la coulée (kg/mole)

L'expression suivante du bilan thermique sur le mélange réactionnel :

$$m_r C_{p_r} \frac{dT_r}{dt} = - \sum_{j=1}^{nr} r_j \frac{m_r}{\rho_r} \Delta H_{rj}(T_r) 10^3 - U_{r,pr} A_{r,pr} (T_r - T_{pr}) + f_c M_c C_{p_c} (T_c - T_r) \quad (\text{III.17})$$

Avec :

$$Q_r = \sum_{j=1}^{nr} r_j \frac{m_r}{\rho_r} \Delta H_{rj}(T_r) 10^3 \quad : \text{ Représente la vitesse de dégagement de chaleur (kJ.s}^{-1}\text{)}$$

$Q_r < 0$ Signifie que la réaction est exothermique

$Q_r > 0$ Signifie que la réaction est endothermique

Donc le bilan thermique s'écrit :

$$m_r C_{p_{pr}} \frac{dT_r}{dt} = -Q_r - U_{r,pr} A_{r,pr} (T_r - T_{pr}) + f_c M_c C_{p_c} (T_c - T_r) \quad (\text{III.18})$$

Ces coefficients globaux d'échanges thermiques $U_{i,j}$ intervenant dans ce bilan et ceux qui suivent, sont calculés dans l'annexe (1). Ces coefficients sont déterminés à partir de corrélations faisant appel, sous forme de nombres adimensionnels, aux dimensions caractéristiques du réacteur et aux propriétés physiques du milieu réactionnel et des matériaux du réacteur.

La surface d'échange entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur, $A_{r,pr}$ évolue au fur et à mesure que la masse réactionnelle varie au cours du temps. Elle est calculée par la relation suivante en supposant $m_r(t) \geq (V_{ref} - V_{mort}) \rho_r$ quelque soit le temps t :

$$A_{r,pr}(m_r) = A_{ref} + \left[\frac{m_r}{\rho_r} - (V_{ref} - V_{mort}) \right] \frac{4 D_{ipr}}{D_{ipr}^2 - D_{cpale}^2 - D_{agit}^2} \quad (\text{III.19})$$

$$A_{ref} = A_{fr} + \pi D_{ipr} (H_{fr} - H_{ref}) \quad (\text{III.20})$$

$$A_{fr} = \frac{\pi}{2} D_{fr}^2 \quad (\text{III.21})$$

$$H_{ref} = 0.5 H_{fr} \quad (\text{III.22})$$

$$V_{ref} = \frac{\pi}{4} \left\{ D_{ipr}^2 (H_{fr} - H_{ref}) + \frac{1}{3} D_{fr}^3 \right\} \quad (\text{III.23})$$

$$V_{mort} = V_{agit} + V_{cpale} - \frac{\pi}{4} H_{ref} (D_{agit}^2 + D_{cpale}^2) \quad (\text{III.24})$$

Avec :

A_{fr} : Surface d'échange entre le milieu réactionnel et la paroi du fond sphérique du réacteur (m^2) ;

A_{ref} : Surface d'échange entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur (m^2) ;

D_{agit} : Diamètre de l'arbre de l'agitateur (m) ;

D_{cpale} : Diamètre de l'arbre de la contre-pale (m) ;

D_{fr} : Diamètre du fond sphérique du réacteur (m) ;

D_{ipr} : Diamètre interne du réacteur (m) ;

H_{fr} : Hauteur du fond du réacteur : distance entre le haut du réacteur et la zone où le réacteur commence à s'arrondir (m) ;

H_{ref} : Hauteur de référence, représente la distance entre le haut du réacteur et la surface libre du mélange réactionnel (m) ;

V_{agit} : Volume total du mobile d'agitation (m^3) ;

V_{cpale} : Volume total de la contre-pale (m^3) ;

V_{mort} : Volume du mobile d'agitation et celui de la contre-pale à l'intérieur du V_{ref} (m^3) ;

V_{ref} : Volume total du milieu réactionnel correspond à une hauteur de référence, H_{ref} (m^3).

Pour calculer A_{fr} et V_{ref} qui tiennent compte la forme du fond sphérique du réacteur, on utilise les deux équations données par (Spiegel, (1974)), pour l'estimation de la surface "A" et du volume "V" du calotte sphérique de rayon R et de hauteur H .

$$A = 2\pi RH \quad (III.25)$$

$$V = \frac{\pi}{3} H^2 (3R - H) \quad (III.26)$$

$$H = R \quad (III.27)$$

3. Modélisation de la double-enveloppe

La double enveloppe est modélisée à l'aide d'une succession de N bacs supposés parfaitement agités (N étant le nombre de bacs où le monofluide est en contact direct avec la paroi du réacteur et de la double enveloppe). Cette modélisation décrit tout écoulement de type piston, elle est intéressante lorsque la différence de température du monofluide entre l'entrée et la sortie de la double enveloppe est importante (cas des réacteurs de tailles industrielles).

Dans le cas où la double enveloppe est représentée par 10 bacs (N=10); on obtient le schéma de la Figure (III.3).

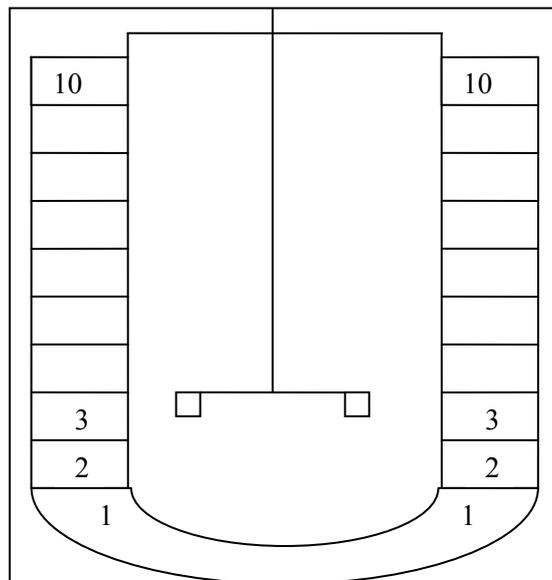


Figure III.3 : Modélisation de la double-enveloppe

Les échanges thermiques entre le monofluide dans le bac i , la paroi du réacteur, la paroi de la double-enveloppe, le bac $(i-1)$ et le bac $(i+1)$ sont schématisés sur la Figure (III.4).

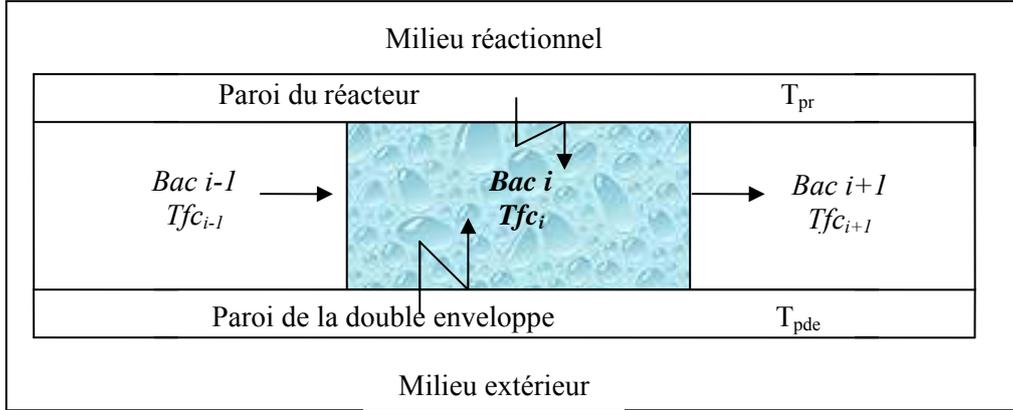


Figure III.4 : Schéma des transferts de chaleur dans le bac i de la double-enveloppe

Le bilan thermique sur le monofluide dans le bac i est donné par l'équation suivante :

$$\frac{d(m_{fc}^i C_{p_{fc}}^i T_{fc}^i)}{dt} = F_{fc} (\rho_{fc}^{i-1} C_{p_{fc}}^{i-1} T_{fc}^{i-1} - \rho_{fc}^i C_{p_{fc}}^i T_{fc}^i) + U_{pr,fc}^i \frac{A_{pr,fc}}{N} (T_{pr} - T_{fc}^i) + U_{fc,pde}^i \left(\frac{A_{fc,pde}}{N} \right) (T_{pde} - T_{fc}^i) \quad (III.28)$$

Avec :

$$m_{fc}^i = \rho_{fc}^i \left(\frac{V_{de}}{N} \right) \quad (III.29)$$

$$A_{pr,fc} = \pi D_{ep} H_{def} + \frac{\pi}{2} (D_{fr} + 2 \cdot epr)^2 \quad (III.30)$$

$$A_{fc,pde} = \pi D_{ipde} H_{def} + \frac{\pi}{2} D_{fde}^2 + \frac{\pi}{4} (D_{ipde}^2 - D_{ep}^2) \quad (III.31)$$

Où :

$A_{fc,pde}$: Surface d'échange entre le monofluide et la paroi de la double enveloppe (m^2) ;

$A_{pr,fc}$: Surface d'échange entre le monofluide et la paroi du réacteur (m^2) ;

$C_{p_{fc}}^i$: Chaleur spécifique du monofluide dans le bac i (kJ/kg.K),

D_{fde} : Diamètre du fond sphérique de la double-enveloppe (m) ;

D_{ipde} : Diamètre interne de la double-enveloppe (m) ;

H_{fde} : Hauteur du fond de la double-enveloppe, représente la distance entre le haut de la double-enveloppe et la zone où double-enveloppe commence à s'arrondir (m) ;

F_{fc} : Débit volumique du monofluide circulant dans la double-enveloppe (m^3/s) ;

m_{fc}^i : Masse du mono-fluide présente dans le bac i (kg) ;

N : Nombre des bacs

T_{fc}^i : Température du mono-fluide dans le bac i de la double-enveloppe (K) ;

$U_{pr,fc}^i$: Coefficient partiel d'échange thermique entre la paroi du réacteur et le mono-fluide dans le bac i (kJ/ $m^2 \cdot s \cdot K$) ;

V_{de} : Volume de la double-enveloppe (m^3) ;

ρ_{fc}^i : Masse volumique du monofluide dans le bac i (kg/m^3).

Les propriétés physico-chimiques du monofluide sont calculées en annexe (1).

Si on considère qu'il n'y a pas d'accumulation de matière dans les différents bacs (la double-enveloppe est parfaitement remplie) et que les propriétés physiques du monofluide varient peu dans le temps, alors le bilan thermique sur le bac i de la double-enveloppe peut se simplifier selon :

$$\frac{dT_{fc}^i}{dt} = \frac{N}{V_{de} \rho_{fc}^i C p_{fc}^i} \left[F_{fc} \rho_{fc}^{i-1} C p_{fc}^{i-1} (T_{fc}^{i-1} - T_{fc}^i) + U_{pr,fc}^i \left(\frac{A_{pr,fc}}{N} \right) (T_{pr} - T_{fc}^i) + U_{fc,pde}^i \left(\frac{A_{fc,pde}}{N} \right) (T_{pde} - T_{fc}^i) \right] \quad (III.32)$$

4. Bilan thermique sur la paroi du réacteur

On considère que la température, T_{pr} est uniforme sur l'ensemble de la paroi externe du réacteur (en contact directe avec le monofluide). Le bilan thermique sur cette paroi qui échange de la chaleur avec le milieu réactionnel, le milieu extérieur et le monofluide circulant dans la double-enveloppe est défini par la réaction suivante :

$$\frac{d(m_{pr} C p_{pr} T_{pr})}{dt} = U_{r,pr} A_{r,pr} (T_r - T_{pr}) + U_{pr,ext} A_{pr,ext} (T_{ext} - T_{pr}) + \sum_{i=1}^N U_{pr,fc}^i \left(\frac{A_{pr,fc}}{N} \right) (T_{fc}^i - T_{pr}) \quad (III.33)$$

Avec :

$$m_{pr} = \rho_{pr} \left(\frac{\pi}{4} (D_{ep}^2 - D_{ip}^2) H_{fr} + A_{fr,ep} \right) \quad (III.34)$$

Où :

$A_{pr,ext}$: Surface d'échange de chaleur entre la paroi du réacteur et le milieu extérieur (m^2) ;

$C p_{pr}$: Chaleur spécifique de la paroi du réacteur ($kJ/kg.K$) ;

D_{ep} : Diamètre externe du réacteur (m) ;

ep : Epaisseur de la paroi du réacteur (m) ;

m_{pr} : Masse de la paroi du réacteur (kg) ;

$U_{pr,ext}$: Coefficient partiel d'échange de chaleur entre la paroi du réacteur et le milieu extérieur ($kJ/m^2 \cdot s \cdot K$) ;

T_{ext} : Température du milieu extérieure (K) ;

ρ_{pr} : Masse volumique de la paroi du réacteur (kg/m^3).

Si on considère que les propriétés physiques de la paroi du réacteur sont constantes dans le domaine de températures utilisées, le bilan thermique se simplifie suivant la relation :

$$\frac{dT_{pr}}{dt} = \frac{1}{m_{pr} C p_{pr}} \left[U_{r,pr} A_{r,pr} (T_r - T_{pr}) + U_{pr,ext} A_{pr,ext} (T_{ext} - T_{pr}) + \sum_{i=1}^N U_{pr,fc}^i \left(\frac{A_{pr,fc}}{N} \right) (T_{fc}^i - T_{pr}) \right] \quad (III.35)$$

5. Bilan thermique sur la paroi de la double-enveloppe

On considère que la température de la paroi de la double-enveloppe T_{pde} , est uniforme sur l'ensemble de la paroi interne. Le bilan thermique sur cette paroi qui échange la chaleur

avec le monofluide circulant dans la double-enveloppe et le milieu extérieur est donné par la relation suivante :

$$\frac{d(m_{pde} C_{p_{pde}} T_{pde})}{dt} = U_{pde,ext} A_{pde,ext} (T_{ext} - T_{pde}) + \sum_{i=1}^N U_{fc,pde}^i \left(\frac{A_{fc,pde}}{N} \right) (T_{fc}^i - T_{pde}) \quad (III.36)$$

Avec :

$$m_{pde} = \rho_{pde} \frac{\pi}{4} \{ (D_{epde}^2 - D_{ipde}^2) H_{def} + 2 D_{fde}^2 epde + (D_{epde}^2 - D_{epd}^2) epde \} \quad (III.37)$$

Où :

$C_{p_{pde}}$: Chaleur spécifique de la paroi de la double-enveloppe (kJ/kg.K) ;

D_{epde} : Diamètre externe de la double-enveloppe (m) ;

$epde$: Epaisseur de la paroi de la double-enveloppe (m) ;

m_{pde} : Masse de la paroi de la double-enveloppe (kg) ;

$U_{pde,ext}$: Coefficient partiel d'échange de chaleur entre la paroi de la double-enveloppe et le milieu extérieur (kJ/m². s. K) ;

ρ_{pde} : Masse volumique de la paroi de la double-enveloppe (kg/m³).

Si on considère que les propriétés physiques de la paroi de la double-enveloppe sont constantes dans le domaine de température utilisé; le bilan thermique peut se simplifier sous la forme suivante :

$$\frac{dT_{pde}}{dt} = \frac{1}{m_{pde} C_{p_{pde}}} \left[U_{pde,ext} A_{pde,ext} (T_{ext} - T_{pde}) + \sum_{i=1}^N U_{fc,pde}^i \left(\frac{A_{fc,pde}}{N} \right) (T_{fc}^i - T_{pde}) \right] \quad (III.38)$$

III.2.1.3. Modélisation de la boucle thermique

Dans un système de chauffage/refroidissement type monofluide, la double enveloppe du réacteur est alimentée par un fluide caloporteur unique dont la température peut varier dans un domaine assez large. La régulation de la température du milieu réactionnel durant les différentes phases de la conduite thermique est réalisée par action sur la température du monofluide.

Pour agir sur sa température, le monofluide passe dans des appareils installés sur le circuit thermique. Ces appareils sont : un crayon chauffant et deux échangeurs de chaleurs à plaques, l'un utilisant l'eau froide (source froide) et l'autre utilisant un mélange eau/éthylène glycol à 50% en poids (source très froide) comme des utilitaires de refroidissement. Ces différents appareils sont reliés entre eux par des conduites qui transportent les mono-fluides. Donc, pour bien représenter le fonctionnement dynamique de la boucle thermique, il est nécessaire de modéliser l'ensemble de ces éléments.

1. Modélisation du crayon chauffant

Le crayon chauffant est formé d'une tige en acier à l'intérieur de laquelle est placée une résistance électrique. Le monofluide circule dans un espace annulaire formé par la tige et la résistance électrique comme le montre la Figure (III.5).

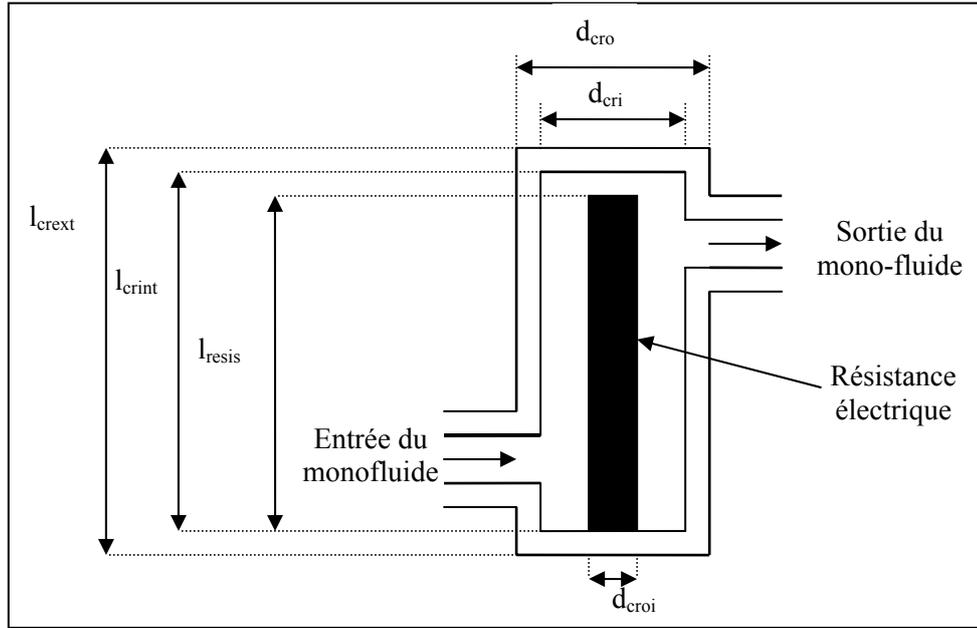


Figure III.5 : Schéma simplifié du crayon chauffant

Pour modéliser le crayon chauffant, nous avons considéré l'espace annulaire comme étant un bac parfaitement agité, dans lequel le mono-fluide échange de la chaleur avec la paroi de la tige et reçoit un flux thermique provenant de la résistance électrique

i) Bilan thermique sur la paroi de la résistance électrique

On considère que la température de la paroi de la résistance électrique, T_{pres} , est uniforme sur toute la paroi et que les propriétés physiques du métal restent constantes dans le domaine de la température utilisé. Le bilan thermique sur cette paroi, qui échange de la chaleur avec le mono-fluide et reçoit instantanément une puissance électrique, est donné par l'équation suivante :

$$\frac{dT_{pres}}{dt} = \left\{ \frac{p_{elec} + U_{fc,res} A_{fc,res} (T_{ch} - T_{pres})}{m_{pres} Cp_{pres}} \right\} \quad (III.39)$$

Où :

$A_{fc,res}$: Surface d'échange entre la paroi de la résistance électrique et le mono-fluide (m^2) ;

$$A_{fc,res} = \pi d_{croi} L_{resis} + \frac{\pi}{4} d_{croi}^2 \quad (III.40)$$

Cp_{pres} : Chaleur spécifique moyenne de la paroi de la résistance ($kJ/kg.K$) ;

d_{croi} : Diamètre de la résistance électrique (m) ;

L_{resis} : Longueur de la résistance électrique (m) ;

m_{pres} : Masse de la paroi de la résistance électrique (kg) ; $m_{pres} = \rho_{pres} V_{pres}$;

$$V_{pres} = \frac{\pi}{4} (d_{croi}^2) L_{resis}$$

P_{elec} : Puissance électrique fournie par la résistance électrique (kJ/s) ;

T_{ch} : Température du mono-fluide présent dans le bac (K) ;

T_{pres} : Température de la paroi de la résistance électrique (K) ;

$U_{fc,res}$: Coefficient d'échange de chaleur entre le monofluide et la paroi de la résistance électrique (kJ/m².s.K).

V_{pres} : Volume de la paroi de la résistance électrique (m³).

ii) Bilan thermique sur le monofluide

Le bilan sur le monofluide fait intervenir l'échange thermique avec les parois de la résistance électrique et celle de la tige ainsi que la quantité de la chaleur échanger entre l'entrée et la sortie du bac, est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{d(m_{ch} Cp_{ch} T_{ch})}{dt} = F_{fc} (\rho_{ch}^E Cp_{ch}^E T_{ch}^E - \rho_{ch} Cp_{ch} T_{ch}) + U_{fc,pch} A_{fc,pch} (T_{pch} - T_{ch}) + U_{fc,res} A_{fc,res} (T_{pres} - T_{ch}) \quad (III.41)$$

Avec : $m_{ch} = \rho_{ch} V_{ch}$

$$V_{ch} = \frac{\pi}{4} (d_{cri}^2 - d_{croi}^2) L_{resis} + \frac{\pi}{4} d_{cri}^2 (L_{crint} - L_{resis}) \quad (III.42)$$

Où :

$A_{fc,pch}$: Surface d'échange entre le monofluide et la paroi de la tige (m²) ;

$$A_{fc,pch} = \pi d_{cri} L_{crint} + \frac{\pi}{4} d_{cri}^2 + \frac{\pi}{4} (d_{cri}^2 - d_{croi}^2) \quad (III.43)$$

Cp_{ch} : Chaleur spécifique du monofluide à la température T_{ch} (kJ/kg. K) ;

d_{cri} : Diamètre interne de la double-enveloppe du crayon chauffant (m²) ;

E : Indice qui représente l'état thermique du monofluide à l'entrée du crayon chauffant ;

F_{fc} : Débit volumique du monofluide (m³/s) ;

L_{crint} : Longueur de la tige qui représente le chemin parcouru par le monofluide (m) ;

m_{ch} : Masse de mono-fluide présente dans la double-enveloppe du crayon chauffant (kg) ;

T_{pch} : Température de la paroi du tige (K) ;

$U_{fc,pch}$: Coefficient d'échange de la chaleur entre le monofluide et la paroi de la tige (kJ/m² s K) ;

V_{ch} : Volume du bac occupé par le monofluide (m³) ;

ρ_{ch} : Masse volumique du monofluide à la température T_{ch} (kg/m³).

Si on considère que les propriétés physiques varient peu dans le temps, le bilan thermique peut se simplifier suivant la relation :

$$\frac{dT_{ch}}{dt} = \frac{\{F_{fc} [\rho_{ch}^E Cp_{ch}^E T_{ch}^E - \rho_{ch} Cp_{ch} T_{ch}] + U_{fc,pch} A_{fc,pch} (T_{pch} - T_{ch}) + U_{fc,res} A_{fc,res} (T_{pres} - T_{ch})\}}{m_{ch} Cp_{ch}} \quad (III.44)$$

iii) Bilan thermique sur la paroi de la tige

On considère que la température de la paroi de la tige, T_{pch} est homogène sur toute la paroi externe et que les propriétés physiques constantes. Le bilan thermique sur cette paroi, qui échange de la chaleur avec le mono-fluide et le milieu externe est donné par l'équation suivante :

$$\frac{dT_{pch}}{dt} = \left\{ \frac{U_{pch,ext} A_{pch,ext} (T_{ext} - T_{pch}) + U_{fc,pch} A_{fc,pch} (T_{ch} - T_{pch})}{m_{pch} Cp_{pch}} \right\} \quad (III.45)$$

$A_{pch,ext}$: Surface d'échange entre la paroi de la tige et le milieu extérieur (m²) ;

$$A_{pch,ext} = \pi d_{cro} L_{crext} + \frac{\pi}{2} d_{cro}^2 \quad (III.46)$$

Cp_{pch} : Chaleur spécifique moyenne de la paroi de la tige (kJ/kg. K) ;

d_{cro} : Diamètre externe de la tige (m) ;

L_{crext} : Longueur externe de la tige (m) ;

m_{pch} : Masse totale de la paroi de la tige (kg) ; $m_{pch} = \rho_{pch} V_{pch}$

$$V_{pch} = \frac{\pi}{4} (d_{cro}^2 - d_{cri}^2) L_{cri} + \frac{\pi}{2} (d_{cro}^2 - d_{cri}^2) (L_{crext} - L_{cri}) \quad (III.47)$$

$U_{pch,ext}$: Coefficient d'échange de chaleur entre la paroi de la tige et le milieu extérieur (kJ/m².s. K) ;

V_{pch} : Volume de la paroi de la tige (m³) ;

2. Modélisation des échangeurs de chaleur

Notre système possède deux échangeurs montés de façon indirecte sur le circuit thermique. Ainsi, au lieu de manipuler le débit de l'utilité de refroidissement à l'entrée de l'échangeur de chaleur avec ce système, on agit sur le débit du mono-fluide circulant dans l'échangeur.

Pour faire diminuer la température du monofluide à l'entrée de la double-enveloppe du réacteur, une fraction du monofluide est orientée vers l'un des deux échangeurs de chaleur et à la sortie, les deux fractions sont ensuite re-mélangées pour garder un débit constant à l'entrée de la double-enveloppe comme le montre la Figure (III.6).

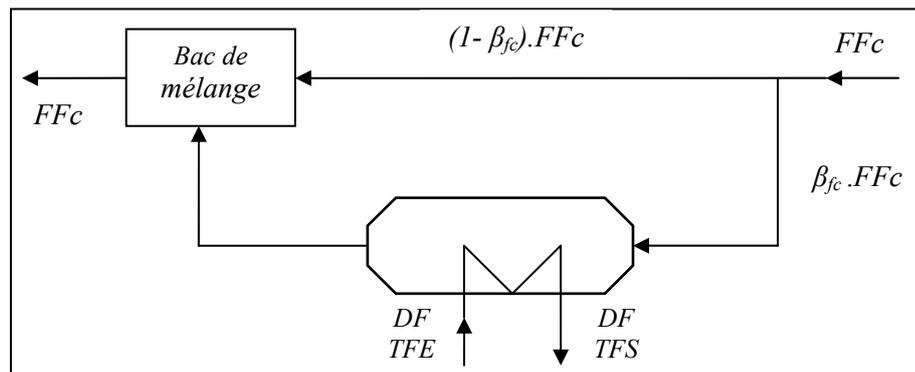


Figure III.6 : Schéma représentatif de l'utilisation d'un échangeur de chaleur

Les deux échangeurs de chaleurs utilisés sont des échangeurs à plaques (E. C. P). Ce type d'échangeur est caractérisé surtout pour son bon transfert thermique. Vu leur importance plusieurs auteurs ont contribué à la modélisation de ces échangeurs (**Georgiadis et al.**, (1998), **John et al.**,(1985), **Watson et al.**, (1960), **Pingaud et al.**, (1988), **Huba et Ondera**, (2009)).

Le but de cette modélisation est de mettre en valeur l'inertie thermique des plaques à travers lesquelles se fait l'échange thermique entre le fluide chaud et le fluide froid. Cette inertie est due pour la quasi-totalité à la masse du métal qui constitue l'échangeur (la masse du fluide chaud ou fluide froid ayant un temps de séjour très faible dans l'appareil). Ainsi

pour bien représenter l'inertie thermique, on va modéliser l'enthalpie emmagasinée par les parois de la plaque à travers laquelle se passe l'échange ce qui nécessite de caractériser l'échangeur par la température de chaque plaque. Afin de simplifier le modèle, il est indispensable de faire quelques hypothèses sur l'échangeur :

- Les courants chaud et froid restent toujours parallèles entre l'entrée et la sortie de l'appareil ;
- La température dans chaque canal, formé par deux plaques adjacentes, est uniforme pour chaque section de passage perpendiculaire au sens du courant (pas de profil de température suivant la largeur de la plaque) ;
- La température dans chaque plaque est uniforme suivant une section perpendiculaire au sens du courant ;
- Pas de changement de phase et les propriétés physiques des deux fluides et de la plaque restent constantes dans le domaine de température utilisé ;
- Les pertes thermiques avec le milieu extérieur sont considérées comme négligeables ;
- L'écoulement des deux fluides est de type piston. Pour chaque fluide, la vitesse est identique sur tout plan normal au sens des courants : il existe donc seulement des gradients de température dans la direction parallèle aux courants ;
- Les phénomènes de conduction (dans les deux fluides) qui sont parallèles aux courants chaud et froid sont négligeables (comparés aux phénomènes de transport des fluides) ;
- Les phénomènes de résistance par conduction (dans la paroi de la plaque) qui sont perpendiculaires aux courants chaud et froid sont considérés implicitement en prenant une température moyenne de la paroi surtout plan normal au sens des courants ;
- Les phénomènes de conduction longitudinale dans la paroi qui sont parallèles au sens des courants chaud et froid sont à prendre en compte ;
- Il est possible de découper l'échangeur en plusieurs tronçons. Chaque tronçon est caractérisé par une température moyenne du fluide chaud, une température moyenne du fluide froid une température moyenne de la paroi dans une direction normale au sens des courants ;
- Le type d'arrangement des écoulements des deux fluides à l'intérieur de l'échangeur est en boucle et à contre courant, comme le montre la Figure (III.7) ;
- La surface d'échange totale est la somme des surfaces d'échange de toutes les plaques.

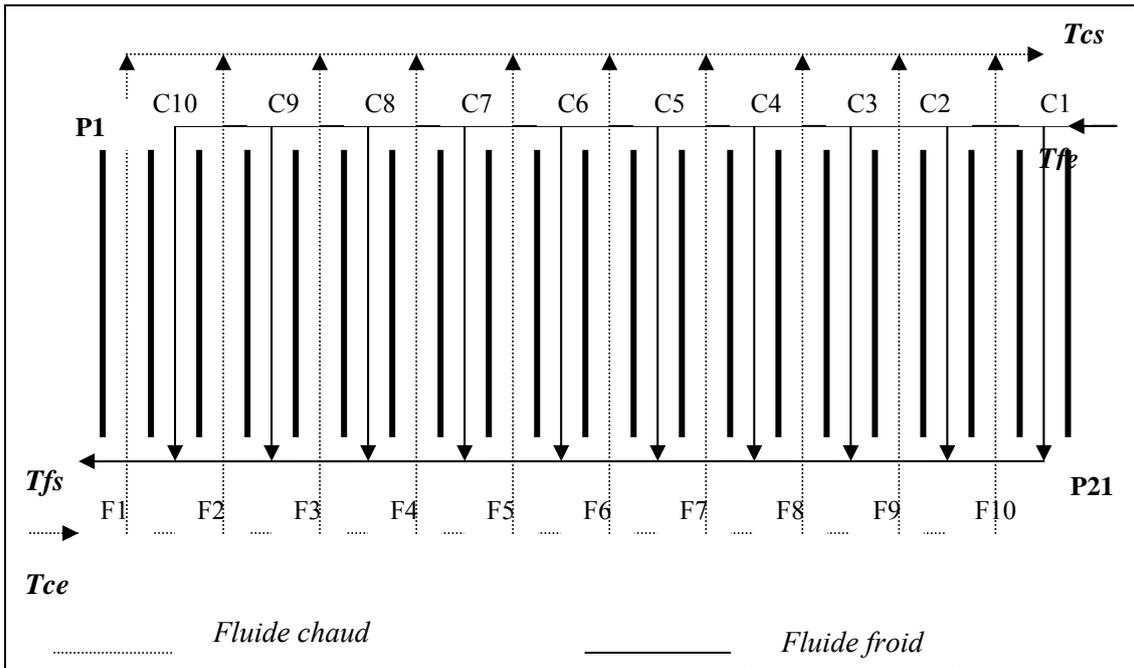


Figure III.7 : Schéma représentatif des écoulements des deux fluides dans l'échangeur à plaques

i) Equations différentielles relatives au modèle de l'échangeur

On considère un élément différentiel de l'échangeur de chaleur à plaques qui comprend un élément de volume du liquide et un élément de volume de la plaque comme le montre la Figure (III.8).

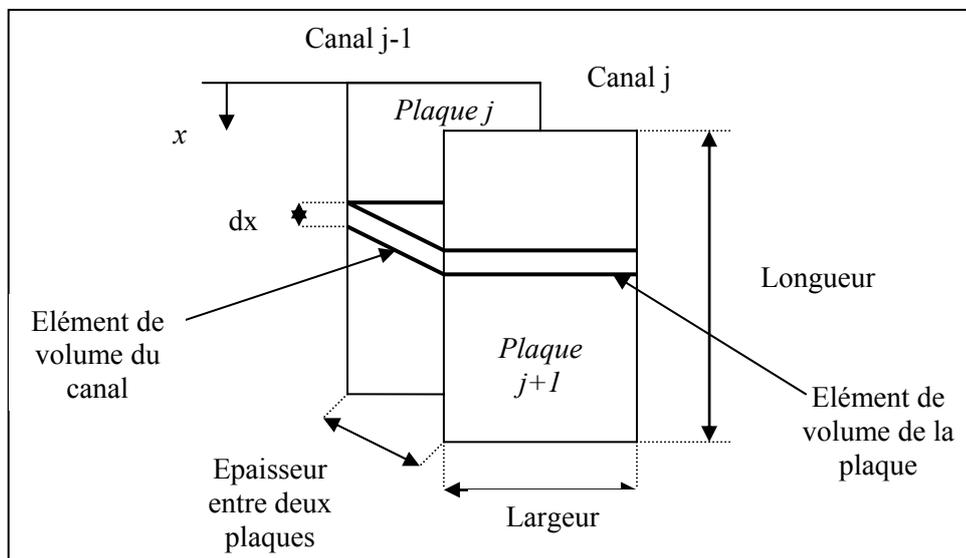


Figure III.8 : Modélisation de l'écoulement du fluide entre deux plaques

En partant du principe fondamental de conservation de l'énergie thermique, les équations suivantes décrivent le transfert de chaleur entre le fluide caloporteur (monofluide ou utilitaire de refroidissement) qui circule dans un canal j et les deux plaques qui le recouvrent :

$$V_j \rho_j C p_j \left[\frac{\partial T_j}{\partial t} + n_j u_x \frac{\partial T_j}{\partial x} \right] = U_j A_{j+1} (T p_{j+1} - T_j) + U_j A_j (T p_j - T_j) \quad (\text{III.48})$$

Pour la plaque j situé entre les deux fluides (monofluide et l'utilitaire de refroidissement) :

$$V p_j \rho p_j C p p_j \frac{\partial T p_j}{\partial t} = U_j A_j (T_j - T p_j) + U_{j-1} A_j (T_{j-1} - T p_j) + V p_j \lambda p_j \frac{\partial^2 T p_j}{\partial x^2} \quad (\text{III.49})$$

Où :

A_j et A_{j+1} : Surfaces d'échange des plaques j et j+1 supposées égales (m²) ;

$C p_j$: Chaleur spécifique du fluide circulant dans le canal j (kJ/kg. K) ;

$C p p_j$: Chaleur spécifique de la paroi de la plaque j (kJ/kg. K) ;

n_j : Indice qui indique la direction de l'écoulement du fluide dans le canal j ;

T_j : Température du fluide circulant dans le canal j (K) ;

T_{j-1} : Température du fluide circulant dans le canal j-1 (K) ;

$T p_j$: Température de la plaque j (K) ;

$T p_{j+1}$: Température de la plaque j+1 (K) ;

U_j : Coefficient partiel d'échange thermique entre le fluide et la plaque j (kJ/m² s K) ;

U_{j-1} : Coefficient partiel d'échange thermique entre le fluide et la plaque j-1 (kJ/m² s K) ;

u_x : Vitesse d'écoulement du monofluide (m/s) ;

V_j : Volume de rétention dans le canal j (m³) ;

$V p_j$: Volume de la paroi de la plaque j (m³) ;

ρ_j : Masse volumique du fluide circulant dans le canal j (kg/m³).

ρp_j : Masse volumique de la paroi de la plaque j (kg/m³).

λp_j : Conductivité thermique de la plaque j supposée constante dans le domaine de température utilisé (kJ/m s K).

Dans l'équation (III.48) n_j prend une valeur de +1 lorsque le fluide circule dans la direction de x et une valeur -1 dans la direction opposée Figure (III.8).

L'avantage principal de ce modèle est qu'il permet de décrire le mécanisme de transfert de chaleur à l'intérieur de l'échangeur quelque soit le mode d'arrangement choisi (en série, boucle ou complexe) (**Gaudy**, (1992)).

La dérivée première par rapport à x dans l'équation (III.48) représente la quantité de chaleur transportée par le mouvement du fluide. Le terme de la dérivée seconde par rapport à x dans l'équation (III.49) représente l'échange de chaleur par conduction longitudinale. Les deux dérivées peuvent être exprimées par discrétisation suivant x ce qui donne comme équations les suivantes :

$$V_j \rho_j C p_j \left[\frac{dT_{j,i}}{dt} + \frac{n_j u_x}{\Delta x} (T_{j,i} - T_{j,i-1}) \right] = U_{j,i} A_{j+1,i} (T p_{j+1,i} - T_{j,i}) + U_{j,i} A_{j,i} (T p_{j,i} - T_{j,i}) \quad (\text{III.50})$$

Pour la plaque j :

$$Vp_j \rho p_j Cpp_j \left[\frac{dT_{p_{j,i}}}{dt} \right] = U_{j,i} A_{j,i} (T_{j,i} - T_{p_{j,i}}) + U_{j-1,i} A_{j,i} (T_{j-1,i} - T_{p_{j,i}}) + \frac{Vp_{j,i} \lambda p_j}{\Delta x^2} (Tp_{j,i+1} - 2Tp_{j,i} + Tp_{j,i-1}) \quad (III.51)$$

Le tableau (III.1) donne une projection sur un plan horizontal de cette différentiation.

Tableau III.1 : Discrétisation horizontale de l'écoulement

<i>Plaque j-1</i>	<i>Canal j-1</i>	<i>Plaque j</i>	<i>Canal j</i>	<i>Plaque j+1</i>
$T_{p_{j-1,i-2}}$	$T_{j-1,i-2}$	$T_{p_{j,i-2}}$	$T_{j,i-2}$	$T_{p_{j+1,i-2}}$
$T_{p_{j-1,i-1}}$	$T_{j-1,i-1}$	$T_{p_{j,i-1}}$	$T_{j,i-1}$	$T_{p_{j+1,i-1}}$
$T_{p_{j-1,i}}$	$T_{j-1,i}$	$T_{p_{j,i}}$	$T_{j,i}$	$T_{p_{j+1,i}}$
$T_{p_{j-1,i+1}}$	$T_{j-1,i+1}$	$T_{p_{j,i+1}}$	$T_{j,i+1}$	$T_{p_{j+1,i+1}}$
$T_{p_{j-1,i+2}}$	$T_{j-1,i+2}$	$T_{p_{j,i+2}}$	$T_{j,i+2}$	$T_{p_{j+1,i+2}}$

La présence des termes en (i+1) et (i-1) dans l'écriture finale du bilan thermique sur la paroi de la plaque de l'échangeur nous amène à imposer les conditions aux limites suivantes sur les bords de la plaque j :

$$i = 1 \Rightarrow Tp_{j,0} = Tp_{j,1}$$

$$i = ntrc \Rightarrow Tp_{j,ntrc+1} = Tp_{j,ntrc}$$

En ce qui concerne les deux fluides caloporteurs, l'arrangement en boucle représenté sur la Figure (III.7) permet d'imposer les conditions suivantes :

Dans le cas de l'utilisation de l'échangeur à eau froide :

$$T_c(j,0) = T_{cond3}(nc3)$$

$$Tf(j,L) = Tf_c 0(\text{eau froide}), j = 1, \dots, ncanal$$

Dans le cas de l'utilisation de l'échangeur à eau glycolée :

$$T_c(j,0) = T_{cond5}(nc5)$$

$$Tf(j,L) = Tf_c 0(\text{eau glycolée}), j = 1, \dots, ncanal$$

Où T_c et Tf sont respectivement les températures du fluide chaud (monofluide) et celle de l'utilitaire de refroidissement (eau froide ou eau glycolée), l'indice "0" représente l'entrée du fluide chaud et "L" l'entrée de l'utilitaire de refroidissement puisque l'échange se fait à contre courant. La conception du système de refroidissement utilisant des échangeurs de chaleur de façon indirecte sur le dispositif expérimental, nécessite de les laisser fonctionner en permanence côté utilitaire de refroidissement (eau froide ou eau glycolée). Durant la phase de chauffage, on coupe le débit du monofluide à l'entrée de l'échangeur, ce qui se traduit par un transfert de chaleur par convection naturelle, qui correspond à un débit nul, entre le monofluide accumulé dans l'échangeur et les deux plaques adjacentes. Un tel phénomène se traduira par l'équation suivante qui décrit l'échange de chaleur entre les deux médias :

$$V_j \rho_j C p_j \frac{dT_{j,i}}{dt} = U_{j,i} A_{j+1,i} (Tp_{j+1,i} - T_{j,i}) + U_{j,i} A_{j,i} (Tp_{j,i} - T_{j,i}) \quad (III.52)$$

Dans ce cas U_j est le coefficient de transfert de chaleur par convection naturelle.

En ce qui concerne l'utilitaire de refroidissement et les plaques, les relations (III.50 et III.51) restent valables.

3. Modélisation des conduites

Jusqu'à présent nous nous sommes intéressés à la modélisation de l'ensemble du réacteur et des éléments thermiques (échangeurs de chaleurs, crayon chauffant....) du système chauffage/refroidissement. Pour avoir une représentation correcte du procédé, il reste à considérer les conduites. En effet, elles contribuent de façons non négligeables à la dynamique du procédé d'une part, du fait de leur longueur qui entraîne un retard dans la réponse du procédé et d'autre part, par l'importance des surfaces d'échanges qui sont à l'origine des pertes thermiques significatives. Pour la modélisation des conduites nous avons choisi une représentation par bacs pour mettre en valeur l'inertie thermique des parois comme le montre la figure (III.9).

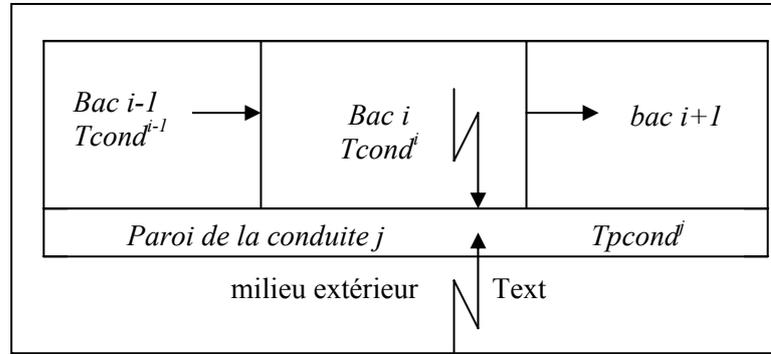


Figure III.9 : Modélisation du transfert de chaleur dans les conduites

On suppose que les transferts de chaleur par conduction longitudinale à travers la paroi d'une conduite et entre les extrémités des parois des deux conduites sont négligeables par rapport aux phénomènes de transfert de chaleur par convection liés au mouvement du fluide.

i) Bilan thermique sur le monofluide dans chaque bac de la conduite j (j = 1, ..., 12)

Sur la Figure (III.1) qui représente le schéma simulé du procédé expérimental, nous pouvons distinguer 12 conduites dans lesquelles circule le monofluide.

Le bilan thermique traduit les échanges de chaleur dans le bac (i) d'une conduite (j), entre le monofluide et la paroi de cette conduite d'une part, et d'autre part entre le bac i et le bac i-1. En supposant que les propriétés physiques varient peu dans le temps, ce bilan s'exprime sous la forme suivante :

$$m_{fc}^i C p_{fc}^i \frac{dT_{cond}^i}{dt} = U_{cond, pcond}^i \left(\frac{A_{cond, pcond}^j}{n^j} \right) (T_{cond}^i - T_{pcond}^j) + D_{fc} \rho_{fc}^{i-1} C p_{fc}^{i-1} (T_{cond}^{i-1} - T_{cond}^i) \quad (III.53)$$

$$\text{Avec : } m_{fc}^i = \rho_{fc}^i \frac{V_{cond}^j}{n^j}$$

Où :

$A_{cond, pcond}^j$: Surface d'échange totale entre le monofluide et la paroi de la conduite j (m²) ;

$$A_{cond, pcond}^j = \pi d_{cin}^j L_c^j$$

d_{cin}^j : Diamètre interne de la conduite j (m) ;

Df_c : Débit du mono-fluide qui passe à travers la conduite j (m^3/s) $0 \leq Df_c \leq F_{fc}$;

L_c^j : Longueur de la conduite j (m) ;

n^j : Nombre de bacs de la conduite j ;

m_{fc}^i : Masse du mono-fluide présente dans le bac i de la conduite j (kg) ;

T_{cond}^i : Température du mono-fluide dans le bac i (K) ;

T_{pcond}^j : Température de la paroi de la conduite j (K) ;

$U_{cond,pcond}^j$: Coefficient partiel d'échange de la chaleur entre le monofluide et la paroi de la conduite j dans le bac i ($kJ/m^2 s K$) ;

V_{cond}^j : Volume de la conduite j (m^3) ; $V_{cond}^j = \frac{\pi}{4} (d_{cin}^j)^2 L_c^j$

ii) Bilan sur la paroi de la conduite j (j = 1, ..., 12)

On considère que la température de la paroi de la conduite j, T_{pcond}^j , est uniforme sur l'ensemble de la paroi et que les propriétés physiques restent constantes dans le domaine de températures utilisées. Le bilan thermique sur la paroi de la conduite j, qui échange de la chaleur avec le monofluide et le milieu extérieur est défini par l'équation suivante :

$$m_{pcond}^j Cp_{pcond}^j \frac{dT_{pcond}^j}{dt} = \sum_{i=1}^{nc_j} U_{cond,pcond}^j \left(\frac{A_{cond,pcond}^j}{n^j} \right) (T_{cond}^i - T_{pcond}^j) + U_{ext,pcond}^j A_{ext,pcond}^j (T_{ext} - T_{pcond}^j) \quad (III.54)$$

Avec :

$A_{ext,pcond}^j$: Surface d'échange entre la paroi de la conduite j et le milieu extérieur (m^2) ;

$$A_{ext,pcond}^j = \pi d_{cex}^j L_c^j$$

Cp_{pcond}^j : Chaleur spécifique de la paroi de la conduite j supposée constante dans le domaine de la température utilisée ($kJ/kg. K$) ;

d_{cex}^j : Diamètre extérieur de la conduite j (m) ;

m_{pcond}^j : Masse de la paroi de la conduite j (kg) ; $m_{pcond}^j = \rho_{pcond} V_{pcond}^j$

$U_{ext,pcond}^j$: Coefficient d'échange partiel entre la paroi de la conduite j et le milieu extérieur ($kJ/m^2 s K$) ;

$$V_{pcond}^j : \text{Volume de la paroi de la conduite j (m}^3\text{)} ; V_{pcond}^j = \frac{\pi}{4} \left[(d_{cex}^j)^2 - (d_{cin}^j)^2 \right] L_c^j$$

ρ_{pcond} : Masse volumique de la paroi de la conduite supposée constante dans le domaine de la température utilisé (kg/m^3).

4. Modélisation de la vanne à trois voies

La vanne proportionnelle trois voies joue un double rôle sur le dispositif expérimental, du fait de son ouverture et de sa fermeture proportionnelle, elle permet de séparer le débit du monofluide en deux courants durant les phases de refroidissement puis de la re-mélanger pour garder un débit de circulation constant dans la double-enveloppe.

Pour sa modélisation, on considère que cette vanne est un bac de mélange de deux courants comme le montre la Figure (III.10).

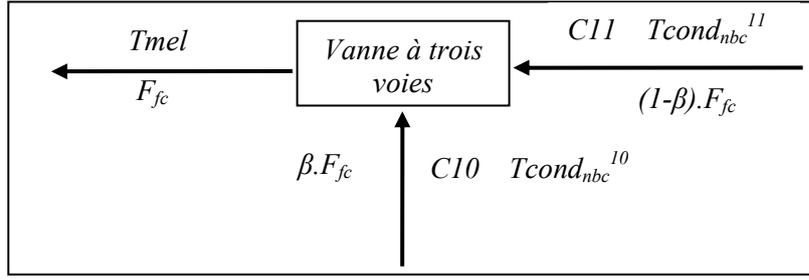


Figure III.10 : Modélisation de la vanne à trois voies

Le bilan thermique est donné par l'équation linéaire suivante :

$$F_{fc} \rho_{fc, mel} Cp_{fc, mel} (T_{mel} - T_{ref}) = F_{fc} (1 - \beta) \rho_{fc, n^{11}} Cp_{fc, n^{11}} (T_{cond, n^{11}} - T_{ref}) + F_{fc} \beta \rho_{fc, n^{10}} Cp_{fc, n^{10}} (T_{cond, n^{10}} - T_{ref}) \quad (III.55)$$

Où : $T_{cond, n^{11}}$ et $T_{cond, n^{10}}$: Températures du mono-fluide dans les derniers bacs de deux conduites 10 et 11 (K) ;

T_{mel} : Température du mélange à la sortie de la vanne à trois voies (K),

T_{ref} : Température de référence (K) ;

$\rho_{fc, mel}$: Masse volumique du monofluide à la température de mélange (kg/m^3) ;

$Cp_{fc, mel}$: Chaleur spécifique du monofluide à la température de mélange ($\text{kJ}/\text{kg} \cdot \text{K}$) ;

β : Fraction du débit du monofluide qui doit passer par l'échangeur de chaleur

A partir de ce bilan, et prenant comme température de référence T_{ref} , la température à la sortie de la vanne T_{mel} , nous obtenons la relation suivante :

$$T_{mel} = \frac{(1 - \beta) \rho_{fc, n^{11}} Cp_{fc, n^{11}} T_{cond, n^{11}} + \beta \rho_{fc, n^{10}} Cp_{fc, n^{10}} T_{cond, n^{10}}}{(1 - \beta) \rho_{fc, n^{11}} Cp_{fc, n^{11}} + \beta \rho_{fc, n^{10}} Cp_{fc, n^{10}}} \quad (III.56)$$

III.2.2. Stratégie de la résolution numérique

Notre modèle est composé d'une part d'équations différentielles ordinaire de $18 + nc + N + \sum_{i=1}^{12} n^i + 2 \sum_{i=1}^2 (2 \cdot n_{plaque} - 1) n_{trci}$ variables différentielles (Bilan matière et thermique) ; et d'autre part d'équations algébriques (coefficient de transfert thermique, propriétés physiques...).

A chaque variable est associée une équation différentielle (Tableau III.2, a, b, c, d et e).

Tableau III.2. a : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation du réacteur.

Variable	Notation	Unité	Nombre	Equation
Réacteur				
<i>Nombre de mole des constituants</i>	n_i	mole	n_c	BMR
<i>Température du milieu réactionnel</i>	T_r	K	1	BTR
<i>Température de la paroi du réacteur</i>	T_{pr}	K	1	BTPR

Tableau III.2. b : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation de la double-enveloppe.

Variable	Notation	Unité	Nombre	Equation
Double-enveloppe				
<i>Température du monofluide dans la double-enveloppe</i>	T_{fc}^i	K	N	BTFC
<i>Température de la paroi de la double-enveloppe</i>	T_{pde}	K	1	BTPDE

Tableau III.2. c : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation du crayon chauffant.

Variable	Notation	Unité	Nombre	Equation
Crayon Chauffant				
<i>Température de la paroi de la résistance électrique</i>	T_{pres}	K	1	BTEP
<i>Température du monofluide dans le crayon chauffant</i>	T_{ch}	K	1	BTCH
<i>Température de la paroi de crayon chauffant</i>	T_{pch}	K	1	BTPCH

Tableau III.2. d : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation des échangeurs de chaleur.

Variable	Notation	Unité	Nombre	Equation
Echangeurs de chaleur				
<i>Température des parois des plaques dans l'échangeur à eau froide</i>	T_{pech1I}	K	n plaques. ntrc1	BTPECH1I
<i>Température du monofluide dans l'échangeur à eau froide</i>	T_{echc1I}	K	n canal. ntrc1	BTECHC1I
<i>Température de l'eau froide dans l'échangeur à eau froide</i>	T_{echf1I}	K	n canal. ntrc1	BTPECHF1I
<i>Température des parois des plaques dans l'échangeur à eau glycolée</i>	T_{pech2I}	K	n plaque. ntrc2	BTPECH2I
<i>Température du monofluide dans l'échangeur à eau glycolée</i>	T_{echc2I}	K	n canal. ntrc2	BTPECHC2I
<i>Température de l'eau froide dans l'échangeur à eau glycolée</i>	T_{echg1I}	K	n canal. ntrc2	BTECHGI

Tableau III.2. e : Variables du système différentiel constituant le modèle de simulation des conduites.

Variable	Notation	Unité	Nombre	Equation
		Conduites		
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 1</i>	$T_{cond,1}$	K	n^1	BTC1
<i>Température de la paroi de la conduite 1</i>	$T_{pcond,1}$	K	1	BTPC1
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 2</i>	$T_{cond,2}$	K	n^2	BTC2
<i>Température de la paroi de la conduite 2</i>	$T_{pcond,2}$	K	1	BTPC2
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 3</i>	$T_{cond,3}$	K	n^3	BTC3
<i>Température de la paroi de la conduite 3</i>	$T_{pcond,3}$	K	1	BTPC3
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 4</i>	$T_{cond,4}$	K	n^4	BTC4
<i>Température de la paroi de la conduite 4</i>	$T_{pcond,4}$	K	1	BTPC4
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 5</i>	$T_{cond,5}$	K	n^5	BTC5
<i>Température de la paroi de la conduite 5</i>	$T_{pcond,5}$	K	1	BTPC5
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 6</i>	$T_{cond,6}$	K	n^6	BTC6
<i>Température de la paroi de la conduite 6</i>	$T_{pcond,6}$	K	1	BTPC6
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 7</i>	$T_{cond,7}$	K	n^7	BTC7
<i>Température de la paroi de la conduite 7</i>	$T_{pcond,7}$	K	1	BTPC7
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 8</i>	$T_{cond,8}$	K	n^8	BTC8
<i>Température de la paroi de la conduite 8</i>	$T_{pcond,8}$	K	1	BTPC8
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 9</i>	$T_{cond,9}$	K	n^9	BTC9
<i>Température de la paroi de la conduite 9</i>	$T_{pcond,9}$	K	1	BTPC9
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 10</i>	$T_{cond,10}$	K	n^{10}	BTC10
<i>Température de la paroi de la conduite 10</i>	$T_{pcond,10}$	K	1	BTPC10
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 11</i>	$T_{cond,11}$	K	n^{11}	BTC11
<i>Température de la paroi de la conduite 11</i>	$T_{pcond,11}$	K	1	BTPC11
<i>Température du mono-fluide dans la conduite 12</i>	$T_{cond,12}$	K	n^{12}	BTC12
<i>Température de la paroi de la conduite 12</i>	$T_{pcond,12}$	K	1	BTPC12

Un indice (variable discrète) permet également de rendre compte de l'état de fonctionnement du système dans le temps (à chaque période d'échantillonnage) :

- indice de phase, IPHASE, indiquant le mode d'opération de la boucle thermique (**1**- utilisation du crayon chauffant, **2**- utilisation de l'échangeur de chaleur à eau froide, **3**- utilisation de l'échangeur de chaleur à eau glycolée).

La stratégie de résolution d'un tel problème, que nous avons choisi durant cette thèse est la méthode de *Gear*, dont le principe consiste à transformer le système d'équations différentielles et algébriques en un système d'équation algébriques non linéaires.

Cette procédure d'intégration permet de résoudre des équations différentielles ordinaires du premier ordre, dans le cas de problème rigide (les pentes des équations différentielles sont très différentes) ou non. L'avantage de cette technique est qu'elle choisit automatiquement la méthode appropriée, en fonction de la nature du problème (rigide ou non), pour effectuer l'intégration (**Xaumier**, (1999)).

Le système d'intégration a besoin de deux fonctions :

- une fonction F constituée des équations différentielles trouvés à partir des équations bilans de matière et thermique $\frac{dx}{dt} = F(X, U)$.
- une fonction $G(x, u)$ constituée des contraintes à imposer sur les variables indépendantes et / ou dépendant. Elles représentent les équations algébriques (**Le Lann et al.**, (1995)).

III.3. Méthode de programmation

Nous avons utilisé le langage Fortran pour simuler notre modèle. Notre programme est devisé en plusieurs modules ou sous programmes de calculs décrits comme suit :

- **Un programme principal** qui rassemble les différents paramètres et données nécessaires au calcul comme les dimensions des appareils, les propriétés physiques des différents matériaux de construction du procédé, les différents débits d'écoulement des fluides utilisés, les conditions initiales de temps et de températures, le temps final et le pas d'intégration. Le programme principal gère aussi les différents sous programmes du simulateur.
- **Un sous programme LSODAR** (Lsodar livermore solver for ordinary differential equations, version 07 Mai 1982 (**Linda et al.**, (1982)) d'intégration du système d'équations différentielles par la méthode de *Gear*.
- **Deux sous programmes** liés au sou programme d'intégration :
 1. **Sous programme FEX** rassemblant les différentes équations différentielles à résoudre.
 2. **Sous programme GEX** pour motionner les contraintes sur les solutions.
- **Un sous programme de calcul** du débit molaire de la coulée.
- **Un sous programme** pour le calcul des vitesses des réactions
- **Un sous programme** pour le calcul de la chaleur dégagée par les réactions.
- **Un sous programme** de calcul de la surface d'échange entre le mélange réactionnel et le réacteur.
- **Quatre sous programmes** de calcul des propriétés physiques des différents fluides caloporteurs utilisés : l'eau et l'eau glycolée (la masse volumique, la chaleur spécifique, la conductivité thermique et la viscosité dynamique)
- **Quatre sous programmes** de calcul des propriétés physiques de l'air (la masse volumique, la chaleur spécifique, la conductivité thermique et la viscosité dynamique)
- **Cinq sous programmes** pour le calcul des différents coefficients d'échange de chaleur entre les fluides et les différents appareils :
 1. **Sous programme** pour calculer les coefficients d'échange de chaleur entre paroi conduite/milieu extérieur et paroi crayon chauffant/milieu extérieur ;
 2. **Sous programme** pour le calcul des coefficients d'échange entre mono-fluide /paroi conduite et mono-fluide/paroi crayon chauffant ;

3. *Sous programme* pour le calcul du coefficient d'échange de chaleur entre mélange réactionnel/paroi du réacteur ;
4. *Sous programme* pour le calcul des coefficients d'échange de chaleur entre mono-fluide/paroi réacteur et mono-fluide/paroi double enveloppe ;
5. *Sous programme* de calcul du coefficient d'échange de chaleur entre fluide/deux plaques de l'échangeur de chaleur à travers lesquelles circule le fluide.

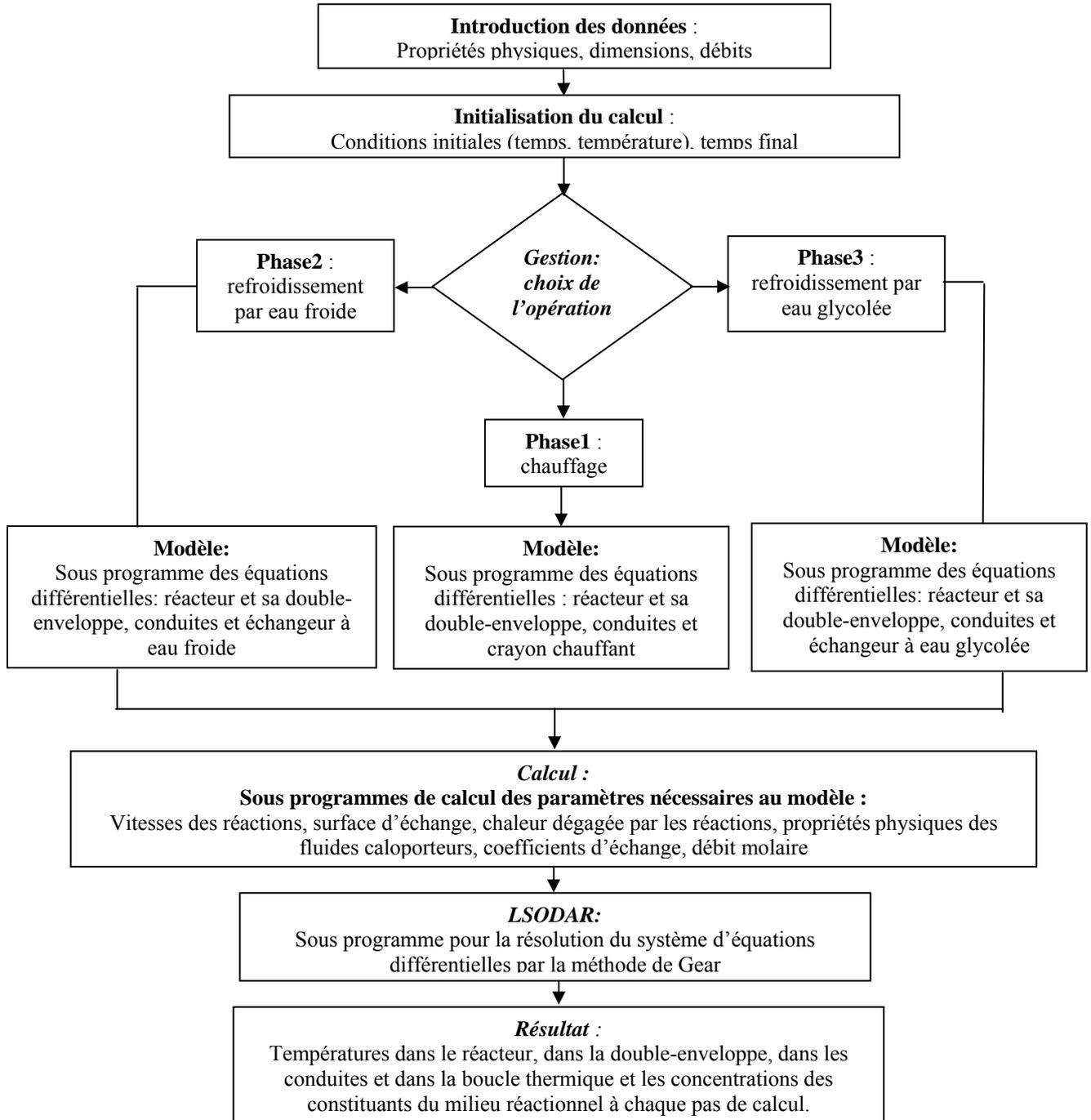


Figure III.11 : Organigramme de simulation dynamique de la conduite thermique d'un réacteur discontinu à double-enveloppe

III.4. Validation du simulateur

Pour simuler l'ensemble du procédé, les dynamiques des différents éléments, en particulier de l'ensemble des appareils de la boucle thermique externe au réacteur tels que le crayon chauffant et les échangeurs, doivent être connues. On étudie la réponse à un échelon de chauffage ou de refroidissement de la température du milieu réactionnel. A un instant donné, on modifie les conditions de fonctionnement des appareils (puissance de chauffe pour le crayon chauffant, débit de mono-fluide qui circule dans l'un des deux échangeurs de chaleur).

On enregistre l'évolution des températures milieu réactionnel et des températures d'entrée et de sortie de la double enveloppe au cours du temps.

La deuxième validation consiste à faire introduire une réaction chimique dans le réacteur et étudier le rendement de cette réaction lors du chauffage et du refroidissement. On enregistre l'évolution des concentrations des constituants du mélange réactionnel et la température de celui-ci au cours du temps.

Ces simulations sont réalisées de la façon suivante :

III.4.1. Validation du simulateur avec de l'eau pure

Un volume de 0.7 litres d'eau est introduit dans le réacteur. Le chauffage et le refroidissement commencent après 120 s. Pour le chauffage, deux essais sont réalisées pour des puissances électriques de 1000 et 2000 Watt. Pour le refroidissement, deux essais sont présentés pour chacun des deux échangeurs, en faisant circuler des débits constants de mono-fluide de 250 et 750 l/h.

Les évolutions des températures du milieu réactionnel (T_r) ainsi qu'à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie (T_{sde}) de la double-enveloppe sont présentées sur les Figures (III.12, III.13) pour les simulations de chauffe et sur les Figures (III.14, III.15) pour les simulations de refroidissement dans le cas de l'échangeur à eau froide et enfin sur les Figures (III.16, III.17) pour les simulations de refroidissement en utilisant l'échangeur à eau glycolée (Henini et al. (2013)).

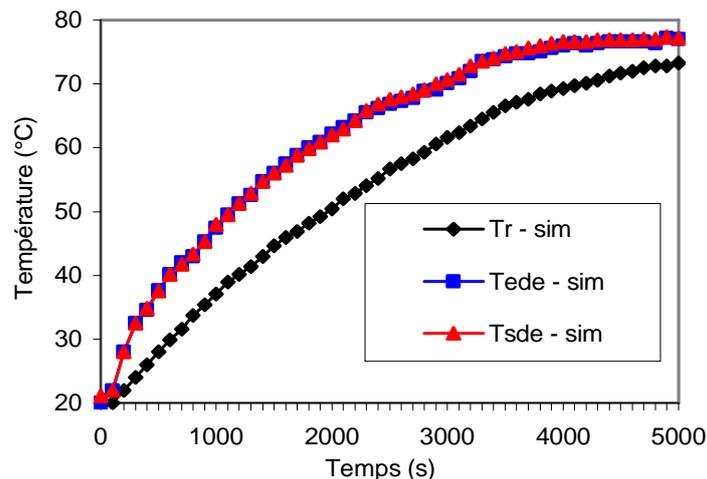


Figure III.12 : Evolution des températures de l'eau pure: Simulation de chauffage par 1000 W

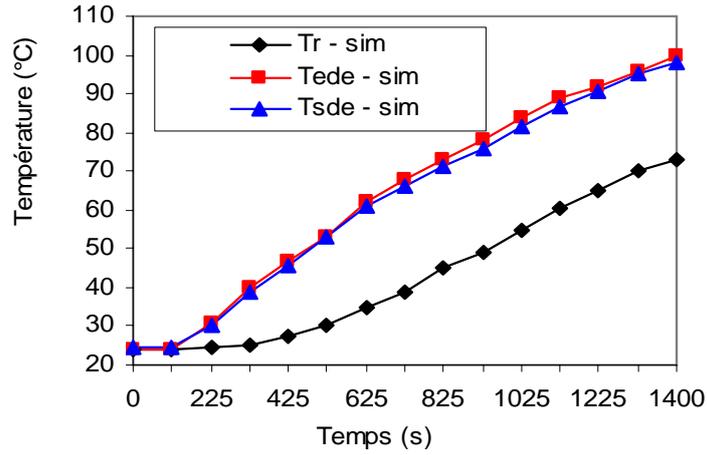


Figure III.13 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de chauffage par 2000 W

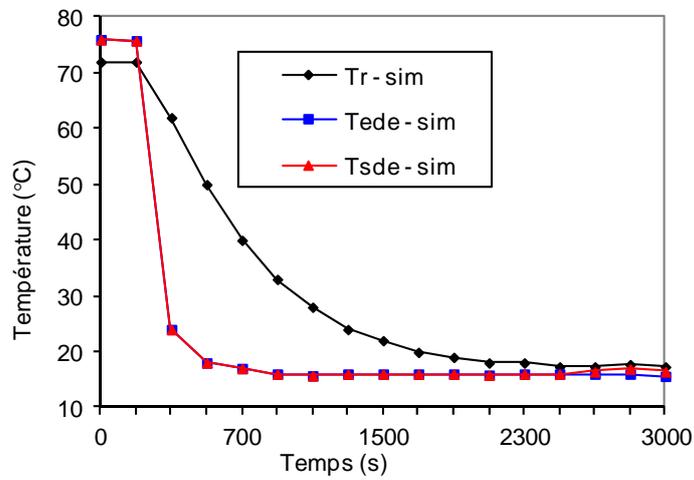


Figure III.14 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de refroidissement par eau froide à 250 l/h

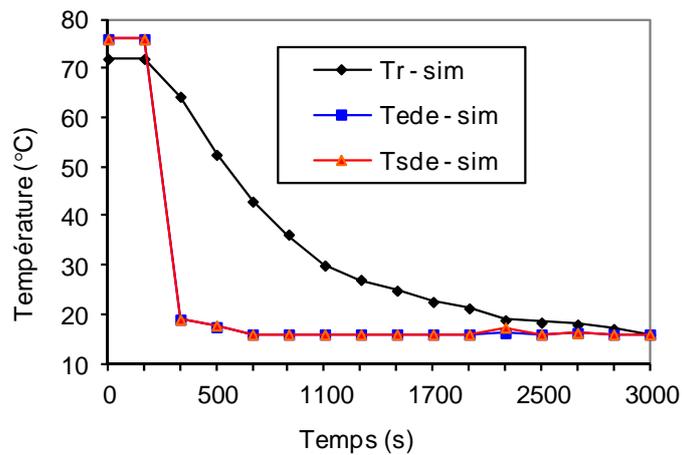


Figure III.15 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de refroidissement par eau froide à 750 l/h.

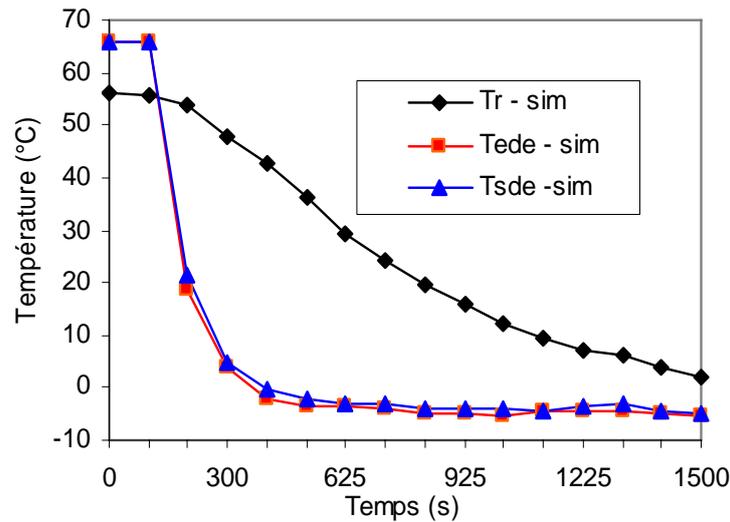


Figure III.16 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de refroidissement par eau glycolée à 250 l/h

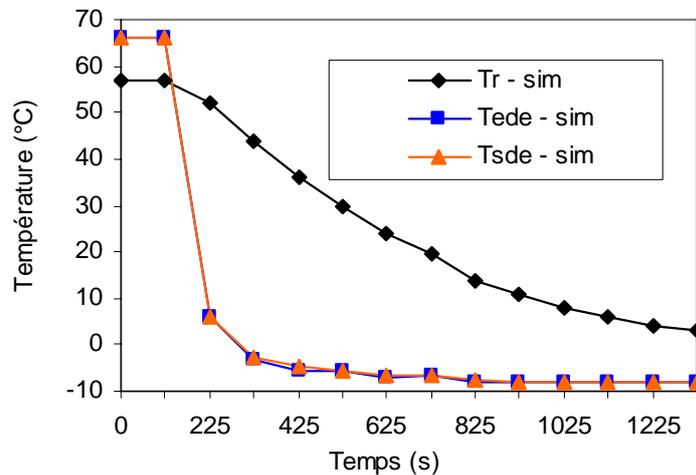


Figure III.17 : Evolution des températures de l'eau pure : Simulation de refroidissement par eau glycolée à 750 l/h

D'après ces résultats de simulation du chauffage et du refroidissement du mélange réactionnel qui est de l'eau pure, plusieurs constatations peuvent être dégagées :

- Pour les simulations de chauffage et de refroidissement par les deux échangeurs, on remarque l'apparition d'une phase transitoire qui gère le phénomène de chauffe ou de refroidissement et dont l'écart de température entre le mélange réactionnel et la double enveloppe est important, puis on passe vers un régime établi où la température du mélange réactionnel et la température de la double enveloppe sont très proches. Par exemple avec le chauffage par 1000 W le régime établi est obtenu vers les 5000 secondes avec une température de l'ordre de 75°C (Figure III.12);
- L'opération de chauffage ou de refroidissement se fait encore plus vite au fur et à mesure qu'on augmente la puissance électrique pour le chauffage (on gagne de l'ordre de 15°C pour une augmentation de 500 W) et le débit du mono-fluide entrant dans l'échangeur de chaleur pour le refroidissement.
- Pour le refroidissement, la température du mélange réactionnel diminue vers des valeurs plus basses avec l'échangeur à eau glycolée que l'échangeur à eau froide car la

température de l'eau glycolée peut descendre jusqu'à $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ alors que la température de l'eau n'atteint que $15\text{ }^{\circ}\text{C}$ seulement.

- L'écart de température entre le mélange réactionnel et l'entrée et la sortie de la double enveloppe augmente au fur et à mesure qu'on augmente la puissance pour le chauffage et le débit du mono-fluide entrant dans l'échangeur de chaleur pour le refroidissement. Par exemple pour le chauffage à 2000 secondes l'écart est de l'ordre de $9\text{ }^{\circ}\text{C}$ pour une puissance de 1000Watt et de l'ordre de 28°C pour 2000 W ;
- Pour le chauffage à 2000W, on évite d'atteindre le régime établi pour ne pas dépasser la températures d'ébullition du mono-fluide qui est l'eau glycolée ($110\text{ }^{\circ}\text{C}$) et la température d'ébullition du mélange réactionnel qui est de l'eau pure ($100\text{ }^{\circ}\text{C}$) où le modèle avec les hypothèses introduites ne traduit pas le phénomène existant dans ce cas.

Nous comparons ici nos résultats de simulations avec des résultats des expériences de **Bouhenchir**, (2000), lors du chauffage par une puissance de 1000 et 2000 W et lors du refroidissement par les deux échangeurs de chaleur avec un débit du mono-fluide de 250 et 750 l/h

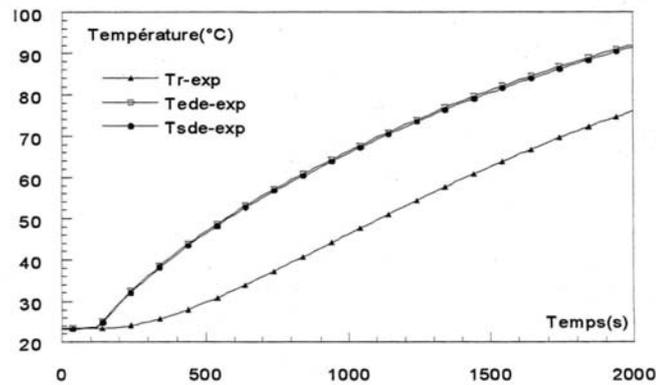


Figure III.18 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par chauffage à 1000 W, **Bouhenchir** (2000)

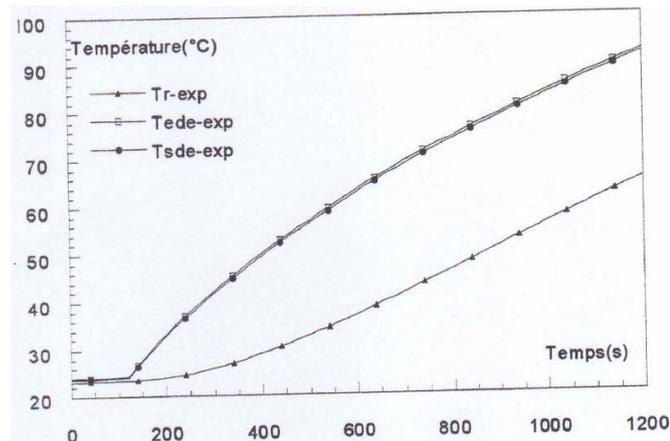


Figure III.19 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par chauffage à 2000 W, **Bouhenchir** (2000)

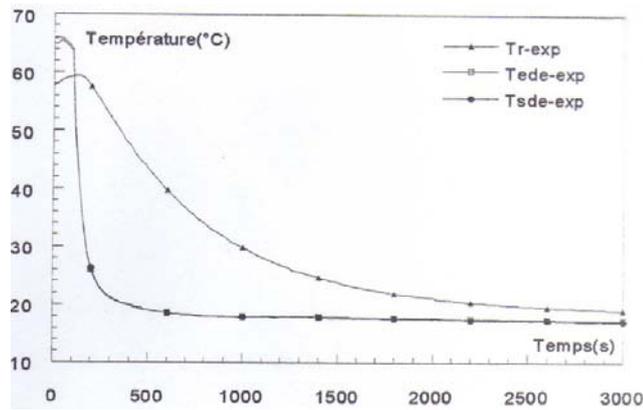


Figure III.20 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par refroidissement à l'eau froide à 250 l/h, **Bouhenchir** (2000)

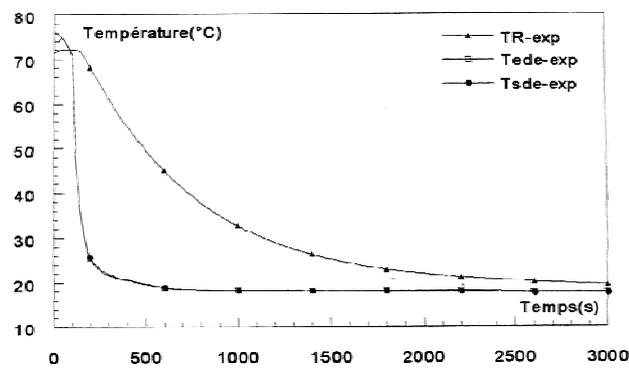


Figure III.21 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par refroidissement à l'eau froide à 750 l/h, **Bouhenchir** (2000)

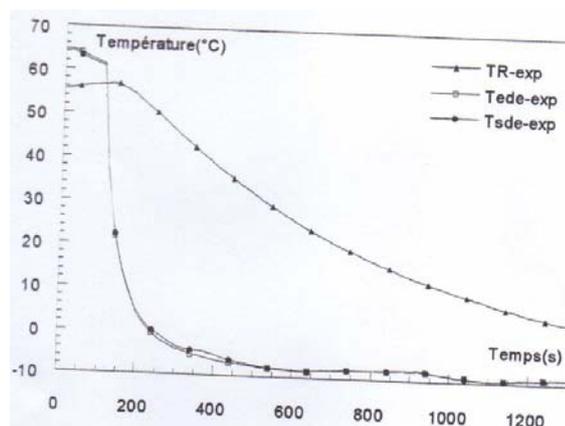


Figure III.22 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par refroidissement à l'eau glycolée à 250 l/h, **Bouhenchir** (2000)

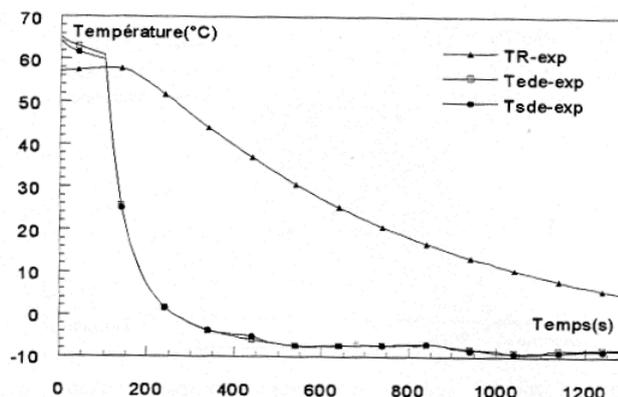


Figure III.23 : Evolution expérimentale des températures de l'eau pure par refroidissement à l'eau glycolée à 750 l/h, **Bouhenchir** (2000)

La comparaison des résultats de simulation et des expériences pour les trois opérations : chauffage, refroidissement par eau froide et refroidissement par eau glycolée montre que notre modèle thermique de simulation reproduit approximativement le comportement dynamique réel du réacteur (écart de 5%).

Cependant, on observe une légère différence surtout au début, qui peut s'expliquer par le fait que la température des fluides ne stabilise expérimentalement qu'après un certain temps de fonctionnement.

Dans les résultats de (**Bouhenchir**, (2000)) on voit que la température évolue même pendant l'introduction des réactifs qu'on appelle temps de coulée. Par contre on ne peut prendre cette évolution par le simulateur car on intègre après l'entrée de la coulée.

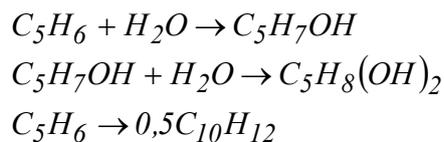
Nous remarquons un écart de 4 °C lors du chauffage et de 2 °C lors du refroidissement entre nos résultats et les résultats expérimentaux de (**Bouhenchir**, (2000)) pour les températures du mélange réactionnel (T_r), de l'entrée (T_{ede}) et de la sortie (T_{sde}) de la double enveloppe lors du chauffage et lors du refroidissement.

Les écarts observés entre nos simulations et les résultats expérimentaux de (**Bouhenchir**, (2000)) peuvent être assimilés aux erreurs de calcul engendrées par la transformation d'un problème continu en un problème discontinu.

D'autre part, il nous semble que nous avons utilisé des corrélations et des expressions de calcul des propriétés physiques des fluides et des coefficients de transfert de chaleur différentes de celles utilisées par Bouhenchir.

III.4.2. Validation du simulateur avec une synthèse chimique

Un autre exemple d'application de ce simulateur est la synthèse chimique du cyclopentanediol à partir du cyclopentadiène qu'on peut présenter comme suit :



Les réactions sont contrôlées par une loi de type Arrhenius dont les paramètres cinétiques sont résumés dans le tableau (III.3) ci après :

Tableau III.3: Paramètres cinétiques des trois réactions de synthèse du cyclopentanediol, (Carl, (2003), Yaws, (1977))

	Réaction (1)	Réaction (2)	Réaction (3)
Facteur de fréquence k_j^0	3.575×10^8 (s)	3.575×10^8 (s)	2511.94×10^3 (l/mole.s)
Energie d'activation E_j (J/mole)	81.189	81.189	71.219

Les propriétés physiques des constituants participant dans les trois réactions sont présentées dans le tableau suivant :

Tableau III.4 : Paramètres physiques des différents constituants, (Carl, (2003), Yaws, (1977))

	Cyclopentadiène	Cyclopentanol	Cyclopentanediol	Dicyclopentadiène
Masse molaire M_i (kg/mole)	0.066	0.084	0.102	0.132
Masse volumique ρ_i (kg/m ³)	934.2	934.2	934.2	934.2
Chaleur spécifique C_{p_i} (kJ/kg.K)	3.0096	3.0096	3.0096	3.0096
Viscosité dynamique μ_i (kg/m.s)	0.001	0.001	0.001	0.001
Conductivité thermique λ_i (kJ/m.s.K)	6.688×10^{-4}	6.688×10^{-4}	6.688×10^{-4}	4.18×10^{-4}
Enthalpie molaire de formation à 25°C h_i (kJ/mole)	-92.378	-425.599	-412.691	-285.799

N.B : Les propriétés physiques de l'eau sont calculées directement par le programme sauf la masse molaire et l'enthalpie molaire de formation qui sont prises successivement 0.018 kg/mole et -68.38 kJ/mole.

Pour bien simuler cette réaction on a pris deux types d'opérations

III.4.2.1. Simulation avec coulée

Le principe de la première opération consiste à faire introduire une charge initiale de 0.6 kg d'eau dans le réacteur à la température ambiante, puis alimenter le réacteur par une coulée de 0.2 kg de cyclopentadiène durant 100 secondes à une température de 57 °C.

Les résultats obtenus par le simulateur en termes d'évolution des concentrations dans le mélange réactionnel et de température lors du chauffage, lors du refroidissement et sans chauffage et refroidissement sont présentés sur les Figures III.24, III.25, III.26, III.27 (Henini et al. (2013)).

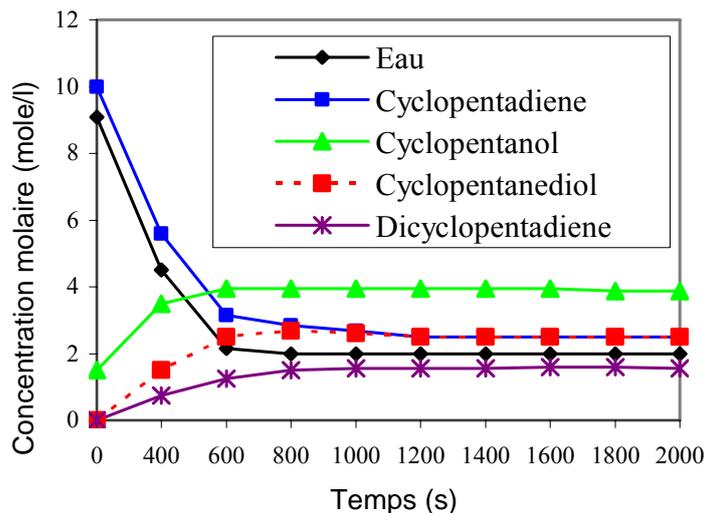


Figure III.24 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation de chauffage par 2000 W

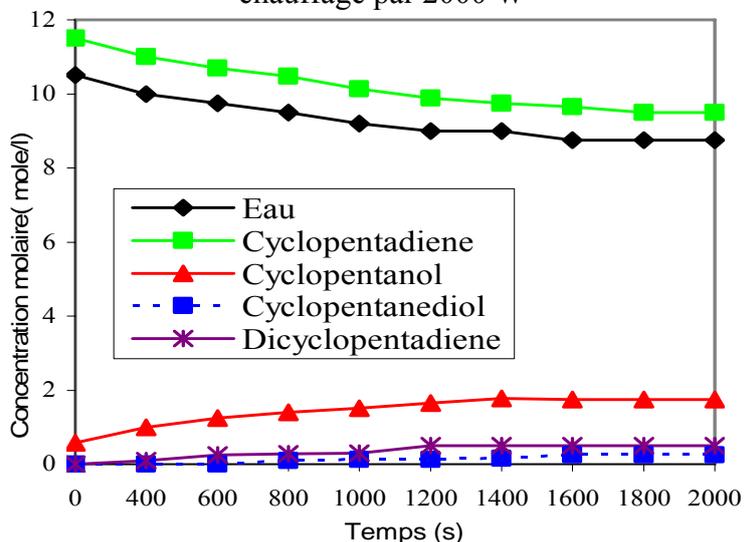


Figure III.25 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation de refroidissement par eau glycolée

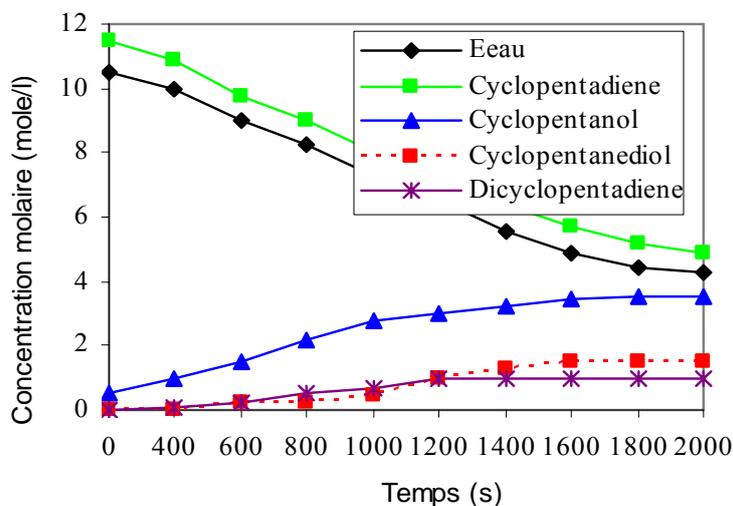


Figure III.26 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation sans chauffage et sans refroidissement

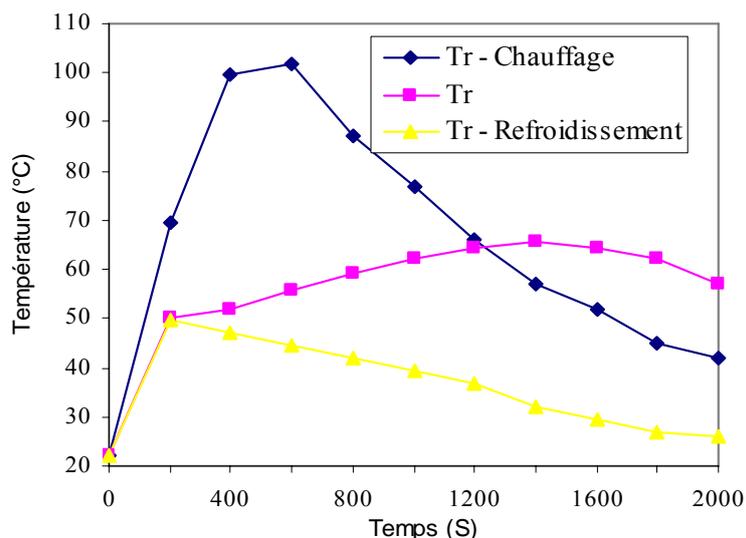


Figure III.27 : Comparaison des températures du mélange réactionnel lors du chauffage, lors du refroidissement et sans ces deux opérations

D'après les trois Figures (III.24, III.25, III.26) représentant l'évolution des concentrations des constituants du mélange réactionnel lors du chauffage, du refroidissement et sans ces deux opérations on remarque que :

- Le rendement en cyclopentanol (*produit de la première réaction*) est de l'ordre de 1.7 mole/l pour le refroidissement, (Figure III.25), et 3.5 mole/l sans chauffage et sans refroidissement comme indique sur la Figure III.26 et atteint les 3.7 mole/l pour le chauffage (Figure III.24).
- Le rendement en cyclopentanediol (*produit désiré par conversion du cyclopentanol*) est de l'ordre de 1.5 mole/l sans chauffage et sans refroidissement, (Figure III.26) alors qu'il atteint les 2.5 mole/l pour le chauffage (Figure III.24).
- Apparition de la troisième réaction (*produit indésirable*) qui se produit lorsque le cyclopentadiène est en excès.
- Les trois réactions sont plus rapides lors du chauffage qui peuvent être réalisées au bout d'environ 800 secondes (Figure III.24), alors que sans chauffage et sans refroidissement dépassent les 2000 secondes (Figure III.26), tandis que pour le refroidissement dépassent les 2000 secondes.

Donc on peut dire que la synthèse du cyclopentanediol à partir du cyclopentadiène est meilleure et plus rapide lors du chauffage du mélange réactionnel. On peut le voir clairement sur la Figure III.27, qui montre une comparaison entre l'évolution de la température du mélange réactionnel au cours du chauffage et du refroidissement et sans chauffage et de refroidissement.

On observe une augmentation de la température du milieu réactionnel dans les trois réactions pour atteindre jusqu'à 102 °C lors du chauffage. Ce point correspond à une conversion maximale dans les trois réactions. Ceci peut être expliqué comme suit: lors de la première réaction qui est une réaction endothermique, la quantité de chaleur entrante avec le cyclopentadiène introduit à 57 °C est consommée pour produire le cyclopentanol.

Comme les deux autres réactions sont exothermiques et qu'elles aient lieu en même temps que la première réaction, on observe une légère augmentation de la température du réacteur qui ne dépasse pas le 57 °C au cours du refroidissement, mais qui explique le faible rendement de ces réactions lors du refroidissement.

On a ensuite une chute de température du mélange réactionnel même lors du chauffage, car la température dans le réacteur dépasse la température du mono-fluide dans la double enveloppe par effet des deux réactions exothermiques. Donc il y aura un échange thermique entre le réacteur et la double enveloppe pour aboutir à l'équilibre thermique.

III.4.2.2. Simulation sans coulée

L'opération sans coulée consiste à faire charger le réacteur par les deux réactifs sans coulée. Nous avons testé une charge de 0.6 kg d'eau et 0.2 kg de cyclopentadiène à 57 °C, puis à 77 °C, puis une même charge massique de 0.4 kg d'eau et 0.4 kg de cyclopentadiène à 57 °C.

Les simulations ont été réalisées avec chauffage du mélange réactionnel par une puissance de 2000 watts.

Les résultats obtenus par le simulateur en termes d'évolution des concentrations dans le mélange réactionnel et de la température lors du chauffage sont présentés sur les Figures III.28, III.29, III.30, III.31, III.32.

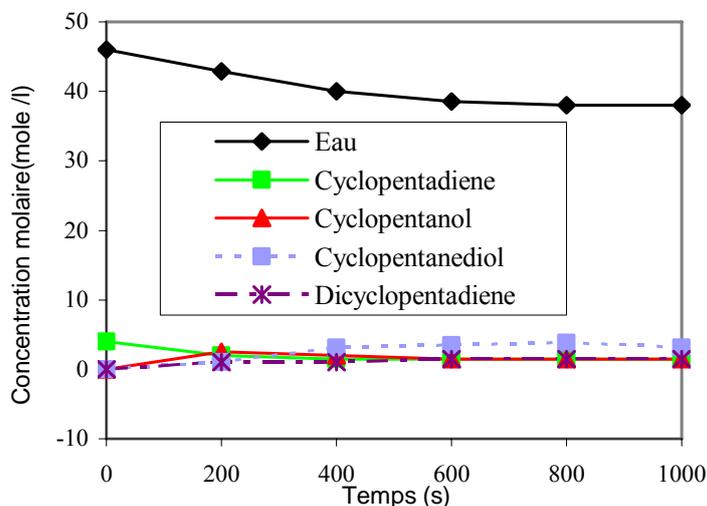


Figure III.28 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation de chauffage sans coulée des réactifs à 57 °C

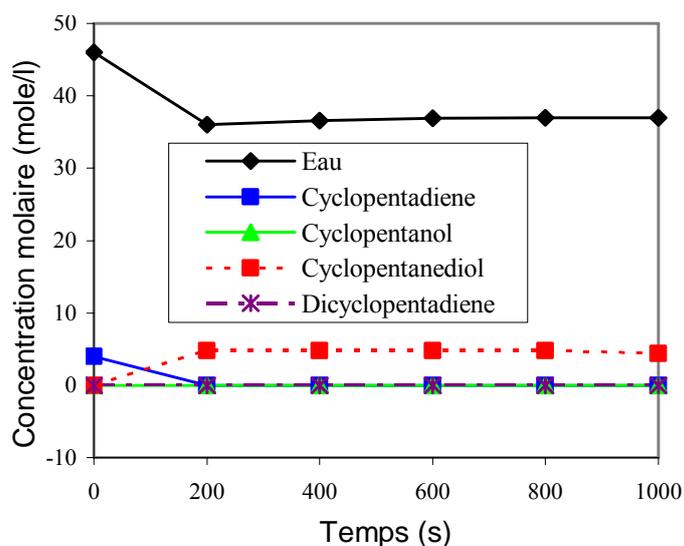


Figure III.29 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel : Simulation de chauffage sans coulée des réactifs à 77 °C

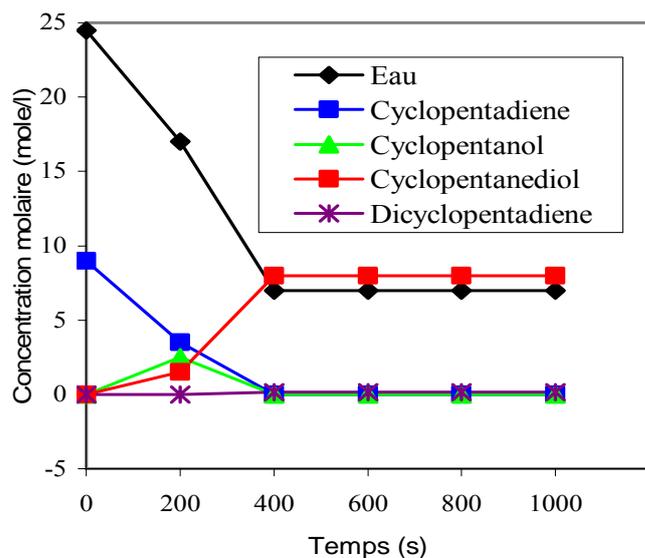


Figure III.30 : Evolution de la concentration molaire du milieu réactionnel (même charge massique) : Simulation de chauffage sans coulée des réactifs à 57 °C

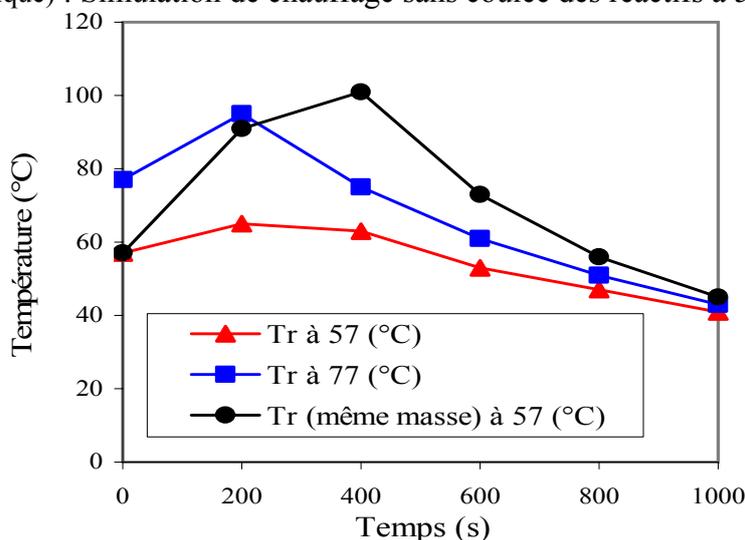


Figure III.31 : Comparaison des températures du mélange réactionnel sans coulée des réactifs

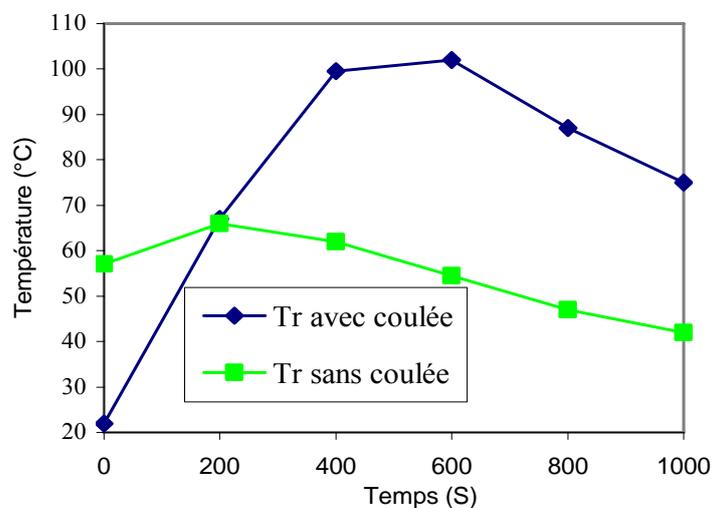


Figure III.32 : Comparaison des températures lors du chauffage du mélange réactionnel avec coulée des réactifs et sans coulée à 57 °C

D'après les Figures III.28, III.29 et III.30 d'évolution des concentrations des constituants du mélange réactionnel sans coulée des réactifs à 57 °C et à 77°C avec une charge de 0.6 kg d'eau et 0.2 kg de cyclopentadiène et à 57 °C avec une même charge massique (0.4 kg d'eau et 0.4 kg de cyclopentadiène) par chauffage du mélange réactionnel, on remarque la conversion totale du cyclopentadiène en cyclopentanol pour les trois cas.

On remarque aussi une conversion totale du cyclopentanol en cyclopentanediol pour le cas des réactifs même charge massique qui donne environ 8 mole/l de cyclopentadiène et pour le cas des réactifs (avec une charge massique différente) à 77 °C de l'ordre de 4 mole/l. Tandis que pour le cas des réactifs non pas la même charge massique à 57 °C on a une concentration de 3 mole/l de cyclopentanediol et un reste de cyclopentanol de 1 mole/l.

On remarque aussi des réactions plus rapides par simulation de chauffage sans coulée par rapport à la simulation de chauffage avec coulée de réactif, on voit aussi l'absence de la réaction intermédiaire qui est du à la conversion totale du cyclopentadiène en cyclopentanol dans les trois figures.

La comparaison des températures de ces trois cas sur la Figure III.31 montre que le bon rendement accompagne le maximum le plus élevé de température à cause de la grande quantité de chaleur dégagée lors de la deuxième réaction.

III.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté le développement d'un modèle de simulation dynamique de réacteur chimique discontinu. Ce modèle est basé sur l'écriture des équations de bilan de masse et de bilan thermique du réacteur et la boucle thermique en régime transitoire. La validation du simulateur est une étape importante pour tester les performances de ce simulateur, dans cette partie la validation a été réalisée par deux opérations :

- ✓ L'étude du comportement thermique du mélange réactionnel pendant le chauffage et le refroidissement pour l'eau comme milieu réactionnel. La validation a montré que le simulateur reproduit fidèlement le comportement réel du procédé (écart 5%).
- ✓ La deuxième validation consiste à introduire des réactions chimiques de synthèse du cyclopentanediol à partir du cyclopentadiène dans le réacteur et étudier le rendement de ces réactions lors des simulations de chauffage et de refroidissement du mélange réactionnel

Les résultats montrent que le chauffage du mélange réactionnel augmente de façon significative le rendement de cette réaction de synthèse.

Cette synthèse illustre l'intérêt de la simulation numérique pour la conduite des réacteurs discontinus. En effet, elle permet de déterminer les conditions opératoires sûres qui maximisent la productivité (rendement) qui justifient des essais de simulation avant d'entreprendre une synthèse industrielle.

Le simulateur est un outil précieux qui décrit l'évolution dynamique du réacteur et permet ainsi de limiter le nombre d'expériences.

Ce simulateur pourrait être utilisé comme outil de formation pour tester l'influence de gestes par l'opérateur dans le cas de problèmes de fonctionnement avant de passer sur des appareils industriels.

CHAPITRE IV

SYSTEME DE SUPERVISION ET ALGORITHME DE COMMANDE

IV.1. INTRODUCTION

IV.2. STRATEGIES DE GESTION DES SYSTEMES DE CHAUFFAGE / REFROIDISSEMENT MONOFLUIDE

IV.2.1. Stratégies de gestion des systèmes de chauffage/refroidissement mono-fluide

IV.2.2. Stratégie de conduite thermique par analyse des flux thermique limites

IV.3. LOGICIEL DE COMMANDE

IV.3.1. Utilisation de la commande prédictive fonctionnelle

IV.3.1.1. Introduction

IV.3.1.2. Stratégie de la régulation

IV.3.1.3. Développement des différents algorithmes de contrôle

IV.3.2. Présentations des régulateurs

IV.4. VALIDATION DE SYSTEME DE SUPERVISION ET DE LA POLITIQUE DE REGULATION

IV.5. CONCLUSION

Résumé : Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons l'outil de supervision qui a fait l'objet de ce travail pour la conduite thermique du réacteur pilote équipé d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide. La deuxième partie est consacrée à la présentation des algorithmes de contrôle mis en œuvre pour la commande prédictive fonctionnelle. La troisième partie, nous présentons la validation du système de supervision, basé sur la stratégie de gestion des appareils thermiques par analyse des flux thermiques, ainsi que la politique de régulation basée sur l'utilisation de la commande prédictive fonctionnelle (*PFC*). Des résultats obtenus, pour la conduite thermique du réacteur pilote en simulation suivant des profils de températures type (chauffage – maintien – refroidissement – maintien) pour des réactions chimiques exothermiques (neutralisation).

IV.1. Introduction

La conduite des réacteurs discontinus pose un problème difficile à maîtriser qui provient de la nature discontinue des modes opératoires et du caractère polyvalents des réacteurs.

La nature du système thermique joue un rôle important, car le contrôle de la température du milieu réactionnel se fait par action sur une variable de ce système (soit sur le débit du fluide caloporteur dans le cas d'un système multifluide ou bien sur la température du fluide caloporteur dans le cas d'un système mono-fluide).

La conduite thermique des réacteurs discontinus s'appuie habituellement soit sur la gestion des fluides caloporteurs alimentant la double-enveloppe du réacteur dans le cas du système multifluide, soit sur la gestion des appareils thermiques dans le cas d'un système mono-fluide.

La variation de la dynamique des réacteurs discontinus ou semi continus, rend leur conduite plus complexe. La mise en œuvre des réactions chimiques dans ce type de réacteur s'effectue le plus souvent suivant un mode opératoire composé d'une phase de préchauffage du milieu réactionnel, une phase du maintien avec réaction chimique et une phase de refroidissement pour éviter la formation des produits secondaires. Le système de régulation doit prendre en compte l'ensemble de ces séquences. L'emploi de régulateurs classiques tels que les *PID* n'est donc pas adapté à ces procédés fortement dynamiques, malgré leurs fortes utilisations dans l'industrie chimique.

Dans cet objectif et comme nous l'avons signalé, nous avons utilisé dans cette étude la commande prédictive fonctionnelle (*CPF*).

IV.2. Stratégies de gestion pour la conduite thermique des réacteurs discontinus

IV.2.1. Stratégies de gestion des systèmes de chauffage/refroidissement mono-fluide

Dans un système mono-fluide, la double-enveloppe du réacteur est alimentée par un seul fluide dont la température peut varier dans un domaine assez large. Le fluide caloporteur peut être chauffé ou refroidi par des échangeurs ou d'autres appareils placés sur le circuit ou bien par des systèmes de mélanges de fluides chaud et froid selon des variantes très nombreuses. Le principe de fonctionnement consiste à choisir l'appareil ou le fluide à injecter dans le circuit thermique et ensuite à déterminer la variable manipulée, qui permettra de suivre un profil de température donné. Cette variable peut être une puissance de chauffe ou un débit. Ce choix est effectué par un programme de supervision.

Compte tenu des analyses que nous venons de présenter pour le système mono-fluide et pour bénéficier de la stratégie de gestion par analyses des flux thermique limites développée par (**Louleh**, (1996)) pour un système de chauffage/refroidissement multifluide, nous avons adopté dans le cadre de notre travail, une stratégie de gestion par analyses des flux thermique pour choisir l'appareil adéquat du circuit thermique afin de manipuler la température du mono-fluide.

IV.2.2. Stratégies de conduite thermique par analyse des flux thermiques limites

La conduite thermique des réacteurs discontinus ou semi continus équipés d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide pose deux problèmes, l'un discret (choix de l'élément de la boucle thermique) et l'autre continu (valeur de la variable de commande) (**Gaudy**, (1992), **Louleh**, (1996)). L'objectif est de pouvoir simultanément déterminer l'élément de la boucle thermique qui va modifier la température du mono-fluide, ainsi que la commande à appliquer sur l'actionneur choisi, pour atteindre l'objectif de la régulation.

Le protocole de la conduite thermique est basé sur le concept suivant :

Le régulateur calcule la variable de contrôle qui est interprète comme un flux thermique. Ce dernier est alors comparé aux flux thermique limites, calculés en ligne pour les différents appareils afin de choisir l'élément adéquat de la boucle thermique. Une fois ce choix réalisé, la variable manipulée est calculé en fonction de l'appareil choisi.

Dans ce qui va suivre, nous présentons le calcul des flux thermiques limites pour les différents appareils ainsi que la stratégie de gestion. La seconde partie concerne le calcul de la variable de contrôle et de la variable manipulée.

IV.2.2.1. Calcul des flux thermique limites

Pour comparer cette valeur de flux thermique aux flux thermiques limites de chaque appareil, ces derniers sont calculés en ligne. On considère que ce sont les flux thermiques échangés au niveau de la double-enveloppe en tenant compte des caractéristiques thermiques de chaque élément de la boucle thermique c'est-à-dire le crayon chauffant, l'échangeur de chaleur à eau froide et l'échangeur de chaleur à eau glycolée.

1. Flux thermique limites du crayon chauffant

Cet élément de la boucle thermique est utilisé pour chauffer le monofluide, il peut recevoir une puissance électrique maximale $P_{elec} (max)$. Cette puissance maximale sera considérée comme le flux maximum que peut échanger le monofluide avec le milieu réactionnel à travers la double-enveloppe.

Donc on peut distinguer deux flux thermiques limites maximum $Q_{max\ ch}$ et minimum $Q_{min\ ch}$, tel que :

$$Q_{max\ ch} = P_{elec} (max) \quad (IV.1)$$

$$Q_{min\ ch} = 0.0 \quad (IV.2)$$

2. Flux thermique limites des échangeurs de chaleur

Pour calculer les flux thermiques limites correspondants à ces deux échangeurs de chaleur, nous avons utilisé deux bilans thermiques. Le premier concerne le mono-fluide lors de son passage dans la double-enveloppe et l'autre concerne l'échange entre le milieu réactionnel et le mono-fluide présent dans la double-enveloppe.

Ces bilans sont traduits par les deux équations suivantes :

$$Q_1 = F_{fc} \times \rho_{fc} \times Cp_{fc} (T_e - T_s) \quad (IV.3)$$

$$Q_2 = U \times A_{r, pr} \left(\frac{(T_e - T_r) + (T_s - T_r)}{2} \right) \quad (IV.4)$$

Où : $A_{r, pr}$: Surface d'échange entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur (m^2) ;

Cp_{fc} : Chaleur spécifique du mono-fluide (kJ/kg.K) ;

F_{fc} : Débit du mono-fluide circulant dans la double-enveloppe ($m^3.s^{-1}$) ;

T_e : Température du monofluide à l'entrée de la double-enveloppe (K) ;

T_r : Température du milieu réactionnel (K) ;

T_s : Température du mono-fluide à la sortie de la double-enveloppe (K) ;

U : Coefficient global d'échange de chaleur entre le mono-fluide dans la double-enveloppe et le milieu réactionnel (kJ/ (m².s K).

$$\frac{1}{U} = \left[\frac{1}{U_{r,pr}} + \frac{1}{U_{pr,fc}} \frac{A_{r,pr}}{A_{pr,fc}} \right] \quad (IV.5)$$

Avec : $A_{pr,fc}$: Surface d'échange entre la paroi du réacteur et le mono-fluide (m²) ;

$U_{pr,fc}$: Coefficient partiel d'échange de chaleur entre la paroi du réacteur et le mono-fluide (kJ/ m².s K) ;

$U_{r,pr}$: Coefficient global d'échange de chaleur entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur; (kJ/ m².s K)

En considérant qu'il y a conservation de chaleur, on peut écrire :

$$Q_1 = Q_2 \quad (IV.6)$$

A partir des équations (IV.3, IV.4 et IV.6), la température de sortie de la double-enveloppe est calculée par la relation suivante :

$$T_s = \frac{\left(F_{fc} \times \rho_{fc} \times Cp_{fc} - \frac{U \times A_{r,pr}}{2} \right) \times T_e + U \times A_{r,pr} \times T_r}{F_{fc} \times \rho_{fc} \times Cp_{fc} + \frac{U \times A_{r,pr}}{2}} \quad (IV.7)$$

Le débit du mono-fluide étant constant, lors du refroidissement la température minimale qui peut être atteinte à l'entrée de la double-enveloppe, est celle de la température de l'utilitaire de refroidissement utilisé par l'échangeur de chaleur. Cela permet d'écrire :

$T_e = T_{fc0}$ (Eau froide) : dans le cas de l'échangeur utilisant l'eau froide.

$T_e = T_{fc0}$ (Eau glycolée) : dans le cas de l'échangeur utilisant l'eau glycolée.

Pour calculer ces flux thermiques minimaux $Q_{min\,ef}$ et $Q_{min\,eg}$, correspond à l'utilisation des échangeurs de chaleur à eau froide et à eau glycolée respectivement, nous utiliserons les équations (IV.3) ou (IV.4) en prenant comme température de sortie T_s celle calculée par l'équation (IV.7).

On considère que les flux thermiques maximaux, correspondant à l'utilisation des échangeurs de chaleur à eau froide et à eau glycolée respectivement sont nuls.

$$Q_{max\,ef} = 0 \quad (IV.8)$$

$$Q_{max\,eg} = 0 \quad (IV.9)$$

Ces valeurs peuvent être atteintes lorsqu'un équilibre thermique au niveau de la double-enveloppe, ($T_e = T_s$) se produira :

Les organigrammes suivants donnent une représentation globale de la gestion de la boucle thermique durant les trois phases de la conduite thermique.

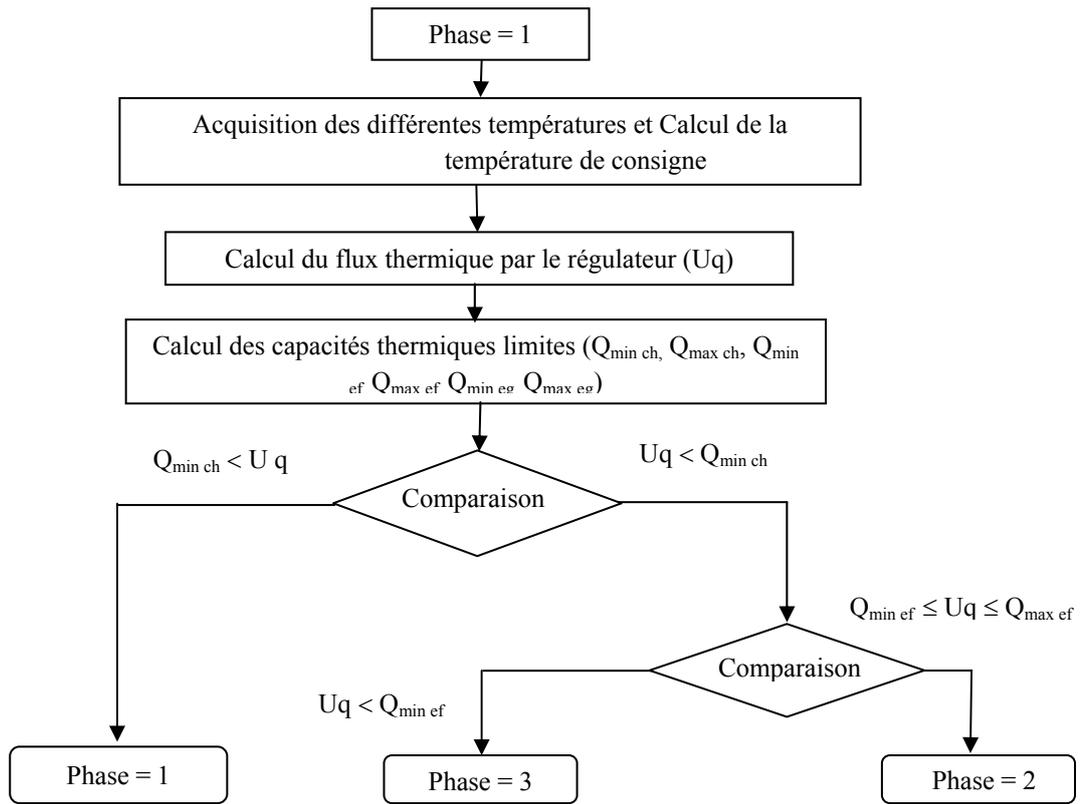


Figure IV.1 : Organigramme dans le cas de l'utilisation du crayon chauffant

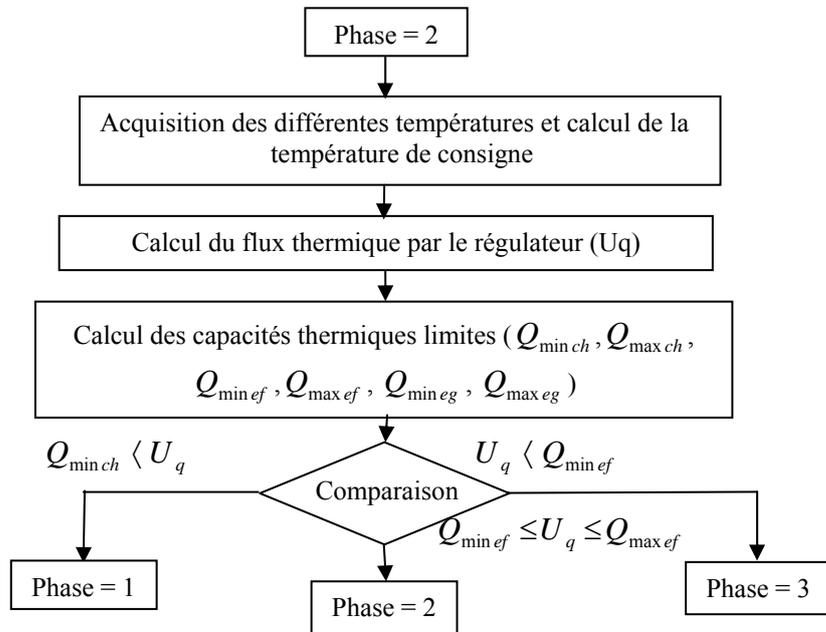


Figure IV.2 : Organigramme dans le cas de l'utilisation de l'échangeur de chaleur à eau froide

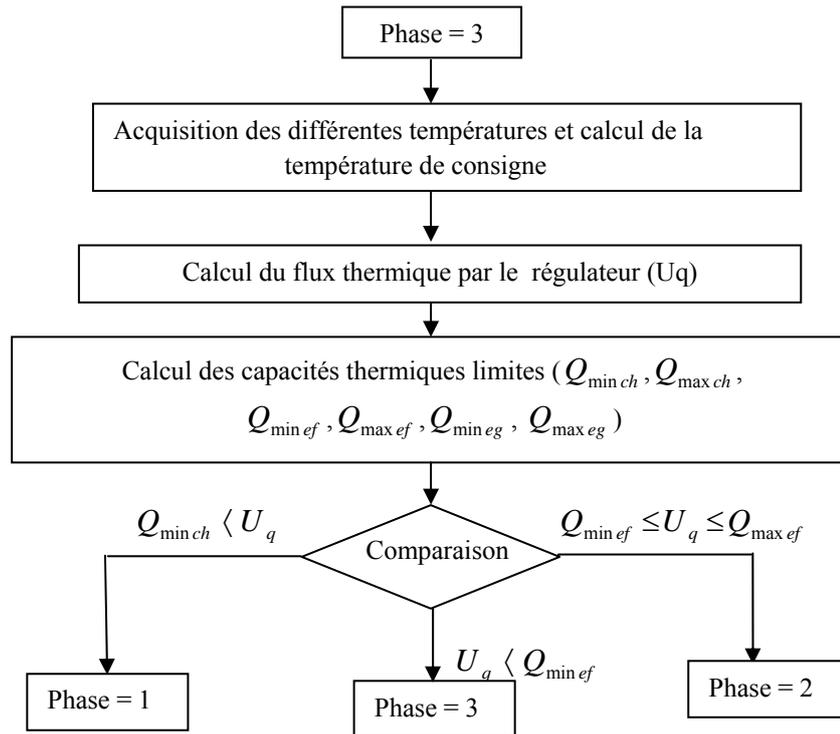


Figure IV.3 : Organigramme dans le cas de l'utilisation de l'échangeur de chaleur à eau glycolée

IV.3. Logiciel de commande

La conduite thermique d'un réacteur batch est fortement liée d'une part à la définition du système thermique qui est associé et d'autre part, au régulateur utilisé.

Le système de chauffage/refroidissement, dont le principe repose sur le mono-fluide, ayant été choisi, il reste à définir la politique de commande. Les deux questions qui se posent sont alors :

- Quel est l'objectif à atteindre?
- Quel est le problème à résoudre?

On peut respectivement apporter comme réponse à ces questions :

1- définir une politique de commande permettant au procédé étudié d'atteindre l'objectif fixé.

2- Réaliser la conduite thermique du réacteur avec son environnement.

Pour aborder ce problème nous nous sommes limités à l'utilisation de la commande prédictive fonctionnelle (CPF).

IV.3.1. Utilisation de la commande prédictive fonctionnelle

IV.3.1.1. Introduction

La politique de la commande en cascade classique pour la conduite thermique d'un procédé équipé d'un système mono-fluide, est basée sur la répartition des tâches entre deux niveaux de régulation. Le niveau "1" : constitue le régulateur maître qui calcule une température de consigne à suivre par la température du monofluide à l'entrée de la double-enveloppe. Cette consigne est ensuite transmise au niveau de régulation "0". Ce niveau constitue le régulateur esclave qui calcule la variable manipulée suivant la consigne imposée. Comme nous l'avons mentionné, nous avons utilisé pour cette structure de régulation la CPF.

IV.3.1.2. Stratégie de la régulation

L'objectif recherché lors du contrôle thermique d'une réaction exothermique dans un réacteur discontinu:

- la stabilité de la réaction

Le contrôle de la température du milieu réactionnel T_r suivant un profil de consigne désiré qui permette à la réaction considérée de se dérouler à une vitesse acceptable, par action sur la température du mono-fluide à l'entrée de la double enveloppe, T_{ede} par l'intermédiaire du crayon chauffant et des deux échangeurs de chaleur à plaques.

Pour obtenir de tels résultats, il est important que le réacteur ne soit pas soumis à des variations thermiques trop brutales.

L'utilisation de la supervision par analyse des flux thermiques, nous a obligés à considérer deux régulateurs au niveau de la boucle maître. Donc la boucle de régulation est la suivante:

Dans le niveau de régulation "1", deux régulateurs sont utilisés. Le premier régulateur pour faire la supervision, il calcule le flux thermique qui doit échanger le mono-fluide dans la double-enveloppe avec le milieu réactionnel, le second régulateur pour calculer la température de consigne T_{icons} à suivre par la température du mono-fluide à l'entrée de la double-enveloppe.

Au niveau de régulateur "0" trois régulateurs esclaves sont utilisés pour contrôler la température du mono-fluide à l'entrée de la double-enveloppe. Un régulateur au niveau du crayon chauffant avec comme variable de contrôle la puissance de chauffe et deux régulateurs au niveau des deux échangeurs de chaleur et qui ont comme variable de contrôle la fraction du débit du mono-fluide à refroidir. La raison pour laquelle cette régulation est en cascade est que la dynamique du réacteur (constante de temps) est lente par rapport à la dynamique des échangeurs de chaleur et du crayon chauffant.

Le régulateur chargé de la supervision, **PFCM**, calcule un flux thermique, ce dernier est comparé aux flux thermiques limites pour choisir l'appareil adéquat. Une fois l'appareil choisi, on calcule la consigne, T_{icons} pour la température du mono-fluide à l'entrée de la double-enveloppe en utilisant le régulateur maître **PFCI**.

La température du mono-fluide à l'entrée de la double-enveloppe, T_{ede} dépend de trois différentes entrées, puisque l'algorithme du PFC est un algorithme SISO (Single Input, Single Output), trois régulateurs esclaves **PFCc**, **PFCf**, et **PFCg** et qui correspondent au crayon chauffant, échangeur de chaleur à eau froide et échangeur de chaleur à eau glycolée respectivement sont nécessaires pour contrôler la variable, T_{ede} , du niveau "0".

Une représentation du système en boucle fermée est donnée sur la Figure (IV.4).

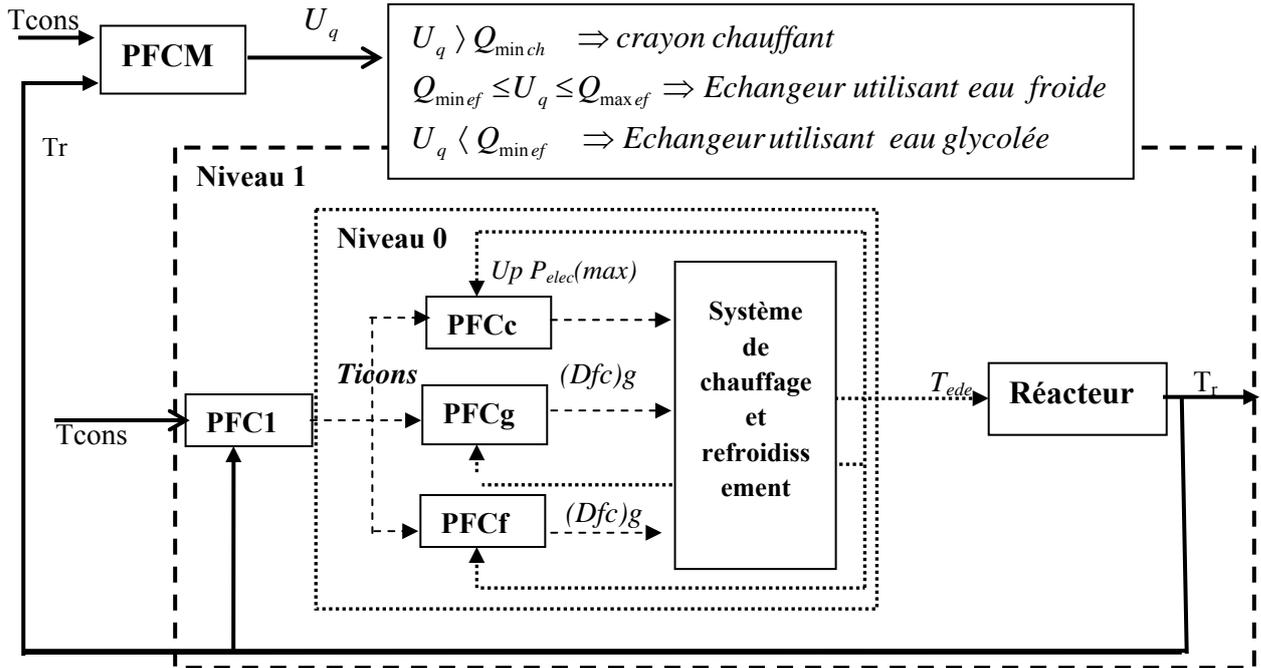


Figure IV.4 : Représentation du système en boucle fermée

IV.3.1.3. Développement des différents algorithmes de contrôle :

1. Présentation du niveau de régulation "1"

Puisque le débit du mono-fluide (F_{fc}) circulant dans la double-enveloppe est constant, la variable à manipuler sera la température à l'entrée de la double-enveloppe (T_{ede}). Un schéma représentatif est donné sur la Figure (IV.5)

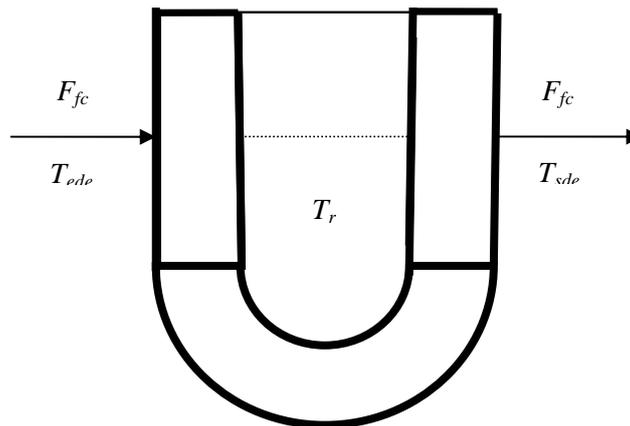


Figure IV.5 : Schéma représentatif du réacteur et de sa double-enveloppe dans un système de chauffage/refroidissement monofluide

Les bilans thermiques sur le milieu réactionnel et sur le monofluide présent dans la double-enveloppe sont donnés par les équations suivantes :

$$\rho_r C_{p_r} V_r \frac{dT_r}{dt} = U A_{r,pr} (T_{sde} - T_r) + F_c \rho_c C_{p_c} (T_c - T_r) - Q_r \quad (IV.10)$$

$$\rho_{fc} C_{p_{fc}} V_{de} \frac{dT_{sde}}{dt} = U A_{r,pr} (T_r - T_{sde}) + F_{fc} \rho_{fc} C_{p_{fc}} (T_{ede} - T_{sde}) \quad (IV.11)$$

Où :

$A_{r,pr}$: Surface d'échange entre le milieu réactionnel et la double-enveloppe (m²) ;

C_{p_c} : Chaleur spécifique de coulée (kJ.kg⁻¹.K⁻¹) ;

$C_{p_{fc}}$: Chaleur spécifique du monofluide à la sortie de la double-enveloppe (kJ.kg⁻¹.K⁻¹) ;

C_{p_r} : Chaleur spécifique du milieu réactionnel (kJ.kg⁻¹.K⁻¹) ;

F_c : Débit de coulée de réactifs (m³/s) ;

F_{fc} : Débit du monofluide circulant dans la double-enveloppe (m³/s) ;

Q_r : Vitesse de dégagement de chaleur réactionnelle (kJ/s) ;

$Q_r < 0$: Signifie que la réaction est exothermique ;

$Q_r > 0$: Signifie que la réaction est endothermique ;

T_c : Température de coulée (K) ;

T_{sde} : Température du monofluide à la sortie de la double-enveloppe (K) ;

T_{ede} : Température du monofluide à l'entrée de la double-enveloppe (K) ;

T_r : Température du milieu réactionnel (K) ;

U : Coefficient globale de transfert de chaleur entre la double-enveloppe et le milieu réactionnelle (kJ.m⁻².s⁻¹.K⁻¹) ;

V_{de} : Volume de la double-enveloppe (m³) ;

V_r : Volume du milieu réactionnel (m³) ;

ρ_c : Masse volumique de coulée (kg.m⁻³) ;

ρ_{fc} : Masse volumique du monofluide à la sortie de la double-enveloppe (kg.m⁻³) ;

ρ_r : Masse volumique du milieu réactionnel (kg.m⁻³).

Deux régulateurs au niveau de régulations "1" seront utilisés. Le premier régulateur **PFCM** est chargé de la supervision, permet de calculer le flux thermique, U_q le second régulateur maître **PFCI** est chargé pour calculer la température de consigne T_{icons} pour les régulateurs esclaves.

i) Développement de l'algorithme pour le régulateur PFCM

A partir de l'équation (IV.10), on peut écrire sous une forme plus compacte la relation suivante :

$$\tau_r \frac{dT_r}{dt} = (T_{sde} - T_r) + \frac{F_c \rho_c C_{p_c}}{U A_{r,pr}} (T_c - T_r) - \frac{1}{U A_{r,pr}} Q_r \quad (IV.12)$$

Avec : $\tau_r = \frac{\rho_r C_{p_r} V_r}{U A_{r,pr}}$, représente la constante de temps du réacteur (s).

La variable manipulée étant un flux thermique, l'équation (IV.12) peut être formulée de façon à ne faire apparaître sur le côté droit que des termes en flux thermiques selon la relation suivante :

$$\tau_r \frac{dT_r}{dt} = \frac{U_q}{U A_{r,pr}} + \frac{Q_{ech}}{U A_{r,pr}} \quad (IV.13)$$

Avec : $U_q = U A_{r,pr} (T_{sde} - T_r)$: Flux thermique échangé entre le mélange réactionnel et le monofluide présent dans la double-enveloppe ($\text{kJ} \cdot \text{s}^{-1}$).

$Q_{ech} = F_c \rho_c C p_c (T_c - T_r) - Q_r$: Représente une perturbation générée par l'introduction de la coulée de réactifs et le dégagement de chaleur par la réaction chimique ($\text{kJ} \cdot \text{s}^{-1}$).

Nous utilisons la transformée de la place de l'équation (IV.13) on obtient le modèle interne suivant :

$$T_r(p) = \left[\frac{1}{U A_{r,pr}} \right] \frac{1}{\tau_r p} (U_q(p) + Q_{ech}(p)) \quad (\text{IV.14})$$

Ou encore :

$$T_r(p) = H(p) (U_q(p) + Q_{ech}(p)) \quad (\text{IV.15})$$

Avec $H(p) = \frac{K}{p}$ représente la fonction de transfert de système et $K = \frac{1}{\tau_r U A_{r,pr}}$

représente le gain statistique. Puisque nous faisons la régulation à chaque période d'échantillonnage, t_{ech} il est nécessaire de discrétiser le modèle interne donné par l'équation (IV.15).

Le passage d'une représentation continue d'un signal à sa représentation équivalente discrète est généralement réalisé grâce à un échantillonneur bloqueur d'ordre 0 (**Bányász** et **Keveczky**, (2002), **Bouhenchir**, (2000)).

La fonction de transfert du bloqueur d'ordre 0 est la suivante :

$$B_0(p) = \frac{1 - e^{-pt_{ech}}}{p} \quad (\text{IV.16})$$

Avec : t_{ech} , représente la période d'échantillonnage de la boucle maître (s)

Le passage des équations temporelles aux équations de récurrence est fait en utilisant les transformées en z de la fonction de transfert $H'(p) = H(p) \cdot B_0(p)$.

Nous écrivons l'équation suivante :

$$Z[H(p)B_0(p)] = Z \left[\frac{K}{p} \cdot \frac{1 - e^{-pt_{ech}}}{p} \right] \quad (\text{IV.17})$$

En utilisant la transformée en z de $(1 - e^{-pt_{ech}})$, cela nous permet d'écrire

$$Z[H(p)B_0(p)] = \left(\frac{z-1}{z} \right) K Z \left[\frac{1}{p^2} \right] \quad (\text{IV.18})$$

En remplaçant la transformée en Z de $\left(\frac{1}{p^2} \right)$ par sa valeur dans l'équation (IV.18), nous obtenons la relation suivante

$$Z[H(p)B_0(p)] = \left(\frac{z-1}{z} \right) K \left[\frac{t_{ech} z}{(z-1)^2} \right] \quad (\text{IV.19})$$

Il en résulte un modèle interne discrétisé, M, de la forme suivante :

$$M = \frac{K t_{ech} z^{-1}}{1 - z^{-1}} = \frac{T_r(n)}{(U_q(n) + Q_{ech}(n))} \quad (\text{IV.20})$$

A partir de l'équation (IV.20), nous pouvons écrire l'équation récurrente suivante :

$$T_r(n) = T_r(n-1) + K t_{ech} (U_q(n-1) + Q_{ech}(n-1)) \quad (IV.21)$$

Donc il en résulte un modèle intégrateur pur et instable ($\alpha = 1$). Pour résoudre ce problème nous allons appliquer le principe de décomposition, qui permet de décomposer le modèle instable, M , en un modèle interne, M_1 , stable et un modèle de perturbation, M_1' stable aussi suivant le diagramme présenté sur la Figure (IV.6).

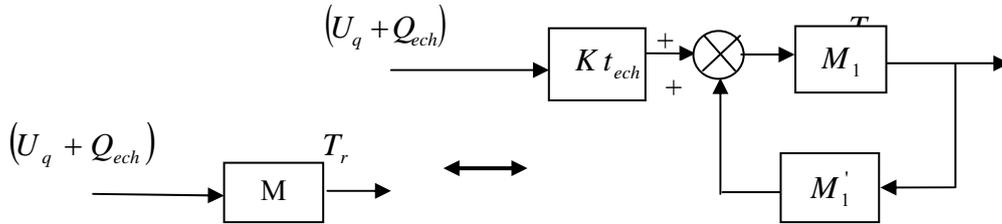


Figure IV.6 : Schéma représentatif de la décomposition du modèle interne

Le système de régulation consiste à commander un autre modèle similaire au modèle décomposé obtenu Figure (IV.6). Dans ce nouveau modèle la variable de perturbation mesurée est choisie égale à température du milieu réactionnel mesurée, T_m et non la température de sortie du modèle T_r .

Le système M_2 ; est tel que $M_2 = M_1 M_1'$

Le modèle interne stable, M_1 est choisi de telle sorte que $M_1 = \frac{z^{-1}}{1 - \alpha_D z^{-1}}$

Avec α_D : Constante de la dynamique de décomposition ($\alpha_D < 1$), donnée par l'expression suivante : $\alpha_D = e^{\frac{-t_{ech}}{\tau_r}}$

Pour trouver l'expression du modèle de perturbation, M_2 nous utilisons la procédure suivante et d'après la Figure IV.6, nous pouvons écrire :

$$T_r(n) = M_1 (K t_{ech} (U_q(n) + Q_{ech}(n)) + M_1' T_r(n)) \quad (IV.22)$$

On peut écrire l'équation (IV.22) sous d'autre forme :

$$\frac{T_r(n)}{(U_q(n) + Q_{ech}(n))} = \frac{M_1 K t_{ech}}{1 - M_1 M_1'} \quad (IV.23)$$

A partir des équations (IV.20) et (IV.23), nous pouvons écrire l'égalité suivante :

$$M = \frac{M_1 K t_{ech}}{1 - M_1 M_1'} \quad (IV.24)$$

En remplaçant, le modèle interne instable d'origine, M , et le modèle interne stable, M_1 par leurs expressions, nous pouvons trouver l'expression suivante pour le système M_1' :

$$M_1' = (1 - \alpha_D) \quad (IV.25)$$

Le modèle de perturbation M_2 , sera donc donné par l'équation suivante :

$$M_2 = \frac{(1 - \alpha_D)z^{-1}}{1 - \alpha_D z^{-1}} \quad (IV.26)$$

La sortie du modèle, $T_r(n)$, est la somme des sorties du modèle interne, $T_{r1}(n)$ et du modèle de perturbation $T_{r2}(n)$ selon l'équation suivante :

$$T_r(n) = T_{r1}(n) + T_{r2}(n) \quad (IV.27)$$

La sortie du modèle de perturbation M_1 est donnée par la relation récurrente suivante :

$$T_{r1}(n) = \alpha_D T_{r1}(n-1) + k \cdot t_{ech} (U_q(n-1) + Q_{ech}(n-1)) \quad (IV.28)$$

La sortie du modèle de perturbation M_2 est donnée par la relation récurrente suivante :

$$T_{r2}(n) = \alpha_D T_{r2}(n-1) + (1 - \alpha_D)T_{r_m}(n-1) \quad (IV.29)$$

Les caractéristiques du régulateur *PFCM* sont :

1°/ La consigne future est parfaitement connue car il s'agit d'un profil de température imposé ;

2°/ La trajectoire de référence est une trajectoire exponentielle du premier ordre ;

3°/ Deux points de coïncidences, H_1 et H_2 ;

4°/ Deux fonctions de bases sont utilisées (l'utilisation de deux fonctions de base, permet à la température du milieu réactionnel de bien suivre la consigne polynomiale du premier ordre typique du réacteur discontinu) ;

5°/ Une prédiction avec auto-compensation ;

Sur les deux points de coïncidences H_1 et H_2 , les deux lois de commande pour trouver la variable de contrôle, U_q , sont suivantes :

$$T_{ref,r}(n + H_1) - \hat{T}_r(n + H_1) = 0 \quad (IV.30)$$

$$T_{ref,r}(n + H_2) - \hat{T}_r(n + H_2) = 0 \quad (IV.31)$$

Avec :

$T_{ref,r}(n + H_1)$: Trajectoire de référence calculée au point de coïncidence H_1 ;

$T_{ref,r}(n + H_2)$: Trajectoire de référence calculée au point de coïncidence H_2 ;

$\hat{T}_r(n + H_1)$: Sortie prédite du procédé au point coïncidence H_1 ;

$\hat{T}_r(n + H_2)$: Sortie prédite du procédé au point coïncidence H_2 .

Les deux trajectoires de référence sont reliées à la consigne avec une dynamique de premier ordre suivant ces deux équations

Au point H_1 :

$$T_{ref,r}(n + H_1) = T_{cons}(n + H_1) - \lambda_r^{H_1} (T_{cons}(n) - T_{rm}(n)) \quad (IV.32)$$

Au point H_2 :

$$T_{ref,r}(n + H_2) = T_{cons}(n + H_2) - \lambda_r^{H_2} (T_{cons}(n) - T_{rm}(n)) \quad (IV.33)$$

Avec :

$T_{cons}(n)$: Température de consigne à l'instant n ;

$T_{cons}(n + H_i)$: Température de consigne future sur un horizon H_i ; où $i=1$ ou 2 ;

λ_r : Paramètre qui conditionne la rapidité du raliement de la consigne, il est donné par la relation suivante : $\lambda_r = e^{\frac{-3t_{ech}}{trbfr}}$

Où : $trbfr$: Temps de réponse en boucle fermée du réacteur (s).

En raison de l'inertie thermique de la paroi du réacteur, le système présente un retard discret R_r . Donc à l'instant n , nous ne disposons pas de la mesure $T_{rm}(n)$ mais de la mesure, $T_{rm}(n - R_r)$ réalisée à l'instant $(n - R_r)$. Donc il faut remplacer la mesure, $T_{rm}(n)$, par sa valeur avancée, $\hat{T}_{rm}(n)$ qui est prédite selon la formule suivante :

$$\hat{T}_{rm}(n) = T_{rm}(n) + T_r(n) - T_r(n - R_r) \quad (IV.34)$$

Avec :

R_r : Retard au niveau du réacteur exprimé en nombre de période d'échantillonnage.

$\hat{T}_{rm}(n)$: Mesure de température prédite à l'instant n .

Les deux trajectoires de référence seront alors initialisées à la température, $\hat{T}_{rm}(n)$ selon les équations suivantes :

Au point H_1 :

$$T_{ref,r}(n + H_1) = T_{cons}(n + H_1) - \lambda_r^{H_1} \left(T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right) \quad (IV.35)$$

Au point H_2 :

$$T_{ref,r}(n + H_2) = T_{cons}(n + H_2) - \lambda_r^{H_2} \left(T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right) \quad (IV.36)$$

La nouvelle expression pour la sortie du modèle de perturbation M_2 , en tenant compte de la correction apportée, est donnée par la relation récurrente suivante :

$$T_{r2}(n) = \alpha_D T_{r2}(n - 1) + (1 - \alpha_D) \hat{T}_{rm}(n - 1) \quad (IV.37)$$

Les sorties prédite du procédé sur chacun des deux points de coïncidence sont données par les équations suivantes :

Au point H_1 :

$$\hat{T}_r(n + H_1) = T_r(n + H_1) + \hat{T}_{rm}(n) - T_r(n) \quad (IV.38)$$

Au point H_2 :

$$\hat{T}_r(n + H_2) = T_r(n + H_2) + \hat{T}_{rm}(n) - T_r(n) \quad (IV.39)$$

Avec :

$T_r(n + H_1)$ et $T_r(n + H_2)$ sont les sorties du modèle aux instants $(n + H_1)$ et $(n + H_2)$ respectivement.

$\left[\hat{T}_{rm}(n) - T_r(n) \right]$, représente la différence Objet-Modèle (DOM), $ep(n)$, lorsque nous considérons une auto-compensation plate ou bien en d'autres termes, une prédiction sans auto-compensations.

Par analogie avec la relation (IV.28), la sortie du modèle $T_r(n + H_i)$ est la somme des sorties $T_{r1}(n + H_i)$ et $T_{r2}(n + H_i)$ à l'instant, $(n + H_i)$ selon l'équation suivante :

$$T_r(n + H_i) = T_{r1}(n + H_i) + T_{r2}(n + H_i) \quad (IV.40)$$

La sortie du modèle, M_1 à l'instant $(n + H_i)$ est composée d'une sortie lâchée, $T_{r1l}(n + H_i)$, et une sortie forcée $T_{r1f}(n + H_i)$. Ces deux sorties sont données par les expressions suivantes :

$$T_{r1l}(n + H_i) = \alpha_D^{H_i} T_{r1}(n) \quad (IV.41)$$

$$T_{r1f}(n + H_i) = K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_i})}{(1 - \alpha_D)} (U_q(n) + Q_{ech}(n)) \quad (IV.42)$$

La sortie du modèle, M_1 à l'instant $(n + H_i)$ est alors :

$$T_{r1}(n + H_i) = \alpha_D^{H_i} T_{r1}(n) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_i})}{(1 - \alpha_D)} (U_q(n) + Q_{ech}(n)) \quad (IV.43)$$

La sortie du modèle de perturbation, M_2 à l'instant $(n + H_i)$ est composée d'une sortie lâchée, $T_{r2l}(n + H_i)$ et une sortie forcée $T_{r2f}(n + H_i)$. Ces deux sorties sont données par les expressions suivantes :

$$T_{r2l}(n + H_i) = \alpha_D^{H_i} T_{r2}(n) \quad (IV.44)$$

$$T_{r2f}(n + H_i) = (1 - \alpha_D^{H_i}) \hat{T}_{rm}(n) \quad (IV.45)$$

La sortie du modèle de perturbation, M_2 à l'instant $(n + H_i)$ est alors :

$$T_{r2}(n + H_i) = \alpha_D^{H_i} T_{r2}(n) + (1 - \alpha_D^{H_i}) \hat{T}_{rm}(n) \quad (IV.46)$$

En remplaçant dans l'équation (IV.40), $T_{r1}(n + H_i)$ et $T_{r2}(n + H_i)$ par leurs expressions respectives issues des équations (IV.43) et (IV.46) et en tenant compte de l'équation (IV.27).

La sortie du modèle $T_r(n + H_i)$, à l'instant $(n + H_i)$ sera donnée selon l'équation suivante :

$$T_r(n + H_i) = \alpha_D^{H_i} T_r(n) + (1 - \alpha_D^{H_i}) \hat{T}_{rm}(n) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_i})}{(1 - \alpha_D)} (U_q(n) + Q_{ech}(n)) \quad (IV.47)$$

A partir des équations (IV.38) et (IV.39), les sorties prédites du procédé sur chacun des deux points de coïncidence seront données par les équations suivantes :

Au point H_1 :

$$\hat{T}_r(n + H_1) = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_1}) \left(T_r(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_1})}{(1 - \alpha_D)} \left(U_q(n) + Q_{ech}(n) \right) \quad (IV.48)$$

Au point H_2 :

$$\hat{T}_r(n + H_2) = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_2}) \left(T_r(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_2})}{(1 - \alpha_D)} \left(U_q(n) + Q_{ech}(n) \right) \quad (IV.49)$$

En utilisant les équations (IV.30, IV.31, IV.35, IV.37, IV.48, IV.49). Les deux lois de commande pour trouver la variable de contrôle, $U_q(n)$ aux deux points de coïncidence H_1 et H_2 , sont données par les équations suivantes :

Au point H_1 :

$$T_{cons}(n + H_1) - \lambda_r^{H_1} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_1}) \left[T_r(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_1})}{(1 - \alpha_D)} \cdot U_q(n) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_1})}{(1 - \alpha_D)} \cdot Q_{ech}(n) \quad (IV.50)$$

Au point H_2 :

$$T_{cons}(n + H_2) - \lambda_r^{H_2} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_2}) \left[T_r(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_2})}{(1 - \alpha_D)} \cdot U_q(n) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_2})}{(1 - \alpha_D)} \cdot Q_{ech}(n) \quad (IV.51)$$

Pour améliorer la précision du suivi de la consigne de la température du mélange réactionnel, nous avons mis en place deux fonctions de base pour la structuration de la variable manipulée qui sont :

$$\text{Au point } H_1 : U_q(n) = \mu_0(n) S_{B_0}(H_1) + \mu_1(n) S_{B_1}(H_1) \quad (IV.52)$$

$$\text{Au point } H_2 : U_q(n) = \mu_0(n) S_{B_0}(H_2) + \mu_1(n) S_{B_1}(H_2) \quad (IV.53)$$

Où $\mu_0(n)$ et $\mu_1(n)$ sont deux coefficients de pondération à déterminer et qui sont associés aux deux fonctions de base S_{B_0} et S_{B_1} (tout choix est possible pour les deux fonctions de base).

Comme le profil de consigne est composé d'une rampe et d'un échelon, pour cela nous avons choisi S_{B0} et S_{B1} de telle sorte que :

$S_{B0} = 1$: Une fonction échelon.

$S_{B1} = 1 + H_i$: Une fonction en rampe.

En remplaçant, $U_q(n)$ par sa valeur structurée donnée par les équations (IV.52) et (IV.53) aux deux points de coïncidence H_1 et H_2 nous obtenons les deux lois de commande aux deux points de coïncidence H_1 et H_2 suivant l'ensemble de ces deux équations :

Au point H_1 :

$$T_{cons}(n + H_1) - \lambda_r^{H_1} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_1}) \left[T_r(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_1})}{(1 - \alpha_D)} \cdot (\mu_0(n) S_{B0}(H_1) + \mu_1(n) S_{B1}(H_1)) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_1})}{(1 - \alpha_D)} \cdot Q_{ech}(n) \quad (IV.54)$$

Au point H_2 :

$$T_{cons}(n + H_2) - \lambda_r^{H_2} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_2}) \left[T_r(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_2})}{(1 - \alpha_D)} \cdot (\mu_0(n) S_{B0}(H_2) + \mu_1(n) S_{B1}(H_2)) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_2})}{(1 - \alpha_D)} \cdot Q_{ech}(n) \quad (IV.55)$$

En utilisant un auto-compensateur polynomial d'ordre 1, nous considérons que la différence objet-modèle évolue à une vitesse constante dans le temps. La prédiction de cette différence $ep(n + H_i)$ est donnée par :

$$ep(n + H_i) = ep(n) + \eta_1 H_i \quad (IV.56)$$

Avec :

η_1 : La pente prédite de l'évolution de la différence objet-modèle et qui peut être obtenue par optimisation du critère des moindres carrés suivant :

$$C = \sum_{i=1}^{H^*} (ep(n - i) + \eta_1 - ep(n))^2 \quad (IV.57)$$

La pente optimale est donnée par :

$$\eta_1 = \frac{\sum_{i=1}^{H^*} i (ep(n - i) - ep(n))}{\sum_{i=1}^{H^*} i^2} \quad (IV.58)$$

H^* : Représente l'horizon du passé de la différence objet-modèle.

En utilisant un seul point de l'horizon du passé H^* , la pente optimale sera donnée par la relation suivante :

$$\eta_1 = ep(n - 1) - ep(n) \quad (IV.59)$$

Où :

$$ep(n) = \left[\hat{T}_{rm}(n) - T_r(n) \right] \quad (IV.60)$$

$$ep(n-1) = \left[\hat{T}_{rm}(n-1) - T_r(n-1) \right]$$

En rajoutant le terme $(\eta_i H_i)$ dans les deux lois de commande pour les deux points de coïncidence H_1 et H_2 nous obtenons l'ensemble des équations suivantes :

Au point H_1 :

$$T_{cons}(n + H_1) - \lambda_r^{H_1} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_1}) \left[T_r(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] +$$

$$K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_1})}{(1 - \alpha_D)} \cdot (\mu_0(n) S_{B0}(H_1) + \mu_1(n) S_{B1}(H_1)) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_1})}{(1 - \alpha_D)} \cdot Q_{ech}(n) + \eta_1 H_1 \quad (IV.61)$$

Au point H_2 :

$$T_{cons}(n + H_2) - \lambda_r^{H_2} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_2}) \left[T_r(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] +$$

$$K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_2})}{(1 - \alpha_D)} \cdot (\mu_0(n) S_{B0}(H_2) + \mu_1(n) S_{B1}(H_2)) + K t_{ech} \frac{(1 - \alpha_D^{H_2})}{(1 - \alpha_D)} \cdot Q_{ech}(n) +$$

$$\eta_1 H_2 \quad (IV.62)$$

Nous devons donc résoudre un système d'équations à deux inconnues $\mu_0(n)$ et $\mu_1(n)$. Suivant (**Richalet**, (1993)), d'après la stratégie d'horizon glissant adaptée dans toute commande prédictive, seule la première valeur de la séquence de commande future sera appliquée c'est-à-dire :

$$U_q(n) = \mu_0(n) S_{B1}(0) + \mu_1(n) S_{B2}(0) \quad (IV.63)$$

Notons que dans le cas où il n'y a pas de réaction chimique le terme Q_{ech} , est nul.

ii) Développement de l'algorithme pour le régulateur PFC1

Le régulateur maître, *PFC1*, est utilisé pour calculer la température de consigne à suivre par la température du monofluide à l'entrée de la double-enveloppe. Pour développer son algorithme nous avons utilisé les bilans thermiques donnés par les équations (IV.10) et (IV.11).

$$\theta_r = \frac{\rho_r C p_r V_r}{U A_{r,pr}} \quad (IV.64)$$

$$\theta_s = \frac{\rho_{fc} C p_{fc} V_{de}}{U A_{r,pr}} \quad (IV.65)$$

$$K_c = \theta_r \frac{F_c \rho_c C p_c}{V_r \rho_r C p_r} \quad (\text{IV.66})$$

$$K_{Qr} = \theta_r \frac{1}{V_r \rho_r C p_r} \quad (\text{IV.67})$$

$$k = \frac{\theta_s F_{fc}}{V_{de}} \quad (\text{IV.68})$$

Cela permet de trouver le système d'équations suivant :

$$\theta_r \frac{dT_r}{dt} = (T_{sde} - T_r) + K_c (T_c - T_r) + K_{Qr} Q_r \quad (\text{IV.69})$$

$$\theta_s \frac{dT_{sde}}{dt} = (T_r - T_{sde}) + k (T_{ede} - T_{sde}) \quad (\text{IV.70})$$

Utilisons la transformée de Laplace des équations (IV.69, IV.70), nous obtenons le système suivant :

$$\theta_r p T_r(p) = T_{sde}(p) - T_r(p) + K_c (T_c(p) - T_r(p)) + K_{Qr} Q_r(p) \quad (\text{IV.71})$$

$$\theta_s p T_{sde}(p) = T_r(p) - T_{sde}(p) + k (T_{ede}(p) - T_{sde}(p)) \quad (\text{IV.72})$$

Que nous pouvons l'écrire sous d'autres formes :

$$(\theta_r p + K_c + 1)T_r(p) = T_{sde}(p) + K_c T_c(p) + K_{Qr} Q_r(p) \quad (\text{IV.73})$$

$$(\theta_s p + k + 1)T_{sde}(p) = T_r(p) + k T_{ede}(p) \quad (\text{IV.74})$$

A partir des équations (IV.73) et (IV.74) nous pouvons écrire :

$$\left[(\theta_r p + K_c + 1) \cdot (\theta_s p + k + 1) - 1 \right] \cdot T_r(p) = k T_{ede}(p) + K_c (\theta_s p + k + 1) T_c(p) + K_{Qr} (\theta_s p + k + 1) Q_r(p) \quad (\text{IV.75})$$

En introduisant les variables suivantes :

$$S1 = 1 + K_c \frac{k+1}{k} + \left[\left(\frac{k+1}{k} \right) \theta_r + \left(\frac{K_c+1}{k} \right) \theta_s \right] p + \frac{\theta_r \theta_s}{k} p^2 \quad (\text{IV.76})$$

$$S2 = \frac{\theta_s}{k+1} p + 1 \quad (\text{IV.77})$$

Cela nous permet d'écrire :

$$T_r(p) = \frac{1}{S1} T_{ede}(p) + \frac{\frac{k+1}{k} \cdot K_c S2}{S1} T_c(p) + \frac{\frac{k+1}{k} \cdot K_{Qr} S2}{S1} Q_r(p) \quad (IV.78)$$

Selon (**Baltussen**, (1995), **Solente**, (1995)) en peut écrire l'équation simplifiée du modèle interne :

$$\tau_r \frac{dT_r}{dt} = T_{ede} - T_r + K_c T_c + K_{Qr} Q_r \quad (IV.79)$$

Où : τ_r : Constante de temps du réacteur (s).

D'où le modèle interne de représentation pour le régulateur **PFC1** :

$$T_r(p) = \frac{K_r}{1 + \tau_r p} T_{ede}(p) + \frac{K_c}{1 + \tau_r p} T_c(p) + \frac{K_{Qr}}{1 + \tau_r p} Q_r(p) \quad (IV.80)$$

Avec : K_r : Gain statique du réacteur qui est égal à 1 dans l'équation (IV.79) ;

K_c : Gain statique lié à la coulée des réactifs ;

K_{Qr} : Gain statique lié au dégagement de la chaleur.

NB : Nous allons substituer par la suite la variable T_{ede} par la variable T_{icons} qui représente la consigne à suivre par la température du monofluide à l'entrée de la double-enveloppe, consigne calculée par le régulateur maître :

Le modèle interne est le suivant :

$$T_r(p) = \frac{K_r}{1 + \tau_r p} T_{icons}(p) + \frac{K_c}{1 + \tau_r p} T_c(p) + \frac{K_{Qr}}{1 + \tau_r p} Q_r(p) \quad (IV.81)$$

A partir de l'équation (IV.81), nous pouvons distinguer trois fonctions de transfert qui sont les suivantes :

$$H_e(p) = \frac{k_r}{(1 + \tau_r p)} = \frac{T_r(p)}{T_{icons}(p)} \quad (IV.82)$$

$$H_c(p) = \frac{K_c}{(1 + \tau_r p)} = \frac{T_r(p)}{T_c(p)} \quad (IV.83)$$

$$H_{Qr}(p) = \frac{K_{Qr}}{(1 + \tau_r p)} = \frac{T_r(p)}{Q_r(p)} \quad (IV.84)$$

Le passage d'une représentation continue d'un signal à sa représentation équivalente discrète est généralement réalisé grâce à l'échantillonneur bloqueur d'ordre 0 donné par l'équation (IV.16).

Pour la fonction de transfert, $H_e(p)$ nous écrivons l'équation suivante :

$$Z[H_e(p)B_0(p)] = Z\left[\frac{k_r}{(1 + \tau_r p)} \frac{1 - e^{-pT_{ech}}}{p}\right] \quad (IV.85)$$

En utilisant la transformation en z de $(1 - e^{-p t_{ech}})$, et après développement nous pouvons écrire :

$$Z[H_e(p)B_0(p)] = k_r \left(\frac{z-1}{z} \right) \left[Z\left(\frac{1}{p}\right) - Z\left(\frac{\tau_r}{(1+\tau_r p)}\right) \right] \quad (IV.86)$$

En utilisant la transformée en z de $\left(\frac{1}{p}\right)$ et $\left(\frac{\tau_r}{(1+\tau_r p)}\right)$ nous obtenons l'équation suivante :

$$Z[H_e(p)B_0(p)] = k_r \left(\frac{z-1}{z} \right) \left[\left(\frac{z}{z-1} \right) - \left(\frac{z}{(z-\alpha_r)} \right) \right] \quad (IV.87)$$

Nous obtenons la fonction de transfert discrétisée M_e suivante :

$$M_e = k_r \frac{(1-\alpha_r)z^{-1}}{1-\alpha_r z^{-1}} \quad (IV.88)$$

Nous faisons la même procédure de calcul avec les deux fonctions de transfert $H_c(p)$ et $H_{Qr}(p)$, nous obtenons l'ensemble suivant :

$$M_c = K_c \frac{(1-\alpha_r)z^{-1}}{1-\alpha_r z^{-1}} \quad (IV.89)$$

$$M_{Qr} = K_{Qr} \frac{(1-\alpha_r)z^{-1}}{1-\alpha_r z^{-1}} \quad (IV.90)$$

Avec : M_c et M_{Qr} les deux fonctions de transfert discrètes. Nous obtenons donc le modèle interne discret suivant :

$$T_r(n) = k_r \frac{(1-\alpha_r)z^{-1}}{1-\alpha_r z^{-1}} T_{icons}(n) + K_c \frac{(1-\alpha_r)z^{-1}}{1-\alpha_r z^{-1}} T_c(n) + K_{Qr} \frac{(1-\alpha_r)z^{-1}}{1-\alpha_r z^{-1}} Q_r(n) \quad (IV.91)$$

Que nous pouvons écrire sous forme d'une équation récurrente :

$$T_r(n) = \alpha_r T_r(n-1) + k_r (1-\alpha_r) T_{icons}(n-1) + K_c (1-\alpha_r) T_c(n-1) + K_{Qr} (1-\alpha_r) Q_r(n-1) \quad (IV.92)$$

Avec :

$$\alpha_r = \exp\left(-\frac{t_{ech}}{\tau_r}\right), \text{ une constante qui caractérise la dynamique du réacteur.}$$

Les caractéristiques du régulateur *PCFI* sont les suivantes :

- consigne future parfaitement connue ;
- trajectoire des références exponentielle d'ordre 1 ;
- deux points de coïncidence H_1 et H_2 ;
- deux fonctions de base : une en échelon et une en rampe.

Aux deux points de coïncidence H_1 et H_2 les deux lois de commande pour trouver la variable de contrôle, T_{icons} sont suivantes :

$$T_{ref,r}(n+H_1) - \hat{T}_r(n+H_1) = 0 \quad (IV.93)$$

$$T_{ref,r}(n+H_2) - \hat{T}_r(n+H_2) = 0 \quad (IV.94)$$

Comme c'était le cas pour le régulateur *PCFM*, le système présente un retard, R_r donc à l'instant n , nous ne disposons pas de la mesure $T_{rm}(n)$, mais de la mesure $T_{rm}(n - R_r)$, réalisée à l'instant $(n - R_r)$. Donc il faut remplacer dans la formule de la trajectoire de référence, la mesure $T_{rm}(n)$, par sa valeur avancée, $\hat{T}_{rm}(n)$ donnée par l'équation (IV.34).

Les deux trajectoires de référence initialisées à la température, $\hat{T}_{rm}(n)$ sont données par les équations (IV.35) et (IV.36) aux deux points de coïncidence H_1 et H_2 respectivement.

Les sorties prédites du procédé sur chacun des deux points de coïncidence sont données par les équations (IV.38) et (IV.39) aux deux points de coïncidence H_1 et H_2 respectivement.

La sortie du modèle interne à l'instant $(n + H_i)$, $T_r(n + H_i)$ est composée d'une sortie lâchée, $T_{rl}(n + H_i)$ et une sortie forcée $T_{rf}(n + H_i)$. Ces deux sorties sont données par les expressions suivantes :

$$T_{rl}(n + H_i) = \alpha_r^{H_i} T_r(n) \quad (IV.95)$$

$$T_{rf}(n + H_i) = k_r (1 - \alpha_r^{H_i}) T_{icons}(n) + K_c (1 - \alpha_r^{H_i}) T_c(n) + K_{Qr} (1 - \alpha_r^{H_i}) Q_r(n) \quad (IV.96)$$

La sortie du modèle interne à l'instant $(n + H_i)$, $T_r(n + H_i)$ est alors :

$$T_r(n + H_i) = \alpha_r^{H_i} T_r(n) + k_r (1 - \alpha_r^{H_i}) T_{icons}(n) + K_c (1 - \alpha_r^{H_i}) T_c(n) + K_{Qr} (1 - \alpha_r^{H_i}) Q_r(n) \quad (IV.97)$$

A partir des équations (IV.38), (IV.39) et (IV.97) les sorties prédites du procédé sur chacun des deux points de coïncidence sont données par les équations suivantes :

Au point H_1 :

$$\hat{T}_r(n + H_1) = (\alpha_r^{H_1} - 1) T_r(n) + \hat{T}_{rm}(n) + k_r (1 - \alpha_r^{H_1}) T_{icons}(n) + K_c (1 - \alpha_r^{H_1}) T_c(n) + K_{Qr} (1 - \alpha_r^{H_1}) Q_r(n) \quad (IV.98)$$

Au point H_2 :

$$\hat{T}_r(n + H_2) = (\alpha_r^{H_2} - 1) T_r(n) + \hat{T}_{rm}(n) + k_r (1 - \alpha_r^{H_2}) T_{icons}(n) + K_c (1 - \alpha_r^{H_2}) T_c(n) + K_{Qr} (1 - \alpha_r^{H_2}) Q_r(n) \quad (IV.99)$$

En utilisant les équations (IV.38, IV.39, IV.93, IV.94, IV.98 et IV.99), les deux lois de commande pour trouver la variable de contrôle, T_{icons} , aux deux points de coïncidence H_1 et H_2 sont données par les équations suivantes :

Au point H_1 :

$$T_{cons}(n + H_1) - \lambda_r^{H_1} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_1})T_r(n) + k_r(1 - \alpha_r^{H_1}). \quad (IV.100)$$

$$T_{icons}(n) + K_c(1 - \alpha_r^{H_1})T_c(n) + K_{Qr}(1 - \alpha_r^{H_1})Q_r(n)$$

Au point H_2 :

$$T_{cons}(n + H_2) - \lambda_r^{H_2} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_2})T_r(n) + k_r(1 - \alpha_r^{H_2}). \quad (IV.101)$$

$$T_{icons}(n) + K_c(1 - \alpha_r^{H_2})T_c(n) + K_{Qr}(1 - \alpha_r^{H_2})Q_r(n)$$

Les deux fonctions de base pour la structuration de la variable manipulée qui sont :

Au point H_1 :

$$T_{icons}(n) = \mu_0(n)S_{B0}(H_1) + \mu_1(n)S_{B1}(H_1) \quad (IV.102)$$

Au point H_2 :

$$T_{icons}(n) = \mu_0(n)S_{B0}(H_2) + \mu_1(n)S_{B1}(H_2) \quad (IV.103)$$

Le profil de consigne est composé d'une rampe et un échelon, pour cela nous avons choisi S_{B0} et S_{B1} de telle sorte que :

$S_{B0} = 1$ Une fonction échelon

$S_{B1} = 1 + H_i$ Une fonction en rampe.

La loi de commande permettant de calculer la température $T_{icons}(n)$ pour les deux points de coïncidence H_1 et H_2 sera caractérisée par les deux équations suivantes :

Au point H_1 :

$$T_{cons}(n + H_1) - \lambda_r^{H_1} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_1})T_r(n) + k_r(1 - \alpha_r^{H_1}). \quad (IV.104)$$

$$[\mu_0(n)S_{B0}(H_1) + \mu_1(n)S_{B1}(H_1)] + K_c(1 - \alpha_r^{H_1})T_c(n) + K_{Qr}(1 - \alpha_r^{H_1})Q_r(n)$$

Au point H_2 :

$$T_{cons}(n + H_2) - \lambda_r^{H_2} \left[T_{cons}(n) - \hat{T}_{rm}(n) \right] = \hat{T}_{rm}(n) - (1 - \alpha_D^{H_2})T_r(n) + k_r(1 - \alpha_r^{H_2}). \quad (IV.105)$$

$$[\mu_0(n)S_{B0}(H_2) + \mu_1(n)S_{B1}(H_2)] + K_c(1 - \alpha_r^{H_2})T_c(n) + K_{Qr}(1 - \alpha_r^{H_2})Q_r(n)$$

Nous devons résoudre un système de deux équations à deux inconnues μ_0 et μ_1 et seule la première valeur de la variable manipulée sera appliquée donc :

$$T_{icons}(n) = \mu_0(n)S_{B0}(0) + \mu_1(n)S_{B1}(0) \quad (IV.106)$$

Dans le cas où il n'y a pas de réaction chimique les termes T_c et Q_r sont nulles.

2. Présentation du niveau de régulateur "0"

Trois régulateurs esclaves (*PFC*) sont utilisés pour contrôler la température du mono-fluide à l'entrée de la double-enveloppe (T_{ede}).

Un régulateur au niveau du crayon chauffant PFC_c qui a comme variable de commande la puissance de chauffe et deux autres régulateurs PFC_f et PFC_g au niveau des échangeurs de chaleur à eau froide et à eau glycolée respectivement et qui ont comme variable de commande la fraction du débit du mono-fluide à refroidir dans les échangeurs de chaleur.

i) développement du régulateur PFC_c au niveau du crayon chauffant

Dans le cas de l'utilisation du crayon chauffant, la variable manipulée est la puissance de chauffe qui varie entre 0 et 2000 watts. L'évolution de la température de sortie du crayon chauffant est donnée par le bilan thermique suivant :

$$\rho_{ch} C_{p_{ch}} V_{ch} \frac{d(T_{ch} - T_{ch}^E)}{dt} = \rho_{ch} C_{p_{ch}} F_{fc} (T_{ch}^E - T_{ch}) + P_{elec} \quad (IV.107)$$

Cette équation peut être écrite sous une autre forme pour faire apparaître la variable de commande de chauffe :

$$\left(\frac{V_{ch}}{F_{fc}} \right) \frac{d}{dt} (T_{ch} - T_{ch}^E) = (T_{ch}^E - T_{ch}) + \frac{P_{elec}(\max)}{\rho_{ch} C_{p_{ch}} V_{ch}} \cdot U_p, \quad 0 \leq U_p \leq 1 \quad (IV.108)$$

$C_{p_{ch}}$: Chaleur spécifique du mono-fluide dans le crayon chauffant (kJ/kg.K) ;

F_{fc} : Débit du mono-fluide à l'entrée du crayon chauffant (m³/s) ;

P_{elec} : Puissance de chauffe appliquée par le crayon chauffant (kJ/s) ;

$P_{elec}(\max)$: Puissance électrique maximale du crayon chauffant (kJ/s) ;

T_{ch} : Température du mono-fluide à la sortie du crayon chauffant (K) ;

T_{ch}^E : Température du mono-fluide à l'entrée du crayon chauffant (K) ;

U_p : Fraction de la puissance de chauffe $0 \leq U_p \leq 1$;

V_{ch} : Volume occupé par le mono-fluide dans le crayon chauffant (m³) ;

ρ_{ch} : Masse volumique du mono-fluide (kg/m³).

On utilise la transformée de Laplace de l'équation (IV.108), cela donne :

$$T_{ch}(p) = T_{ch}^E(p) + \frac{G_{ch}}{1 + \tau_{ch} p} \cdot U_p(p) \quad (IV.109)$$

Avec :

$\tau_{ch} = \frac{V_{ch}}{F_{fc}}$: Constante de temps du crayon chauffant (s) ;

$G_{ch} = \frac{P_{elec}(\max)}{\rho_{ch} C_{p_{ch}} F_{fc}}$: Gain statique du crayon chauffant (°C).

A partir de l'équation (IV.109), nous pouvons séparer le modèle du crayon chauffant en deux modèles : un modèle interne M_{ch} et un modèle de perturbation $M_{ch\delta}$.

Le modèle interne M_{ch} est caractérisé par l'équation suivante :

$$T_{ch}(p) = G_{ch} \frac{1}{1 + p \tau_{ch}} U_p(p) \quad (IV.110)$$

Où T_{ch} et $U_p(p)$ représentent la sortie et l'entrée du modèle interne M_{ch} respectivement.

Le modèle de perturbation $M_{ch\delta}$ a un gain unitaire et il est présenté par l'équation suivante :

$$T_{ch\delta}(p) = T_{ch}^E(p) \quad (IV.111)$$

Donc nous avons pris la température du monofluide à l'entrée du crayon chauffant T_{ch}^E comme une variable de perturbation en retour.

Le diagramme bloc de fonctionnement du crayon chauffant est représenté sur la Figure IV.7.

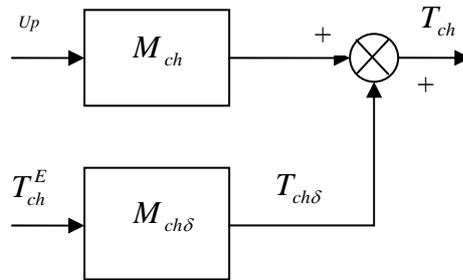


Figure IV.7 : Diagramme bloc de fonctionnement du crayon chauffant

Nous suivrons les mêmes étapes de transformation utilisées pour l'obtention du modèle discrétisé dans le cas du régulateur $PCF1$, cela nous permet de trouver les deux équations récurrentes suivantes :

Pour le modèle interne M_{ch}

$$T_{ch}(n) = \alpha_{ch} T_{ch}(n-1) + G_{ch} (1 - \alpha_{ch}) U_p(n-1) \quad (IV.112)$$

Pour le modèle de perturbation $M_{ch\delta}$

$$T_{ch\delta}(n) = T_{ch}^E(n) \quad (IV.113)$$

Avec $\alpha_{ch} = e^{-\left(\frac{t_{ech\delta}}{\tau_{ch}}\right)}$: constante qui caractérise le fonctionnement dynamique du crayon chauffant.

$t_{ech\delta}$: Période d'échantillonnage de la boucle esclave (s).

Les caractéristiques du régulateur PCF_c sont :

- la consigne est considérée comme constante dans le futur puisqu'elle n'est pas connue d'avance ;

- la trajectoire de référence est une exponentielle de premier ordre ;
- un seul point de coïncidence H_{ch} ;
- une seule fonction de base en échelon est utilisée ;
- prédiction sans auto-compensation.

La température de sortie du crayon chauffant doit suivre la consigne T_{icons} calculée au niveau "1". Mais il n'est pas important de la suivre avec beaucoup de précision. C'est pour cela qu'une seule fonction de base est utilisée.

La loi de commande pour trouver la variable de contrôle, $U_p(n)$ est donnée par l'équation suivante :

$$T_{ref, ch}(n + H_{ch}) - \hat{T}_{ch}(n + H_{ch}) = 0 \quad (IV.114)$$

Avec :

$T_{ref, ch}(n + H_{ch})$: Trajectoire de référence pour la sortie du crayon chauffant calculée au point de coïncidence H_{ch} ;

$\hat{T}_{ch}(n + H_{ch})$: Sortie prédite du crayon chauffant au point de coïncidence H_{ch} .

La trajectoire de référence est donnée par l'équation suivante :

$$T_{ref, ch}(n + H_{ch}) = T_{icons}(n) - \lambda_{ch}^{H_{ch}} (T_{icons}(n) - T_{chm}(n)) \quad (IV.115)$$

Avec : $T_{icons}(n)$: Consigne à suivre à l'instant n ;

$T_{chm}(n)$: Température mesurée à la sortie du crayon chauffant (°C)

Dans l'expression de la trajectoire de référence nous avons tenu compte du fait que la consigne future est constante.

λ_{ch} : Paramètre qui conditionne la rapidité du ralliement de la consigne par la sortie du crayon chauffant, il est donné par la relation suivante :

$$\lambda_{ch} = e^{\frac{-3t_{ech}}{trbf_{ch}}} \quad (IV.116)$$

Où :

$trbf_{ch}$: Représente le temps de réponse en boucle fermée du crayon chauffant (s).

Dans le processus de chauffage, nous pouvons distinguer deux retards. Un retard entre l'application de la puissance de la chauffe (U_p) et la sortie du modèle interne (T_{ch}) et un retard entre l'endroit de mesure de la température d'entrée du crayon chauffant (T_{ch}^E) et l'entrée réelle du crayon chauffant caractérisée par la sortie du modèle de perturbation ($T_{ch\delta}$).

Nous supposons que le retard entre U_p et T_{ch} est égal au retard entre T_{ch}^E et $T_{ch\delta}$.

A l'instant n nous ne disposons pas de la mesure $T_{chm}(n)$ mais de la mesure $T_{chm}(n - R_{ch})$ donc il faut remplacer $T_{chm}(n)$, par sa valeur avancée, $\hat{T}_{chm}(n)$ qui est prédite selon la formule suivante :

$$\hat{T}_{chm}(n) = T_{chm}(n) + T_{ch}(n) - T_{ch}(n - R_{ch}) + T_{ch\delta}(n) - T_{ch\delta}(n - R_{ch}) \quad (IV.117)$$

Où :

R_{ch} : Représente le retard discret au niveau du crayon chauffant.

La trajectoire de référence sera donc donnée par l'équation suivante :

$$T_{ref, ch}(n + H_{ch}) = T_{icons}(n) - \lambda_{ch}^{H_{ch}} (T_{icons}(n) - \hat{T}_{chm}(n)) \quad (IV.118)$$

La sortie prédite du procédé est donnée par l'équation suivante :

$$\hat{T}_{ch}(n + H_{ch}) = \hat{T}_{chm}(n) + T_{ch}(n + H_{ch}) - T_{ch}(n) + T_{ch\delta}(n + H_{ch}) - T_{ch\delta}(n) \quad (IV.119)$$

La sortie du modèle interne à l'instant $(n + H_{ch})$, $T_{ch}(n + H_{ch})$ au point de coïncidence H_{ch} est composée d'une sortie lâchée $T_{chl}(n + H_{ch})$ et une sortie forcée $T_{chf}(n + H_{ch})$ qui sont données par les équations suivantes :

$$T_{chl}(n + H_{ch}) = \alpha_{ch}^{H_{ch}} T_{ch}(n) \quad (IV.120)$$

$$T_{chf}(n + H_{ch}) = G_{ch} (1 - \alpha_{ch}^{H_{ch}}) U_p(n) \quad (IV.121)$$

La sortie prédite du procédé sera donc donnée par l'équation suivante :

$$\begin{aligned} \hat{T}_{ch}(n + H_{ch}) &= \hat{T}_{chm}(n) + (\alpha_{ch}^{H_{ch}} - 1) T_{ch}(n) + G_{ch} (1 - \alpha_{ch}^{H_{ch}}) U_p(n) + \\ &T_{ch}^E(n + H_{ch}) - T_{ch}^E(n) \end{aligned} \quad (IV.122)$$

A partir des équations (IV.115, IV.119 et IV.123) l'équation de la loi de commande sera la suivante :

$$\begin{aligned} T_{icons}(n) - \lambda_{ch}^{H_{ch}} [T_{icons}(n) - \hat{T}_{chm}(n)] &= \hat{T}_{chm}(n) + (\alpha_{ch}^{H_{ch}} - 1) T_{ch}(n) + G_{ch} (1 - \alpha_{ch}^{H_{ch}}) \\ U_p(n) + T_{ch}^E(n + H_{ch}) - T_{ch}^E(n) \end{aligned} \quad (IV.123)$$

Nous obtenons l'expression de l'évolution de la fraction de puissance de chauffe :

$$U_p(n) = \frac{1}{G_{ch} (1 - \alpha_{ch}^{H_{ch}})} \left[(1 - \lambda_{ch}^{H_{ch}}) (T_{icons}(n) - \hat{T}_{chm}(n)) + (1 - \alpha_{ch}^{H_{ch}}) T_{ch}(n) - \Delta T_{ch}^E(n + H_{ch}) \right] \quad (IV.124)$$

Puisque la sortie $U_p(n)$ est un rapport, elle sera bornée entre 0 et 1.

$\Delta T_{ch}^E(n + H_{ch}) = T_{ch}^E(n + H_{ch}) - T_{ch}^E(n)$, représente la prédiction de la perturbation sur l'horizon de prédiction H_{ch} .

Suivant (Ernst, (1996)), pour éviter la prédiction de T_{ch}^E , l'horizon de coïncidence H_{ch} peut être pris égale au retard R_{ch} . Dans ce cas le terme de prédiction sur la perturbation devient.

$$\Delta T_{ch}^E(n + H_{ch}) = H_{ch} (T_{ch}^E(n) - T_{ch}^E(n - 1)) \quad (IV.125)$$

ii) Développement des régulateurs PCF_f et PCF_g correspondants aux échangeurs de chaleur à eau froide et à glycolée respectivement

Dans le cas de l'utilisation des échangeurs de chaleur, la variable de contrôle est la fraction du débit du mono-fluide qui doit passer dans l'un des échangeurs de chaleur et qui correspond à un débit variant entre 0 et 1000 l/h.

Pour calculer cette fraction du débit, on considère que l'échangeur de chaleur à plaques est formé par deux compartiments, un chaud et un froid, qui échangent de la chaleur à travers une paroi métallique, comme le montre la Figure (IV.8).

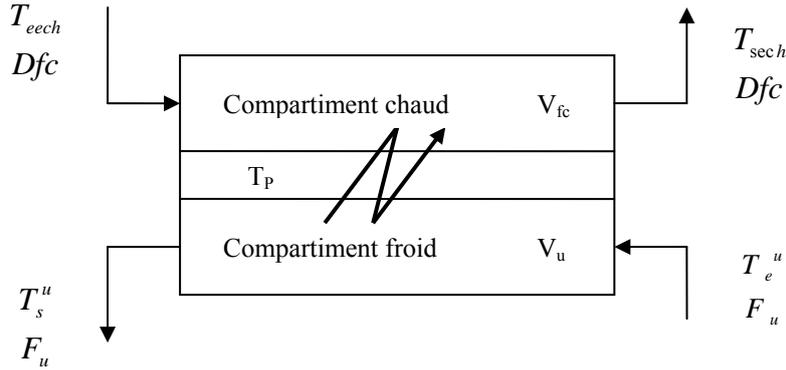


Figure IV.8 : Modélisation de l'échangeur de chaleur

Pour la modélisation on considère deux bacs de volume V_{fc} et V_u de température uniforme (respectivement T_{s^ch} et T_s^u) avec un coefficient global d'échange U_{ech} entre les deux bacs et une surface d'échange A_{ech} . Le bilan enthalpique sur les deux compartiments et la paroi, est représenté par l'ensemble des équations suivantes :

Bilan thermique au niveau du compartiment chaud (mono-fluide) :

$$\rho_{fc} Cp_{fc} V_{fc} \frac{dT_{s^ch}}{dt} = D_{fc} \rho_{fc} Cp_{fc} (T_{eech} - T_{s^ch}) + U_{ech}^{fc} A_{ech}^{fc} (T_p - T_{s^ch}) \quad (IV.126)$$

Bilan thermique sur la plaque :

$$\rho_p Cp_p V_p \frac{dT_p}{dt} = U_{ech}^{fc} A_{ech}^{fc} (T_{s^ch} - T_p) + U_{ech}^u A_{ech}^u (T_s^u - T_p) \quad (IV.127)$$

Bilan thermique au niveau du compartiment froid (utilitaire froid) :

$$\rho_u Cp_u V_u \frac{dT_s^u}{dt} = F_u \rho_u Cp_u (T_e^u - T_s^u) + U_{ech}^u A_{ech}^u (T_p - T_s^u) \quad (IV.128)$$

Avec :

A_{ech}^{fc} : Surface d'échange entre le mono-fluide et la paroi de la plaque (m^2) ;

A_{ech}^u : Surface d'échange entre l'utilitaire froid et la paroi de la plaque (m^2) ;

Cp_{fc} : Chaleur spécifique du mono-fluide ($kJ \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$) ;

Cp_p : Chaleur spécifique de la paroi de la plaque ($\text{kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$) ;

Cp_u : Chaleur spécifique de l'utilitaire froid ($\text{kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$) ;

D_{fc} : Débit volumique du mono-fluide ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$) ;

F_u : Débit volumique de l'utilitaire froid ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$) ;

T_{ech} : Température du mono-fluide à l'entrée de l'échangeur (K) ;

T_{sech} : Température du mono-fluide à la sortie de l'échangeur (K) ;

T_p : Température de la paroi de la plaque (K) ;

T_e^u : Température de l'utilitaire froid à l'entrée de l'échangeur (K) ;

T_s^u : Température de l'utilitaire froid à la sortie de l'échangeur (K) ;

U_{ech}^{fc} : Coefficient global de transfert de chaleur entre le mono-fluide et la paroi de la plaque ($\text{kJ.m}^{-2}.\text{s}^{-1}.\text{K}^{-1}$) ;

U_{ech}^u : Coefficient global de transfert de chaleur entre l'utilitaire froid et la paroi de la plaque ($\text{kJ.m}^{-2}.\text{s}^{-1}.\text{K}^{-1}$) ;

V_{fc} : Volume du compartiment chaud (m^3) ;

V_p : Volume de la paroi de la plaque (m^3) ;

V_u : Volume du compartiment froid (m^3) ;

ρ_{fc} : Masse volumique du mono-fluide (kg/m^3) ;

ρ_p : Masse volumique de la paroi de la plaque (kg/m^3) ;

ρ_u : Masse volumique de l'utilitaire froid (kg/m^3) ;

Introduisons les variables suivantes :

$$\theta_{fc} = \frac{D_{fc}}{V_{fc}} ; \quad K_{fc} = \frac{U_{ech}^{fc} A_{ech}^{fc}}{\rho_{fc} Cp_{fc} V_{fc}} \quad (\text{IV.129})$$

$$\alpha_p = \frac{U_{ech}^{fc} A_{ech}^{fc}}{\rho_p Cp_p V_p} ; \quad g_p = \frac{U_{ech}^u A_{ech}^u}{U_{ech}^{fc} A_{ech}^{fc}} \alpha_p \quad (\text{IV.130})$$

$$\theta_u = \frac{F_u}{V_u} ; \quad K_u = \frac{U_{ech}^u A_{ech}^u}{\rho_u Cp_u V_u} \quad (\text{IV.131})$$

Nous obtenons le système d'équations suivant :

$$\frac{dT_{sech}}{dt} = \theta_{fc} (T_{ech} - T_{sech}) + K_{fc} (T_p - T_{sech}) \quad (\text{IV.132})$$

$$\frac{dT_p}{dt} = \alpha_p (T_{sech} - T_p) + g_p (T_s^u - T_p) \quad (\text{IV.133})$$

$$\frac{dT_s^u}{dt} = \theta_u (T_e^u - T_s^u) + K_u (T_p - T_s^u) \quad (\text{IV.134})$$

En utilisant la transformée de Laplace de chaque équation, nous trouvons :

$$(p + \theta_{fc} + K_{fc})T_{sech}(p) = \theta_{fc} T_{eech}(p) + K_{fc} T_p(p) \quad (IV.135)$$

$$(p + \alpha_p + g_p)T_p(p) = \alpha_p T_{sech}(p) + g_p T_s^u(p) \quad (IV.136)$$

$$(p + \theta_u + K_u)T_s^u(p) = \theta_u T_e^u(p) + K_u T_p(p) \quad (IV.137)$$

D'après (Solente, (1995)), T_{sech} résulte en régime permanent d'une relation de convexité entre T_{eech} et T_e^u .

Donc en régime permanent ($p = 0$) nous pouvons écrire :

$$T_{sech} = \lambda_1 T_{eech} + (1 - \lambda_1)T_p \quad (IV.138)$$

$$T_p = \lambda_2 T_{sech} + (1 - \lambda_2)T_s^u \quad (IV.139)$$

$$T_s^u = \lambda_3 T_e^u + (1 - \lambda_3)T_p \quad (IV.140)$$

Avec :

$$\lambda_1 = \frac{\theta_{fc}}{\theta_{fc} + K_{fc}} ; \lambda_2 = \frac{\alpha_p}{\alpha_p + g_p} ; \lambda_3 = \frac{\theta_u}{\theta_u + K_u}$$

En remplaçant, T_s^u par sa valeur dans l'équation (IV.139) et ensuite T_p par sa nouvelle valeur dans (IV.138), nous finissons par trouver la relation suivante qui relie T_{sech} à T_{eech} et T_e^u :

$$T_{sech} = \left[\frac{\lambda_1 (\lambda_3 + \lambda_2 - \lambda_2 \lambda_3)}{\lambda_3 - \lambda_2 \lambda_3 + \lambda_1 \lambda_2} \right] T_{eech} + \left[1 - \frac{\lambda_1 (\lambda_3 + \lambda_2 - \lambda_2 \lambda_3)}{\lambda_3 - \lambda_2 \lambda_3 + \lambda_1 \lambda_2} \right] T_e^u \quad (IV.141)$$

$$\text{Posons } \lambda = \left(\frac{\lambda_1 (\lambda_3 + \lambda_2 - \lambda_2 \lambda_3)}{\lambda_3 - \lambda_2 \lambda_3 + \lambda_1 \lambda_2} \right)$$

Il en résulte l'équation suivante :

$$T_{sech} = \lambda T_{eech} + (1 - \lambda)T_e^u \quad (IV.142)$$

Le coefficient λ n'est pas constant et il est fonction de la variable de contrôle D_{fc} , nous obtenons alors la relation de convexité suivante :

$$T_{sech} = \lambda(D_{fc})T_{eech} + (1 - \lambda(D_{fc}))T_e^u \quad (IV.143)$$

Avec :

$$\text{Si } D_{fc} \rightarrow 0 \Rightarrow \theta_{fc} \rightarrow 0 \Rightarrow \lambda_1 \rightarrow 0 \Rightarrow \lambda \rightarrow 0 \Rightarrow T_{sech} = T_e^u$$

$$\text{Si } D_{fc} \rightarrow \infty \Rightarrow \theta_{fc} \rightarrow \infty \Rightarrow \lambda_1 \rightarrow 1 \Rightarrow \lambda \rightarrow 1 \Rightarrow T_{sech} = T_{eech}$$

Solente, (1995) propose la relation suivante entre λ et le débit D_{fc} :

$$\lambda = \frac{\lambda^*}{\lambda^* + C}, \text{ avec } \lambda^* = \frac{D_{fc}}{F_{fc}}$$

F_{fc} : Débit maximal du mono-fluide (m^3/s)

C : Est une constante à déterminer.

$$\text{Si } D_{fc} \rightarrow 0 \Rightarrow \lambda = \lambda_{\min} = 0$$

$$\text{Si } D_{fc} \rightarrow F_{fc} \Rightarrow \lambda = \lambda_{\max} = \frac{1}{1 + C}$$

Donc en régime dynamique nous proposons le modèle suivant qui est équivalent à celui déterminé par (**Solente**, (1995), **Ernst**, (1996)) :

$$T_{\text{sech}}(p) = \frac{\lambda(D_{fc})}{(1 + \tau_{\text{ech}}(D_{fc})p)} T_{\text{eech}}(p) + \frac{(1 - \lambda(D_{fc}))}{(1 + \tau_{\text{ech}}(D_{fc})p)} T_u^e(p) \quad (\text{IV.144})$$

Où :

$\tau_{\text{ech}}(D_{fc})$: Constante de temps pour l'échangeur de chaleur (s).

$\tau_{\text{ech}}(D_{fc})$, est reliée au débit D_{fc} par une fonction de puissance de la forme

$\tau_{\text{ech}}(D_{fc}) = a_{\text{ech}} D_{fc}^{b_{\text{ech}}}$, où a_{ech} et b_{ech} sont deux constantes qui dépendent de l'échangeur utilisé.

La discrétisation de l'équation (IV.144) donne le modèle discret suivant :

$$T_{\text{sech}}(n) = \alpha(D_{fc}) T_{\text{sech}}(n-1) + (1 - \alpha(D_{fc})) [\lambda(D_{fc}) T_{\text{eech}}(n) + (1 - \lambda(D_{fc})) T_u^u(n)] \quad (\text{IV.145})$$

Où $\alpha(D_{fc})$ représente la dynamique de l'échangeur de chaleur, il est donné par la relation:

$$\alpha(D_{fc}) = e^{-\frac{t_{\text{ech}}}{\tau_{\text{ech}}(D_{fc})}} \quad (\text{IV.146})$$

t_{ech} : Représente la période d'échantillonnage pour la boucle esclave.

Les caractéristiques des deux régulateurs PCF_f et PCF_g , sont :

- consigne future constante ;
- trajectoire de référence exponentielle d'ordre 1 ;
- un point de coïncidence H_{ech} ;
- une seule fonction de base en échelon ;
- procédure sans auto-compensation.

Pour un seul point de coïncidence, H_{ech} , la loi de commande est donnée par :

$$T_{\text{ref,ech}}(n + H_{\text{ech}}) - \hat{T}_{\text{sech}}(n + H_{\text{ech}}) = 0 \quad (\text{IV.147})$$

Avec :

$T_{\text{ref,ech}}(n + H_{\text{ech}})$: Trajectoire de référence au point de coïncidence H_{ech} ;

$\hat{T}_{\text{sech}}(n + H_{\text{ech}})$: Sortie prédite du processus au point de coïncidence H_{ech}

La trajectoire de référence est donnée par l'équation ci dessous :

$$T_{ref,ech}(n + H_{ech}) = (1 - \lambda_{ech}^{H_{ech}})T_{icons}(n) + \lambda_{ech}^{H_{ech}} T_{sechm}(n) \quad (IV.148)$$

Avec :

$T_{icons}(n)$: Consigne à l'instant n calculée au niveau de régulateur "1" ;

$T_{sechm}(n)$: Température de la sortie de l'échangeur mesurée à l'instant n

λ_{ech} : Paramètre qui conditionne la rapidité du ralliement désirée dans le cas de l'échangeur

de chaleur : $\lambda_{ech} = e^{-\frac{3 \cdot t_{ech}}{trbf_{ech}}}$

$trbf_{ech}$: Représente le temps de réponse en boucle fermée de l'échangeur de chaleur (s).

Il existe un retard, R_{ech1} , entre l'endroit où on mesure la température d'entrée du monofluide, T_{eechm} , et l'entrée réelle de l'échangeur de chaleur et aussi un retard, R_{ech2} , entre l'endroit où on mesure la température de sortie du monofluide T_{sechm} et la sortie réelle de l'échangeur de chaleur.

Donc à l'instant n nous ne possédons pas la mesure de $T_{sechm}(n)$, mais plutôt la mesure de $T_{sechm}(n - R_{ech2})$, c'est pour cette raison que nous allons remplacerons $T_{sechm}(n)$ par la mesure prédite $\hat{T}_{sechm}(n)$ (n) suivant la relation:

$$\hat{T}_{sechm}(n) = T_{sechm}(n) + T_{sech}(n) - T_{sech}(n - R_{ech2}) + T_{eech}(n - R_{ech1}) - T_{eech}(n - R_{ech1} - R_{ech2}) \quad (IV.149)$$

Dans un problème de commande prédictive paramétrique (PPC) bien qu'il soit possible de calculer la sortie modèle, nous utiliserons un modèle réaligné où la sortie du modèle est prise égale à la mesure du processus, ce qui revient à écrire $T_{sechm}(n) = T_{sech}(n - R_{ech2})$

Nous obtenons donc la relation :

$$\hat{T}_{sechm}(n) = T_{sech}(n) + T_{eech}(n - R_{ech1}) - T_{eech}(n - R_{ech1} - R_{ech2}) \quad (IV.150)$$

La sortie prédite du modèle est donnée par:

$$\hat{T}_{sech}(n + H_{ech}) = T_{sech}(n + H_{ech}) + \hat{T}_{sechm}(n) - T_{sech}(n) \quad (IV.151)$$

La sortie du modèle $T_{sech}(n + H_{ech})$ à l'instant $(n + H_{ech})$, est donnée par l'équation :

$$T_{sech}(n + H_{ech}) = \alpha(D_{fc})^{H_{ech}} \hat{T}_{sechm}(n) + (1 - \alpha(D_{fc})^{H_{ech}}) \left[\lambda(D_{fc}) T_{eech}(n - R_{ech1}) + (1 - \lambda(D_{fc})) T_e^u(n) \right] \quad (IV.152)$$

La loi de commande sera ainsi présentée par les équations données ci dessous :

$$(1 - \lambda_{ech}^{H_{ech}}) [T_{icons}(n) - \hat{T}_{sechm}(n)] + \hat{T}_{sechm}(n) = T_{sech}(n + H_{ech}) \quad (IV.153)$$

Et

$$T_{sech}(n + H_{ech}) = \alpha(D_{fc})^{H_{ech}} \hat{T}_{sechm}(n) + (1 - \alpha(D_{fc})^{H_{ech}}) \left[\lambda(D_{fc}) T_{eech}(n - R_{ech1}) + (1 - \lambda(D_{fc})) T_e^u(n) \right] \quad (IV.154)$$

Pour le régulateur PFC_f , la température T_e^u est prise égale à la température de l'eau froide (15°C) alors que pour le régulateur PFC_g , T_e^u est prise égale à la température de l'eau glycolée (-10°C).

➤ **Résolution de l'équation de la loi de commande :**

L'équation de la loi de commande sera résolue par la méthode itérative de la bissectrice (**El Basri Hassan**, (1997)). Cette méthode est basée sur l'algorithme suivant :

Soit :

T_{sol} : Valeur de la température calculée dans le terme gauche de l'équation (IV.153) ;

$T_{sech}(D_{fc\ min})$: Valeur de la température prédite, $T_{sech}(n + H_{ech})$ calculée par l'équation (IV.154) pour un débit $D_{fc\ min}$;

$T_{sech}(D_{fc\ max})$: Valeur de la température prédite, $T_{sech}(n + H_{ech})$ calculée par l'équation (IV.154) pour un débit $D_{fc\ max}$.

Avec :

$D_{fc\ min}$: Débit minimum $D_{fc\ min} = 0\ l \cdot h^{-1}$;

$D_{fc\ max}$: Débit maximum $D_{fc\ max} = 1000\ l \cdot h^{-1}$;

Le débit D_{fc} est limité par des contraintes physiques :

$$D_{fc\ min} \leq D_{fc} \leq D_{fc\ max}$$

$T_{sech}(D_{fc})$: Valeur de la température prédite, $T_{sech}(n + H_{ech})$ calculée par l'équation (IV.154) pour un débit D_{fc} .

L'objectif est de trouver un débit $D_{fc\ sol}$ qui vérifie la relation suivante :

$$\left| \frac{T_{sol} - T_{sech}(D_{fc\ sol})}{T_{sol}} \right| \leq \varepsilon \quad \text{où } \varepsilon \cong 10^{-4}$$

La condition pour laquelle y aura une solution est :

$$T_{sech}(D_{fc\ min}) \geq T_{sol} \geq T_{sech}(D_{fc\ max})$$

IV.3.2. Présentation des régulateurs

Dans ce paragraphe les caractéristiques principales des régulateurs du réacteur (le superviseur **PFCM** et le maître **PFC1**), du crayon chauffant (**PFCc**) et des échangeurs de chaleur (**PFCr** et **PFCg**) sont récapitulés dans le tableau (IV.1) suivant :

Tableau IV.1 : Caractéristiques principales des régulateurs du réacteur

PFCM	Modèle interne	<p>Il s'agit d'un modèle interne intégrateur pur instable</p> $T_r(p) = \frac{K}{p} (U_q(p) + Q_{ech}(p))$ <p>Appiquant le principe de décomposition : Modèle interne stable discret</p> $\frac{T_{r1}(n)}{(U_q(n) + Q_{ech}(n))} = \frac{K t_{ech} z^{-1}}{1 - \alpha_D z^{-1}}$ $\frac{T_{r2}(n)}{T_{rm}(n)} = \frac{(1 - \alpha_D) z^{-1}}{1 - \alpha_D z^{-1}}$ $T_r(n) = T_{r1}(n) + T_{r2}(n)$ <p>Le retard est de 30s ($R_r = 1$) Constante de temps $\tau_r(s) = 280s$ Gain statique $K = 1$</p>
	Structuration de la variable de commande	Deux fonctions de base en échelon et en rampe : $S_{B0} = 1$; $S_{B1} = 1 + H_i$
	Trajectoire de référence	Exponentielle du premier ordre : $trbf_r = 200s$ Points de coïncidence 60 et 300s ($H_1 = 2$; $H_2 = 10$)
	Compensation de l'erreur modèle	Premier ordre
	Remarques	Période d'échantillonnage $t_{ech} = 30(s)$; consigne future connue Sans réaction chimique : l'entrée du modèle est U_q Avec réaction chimique : l'entrée du modèle est $U_q + Q_{ech}$
PFC1	Modèle interne	$T_r(p) = \frac{K_r}{1 + \tau_r p} T_{icons}(p) + \frac{K_c}{1 + \tau_r p} T_c(p) + \frac{K_{Qr}}{1 + \tau_r p} Q_r(p)$ <p>Modèle discret</p> $T_r(n) = k_r \frac{(1 - \alpha_r) z^{-1}}{1 - \alpha_r z^{-1}} T_{icons}(n) + K_c \frac{(1 - \alpha_r) z^{-1}}{1 - \alpha_r z^{-1}} T_c(n) + K_{Qr} \frac{(1 - \alpha_r) z^{-1}}{1 - \alpha_r z^{-1}} Q_r(n)$ <p>Le retard est de 30s ($R_r = 1$) Constante de temps $\tau_r(s) = 280s$ Gain statique $K_r = 1$</p>
	Structuration de la variable de commande	Deux fonctions de base en échelon et en rampe : $S_{B0} = 1$; $S_{B1} = 1 + H_i$
	Trajectoire de référence	Exponentielle du premier ordre : $trbf_r = 200s$ Points de coïncidence 60 et 300s ($H_1 = 2$; $H_2 = 10$)
	Compensation de l'erreur modèle	Non utilisée

	Remarques	Période d'échantillonnage $t_{ech} = 30(s)$; consigne future connue Sans réaction chimique : l'entrée du modèle est T_{icons} Avec réaction chimique : les entrées du modèle interne sont T_{icons} ; T_c et Q_r
PFCc	Modèle interne	$T_{ch}(p) = T_{ch}^E(p) + \frac{G_{ch}}{1 + \tau_{ch} p} \cdot U_p(p)$ $G_{ch} = 1^\circ C$; $\tau_{ch}(s) = 20s$ T_{ch}^E est pris en compte comme une variable de perturbation en retour Le retard est de 9s ($R_{ch} = 3$)
	Structuration de la variable de commande	Une seule fonction de base en échelon
	Trajectoire de référence	Exponentielle du premier ordre : $trbf_{ch} = 30s$ Point de coïncidence 9s ($H_{ch} = 3$)
	Compensation de l'erreur modèle	Non utilisée
	Remarques	Période d'échantillonnage $t_{echs} = 3(s)$; consigne future connue L'entrée du modèle est U_p $0 \leq U_p \leq 1$
PFCf PFCg	Modèle interne	$T_{sech}(p) = \frac{\lambda(D_{fc})}{(1 + \tau_{ech}(D_{fc})p)} T_{eech}(p) + \frac{(1 - \lambda(D_{fc}))}{(1 + \tau_{ech}(D_{fc})p)} T_u^e(p)$ Modèle discret $T_{sech}(n) = \alpha(D_{fc}) T_{sech}(n-1) + (1 - \alpha(D_{fc})) [\lambda(D_{fc}) T_{eech}(n) + (1 - \lambda(D_{fc})) T_u^e(n)]$ Constante de temps : $\tau_{ech}(D_{fc}) = a_{ech} \cdot D_{fc}^{b_{ech}}$ dans le cas de l'échangeur à eau froide : $a_{ech} = 31.541$; $b_{ech} = -0.836$ dans le cas de l'échangeur à eau glycolée : $a_{ech} = 46.358$; $b_{ech} = -0.72$ $R_{ech1} = 1$; $R_{ech2} = 2$; $C = 3.5$
	Structuration de la variable de commande	Une seule fonction de base en échelon
	Trajectoire de référence	Exponentielle du premier ordre : $trbf_{ech} = 80s$ Point de coïncidence 30s ($H_{ech} = 10$)
	Compensation de l'erreur modèle	Non utilisée
	Remarques	Utilisation d'un modèle réaligné ; période d'échantillonnage $t_{echs} = 3(s)$ Consigne future constante Contrainte sur le débit du mono-fluide $Df_{c\min} = 0.0l/h$ et $Df_{c\max} = 1000l/h$

IV.4. Validation du système de supervision et de la politique de régulation

Dans cette partie, nous allons présenter les résultats obtenus en simulation pour la conduite thermique du réacteur discontinu de 1litre équipé d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide en utilisant la commande prédictive fonctionnelle.

Nous présentons des résultats obtenus pour la conduite thermique sans réaction chimique et avec réaction chimique exothermique de neutralisation entre une solution de soude et une solution d'acide chlorhydrique suivi d'une étude de sensibilité pour les constantes des modèles internes associées à la réaction chimique.

IV.4.1. Conduite thermique sans réaction chimique

Pour réaliser cette étude, nous avons utilisé puis ajusté en simulation les paramètres de réglage du *PFC* utilisé dans les travaux antérieures (**El Basri Hassan**, (1997) ; **Ernst**, (1996) ; **Preuß**, (1996)) pour la conduite thermique d'un réacteur pilote de 1 litre équipé d'un système mono-fluide. Les paramètres de réglage sont donnés dans les tableaux (IV.2.a, IV.2.b et IV.2.c).

Tableau IV.2.a : Paramètres de réglage du PFCM et PFC1

Niveau de régulation "1"								
Régulateur de supervision PFCM								
K	$\tau_r (s)$	H_{r1}	H_{r2}	U_{B1}	U_{B2}	$trbf_r (s)$	R_r	$t_{ech} (s)$
1	280	2	10	1	$1+ H_i$	200	1	30
Régulateur de consigne PFC1								
K_r	$\tau_r (s)$	H_{r11}	H_{r22}	U_{B11}	U_{B22}	$trbf_r (s)$	R_r	$t_{ech} (s)$
1	280	2	10	1	$1+ H_i$	200	1	30

Tableau IV.2.b : Paramètres de réglage du PFC_c

Niveau de régulation "0"				
Crayon chauffant PFC _c				
G_{ch}	$\tau_{ch} (s)$	H_{ch}	$trbf_{ch} (s)$	$t_{echs} (s)$
1	20	3	30	3

Tableau IV.2.c : Paramètres de réglage du PFC_f et PFC_g

Niveau de régulation "0"					
Echangeur à eau froide PFC _f			Echangeur à eau glycolée PFC _g		
$trbf_{ef}$	H_{ef}	$t_{echs} (s)$	$trbf_{eg} (s)$	H_{eg}	$t_{echs} (s)$
80	10	3	80	10	3

Le profil de température qu'on a considéré est le suivant:

- une phase de chauffage de 15°C à 40°C durant 1000 s
- une phase de maintien à 40°C pendant 1500 s
- une phase de refroidissement de 40°C à 15°C durant 1200 s
- une phase de maintien à 15°C pendant 500 s

Ce profil est donc composé d'une rampe croissante – maintien – rampe décroissante – maintien. Pour éliminer les discontinuités rencontrées lors des changements de phases, on utilise la procédure de filtration de la consigne, il s'agit de *la procédure d'accostage* développé par (**Bouhenchir et al.**, (2006)).

L'application de l'algorithme de commande prédictive fonctionnelle en cascade, permet un excellent suivi de la consigne durant tout le profil de consigne.

Les Figures (IV.9 à IV.12) montrent une évolution très régulière des températures. La Figure (IV.10) montre une évolution très régulière des températures à l'entrée et à la sortie de la double enveloppe durant la partie du profil de température. On remarque aussi un bon suivi de la consigne (T_{icons}) par la température du monofluide à l'entrée de la double enveloppe (T_{ede}) durant la phase de chauffage. La seule exception, concerne la phase de refroidissement lors du changement d'appareil, du crayon chauffant vers l'échangeur à eau froide. On remarque aussi un très bon suivi de la consigne (T_{cons}) par T_r et T_{cdoc} durant presque tout le profil de température. La seule exception, concerne au début de la phase de maintien et la phase de refroidissement une légère différence apparaît lors du changement d'appareil. Cette légère différence est aussi traduite par l'évolution du flux thermique (U_q) Figure (IV.12). On observe une variation très régulière du flux thermique calculé par le régulateur chargé de la supervision, ce flux thermique est quasiment positif au temps égale a zéro jusqu'à 2400 s ($U_q < Q_{minch}$) ce qui entraîne l'utilisation du crayon chauffant sauf au temps égale 2430 s à 2610 s ou il devient négatif ($Q_{minéf} < U_q < Q_{maxéf}$) ce qui active l'utilisation de l'échangeur à eau froide et au temps égale 2790 s à 3810 s l'utilisation de l'échangeur à eau glycolée ($U_q < Q_{minéf}$). Puis à 3840 s prend une valeur positive (**Henini et al.**, (2012)).

On constate aussi que le régulateur joue bien son rôle de superviseur puisqu'il permet de changer l'appareil thermique uniquement lorsqu'il y a un refroidissement urgent ou bien chauffage urgent. La Figure (IV.11) montre l'évolution de la variable manipulée (β) qui correspond soit à la fraction de la puissance de chauffe calculée par le régulateur lors de l'utilisation du crayon chauffant soit à la fraction du débit du monofluide calculée lors de l'utilisation de l'échangeur à eau froide ou bien l'échangeur à eau glycolée. Sur la figure, cette variable correspond à la fraction de la puissance de chauffe durant une grande partie du profil.

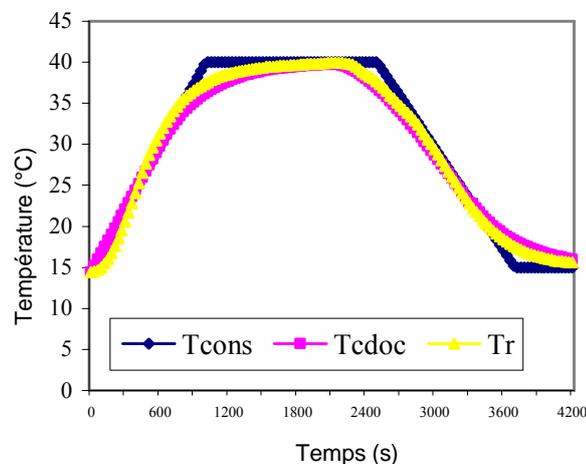


Figure IV.9 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}) et du milieu réactionnel (T_r)

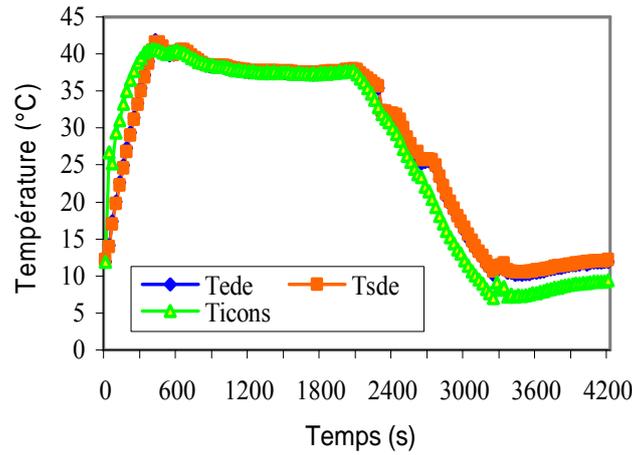


Figure IV.10 : Evolution des températures du monofluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie (T_{sde}) de la double enveloppe et la température de consigne (T_{icons}) calculée par le régulateur PFC1

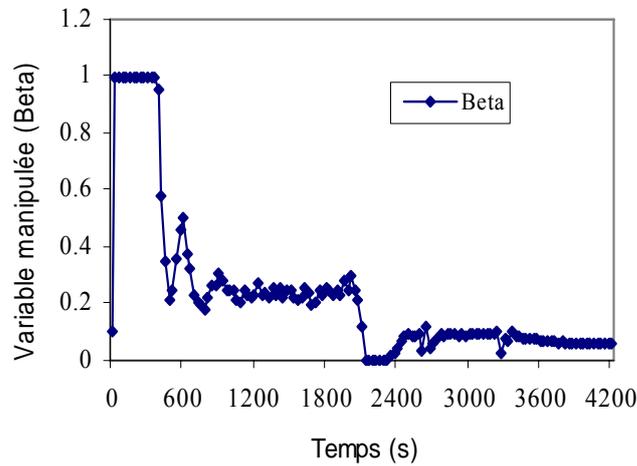


Figure IV.11 : Evolution de la variable manipulée (β)

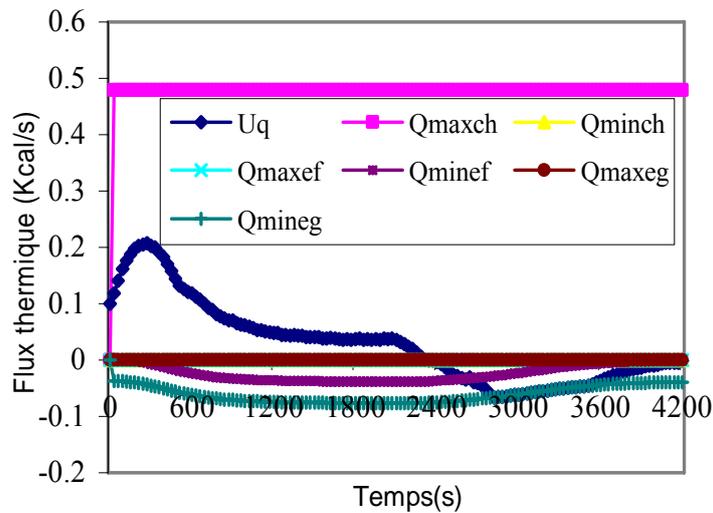


Figure IV.12 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le régulateur PFCM (U_q)

IV.4.2. Conduite thermique avec réaction chimique

Dans cette partie, nous nous intéressons à la conduite thermique d'une réaction chimique exothermique dans le but de tester la fiabilité et la flexibilité du système de régulation face à des changements de la dynamique de conduite. La réaction considérée est la réaction de neutralisation entre la solution de soude ($NaOH$) et la solution d'acide chlorhydrique (HCl).

Nous présentons d'abord des résultats obtenus pour la conduite thermique de la réaction de neutralisation, en utilisant les mêmes modèles internes pour les régulateurs $PFCM$ et $PFCI$, sans tenir compte du dégagement de chaleur. Ensuite nous présentons les résultats obtenus en tenant compte, dans ces modèles, la mise en œuvre de dégagement de chaleur et enfin, nous présentant une étude de sensibilité pour ces modèles internes ajustés.

➤ Conduite thermique sans tenir compte du dégagement de chaleur

Pour analyser les performances du système de régulation dans le cas de la conduite avec mise en œuvre d'une réaction exothermique de neutralisation, avec coulée d'acide chlorhydrique entre 1400 (s) et 5400 (s) selon le profil de température suivant:

- une phase de chauffage de 20°C à 30°C durant 1000 s
- une phase de maintien à 30°C pendant 5000 s
- une phase de refroidissement de 30°C à 20°C durant 1000 s
- une phase de maintien à 20°C pendant 500 s

Les Figures (IV.13 à IV.16) représentent les résultats de simulation pour la conduite thermique de la réaction de neutralisation.

La Figure (IV.13) montre qu'au moment de l'introduction de la coulée, il y a un petit décalage entre la température (T_r) et (T_{cons}). Le système de régulation réagit en commutant toujours du crayon chauffant comme représente la Figure (IV.16) et aussi cette perturbation se traduit par les oscillations de la variable manipulée (β) Figure (IV.15). A la fin de coulée, on observe un sous dépassement de 1°C environ, qui est dû au fait que la température du monofluide est proche de 30°C et le système tarde pour revenir sur le palier. Sur la Figure (IV.16) on peut observer que le flux thermique au temps 5940 s est négatif dans la gamme d'utilisation de l'échangeur à eau froide et 5970 s jusqu'à 6000 s l'utilisation de l'échangeur à eau glycolée puis on observe par la suite la qualité de conduite thermique redevient correcte. Par la suite le système de régulation devient instable, caractérisé par des oscillations de la température du mono-fluide à l'entrée et à la sortie de la double enveloppe et de la température de consigne Figure (IV.14).

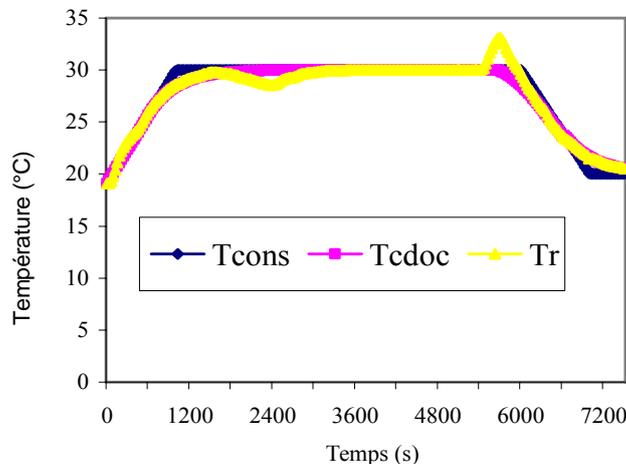


Figure IV.13 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}) et du milieu réactionnel (T_r)

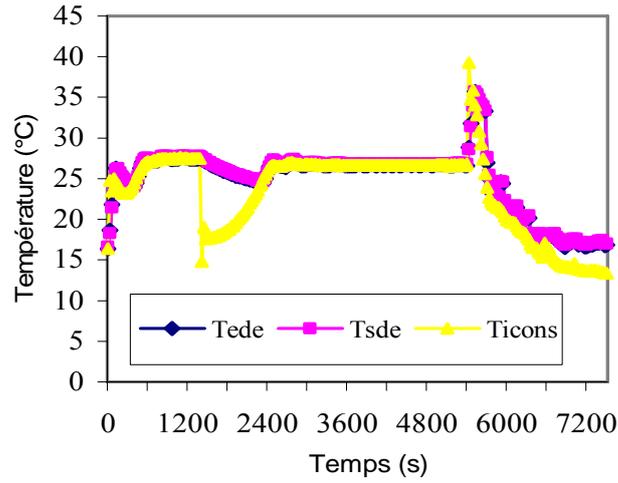


Figure IV.14 : Evolution des températures du monofluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons})

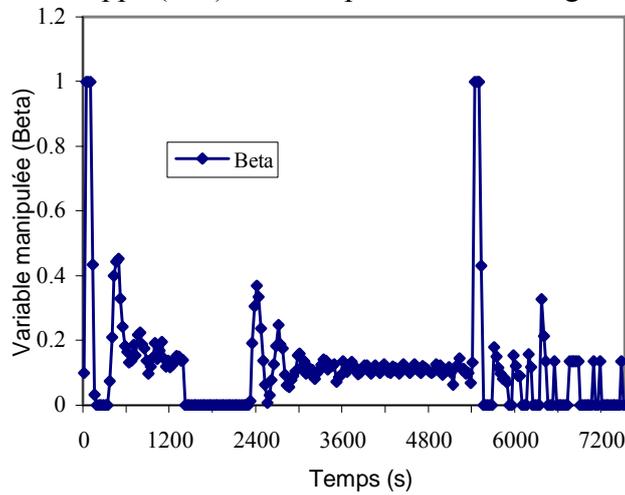


Figure IV.15 : Evolution de la variable manipulée (β)

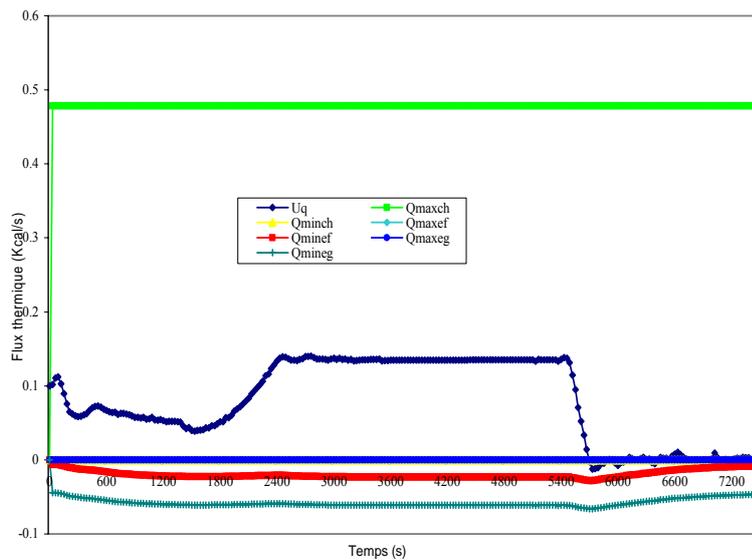


Figure IV.16 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le superviseur

➤ *Conduite thermique avec la prise en compte du dégagement de chaleur*

Pour résoudre le problème de dépassement de la consigne et éviter par la suite les problèmes de conduite qu'il génère, nous avons réalisé une simulation en tenant compte dans les deux modèles internes du *PFCM* et *PFCI*, de la mise en œuvre une réaction chimique avec la prise en compte du dégagement de chaleur.

La vitesse de dégagement de chaleur par la réaction chimique prise égale à -0.011 Kcal /s d'après les travaux de (**Bouhenchir**, (2000)). Qui est la valeur estimée lors de l'étude de la conduite thermique de cette réaction (neutralisation) utilise la commande prédictive généralisée avec double modèle de référence.

Les Figures (IV.17 à IV.20) représentent les résultats de simulation issus de la conduite thermique de la réaction de neutralisation sous le profil de température suivant:

- une phase de chauffage de 25°C à 40°C durant 1000 s
- une phase de maintien à 40°C durant 1500 s
- une phase de refroidissement de 40°C à 25°C durant 1000 s
- une phase de maintien à 25°C pendant 500 s

La Figure IV.17 montre un excellent suivi de la consigne durant tout le profil de consigne.

La Figure IV.18 montre une évolution très régulière des températures à l'entrée et à la sortie de la double enveloppe durant une grande partie du profil de température à l'exception de la phase de refroidissement où la température chute brusquement de 38 à 25 °C on remarque aussi un très bon suivi de la consigne ($T_{i\text{cons}}$) par la température du monofluide à l'entrée de la double enveloppe (T_{ede}) durant presque tout le profil de température la seule exception, concerne la phase de refroidissement.

La Figure IV.19 montre l'évolution de la variable manipulée (β) qui correspond à la fraction de la puissance de chauffe durant une grande partie du profil à l'exception de deux périodes vers 2310 (s) et 3150 (s). Sur la Figure IV.20 on observe une variation très régulière du flux thermique calculé par le régulateur chargé de la supervision *PFCM*. Ce flux thermique est positif tout ou long du profil, ce qui entraîne l'utilisation du crayon chauffant.

Ces résultats montrent que la prise en compte de la présence de la réaction chimique dans les modèles internes de deux régulateurs, permet d'avoir une bonne qualité de conduite thermique tout au long du profil de température (**Henini et al.**, (2012)).

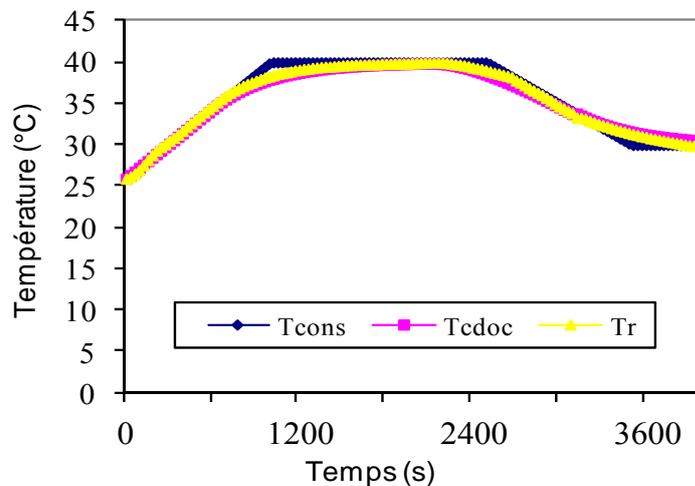


Figure IV.17 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r)

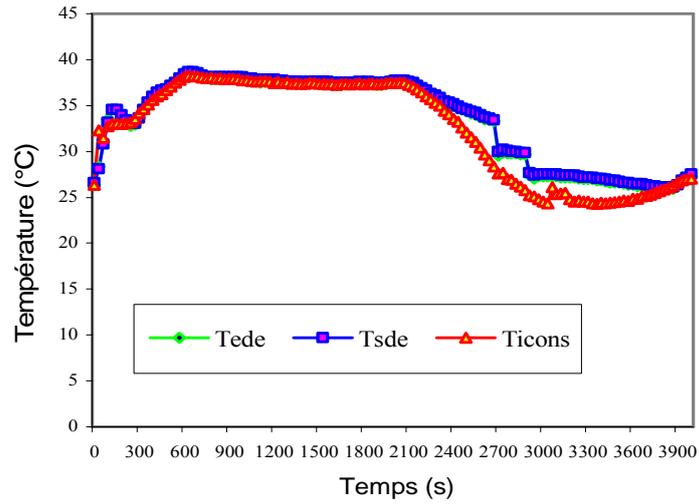


Figure IV.18 : Evolution des températures du monofluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons})

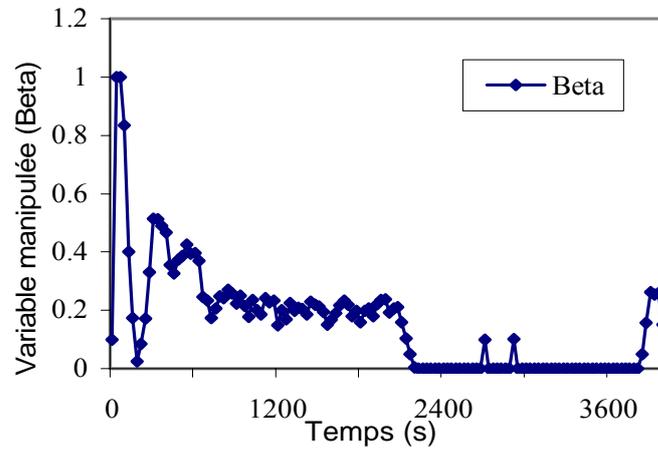


Figure IV.19 : Evolution de la variable manipulée (β)

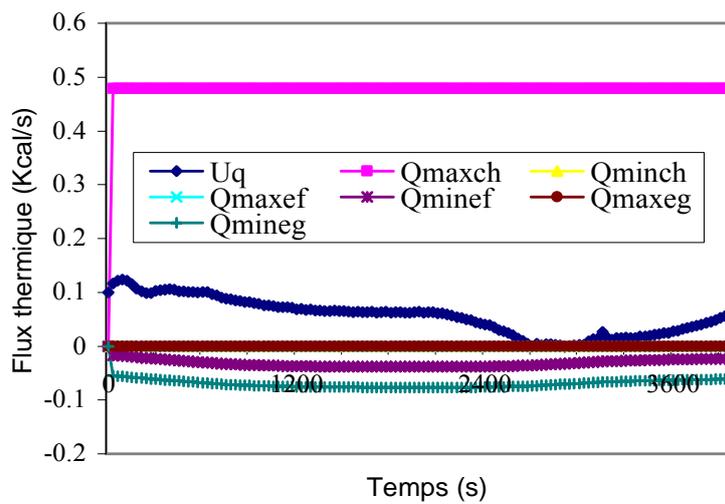


Figure IV.20 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le régulateur (U_q)

IV.4.3. Etude de sensibilité des paramètres de réglage de la commande prédictive fonctionnelle

Cette étude concerne les deux régulateurs développés, *PFCM* le régulateur chargé de la supervision et *PFCI* le régulateur maître qui calcule la température de consigne pour le niveau de régulation "0".

Les paramètres de réglage à étudier pour la boucle maître sont le choix du modèle interne (K : gain statique pour *PFCM*) et k_r : gain statique pour *PFCI*.

Nous avons exécuté une simulation pour analyser la sensibilité des systèmes de régulations par rapport aux réglages des deux paramètres. La réaction considérée est la réaction de neutralisation avec coulée en prenant le gain statique du modèle interne pour le régulateur chargé de la supervision égale 0.3 et le gain statique du modèle interne pour le régulateur maître *PFCI* égale 0.3 le profil de température avec une phase de maintien à 30°C a été considéré :

- une phase de chauffage de 20°C à 30°C durant 1000 s
- une phase de maintien à 30°C entre 1000 s et 14800 s avec coulée
- une phase de refroidissement de 30°C à 20°C durant 1000 s
- une phase de maintien à 20°C pendant 500 s

Les Figures (IV.21 à IV.24) montrent au moment de l'introduction de coulée une perturbation, qui est ensuite accompagné par une mauvaise conduite thermique caractérisée par des oscillations du flux thermique, de la variable manipulée (β), de la température du milieu réactionnel, des températures entrée/sortie de la double enveloppe, de consigne et cela tout au long de la période de coulée jusqu'à la fin de la coulée.

Ces oscillations sont dues au fait que la valeur 0.3 pour le gain statique K_r est indispensable pour que le régulateur maître *PFCI* soit efficace. Notons que le régulateur le plus critique est *PFCI* car c'est lui qui joue le rôle de régulateur maître.

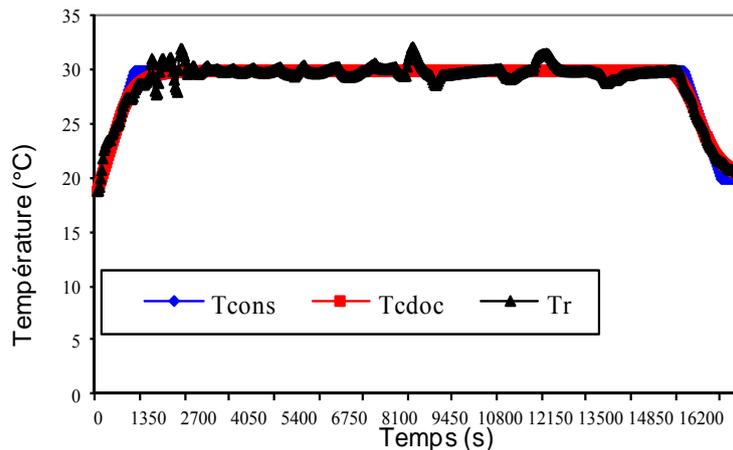


Figure IV.21 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}) et du milieu réactionnel (T_r)

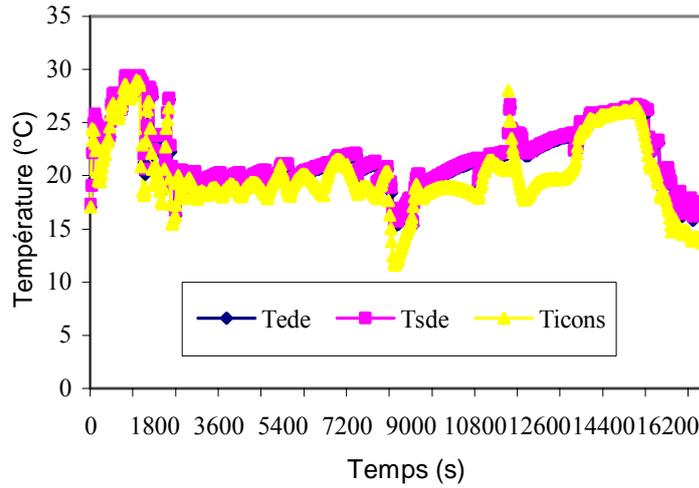


Figure IV.22 : Evolution des températures du monofluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons})

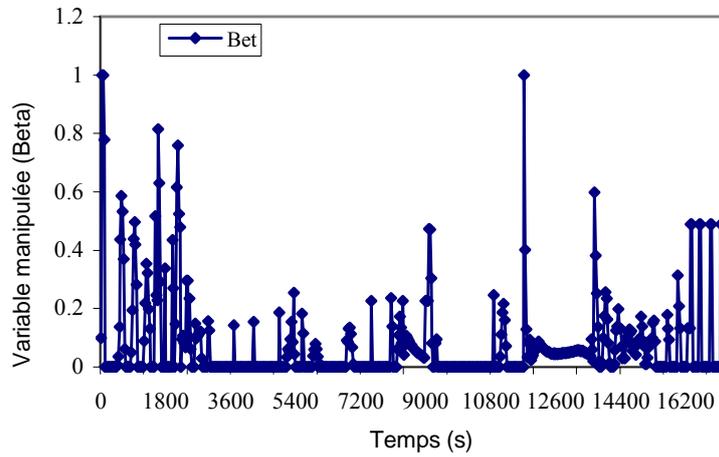


Figure IV.23 : Evolution de la variable manipulée (β)

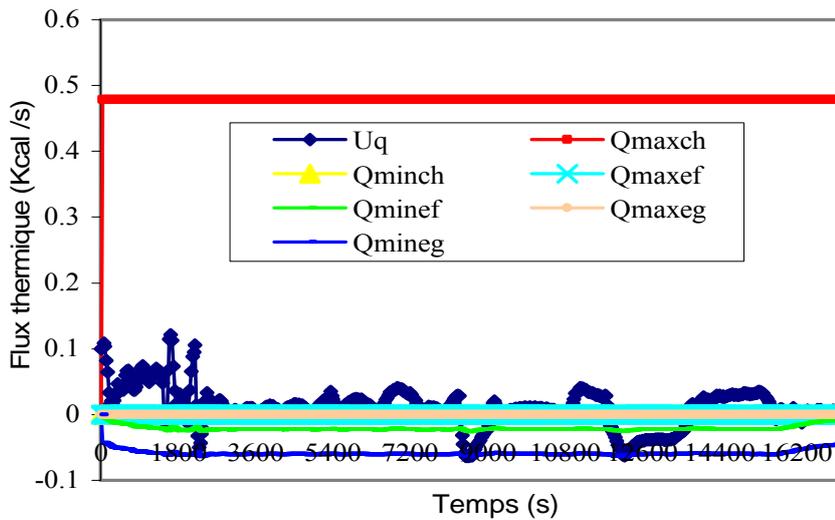


Figure IV.24 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le superviseur

Les Figures (IV.25 à IV.28), représentent les résultats obtenus, en prenant $K = 0.5$ et $K_r = 0.5$. On remarque que dès le début de la phase de préchauffage, le régulateur *PFCI* calcule une consigne (T_{icons}) d'environ 17°C comme le montre la Figure IV.26, le crayon chauffant est alors utilisé à sa puissance maximale ($\beta = 1$) (Figure IV.27) on observe une variation très instable du flux thermique calculé par le régulateur chargé de la supervision *PFCM* ce flux thermique est quasiment positif tout au long du profil et la température du mélange réactionnel oscille durant toutes les phases. On remarque aussi durant la phase de refroidissement, que le superviseur *PFCM* ne réagit pas à la demande urgente en refroidissement. L'analyse de ces résultats montre qu'une valeur $0.5, 0.5$ pour le gain statique K_r est indispensable pour que le régulateur maître *PFCI* soit efficace.

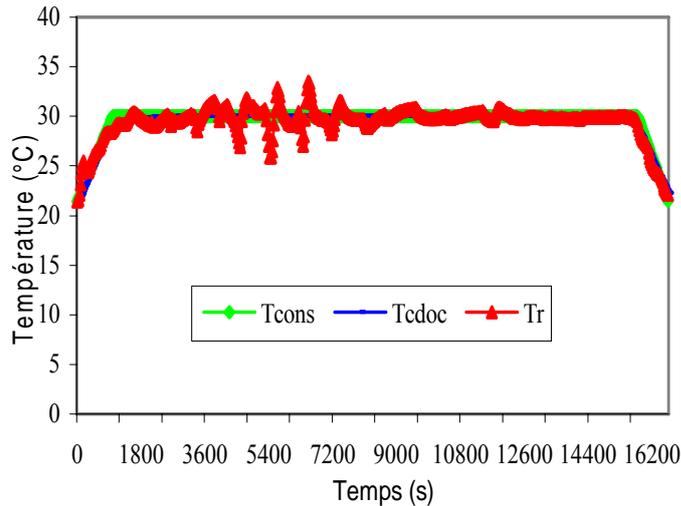


Figure IV.25 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r)

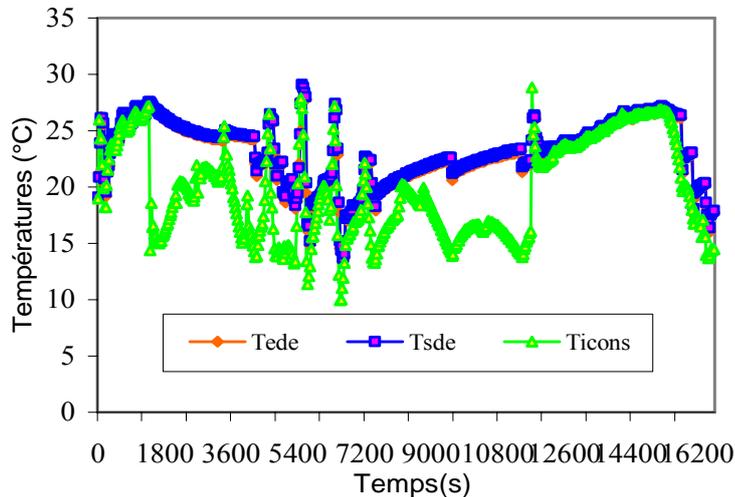


Figure IV.26 : Evolution des températures du monofluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons})

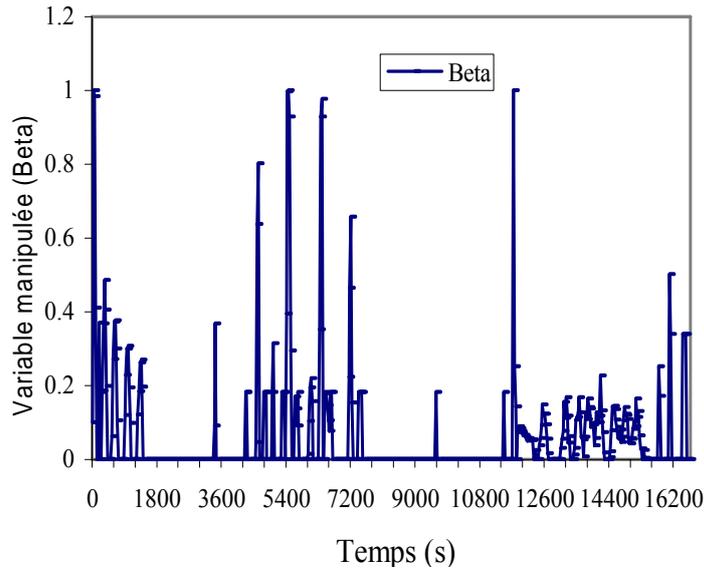


Figure IV.27 : Evolution de la variable manipulée en fonction du temps

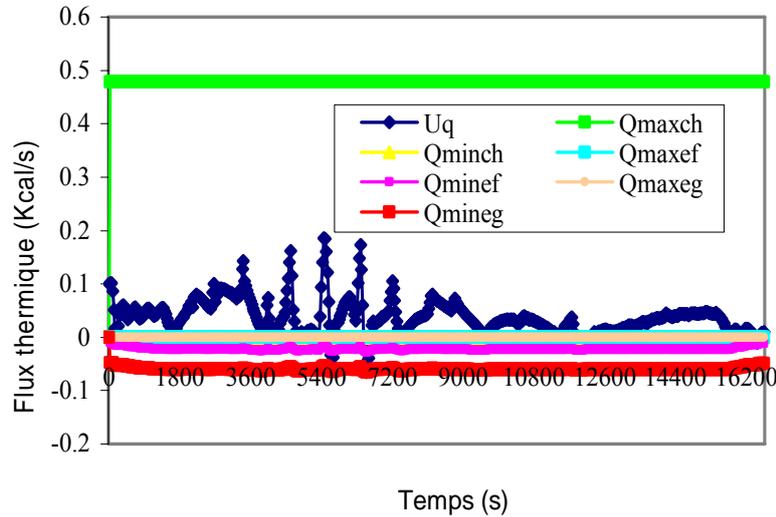


Figure IV.28 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le superviseur

Dans cette partie, nous allons faire une étude de sensibilité pour les coefficients liés à la réaction chimique dans les deux modèles internes. Ces coefficients sont Q_{ech} pour le régulateur *PFCM* et K_c et K_{Q_r} pour le régulateur *PFCI*.

Pour le régulateur *PFCM* :

$$T_r(n + H_i) = \alpha_D T_r(n - 1) + (1 - \alpha_D) \hat{T}_{rm}(n - 1) + K t_{ech} (U_q(n - 1) + Q_{ech}(n - 1)) \quad (IV.155)$$

Pour le régulateur *PFCI* :

$$T_r(n) = \alpha_r T_r(n - 1) + k_r (1 - \alpha_r) T_{icons}(n - 1) + K_c (1 - \alpha_r) T_c(n - 1) + K_{Q_r} (1 - \alpha_r) Q_r(n - 1) \quad (IV.156)$$

Les Figures (IV.29 à IV.32), représentent les résultats obtenus, en prenant $Q_r = -0.011$ Kcal/s, $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 0.5$ et $K_{Q_r} = 0.5$, on observe juste au moment de l'introduction de coulée, qui est ensuite accompagné par une mauvaise conduite thermique caractérisée par des

oscillations du flux thermique (U_q), de la variable manipulée (β), des températures du mono-fluide à l'entrée et à la sortie de la double enveloppe et de la température de consigne ($T_{i\text{cons}}$) et cela tout au long de la période de coulée

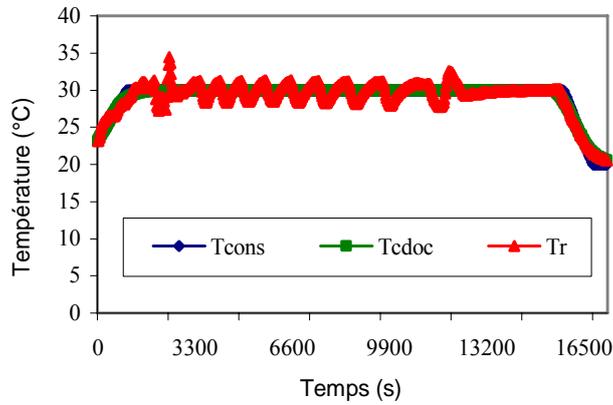


Figure IV.29 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r) : $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$

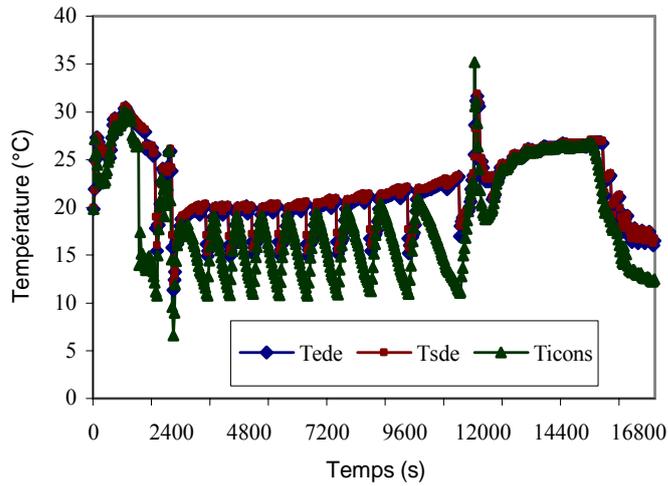


Figure IV.30 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons}) : $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$

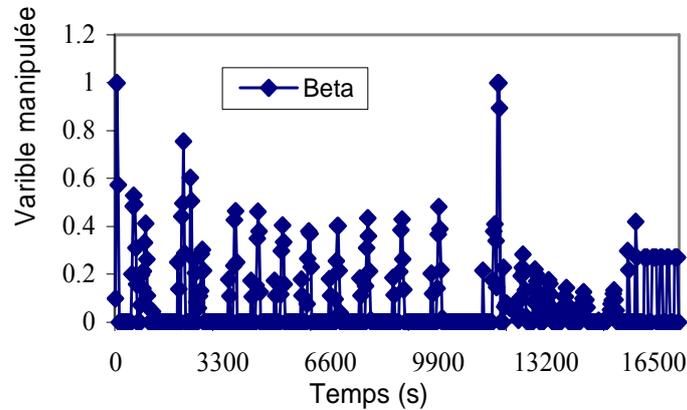


Figure IV.31 : Evolution de la variable manipulée en fonction du temps : $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$

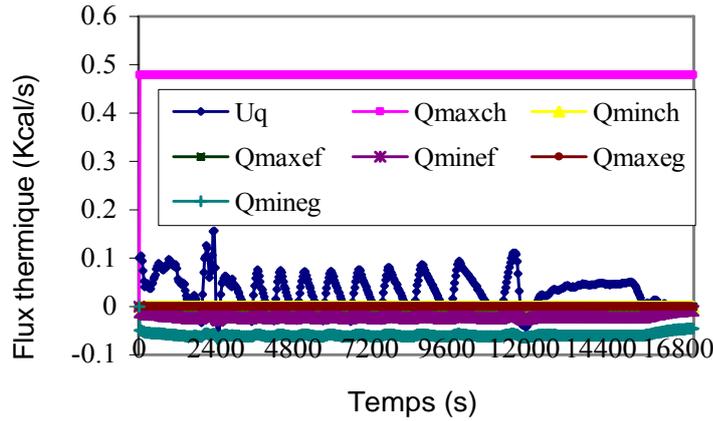


Figure IV.32 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le superviseur : $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$

Les Figures (IV.33 à IV.36), montrent que si on donne à $Q_{ech} = 0.06$ en conservant les mêmes valeurs de K_c , K_{Qr} et la même quantité de chaleur dégagée Q_r , on enregistre un petit dépassement au début de la phase de maintien, par la suite la qualité de conduite thermique redevient correcte caractérisée par un bon suivi de consigne.

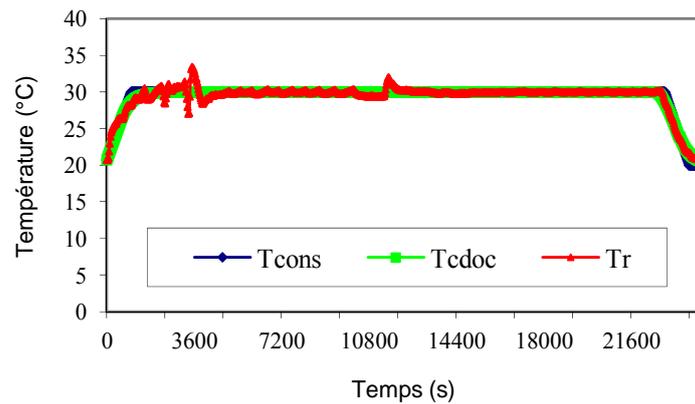


Figure IV.33 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r) : $Q_{ech} = 0.06$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$

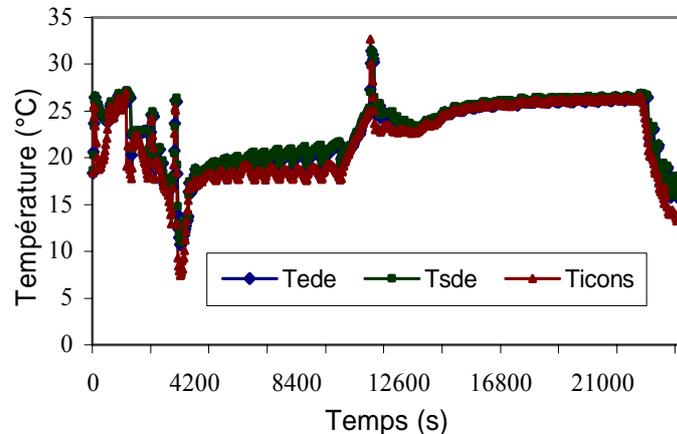


Figure IV.34 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons}) : $Q_{ech} = 0.06$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$

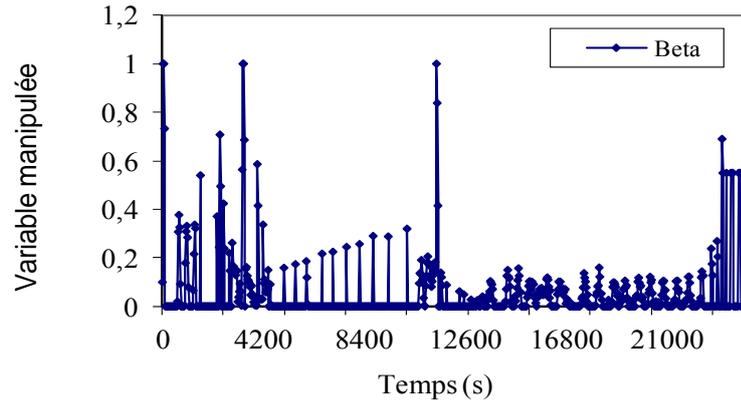


Figure IV.35 : Evolution de la variable manipulée en fonction du temps : $Q_{ech} = 0.06$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$

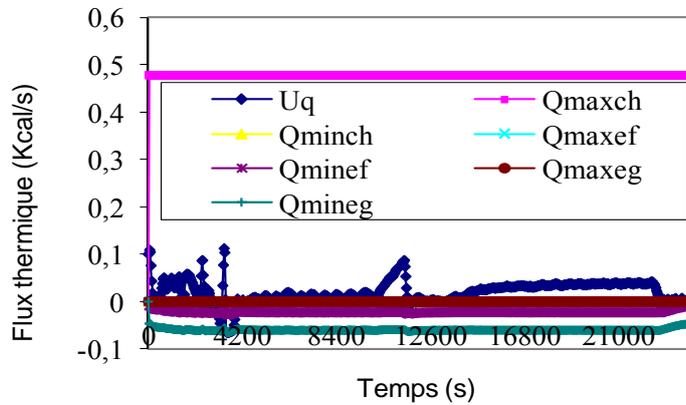


Figure IV.36 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le superviseur : $Q_{ech} = 0.06$, $K_c = 0.5$, $K_{Qr} = 0.5$

Maintenant si on prend comme valeurs pour ces trois coefficients (0.24, 1, 1) respectivement, les Figures (IV.37, IV.40) montrent un fort dépassement à la fin de la coulée, malgré une très bonne conduite thermique au début.

Finalement les figures prouvent que si on ne connaît pas la quantité de chaleur dégagée, on peut ne pas trouver des valeurs pour ces coefficients qui permettent d'avoir une bonne conduite thermique sans oscillations des variables de contrôle avec un suivi de consigne plus au moins correcte.

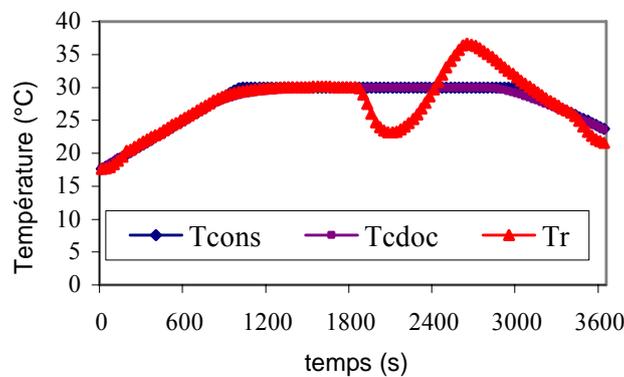


Figure IV.37 : Evolution des températures de consigne (T_{cons}), de la consigne ajustée (T_{cdoc}), et du milieu réactionnel (T_r) : $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 1$, $K_{Qr} = 1$

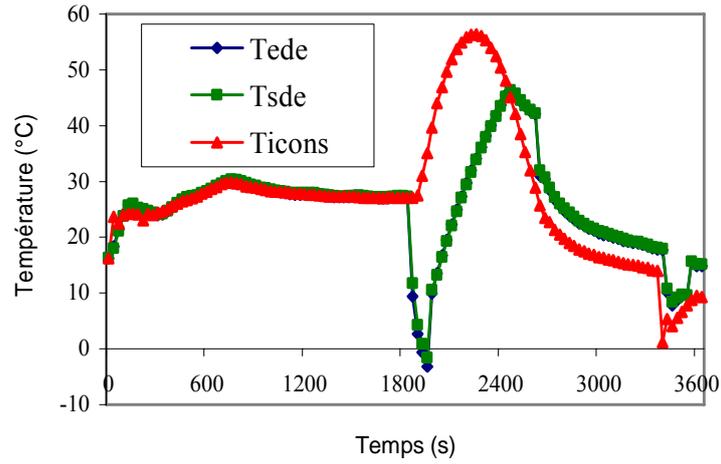


Figure IV.38 : Evolution des températures du mono-fluide à l'entrée (T_{ede}) et à la sortie de la double enveloppe (T_{sde}) et la température de consigne (T_{icons}) : $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 1$, $K_{Or} = 1$

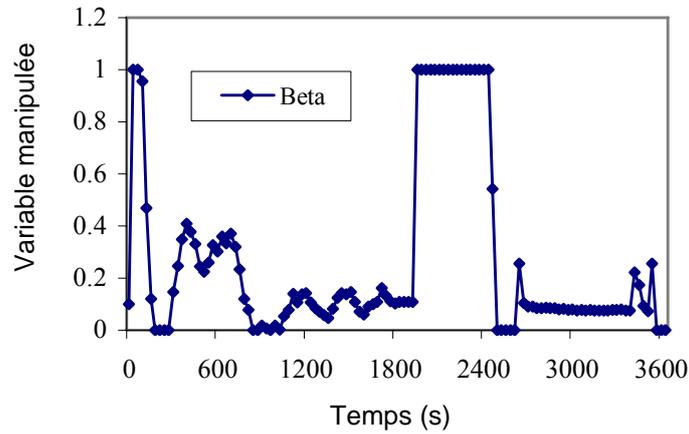


Figure IV.39 : Evolution de la variable manipulée en fonction du temps : $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 1$, $K_{Or} = 1$

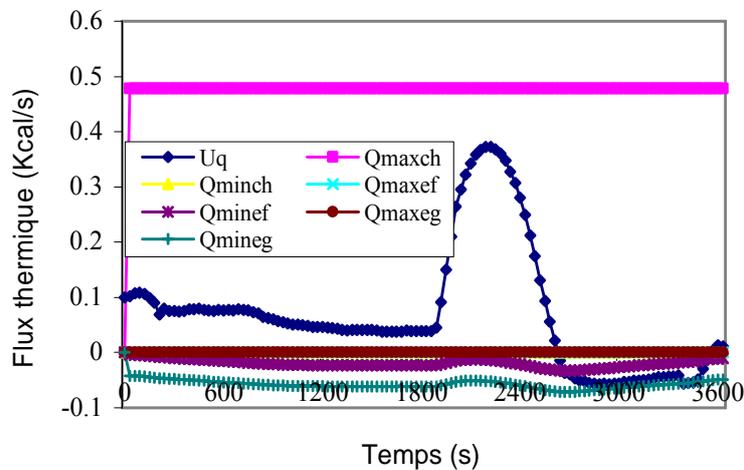


Figure IV.40 : Evolution des flux thermiques limites et le flux thermique calculé par le superviseur : $Q_{ech} = 0.24$, $K_c = 1$, $K_{Or} = 1$

IV.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté la stratégie de contrôle thermique adoptée pour la conduite thermique du réacteur pilote. Cette stratégie est basée sur l'analyse des flux thermiques limites calculés pour le mono-fluide durant son passage par les différents appareils thermiques (le crayon chauffant et les deux échangeurs de chaleur) et le flux thermique calculé par le régulateur.

A cet effet une commande prédictive avancée a été utilisée. La commande prédictive fonctionnelle.

Les résultats de simulation sont globalement satisfaisants que ce soit pour une conduite thermique sans ou avec réaction chimique.

En conclusion, ces simulation montrent que la prise en compte du terme de dégagement thermique par la réaction chimique dans le modèle interne du régulateur, permet d'obtenir une bonne conduite thermique en évitant les dépassements de consigne au début et à la fin de la phase réactionnelle.

Toutefois, il est nécessaire de connaître les paramètres relatifs à la réaction avec un certain degré de précision.

CHAPITRE V

COPOLYMERISATION DE METHACRYLATE DE METHYLE ET ACETATE DE VINYLE

V.1. INTRODUCTION

V.2. PRESENTATION DU MONTAGE EXPERIMENTAL

V.3. EXPERIENCES ET ANALYSE

V.3.1. Description des manipulations

V.3.2. Suivi de la réaction

V.3.3. Vidange du réacteur

V.3.4. Résultats des manipulations et exploitation

V.4. CHROMATOGRAPHIE EN PHASE GAZEUSE

V.5. CONCLUSION

Résumé : Dans ce chapitre nous présentons des études expérimentales pour un suivi continu et un contrôle du processus de copolymérisation de méthacrylate de méthyle et acétate de vinyle. Tout d'abord nous présentons le montage expérimental. Ce dispositif est construit autour d'un réacteur calorifugé en verre de 2l. Il est équipé d'un réfrigérant, une double enveloppe alimentée par un bain d'eau thermostaté, un couvercle et une vanne prise d'échantillon.

Des analyses gravimétrique et chromatographique (CPG) ont été appliquées pour contrôler les réactions de copolymérisation en solution dans un réacteur calorimétrique.

V.1. Introduction

Le développement des polymères synthétiques s'est accéléré dans la seconde moitié du 20^{ième} siècle. Ils ont pris une grande importance dans la vie quotidienne en raison de leur très grande versatilité, de leur faible prix de revient et de leur légèreté par rapport aux matériaux traditionnels (métaux, céramiques) qu'ils remplacent.

L'industrie des polymères devient de plus en plus concurrentielle. Les fabricants de cette matière, face à des pressions croissantes pour la réduction des coûts de production, doivent assurer des exigences plus strictes de qualité en polymère (**Fan et Alpay**, (2004)).

La production des polymères avec des propriétés présécifiques nécessite donc un suivi continu et un contrôle du processus, afin d'assurer les qualités souhaitées. Par conséquent, le réacteur doit être équipé des capteurs en ligne de mesure en précision de ces propriétés en temps réel.

L'élaboration des méthodes de contrôle de la qualité du polymère (en termes de fonctionnement du réacteur et de suivi de la trajectoire des propriétés des polymères) lors d'une polymérisation est la clé de l'efficacité de la production sur-mesure des polymères de hautes qualités et de l'amélioration du fonctionnement du processus et aussi l'amélioration d'un point de vue économique (**Esposito et al.**, (2006), **Sheibat Othman et al.**, (2004)). Parmi les nombreuses variables impliquées dans les réactions de polymérisation, la conversion du monomère est évidemment l'une des plus importantes qui peut être mesurée. Elle est étroitement liée à des exigences de sécurité et à la productivité à l'échelle industrielle des procédés.

Dans ce chapitre nous présentons des études expérimentales pour un suivi continu et un contrôle du processus de copolymérisation. Tout d'abord nous présentons le montage expérimental. Des analyses ont été présentées pour le suivi hors ligne de la conversion des monomères au cours de la copolymérisation en solution de MMA/AVc.

V.2. Présentation du montage expérimental

Nous avons réalisé toutes les synthèses dans un réacteur calorifugé en verre de 2l (Figure V.1). Il est équipé d'un réfrigérant, une double enveloppe alimentée par un bain d'eau thermostaté, un couvercle et une vanne prise d'échantillon. La double enveloppe est munie de deux entrées latérales permettant d'introduire des sondes de température (Pt-100). Nous pouvons ainsi mesurer en ligne la température d'entrée et de sortie de l'eau contenue dans la double enveloppe. Une sonde (Pt-100) directement placée dans le réacteur permet de suivre en temps réel la température de réaction. L'agitation est assurée par une pale en acier de type ancre. Un programme élaboré en visual basic nous permet de contrôler une électrovanne reliée au bain thermostaté et une pompe qui permet d'introduire les différents composés (monomères,...) pour des réactions en semi continu.



Figure V.1 : Schéma du système expérimental (réacteur calorimétrique)

➤ Réactifs

Le tableau V.1 résume les formules, les masses molaires, tous ces produits sont utilisés tels qu'ils sont fournis.

Tableau V.1 : Formules, Fournisseurs et masses de différents composés de nos copolymérisations.

	Formule	Fournisseur	Masse molaire, g.mol ⁻¹
<i>Méthacrylate de méthyle (MMA)</i>	CH ₂ =C (CH ₃)–CO ₂ –CH ₃	Acros Organic	100
<i>Acétate de vinyle (AVc)</i>	CH ₃ COO–CH=CH ₂	Acros Organic	86.0894
<i>Toluène</i>	C ₇ H ₈	Acros Organic	92.138
<i>Azobisisobutyronitrile (AIBN)</i>	C ₈ H ₁₂ N ₄	Acros Organic	164.21

V.2.1. Sécurité

Nous avons travaillé sous hotte car tous les produits chimiques sont toxiques, ainsi qu'avec des gants et des lunettes de sécurité. Les détails sur les produits utilisés au cours des réactions sont donnés en annexe (2).

V.3. Expériences et analyse

V.3.1. Description des manipulations

1. Procédés en réacteur batch

Nous effectuons la copolymérisation en procédé batch, tous les réactifs sont introduits au départ.

On commence par mettre en chauffe le bain thermostaté et la circulation de l'eau dans la double enveloppe du réacteur. On règle la température du bain à 60 °C afin qu'elle soit de 60 °C dans le réacteur, température à laquelle on effectue la polymérisation. Tous les produits sont pesés à l'aide d'une balance de précision et ensuite introduits dans le réacteur. On commence par introduire le toluène.

On met ensuite en route la circulation d'azote dans le réacteur pendant environ 45min afin d'enlever l'oxygène qui peut être un inhibiteur de la réaction. On règle la vitesse d'agitation à 200 rpm. On met ensuite les deux monomères (MMA/AVc) dans le réacteur. Les réactifs sont dégazés pendant 15 min. Lorsque la température atteint 60°C on peut alors commencer la réaction en introduisant l'initiateur l'AIBN.

Plus de détails sur les conditions de réaction sont présentés dans le tableau V.2.

Au cours de la réaction, environ 10 échantillons ont été retirés à l'aide du bas-soupape à double enveloppe du réacteur pour des mesures gravimétriques de la conversion et de suivre l'avancement de réaction grâce à la mesure de l'extrait sec (*utilisation d'une thermobalance Mettler U16 Moisture Analyzer*) Figure V.2.

Par intervalles de temps réguliers, des prélèvements sont effectués en sortie de réacteur. Par gravimétrie nous déterminons ainsi la conversion de ces échantillons: nous mesurons par pesée la quantité de polymère contenue dans une masse connue de solution fabriqués (prélevés) après évaporation de l'eau et du monomère résiduel. La masse de polymère obtenue est rapportée à la masse totale de solution présente dans le réacteur.

Pour un procédé batch, la conversion est calculée à partir du rapport entre la masse du polymère et la masse du monomère initialement introduite, l'équation (V.1) et (V.2) a été utilisée pour le calcul du pourcentage de l'extrait sec et le pourcentage massique de la conversion des monomères.

$$E_s = \frac{M_{s\grave{e}che}}{M_{solution}} \times 100 \quad (V.1)$$

$$X = \frac{E_s \text{ corrigé} \times M_{totale}}{M_{MMA} + M_{AVc}} \times 100 \quad (V.2)$$

$$X = \frac{M_{polym\grave{e}re}}{M_{MMA} + M_{AVc}} \times 100$$

Tableau V.2 : Conditions expérimentales pour la copolymérisation de MMA/AVc

Quantité	Vitesse d'agitation 200 rpm	
	1 ^{ère} assai à 60°C	2 ^{ème} assai à 70°C
Métacrylate de méthyle (MMA)	150 g	150 g
Acétate de vinyle (AVc)	150 g	150 g
Toluène	1500 g	1500 g
AIBN	6 g	12 g



Figure V.2 : Photo de thermobalance Mettler U16 Moisture Analyzer

V.3.2. Suivi de la réaction

i) *Extrait sec (%)*

Pour mesurer l'extrait sec, on utilise une thermobalance, qui chauffe l'échantillon à 140 °C, et permet d'évaporer l'eau et le monomère qui n'a pas réagi en laissant uniquement le solide, c'est-à-dire le polymère, l'AIBN et le toluène. Pour obtenir l'extrait sec, il suffit simplement de mesurer la masse de la solution mise initialement sur la balance et la masse

sèche finale, puis d'effectuer le calcul l'équation (V.1). Il s'agit du pourcentage de solide que nous avons dans la solution fabriquée.

ii) *Extrait sec corrigé (%)*

On calcul la masse de (*AIBN*+ *Toluène*) dans les prélèvements.

$$M_{(AIBN + Toluène)} = \frac{(M_{AIBN} + M_T)}{M_{Totale}} \cdot M_{solution\ prélevée} \quad (V.3)$$

Ainsi, on obtient la masse sèche corrigé qui est la masse de polymère dans les prélèvements.

$$M_{sèche\ corrigé} = M_{sèche} - M_{(AIBN + Toluène)} \quad (V.4)$$

$$E_{s\ corrigée} = \frac{M_{sèche\ corrigé}}{M_{Totale}} \cdot 100 \quad (V.5)$$

Il s'agit du pourcentage de particules solides de polymère dans la solution.

iii) *Conversion massique (%)*

Elle nous indique l'avancement de la réaction est calculé d'après l'équation (V.2)

V.3.3. Vidange du réacteur

Quand la réaction est terminée, on met le mélange à refroidir puis on verse le contenu du réacteur dans une poubelle des produits toxiques, s'il n'est pas prélevé pour d'autres expériences. Une fois le réacteur vidé, une quantité de toluène pour lavage est introduite pour rincer une première fois en met sous l'agitation pendant 15min ensuite on verse le toluène dans la poubelle des produits toxiques. Plusieurs lavages à l'eau sont ensuite effectués pour nettoyer le réacteur. Il est ensuite vidé, puis on verse une quantité d'eau dans le réacteur.

V.3.4. Résultats des manipulations et exploitation

Pour réaliser le suivi calorimétrique des réactions, nous avons exporté sous Excel les températures du réacteur, de l'entrée et de la sortie de la double enveloppe en prenant une valeur toutes les 10min. l'évolution des températures du réacteur, de l'entrée et de la sortie de la double enveloppe au cours du temps pendant la phase du chauffage est donnée par la Figure V.3 pour le premier essai et par la Figure V.4 pour le deuxième essai.

En Comparant les deux expériences, nous remarquons qu'après 10 min la température augmente plus lentement durant le premier essai. On notera aussi que la température du mélange réactionnel chute au moment du rajout de l'initiateur puis augmente.

Au cours de la copolymérisation, la variation de la température est représentée sur les Figures V.5 et V.6 pour les deux essais.

Les deux figures montrent quelques oscillations dans le profil de température, aussi on observe qu'il n'y a pas une grande différence entre les températures d'entrée et de sortie de la double enveloppe et qui reste pratiquement constante. Les Figures V.7 et V.8 représentent la variation de la conversion en fonction du temps pour les deux essais. Après 5h, la conversion atteint en virant 31 % pour le premier essai, tandis que pour le deuxième, elle est de 48 %. Cette variation est due à l'augmentation de la quantité de l'initiateur et de la température qui rendent la réaction plus rapide (**Henini et al.**, (2012)).

Le suivi hors ligne de la conversion de copolymérisation de *MMA/AVc* a été également étudié par (**Hong Hua et al.**, (2001)) en utilisant la spectroscopie ATR-FTIR. Ils ont trouvé une conversion finale de 60% en poids, mais il ne précise pas le temps d'obtention de cette

valeur de conversion. Nous avons obtenu 48 % pour un temps de réaction de 6 heures qui permet de dire que la méthode gravimétrique est bien adaptée pour le suivi de la conversion.

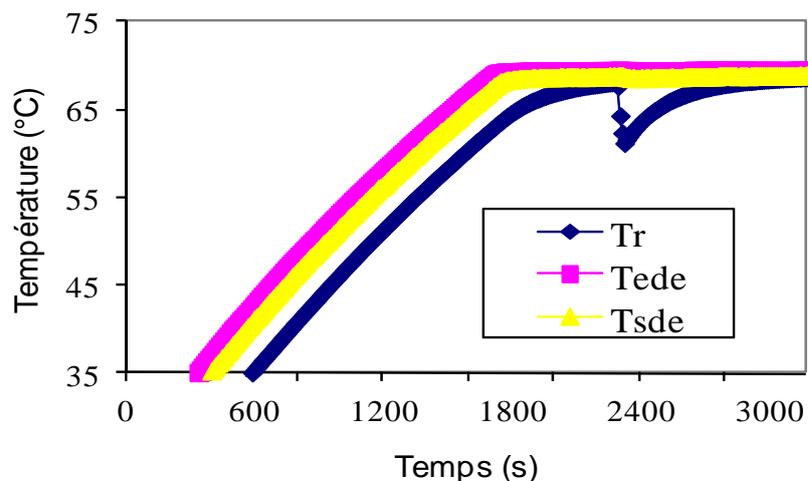


Figure V.3 : Profils de température lors de la phase de chauffage (1^{er} essai)

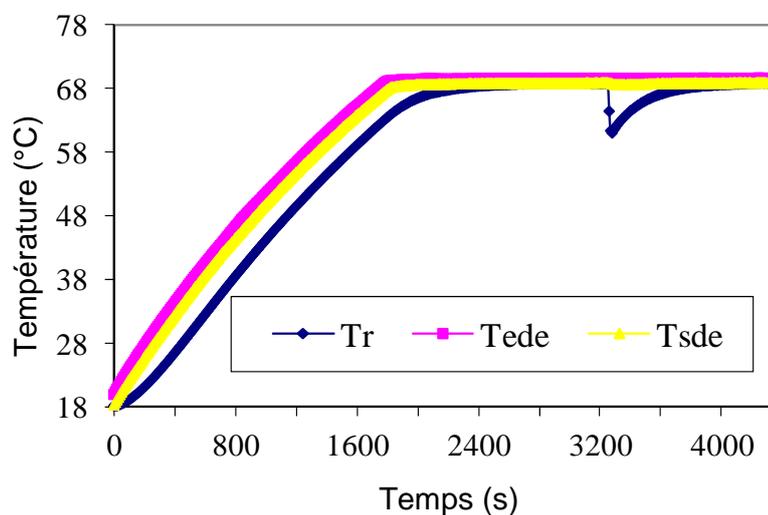


Figure V.4 : Profils de température lors de la phase de chauffage (2^{ème} essai)

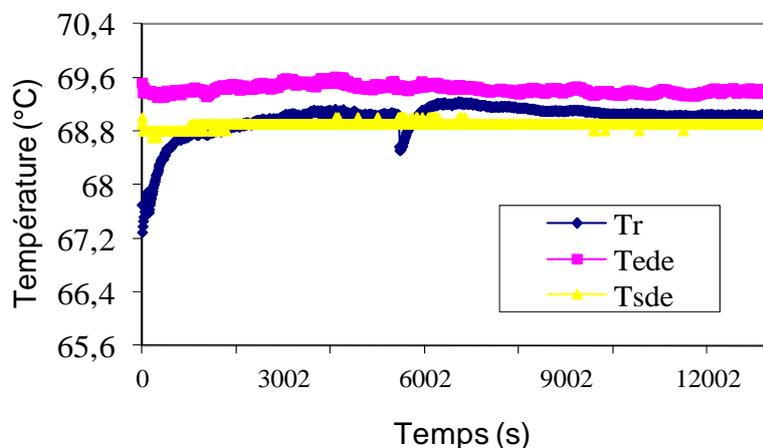


Figure V.5 : Profils de température lors de la copolymérisation (1^{er} essai)

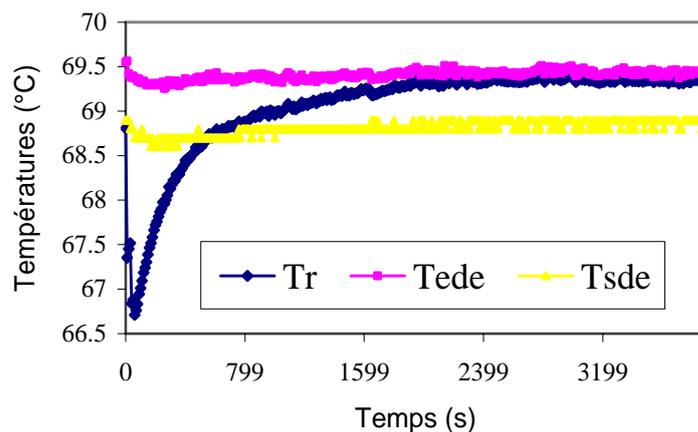


Figure V.6 : Profils de température lors de la copolymérisation (2^{ème} essai)

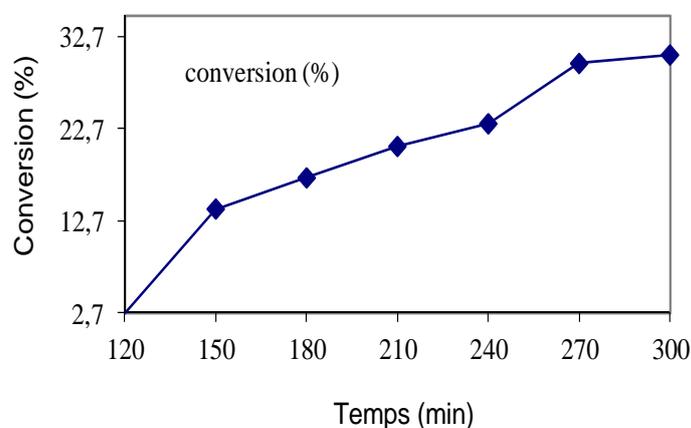


Figure V.7 : Variation de la conversion en fonction du temps (1^{er} essai)

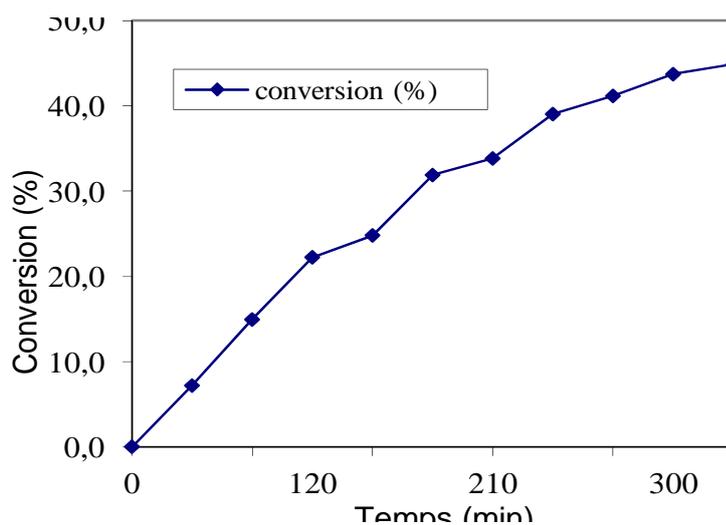


Figure V.8 : Variation de la conversion en fonction du temps (2^{ème} essai)

Pour améliorer la qualité du contrôle des propriétés des polymères tels que la composition des copolymères, il faut être capable de suivre l'avancement d'une réaction de polymérisation en premier lieu, c'est-à-dire suivre des mesures principales telles que les

conversions individuelles des monomères. La chromatographie en phase gazeuse (CPG) a été utilisée hors ligne pour mesurer les conversions individuelles des monomères.

V.4. Chromatographie en phase gazeuse

La chromatographie en phase gazeuse est une technique qui permet de séparer les composés d'un mélange. Elle s'applique à des composés gazeux ou susceptibles d'être vaporisés par chauffage sans décomposition.

Le chromatographe est constitué de plusieurs éléments :

- D'un système d'injection, qui permet d'introduire et de rendre volatil l'échantillon à analyser.
- D'une colonne (dans notre cas il s'agit d'un capillaire), sur laquelle les différentes molécules de l'échantillon injecté se séparent suivant leurs affinités avec la phase stationnaire.
- D'un four, qui contient la colonne et qui permet une programmation ajustable de température.
- D'un système de détection situé en bout de colonne et qui permet de mesurer le signal émis par des différentes molécules.



Figure V.9 : Photo chromatographie en phase gazeuse

L'échantillon est injecté à travers un septum (pastille en caoutchouc) à l'aide d'une microsiringue (on injecte en général une quantité de l'ordre de 0.1 μ l). L'injecteur est à la température de 250 °C, ce qui permet de vaporiser l'échantillon. Ce dernier est ensuite dirigé dans la colonne capillaire (de 15 à 100 mètres), les différents composés ou solutés vont se séparer les uns des autres. Celui qui aura plus d'affinité avec la colonne mettra plus de temps à sortir de la colonne. Chaque composé aura donc un temps de rétention propre (tableau V.3).

Le détecteur utilisé est un *FID* (détecteur à ionisation de flamme). Lorsque les molécules arrivent au niveau de la flamme, elles sont ionisées, ce qui crée un courant électrique entre les électrodes du détecteur, courant qui est ensuite amplifié.

Tableau V.3 : Valeurs du temps de rétention (Henini et al., (2012))

Produits	Temps de rétention (min)
Métacrylate de méthyle (MMA)	2
Acétate de vinyle (AVc)	1.2
Toluène	2.6

i) Essais préliminaires

On vérifie tout d'abord que les deux composés se séparent bien par chromatographie: on met un peu de *MMA* et *AVc* dans le toluène et on injecte ce mélange dans la chromatographie. Les composés apparaissent en principe selon l'ordre de leurs températures d'ébullition. Une bonne vérification est de mettre du *MMA* seul dans le toluène, et identiquement de *AVc* seul dans le toluène afin de contrôler les temps de rétention et donc l'ordre d'apparition des composés.

ii) Etalonnage

Dans un deuxième temps, on réalise les courbes d'étalonnage, afin de relier les masses aux surfaces de pics mesurées. On prépare 10 flacons pour l'étalonnage du *MMA* et 10 flacons pour celui de *AVc*. Dans chacun on veille à toujours introduire la même quantité de solvant ($m = 10$ g de toluène) les quantités de monomères à introduire sont variés.

Un modèle fiable d'étalonnage a été obtenu à partir d'un ensemble des données. La relation entre les masses des monomères et les aires des spectres est donnée par cette expression:

$$\frac{M_{MMA}}{M_{AVc}} = 0.8173 \times \frac{S_{MMA}}{S_{AVc}} - 0.00114 \quad (V.6)$$

Le calcul de la conversion individuelle de chaque monomère est déterminé par cette expression :

$$X_{MMA} = \frac{(M_{MMA \text{ initiale dans le réacteur}} - M_{MMA \text{ calculé}})}{M_{MMA \text{ initiale dans le réacteur}}} \times 100 \quad (V.7)$$

$$X_{AVc} = \frac{(M_{AVc \text{ initiale dans le réacteur}} - M_{AVc \text{ calculé}})}{M_{AVc \text{ initiale dans le réacteur}}} \times 100 \quad (V.8)$$

Un autre modèle d'étalonnage a été établi et ceci a partir d'échantillons prélevé directement du milieu réactionnel, en gardant les mêmes conditions de fonctionnement, (c'est-à-dire, la température initiale et les fractions molaires de *MMA* et *AVc* ont été maintenus les mêmes). Les résultats ont données une courbe d'étalonnage ceci démontre la précision de la méthode.

Chaque spectre est alors traité en vue de fournir une estimation de la conversion. La relation entre les données spectrales et la conversion du monomère a été obtenue grâce au modèle d'étalonnage. La courbe d'étalonnage est donnée en Figure V.10. La conversion individuelle pour *MMA* et *AVc* est représentée par les Figures V.11 et V.12 pour le premier essai et les Figures V.13 et V.14 pour le deuxième. On observe que le taux de conversion pour *MMA* est plus élevé par rapport *AVc* qu'on peut expliquer par le fait que le *MMA* est beaucoup plus réactif que *AVc* selon les taux de réactivité que nous avons trouvé : $r_{MMA} = 26$ et $r_{AVc} = 0.0319$ (Henini et al., (2012)). La littérature (Scorah et al., (2001)) donne pour ces taux : $r_{MMA} = 24.025$ et $r_{AVc} = 0.026$.

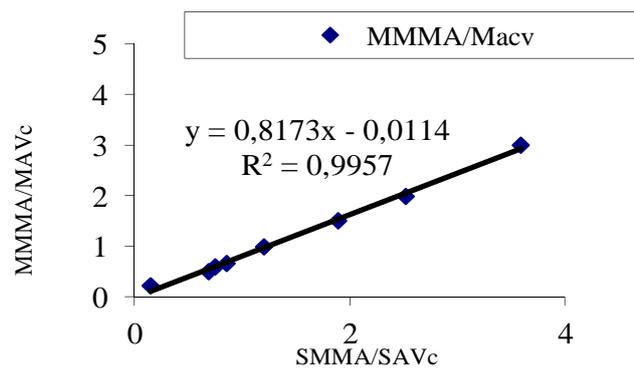


Figure V.10 : Courbe d'étalonnage en chromatographie.

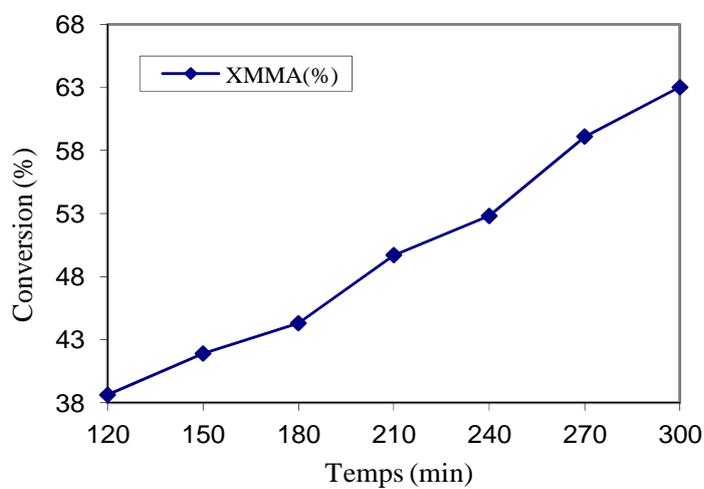


Figure V.11 : Variation de la conversion en fonction du temps pour MMA (1^{er} essai).

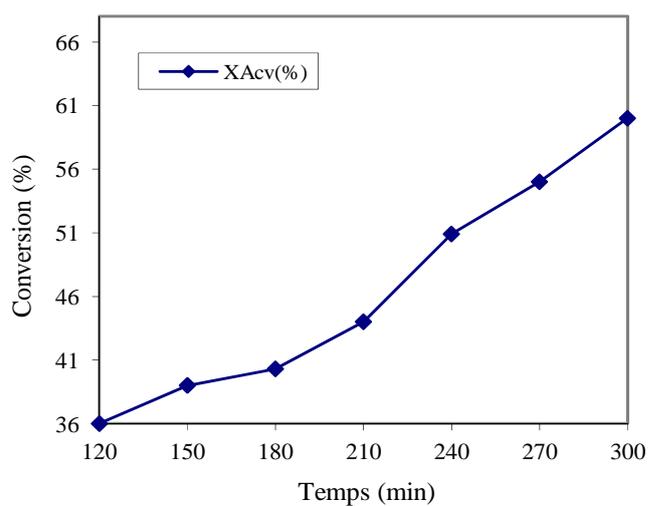


Figure V.12 : Variation de la conversion en fonction du temps pour AVc (1^{er} essai).

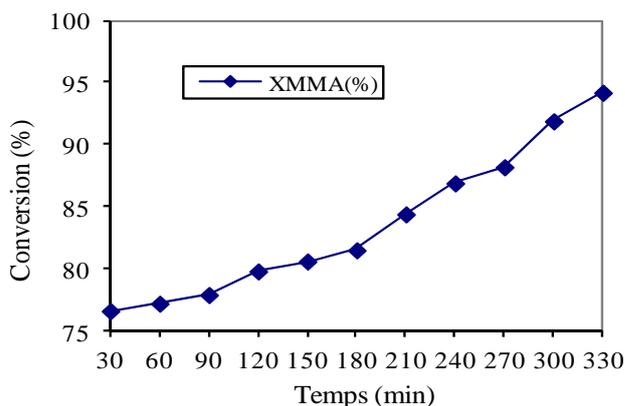


Figure V.13 : Variation de la conversion en fonction du temps pour MMA (2^{ème} essai).

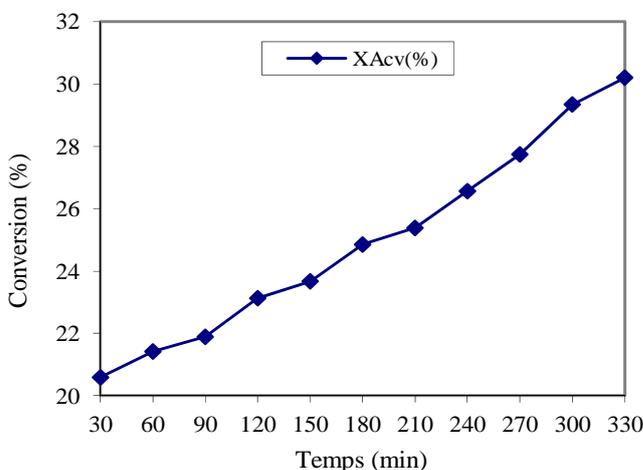


Figure V.14 : Variation de la conversion en fonction du temps pour AVc (2^{ème} essai).

V.5. Conclusion

La présente étude a démontré que les techniques gravimétrique et chromatographique (CPG) peuvent être appliquées pour contrôler les réactions de copolymérisation en solution dans un réacteur calorimétrique.

Les résultats obtenus à partir du contrôle hors ligne de copolymérisation en solution MMA/AVc sont bien adaptés pour le suivi de la réaction de polymérisation et le contrôle de la température du réacteur.

Les données acquises par CPG montrent une bonne concordance avec celles provenant de la gravimétrie. Les résultats obtenus montrent que cette technique de mesure hors ligne permet d'améliorer le processus de polymérisation en faisant varier les différents paramètres de fonctionnement du procédé de production.

Ce travail peut être poursuivi en faisant intervenir d'autres techniques telles que la spectrométrie pour l'étude en ligne et la surveillance de la copolymérisation en solution.

CONCLUSION GENERALE

La conduite thermique des réacteurs discontinus représente un enjeu important pour l'industrie chimique. En effet, d'une maîtrise rigoureuse de la température dépend souvent le bon déroulement de la réaction ou de l'opération (cristallisation, extraction,...) réalisée et donc l'obtention des produits aux qualités requises.

Il est bien établi que les performances de la régulation dépendent fortement du système de chauffage/refroidissement qui équipe le réacteur et donc de sa pilotabilité. Dans le cas des réacteurs discontinus équipés d'un système de chauffage/refroidissement multifluide, la gestion alternée des fluides caloporteurs, introduit des discontinuités préjudiciables à la qualité de la conduite thermique. Dans ce travail, nous avons considéré la mise en place d'un système mono-fluide.

La variation de la dynamique des réacteurs discontinus rend leur conduite complexe. Le système de régulation doit prendre en compte cette variation. L'emploi de régulateurs classiques tels que les PID n'est donc pas adapté à ces procédés fortement dynamiques, bien que ces régulateurs soient largement utilisés dans le domaine de l'industrie chimique. L'élaboration d'un système de régulation, robuste et performant, peut améliorer considérablement la conduite thermique des réacteurs.

Ce travail s'inscrit donc dans le cadre de la conduite thermique des réacteurs discontinus polyvalents utilisés dans l'industrie de chimie fine et de spécialités, de polymère. L'étude menée dans cette thèse a pour objet de mettre en œuvre une technique de commande prédictive dans le cas de réacteurs équipés d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide. Ce mémoire présente un ensemble d'études réalisées en simulation et en expérimentalement sur le réacteur batch.

Le dispositif expérimental est équipé d'un système de chauffage/refroidissement mono-fluide. Ce système utilise un seul fluide caloporteur pour le chauffage et le refroidissement du contenu du réacteur. Le chauffage et le refroidissement sont assurés par l'implantation sur le circuit thermique d'un crayon chauffant et de deux échangeurs de chaleur de capacités de refroidissement différentes.

La première partie de ce travail, a été consacrée au développement d'un simulateur dynamique pour le réacteur et son environnement thermique. La modélisation concerne d'une part le réacteur et sa double enveloppe et d'autre part les différents appareils thermiques et les conduites qui permettent la circulation du mono-fluide.

L'écriture d'un simulateur est très importante car d'une part, il permet d'économiser les expériences, et d'autre part il sera un outil important et même essentiel de travail pour étudier le problème lié à la politique de commande à adopter.

La validation de ce simulateur a été réalisée premièrement en boucle ouverte pour des échelons de chauffage et de refroidissement. Nous avons réalisé deux opérations :

- L'étude du comportement thermique du mélange réactionnel pendant le chauffage et le refroidissement pour l'eau comme milieu réactionnel. Les résultats obtenus montrent que le simulateur reproduit fidèlement le comportement réel du procédé (écart 5%) avec l'expérience.

La deuxième opération consiste à introduire des réactions chimiques de synthèse du cyclopentane-1,2-diol à partir du cyclopentadiène dans le réacteur et étudier le rendement de ces réactions lors des simulations de chauffage et de refroidissement du mélange réactionnel. Dans cette validation on a pris deux types d'opérations

Conclusion générale

- Simulation avec coulée.
- Simulation sans coulée.

Les résultats montrent que :

- Le chauffage du mélange réactionnel augmente de façon significative le rendement de cette réaction de synthèse.
- Les réactions sont plus rapides par simulation de chauffage sans coulée par rapport à la simulation de chauffage avec coulée de réactif.
- L'absence de la réaction intermédiaire qui est due à la conversion totale du cyclopentadiène en cyclopentanol.
- La comparaison des températures pour les trois cas (T_r à 57 °C, T_r à 77 °C et T_r pour différentes charge) montre que le bon rendement accompagne le maximum le plus élevé de température à cause de la grande quantité de chaleur dégagée lors de la deuxième réaction.

Cette synthèse illustre l'intérêt de la simulation numérique pour la conduite des réacteurs discontinus. En effet, elle permet de déterminer les conditions opératoires sûres qui maximisent la productivité (rendement) qui justifient des essais de simulation avant d'entreprendre une synthèse industrielle.

La validation du simulateur a permis donc de poursuivre l'étude, c'est-à-dire d'une part de simuler les exemples effectués et de vérifier que l'on retrouve le même comportement que dans la réalité, et d'autre part d'utiliser ce simulateur pour étudier le comportement du système auquel on impose une nouvelle loi de commande.

La deuxième partie a été consacrée au développement d'une stratégie de supervision pour la gestion thermique des appareils. Cette stratégie est basée sur la gestion des flux thermiques, développée par (**Louleh**, (1996)). Le principe consiste à calculer en ligne les flux thermiques limites pour le mono-fluide lors de son passage dans les différents appareils, ce qui permet ensuite de choisir l'appareil adéquat en fonction de la valeur du flux calculée par le régulateur.

Pour calculer la variable de contrôle, nous avons mis en œuvre la commande prédictive fonctionnelle (*CPF*), technique de régulation conçue par **Richalet**, (1993). Dans ce cas, nous avons utilisé une structure de régulation en cascade. Au niveau de régulation "1" deux régulateurs sont utilisés, un pour calculer le flux thermique (U_q) qui joue le rôle du superviseur (changement d'appareils thermiques) et un autre pour calculer la température de la double enveloppe qui sert de consigne (*Ticons*) pour la sortie de la boucle esclave (niveau de régulation "0"). A ce niveau "0", trois régulateurs esclaves sont utilisés pour piloter la température du mono-fluide, un au niveau du crayon chauffant en régulant la puissance de chauffe et au niveau des échangeurs de chaleur en régulant le débit du mono-fluide.

L'application de la commande prédictive (*CPF*) pour la conduite thermique sans réaction chimique, nous avons remarqué que la température du mélange réactionnel suit bien la consigne imposée quel que soit le profil utilisé lorsqu'un ajustement correct de la consigne est introduit par la procédure d'accostage.

Nous avons également noté une évolution très stable du flux thermique calculé par le superviseur PFCM, qui intervient pour superviser les appareils thermiques. On obtient également une évolution très progressive de la consigne calculée par le régulateur PFC1 qui a permis d'avoir une évolution des températures du mono-fluide à l'entrée et à la sortie de la

Conclusion générale

double enveloppe sans oscillations. Globalement les résultats obtenus en simulation sont satisfaisants et montré l'apport positif de la régulation en cascade.

Nous avons aussi réalisé à l'aide du simulateur des études de sensibilité sur les paramètres de réglage pour les régulateurs (PFC1 et PFCM).

En ce qui concerne la conduite thermique de la réaction exothermique de neutralisation, les résultats obtenus ont montré que la prise en compte de la présence d'une réaction chimique dans le modèle interne du régulateur, permet d'avoir une très bonne conduite thermique à condition d'avoir des coefficients relativement bien estimés.

Même si l'utilisation des réacteurs reste polyvalente, les réactions mises en jeu ont déjà fait l'objet d'un certain nombre d'études et on peut considérer comme réaliste l'hypothèse d'une connaissance à moins de 25 % du dégagement thermique, ce qui permet d'éviter un dépassement excessif de la température de consigne.

La présente étude a démontré aussi que les techniques gravimétrique et chromatographique (*CPG*) peuvent être appliquées pour contrôler les réactions de copolymérisation en solution dans un réacteur calorimétrique.

- La conversion de copolymérisation de *MMA/AVc* est de 48 % pour un temps de réaction de 6 heures qui permet de dire que la méthode gravimétrique est bien adaptée pour le suivi de la conversion.

- Le taux de conversion pour *MMA* est plus élevé par rapport *AVc* qu'on peut expliquer par le fait que le *MMA* est beaucoup plus réactif que *AVc* selon les taux de réactivité: $r_{MMA} = 26$ et $r_{AVc} = 0.0319$.

Les données acquises par *CPG* montrent une bonne concordance avec celles provenant de la gravimétrie. Les résultats obtenus montrent que cette technique de mesure hors ligne permet d'améliorer le processus de polymérisation en faisant varier les différents paramètres de fonctionnement du procédé de production.

Ce travail peut être poursuivi en faisant intervenir d'autres techniques telles que la spectrométrie pour l'étude en ligne et la surveillance de la copolymérisation en solution.

En conclusion, nous pouvons dire que la conduite thermique d'un réacteur discontinu avec un environnement thermique mono-fluide reste un problème difficile à maîtriser. La difficulté provient de la diversité des dynamiques des appareils thermiques, puisque c'est elle qui conditionne l'efficacité de la conduite. A ce sujet, les résultats obtenus avec *CPF* ont bien montré l'intérêt d'une commande en cascade avec régulateurs esclaves pour gérer la dynamique des appareils.

- Les stratégies de conduite développées dans le cadre de ce travail peuvent être facilement adaptées à des réacteurs de taille industrielle. En ce qui concerne la méthodologie (avec *CPF*), il faudra passer par une phase préalable d'identification des modèles.
- En ce qui concerne le modèle physique du réacteur, il est important de valider son comportement pour les fluides caloporteurs disponibles.
- La validation expérimentale du système de conduite (régulation et supervision) est un élément essentiel dans la recherche d'une meilleure automatisation du réacteur.
- Étude d'autres politiques de fonctionnement de système thermiques (échangeurs en série, crayon chauffant indirect, ...).

REFERENCES BIBLIOGRAPHIE

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Abel, O., Marquardt, W., "Scenario-integrated on-line optimization of batch reactors", *Journal of Process Control*, 13 (2003) 703-715.

Arpornwichanop, A., Kittisupakorn, P., Mujtaba, I.M., "On-line dynamic optimization and control strategy for improving the performance of batch reactors", *Chemical Engineering and Processing*, 44 (2005) 101-114.

Astolfi, A., Karagiannis, D., Ortega, R., "Nonlinear and adaptive control with applications", London: Springer-Verlag, (2008).

Balland, L., Alexandrova, S., Cosmao, J. M., Estel, L., Mouhab, N., "Determination of kinetic and Energetic Parameter of Chemical Reactions in Heterogeneous Liquid/Liquid System". *Chemical Engineering Technology*, 22 (1999) pp.321-324.

Baltussen, E.M.P.B., "Thermal control of chemical batch reactors with Predictive Functional Control". (Rapport de stage), (1995).

Bányász, Cs., Keviczky, L., "A Simple PID regulator applicable for a class of factorable nonlinear plants", in *Proc. American Control Conference*, Anchorage, Alaska, (2002) pp. 2354-2359.

Berber, R., "Control of batch reactors", a review, in: R. Berber (Ed.), *Methods of Model Based Process Control. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht*, (1995) pp. 459-493.

Bondy F., Lippa S., "Heat transfer in agitated jacketed vessels", *Chemical Engineering*, (1983) April, pp.62-71.

Bouhenchir, H., "Mise en œuvre de la commande prédictive pour la conduite thermique d'un réacteur discontinu équipé d'un système mono-fluide". *Thèse de Doctorat, ENSIGC de Toulouse, France* (2000).

Bouhenchir, H., Cabassud, M., Le Lann, M.V., "Predictive functional control for the temperature control of a chemical batch reactor", *Computers and Chemical Engineering*, 30 (2006) 1141-1154.

Bouhenchir, H., Cabassud, M., Le Lann, M.V. and Casamatta G., "A general simulation model and a heating/cooling strategy to improve controllability of batch reactors", *Trans IChemE*, 79, Part A, September (2001).

Bourne, J. R., "Heat transfer and power measurement in stirred tanks using heat flow calorimetry", *Chemical Engineering Science*, 36 (1981) pp.347-354.

Bourebba, O., "Commande prédictive floue des systèmes non linéaires", *Thèse de Doctorat en Sciences*, université de Mentouri de Constantine, Département d'Electronique (2011).

Buonopane R. A., Troupe R. A. et Morgan J. C. "Heat transfer design method for plate heat exchangers". *Chemical Engineering Progress*, 59 (7) (1963) pp.57-61.

Carloff, R., Prob, A., Rechert, K., "Temperature Oscillation Calorimetry In Stirred Tank Reactor With Variable Heat Transfer", *Chemical Engineering Technology*, 17 (1994) pp. 406-410.

Carl, L. Yaws, " Yaws' Handbook of thermodynamic and physical properties of chemical compounds: Physical, Thermodynamic and Transport properties for 5000 organic chemical compounds", McGraw-Hill, 2003

Campo P. et al. "Combined effects of simultaneous exposure to toluene and ethanol on auditory function in rats", *Neurotoxicology and Teratology*; 20 (1998) 321-332.

Cezerac, J., "Conduite thermique d'un réacteur discontinu par la pression du ciel gazeux", *Thèse de Doctorat, ENSIGC de Toulouse, France* (1995).

Corriou, J.P., "Commande des procédés". Génie des Procédés de l'école de Nancy, édition Lavoisier, (1996).

Cluett, W. R., Shah, S. L., Fischer, D. G., "Adaptive control of a batch reactor". *Chemical Engineering Communications*, 38 (1985), pp. 67-78.

Chilton, T.H., Drew, T.B., Jebens, R.H., "Heat transfer coefficients in agitated vessels". *Industrial Engineering Chemical*, 36 (6) (1944), pp. 510-516.

Chylla, R. W., Haase, D. R., "Temperature control of semi-batch polymerization reactors", *Computer Chemical Engineering*, vol.17 (3) (1993), pp.257-264.

Clarke-Pringle, T., Macgergor, J. F. "Nonlinear adaptive temperature control of multi-product, semi-batch polymerization reactors", *Computer Chemical Engineering*, 2 (12) (1997), pp. 1395-1409.

Cheik-Ali, A., Petit, A., Alléguède, F., Porte, C., Arnoult, C., Delacroix, A. "Un pilote chimique polyvalent automatisé", *Informations chimie* (308), Août/Septembre, pp.207-210 (1989).

Defaye, G., Regnier, N., Chabanon, J., Caralp, L., Vidal, C. "Adaptive Predictive Temperature Control Of semi-batch Reactors", *Chemical Engineering Science*, 48 (1993) 3373-3377.

Dirion, J. L., Etedgui, B., Cabassud, M., Le Lann, M.V., Casamatta, G. "Elaboration of a neural network system for semi-batch reactor temperature control: an experimental study", *Chemical Engineering And Processing, URA CNRS 192* (1995) 225-228.

Dostál, P., Vojtěšek, J., Bobál, V., "Simulation of adaptive control of a continuous stirred tank reactor", in *Proc. 23rd European Conference on Modeling and Simulation, ECMS 2009, Madrid, Spain*, pp. 625-630 (2009).

Dostál, P., Bobál, V. and Gazdoš, F., "Adaptive control of nonlinear processes: Continuous-time versus delta model parameter estimation", in *IFAC Workshop on Adaptation and Learning in Control and Signal Processing ALCOSP 04, Yokohama, Japan*, (2004) 273-278.

Dostál, P., Bobál, V. and Gazdoš, F., "Simulation of nonlinear adaptive control of a continuous stirred tank reactor", *International journal of mathematics and computers in simulation*, 5(4), (2004) 370-377.

El Basri Hassan, "Commande prédictive fonctionnelle d'un réacteur batch discontinu estimateur dynamique d'enthalpie", (Rapport de stage) (1997).

Ernst E.F.H., "First Principal Modeling and Predictive Functional Control of enthalpy Processes", Delft University of technology. (Rapport de stage) (1996).

Ettegui, B., "Commande prédictive non linéaire des réacteurs discontinus de chimie fine", *Thèse de Doctorat, ENSIGC de Toulouse, France* (1999).

Esposito, M., Sayer, C., Machad, R.A.F., Araújo, P.H.H., "Application of calorimetry technique to estimate conversion of polymerization reactions in a standard Lab-Scale reactor", *Macromol. Symp.*, (2006) 245-246, 390-397; DOI: 10.1002/masy.200651354.

Fan, S., Alpay, E., "Calorimetric estimation for a batch-loop emulsion polymerization reactor", *Chemical Engineering Science*, 59 (2004) 2811-2815.

Friedrich, M. Perne, R., "Design and control of batch reactors: an industrial viewpoint", *Computer Chemical Engineering*, 19 (1995), pp. S357-S368.

Fletcher, P., "Heat transfer coefficients for stirred batch reactor design", *Chemical Engineer*, (1987) April, pp. 33-37.

Gaudy, A. M., "Conduite automatique et simulation d'un réacteur discontinu de développement industriel à système de chauffage/refroidissement par mono-fluide", *Thèse de Doctorat, ENSIGC, INP de Toulouse, France* (1992).

Gentilcore, M. J., "Estimate heating and cooling times for batch reactors", *Chemical Engineering Progress March*, (2000) 41-45.

Gentric, C., Pla, F., Latifi, M. A., Corriou, J. P. "Optimisation and non-linear control of batch emulsion polymerization reactor", *C.E.J.*, 75 (1999) 31-36.

Georgiadis, M. C., Rotstein, G. E., Macchietto, S. "Modeling and Simulation of Shell and Tube Heat Exchangers under Milk Fouling", *AIChE Journal*, 44(4) (1998), pp. 959-960.

Graichen, K., Hagenmeyer, V., Zeitz, M., "Feedforward control with online parameter estimation applied to the Chylla-Haase reactor benchmark", *Journal of Process Control*, 16 (2006), 733-745.

Guillot J.P. et al. "Evaluation of the cutaneous-irritation potential of 56 compounds", *Food and Chemical Toxicology*; 20 (1982): 563-572.

Guillot J.P. et al. "Evaluation of the ocular-irritation potential of 56 compounds", *Food and Chemical Toxicology*; 20 (1982): 573-582.

Henini, G., Souahi F. Laidani, Y. "Development of a simulation model for controlling and improving the productivity of batch reactors". Polish Journal of chemical Technology, 15, 1, 78 – 87, 10.2478/pjct-2013-0014.

Henini, G., Souahi F. Laidani, Y. "Polymerization of Methyl Methacrylate / Vinyl Acetate in Toluene in a Reactor Calorimeter". Procedia Engineering 33 (2012) 225 – 233

Henini, G., Souahi F. Laidani, Y. "Methodology of Supervision by Analysis of Thermal Flux for Thermal Conduction of a Batch Chemical Reactor Equipped with a Mono-fluid Heating/Cooling System". Hindawi Publishing Corporation. Modelling and Simulation in Engineering, Volume 2012, Article ID 764614, 10 pages. doi:10.1155/2012/764614

Hong Hua, Dubé M. A., "Off-line monitoring of butyl acrylate, methyl methacrylate and vinyl acetate homo- and copolymerizations in toluene using ATR-FTIR spectroscopy", Polymer Journal; 42 (2011) 6009-6018

Huba, M., Ondera, M., "Simulation of nonlinear control systems represented as generalized transfer functions", in Proc. European Control Conference 2009, Budapest, Hungary, pp. 1444-1449 (2009).

Ioannou, P., Fidan, B., "Adaptive control tutorial", Philadelphia: SIAM (2006).

Jarupintusophon, P., "Conduite automatique des réacteurs semi continus à l'aide d'un algorithme de commande prédictive et adaptative intégrant un modèle de connaissance", *Thèse de Doctorat, ENSIGC, INP de Toulouse* (1992).

Josep, A., Feliu Iban Grau, Miquel, A. Alos, Jose J. Macias-hernandez "Match Your Process Constraints Using Dynamic Simulation", *Information Technology C.E.P*, December, pp 42-43 (2003).

Juba, M. R., Hammer, J. W., "Progress and challenges in batch process control", Proceeding, CPC III. CACHE, Elseiver, Amesterdam (1986).

Jutan, A., Uppal, A., "Combined feedforward-feedback servo control scheme for an exothermic batch reactor", *Industrial Engineering Process Design. Dev.*, 23(3) (1984) 597-602.

John J. Marano, et John L. Jechura, "Analysis of Heat Transfer in Plate Exchangers", *AICHE Symposium Series*, 81(245) (1985) 116-120.

Kanatas, A., Porte, C., Delacroix, A., et Le Guen, Y., "Le réacteur discontinu ou semi continu répétitif", *Information Chimie*, Novembre, N°288, pp. 233-237 (1987).

Kern, D. Q., "Process heat transfer", *Mc Graw-Hill*, pp 103 (1950).

Kiparissides, C., Shah, S. L., "Self-Tuning and Stable Adaptive Control of Batch Polymerization Reactor", *Automatica*, 19 (1983) 225-235.

Références bibliographiques

Kubalcik, M., Bobal, V., "Self – Tuning Control of Continuous – Time Systems", *Wseas Transactions on Systems and Control*, 5 (2010) 803-813.

Louleh, Z., (1996)

"Modélisation et conduite des réacteurs discontinues par analyse des flux thermiques", *Thèse de Doctorat, ENSIGC, INP de Toulouse, France.*

Legat, V., "Mathématiques et méthodes numériques", Université catholique de Louvain, faculté des sciences appliquées, Edition 2004.

Le Lann, M. V., Cabassud, M., Casamatta, G., "Adaptive model predictive control", in: R. Berber (Ed.), *Methods of Model Based Process Control*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, (1995) 426-458.

Liptak, B. G., "Controlling and optimizing Chemical Reactors", *Chemical Engineering*, May 26 (1986) 69-81.

Linda, R. Petzold, Alan C. Hindmarsh, "Lsodar Livermore Solver for Ordinary Differential Equations", *Applied Mathematics, SANDIA National Laboratories Livermore*, version 07 Mai 1982.

Machado, R. A. F. , Bolzan, A. "Control of batch suspension polymerization reactor", *C.E.J.*, 70 (1998), pp. 1-8.

Marroquin, G. et Luyben, W. L., "Experimental Evaluation of Nonlinear Cascade Controllers for Batch Reactors", *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 11(4) (1972), pp. 552-556.

Matusu, R., Prokop, R., "Experimental verification of design methods for conventional PI/PID controllers", *Wseas Transactions on Systems and Control*, 5 (2010) 269-280.

Mezghani, M., "Commande Prédictive et par Apprentissage Itératif appliqué à la conduite thermique d'un réacteur chimique discontinue", *Thèse de Doctorat, ENSIGC de Toulouse, France* (1999).

Mellan Ibert

"Industrial Solvents", *Handbook, Second Edition Noyes Data Corporation U. S. A.*, pp.235-345 (1977).

Özkan, G., Hapoglu, H., Alpbaz, M., "Non- linear generalized predictive control of a jacketed well mixed tank as applied to a batch process: A polymerization reaction", *Applied Thermal Engineering*, 26 (2006) 720-726.

Pingaud, H., "Simulation statique et simulation dynamique des échangeurs à plaques brasées", *Thèse de Doctorat, ENSIGC, INP de Toulouse* (1988).

Preuß, K., "Commande Prédictive Fonctionnelle PFC d'un réacteur discontinu équipé d'un système de chauffage / refroidissement par mono-fluide", (Rapport de stage) (1996).

Références bibliographiques

Rafalimanana, C.A., "Contribution à la modélisation des cinétiques réactionnelles, à la simulation et à la conduite thermique des réacteurs de chimie fine", *Thèse de Doctorat, ENSIGC, INP de Toulouse* (1990).

Richalet, J., "Pratique de la commande prédictive", Paris, Hermes (1993).

Robert F., Dream P. E., "Heat transfer in agitated jacketed vessels", *Chem. Eng.*, (1999) 90-96.

Sheibat Othman, N., Févotte, G., McKenna, T. F., "Biobjective control of emulsion polymerizations: control of the polymer composition and the concentration of monomer in the polymer particles", *Chemical Engineering Journal*, 98 (2004) 69-79.

Spiegel, M. R. "Formules et tables de mathématique", *Mc Gaw-Hill, Serie Schaum*, pp. 9 (1974).

Solente, P., "Modélisation et commande prédictive par PFC de la thermique d'un réacteur batch", ADERSA, Verrières-le-Buisson (Rapport de stage) (1995).

Scorah M J., Hua H, Dubé M. A. "Bulk and solution copolymérisation of methyl methacrylate and vinyl acetate", *J Applied Polymer Science* (2001).

Tzouanas, V. K., Shah, S. L., "Adaptive pole-assignment Control of batch polymerization reactor", *Chemical Engineering Science*, 44(5) (1989), pp. 1183-1193.

Tyner, D., Soroush, M. "Adaptive Temperature Control of Multiproduct Jacketed Reactors", *Industrial Engineering Chemical Research*, 38 (1999), pp. 4337-4344.

Watson, E. L, Mc Killop, A. A., Dunkley, W. L., Perry, R. L. "Plat Heat Exchangers", *Industrial Engineering Chemical*, 52(9) (1960), pp.733-737.

Xaumier, F., "Application expérimentale de la commande non linéaire sur un réacteur chimique discontinu avec estimation en ligne de la chaleur réactionnelle", *Thèse de Doctorat, ENSIGC de Toulouse, France* (1999).

Yaws C. L. "Physical Properties: A guide to the physical, thermodynamic and transport property data of industrially important chemical compounds", *Chemical Engineering*, McGaw-Hill, (1977) pp.212-226.

http://risk.lsd.ornl.gov/tox/rap_toxp.shtml

"Toxicity summary for toluene", Toxicity profiles, Risk Assessment Information System; 1994. Consultable sur le site

ANNEXES

Annexe 1. Détermination des propriétés physiques et thermodynamiques de l'eau et de l'éthylène glycol à 50% et calcul des coefficients de transfert de chaleur

Annexe 2. Propriétés des produits chimiques et la partie calibration

Annexe 1. Détermination des propriétés physiques et thermodynamiques de l'eau et de l'éthylène glycol à 50% et calcul des coefficients de transfert de chaleur

1. Propriétés physiques de l'eau

Nous avons calculé les propriétés physiques de l'eau suivant les corrélations données par (Yaws, (1977)).

❖ **La masse volumique**

La masse volumique ρ (kg.m^{-3}) de l'eau est donnée par la corrélation suivante :

$$\rho = 10^{-3} \left(0.3471 \cdot 0.2740^{-\left(\frac{1-T}{374.2}\right)^{\frac{2}{7}}} \right) \quad (1.1)$$

❖ **La chaleur spécifique**

La chaleur spécifique C_p ($\text{kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$) de l'eau est donnée par la corrélation suivante :

$$C_p = 4.18 \cdot (0.6741 + 2.825 \cdot 10^{-3} \cdot T - 8.371 \cdot 10^{-6} \cdot T^2 + 8.601 \cdot 10^{-9} \cdot T^3) \quad (1.2)$$

❖ **La viscosité**

La viscosité μ ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$) de l'eau est donnée par la corrélation suivante :

$$\mu = 10^{-3} \cdot e^{\frac{10.73+1.828}{(T+273.15)} + 1.966 \cdot 10^{-2} \cdot (T+273.15) - 14.66 \cdot 10^{-6} \cdot (T+273.15)^2} \quad (1.3)$$

❖ **La conductivité thermique**

La conductivité thermique λ ($\text{kJ.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{K}^{-1}$) de l'eau est donnée par la corrélation suivante :

$$\lambda = 4.18 \cdot 10^{-7} \left(-916.62 + 12.5473 \cdot (T + 273.15) - 152.12 \cdot 10^{-4} \cdot (T + 273.15)^2 \right) \quad (1.4)$$

2. Détermination des propriétés thermodynamiques de l'éthylène glycol à 50%

Le mono-fluide est un mélange éthylène glycol/eau à 50% en poids. Pour évaluer les propriétés physico-chimiques de ce mono-fluide en fonction de la température à partir des données de la littérature (Mellan Ibert, (1977)) :

2.1. Chaleur spécifique en $\text{kcal.kg}^{-1}.\text{°C}^{-1}$ ou en $\text{Btu.lb}^{-1}.\text{°F}^{-1}$

L'évolution de la chaleur spécifique en fonction de la température est donnée par la relation liant la chaleur spécifique à la température du fluide caloporteur :

$$C_p = 0.75919 + 5.5393 \cdot 10^{-4} \cdot T \quad (1.5)$$

Avec :

C_p : Chaleur spécifique en ($\text{kcal.kg}^{-1}.\text{°C}^{-1}$) ;

T : Température du fluide caloporteur (°C)

2.2. Masse volumique en kg.m^{-3}

La relation liant la masse volumique à la température du fluide caloporteur :

$$\rho = 10^{-3} \left(1.0833 - 3.1522 \cdot 10^{-4} \cdot T \right) \quad (1.6)$$

Avec :

ρ : Masse volumique en (kg.m^{-3}) ;

T : Température du fluide caloporteur ($^{\circ}\text{C}$)

2.3. Viscosité en $\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$

L'évolution de la viscosité dynamique en fonction de la température est donnée par la relation suivante :

$$\mu = 114.07 \cdot e^{(-0.031179 \cdot T)} \quad (1.7)$$

Avec :

T : Température du fluide caloporteur ($^{\circ}\text{C}$) ;

μ : Viscosité dynamique en ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$)

2.4. Conductivité thermique en $\text{kcal.m}^{-1}.\text{s}^{-1} \cdot ^{\circ}\text{C}^{-1}$

La relation liant la conductivité thermique à la température du fluide caloporteur :

$$\lambda = \left(104.61 + 3.71 \cdot 10^{-2} \cdot T \right) \cdot 10^{-6} \quad (1.8)$$

Avec :

T : Température du fluide caloporteur ($^{\circ}\text{C}$) ;

λ : Conductivité thermique ($\text{kcal.m}^{-1}.\text{s}^{-1} \cdot ^{\circ}\text{C}^{-1}$).

3. Calcul des coefficients de transfert de chaleur

3.1. Coefficients d'échange globaux pour le réacteur et sa double-enveloppe

Trois coefficients d'échange globaux sont liés au transfert thermique à travers la paroi du réacteur : $U_{r,pr}$ (milieu réactionnel - paroi du réacteur) ; $U_{pr,ext}$ (paroi du réacteur - milieu extérieur) et $U_{pr,fc}$ (paroi du réacteur – mono-fluide). Deux autres sont liés au transfert thermique à travers la paroi de la double-enveloppe : $U_{fc,pde}$ (paroi de la double-enveloppe – mono-fluide) et $U_{pde,ext}$ (paroi de la double-enveloppe -milieu extérieur).

Les coefficients globaux, concernant les pertes thermiques avec le milieu extérieur, $U_{pr,ext}$ et $U_{pde,ext}$, sont estimés expérimentalement pour les conditions opératoires utilisées (**Bouhenchir**, (2000)).

Le calcul des coefficients globaux d'échange thermique fait intervenir les notions de conservation du flux thermique en régime permanent. Ils sont définis par rapport à une surface d'échange de référence (surface interne).

3.1.1. Calcul du coefficient d'échange milieu réactionnel - paroi du réacteur

Pour calculer le coefficient d'échange thermique entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur, nous avons utilisé la correction, donnée par (**Chilton et al.**, (1944)), dans le cas du transfert thermique dans une cuve agitée entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur en négligeant la résistance thermique provoquée par un éventuel encrassement des parois. Dans ce cas, le coefficient $U_{r,pr}$ est calculé par la relation suivante :

$$\frac{1}{U_{r,pr}} = \frac{1}{h_{int}} + \frac{e_{pr}}{\lambda_{pr} \left(\frac{A_{r,fc}}{A_{r,pr}} \right)} \quad (1.9)$$

Avec :

$A_{r,fc}$: Surface d'échange qui représente une moyenne arithmétique entre $A_{r,pr}$ et $A_{fc,pr}$ (m^2) ;

e_{pr} : Epaisseur de la paroi du réacteur (m) ;

h_{int} : Coefficient d'échange entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur ($KJ/m^2 \text{ s K}$) ;

λ_{pr} : Conductivité thermique de la paroi du réacteur supposée constante dans le domaine de température utilisé ($kJ/m \text{ s K}$) ;

$\frac{e_{pr}}{\lambda_{pr}}$: Résistance au transfert thermique à travers la paroi du réacteur ($m^2 \cdot s \cdot K \cdot kJ^{-1}$).

La relation donnant une estimation du coefficient local d'échange, h_{int} , fait intervenir la nature de l'agitateur (**Fletcher**, (1987)). Ce coefficient est calculé suivant la relation :

$$h_{int} = \left(\frac{\lambda_r}{D_{ipr}} \right) Nu \quad (1.10)$$

Le nombre de Nusselt est déterminé par la corrélation suivante :

$$Nu = a Re^b Pr^c \left(\frac{\mu_r(T_r)}{\mu_r(T_{pr})} \right)^d \quad (1.11)$$

Où :

Les constantes : a, b, c et d dépendent de la nature de l'agitateur.

Re et Pr représentent le nombre de Reynolds et de Prandtl respectivement.

$$Re = \frac{w_{agit} Da^2 \rho_r}{\mu_r} \quad (1.12)$$

$$Pr = \frac{Cp_r \mu_r}{\lambda_r} \quad (1.13)$$

Da : Diamètre des pales de l'agitateur (m) ;

w_{agit} : Vitesse de rotation de l'agitateur (tours/s) ;

Pour un agitateur "Impeller" en acier vitrifié comme pour celui qui équipe le dispositif expérimental, on a: (**Robert et al.**, (1999))v

$$a = 0.33 \quad b = 0.67 \quad c = 0.33 \quad d = 0.14$$

3.1.2. Calcul du coefficient d'échange parois – mono-fluide

Le calcul du coefficient local d'échange thermique dans la double-enveloppe fait intervenir les caractéristiques du monofluide (débit, température et propriétés physiques) ainsi que les dimensions de la double-enveloppe (les diamètres intérieur et extérieur, la hauteur). Le coefficient partiel d'échange entre le mono-fluide et la paroi du réacteur ou la paroi de la double enveloppe, est donc déterminé en utilisant la relation suivante :

$$U_{j,fc}^i = \left(\frac{\lambda_{fc}}{D_{eq}} \right) Nu_i \quad (1.14)$$

Où :

D_{eq} : Diamètre équivalent de la double-enveloppe (m) ;

j : pr ou pde suivant que l'on considère la paroi du réacteur (pr) ou la paroi de la double-enveloppe (pde) ;

Le diamètre équivalent est calculé à partir de la relation suivante :

$$D_{eq} = 4 \left(\frac{S_p}{P_m} \right) \quad (1.15)$$

S_p : Section de passage à l'intérieur de la double-enveloppe (m²) ;

P_m : Périmètre mouillé de la double-enveloppe (m).

Dans le cas d'une double-enveloppe sans chicanes, avec un diamètre intérieur $D_{ep(m)}$ et un diamètre extérieur $D_{ipde(m)}$, le diamètre équivalent correspondant au transfert de la chaleur est donné par la relation suivante : (**Bouhenchir**, (2000), **Bondy et Lippa**, (1983)).

$$D_{eq} = \frac{4 \frac{\pi}{4} (D_{ipde}^2 - D_{ep}^2)}{\pi D_{ep}} = \frac{(D_{ipde}^2 - D_{ep}^2)}{D_{ep}} \quad (1.16)$$

Le nombre de Nusselt dépend du nombre de Reynolds qui est défini par :

$$Re = \frac{V_{fc} D_{ep} \rho_{fc}}{\mu_{fc}} \quad (1.17)$$

V_{fc} : Vitesse du mono-fluide circulant dans la double-enveloppe (m/s), elle est donnée par la relation suivante :

$$V_{fc} = \frac{F_{fc}}{\frac{\pi}{4} (D_{ipde}^2 - D_{ep}^2)} \quad (1.18)$$

$Re < 200$: Lorsque le débit du mono-fluide utilisé est très faible ou nul, on utilise l'équation suivante qui correspond à un transfert thermique par convection naturelle (**Fletcher**, (1987)):

$$Nu = 0.8 k Pr^{0.33} Gr^{0.33} \quad (1.19)$$

Avec k : Facteur adimensionnel qui dépend du sens d'écoulement et de l'état thermique du fluide circulant dans la double enveloppe.

$k = 0.15$ pour un écoulement ascendant d'un fluide chaud ou un écoulement descendant d'un fluide froid ;

$k = 0.128$ pour un écoulement ascendant d'un fluide froid ou un écoulement descendant d'un fluide chaud.

Dans le cas d'un système mono-fluide, seul le fluide chaud circule dans la double-enveloppe d'une façon ascendante donc $k = 0.15$.

Gr et Pr sont les nombres adimensionnels de *Grashof* et de *Prandtl* respectivement définis par les relations suivantes :

$$Gr = \frac{Deq^3 \rho_{fc}^2 g \beta |T_j - T_{fc}^i|}{\mu_{fc}^2} \quad (1.20)$$

$$Pr = \frac{Cp_{fc} \mu_{fc}}{\lambda_{fc}} \quad (1.21)$$

Avec

g : Constante qui représente l'accélération de la pesanteur (9.807m/s) ;

β : Coefficient de dilatation volumique du monofluide à pression constante (K^{-1}) calculé à la température T_{fc}^i , dans le bac i de la double-enveloppe ;

T_j : Température de la paroi du réacteur ou de la paroi de la double-enveloppe suivant que $j = pr$ où $j = pde$.

$200 \leq Re \leq 2000$: (**Bouhenchir**, (2000), **Bondy et Lippa**, (1983)).

$$Nu = 1.02 Re^{0.45} Pr^{0.33} \left[\frac{D_{eq}}{H_{de}/N} \right]^{0.40} \left[\frac{D_{ipde}}{Depr} \right]^{0.80} Gr^{0.05} \quad (1.22)$$

$Re \geq 2000$: (**Bouhenchir**, (2000), **Bondy et Lippa**, (1983)).

$$Nu = 0.027 Re^{0.80} Pr^{0.33} \quad (1.23)$$

3.1.3. Calcul des coefficients d'échange avec le milieu extérieur

Les deux termes, $U_{pr,ext}$ et $U_{pde,ext}$, apparaissent dans les équations de bilan thermique sur la paroi du réacteur et sur la double enveloppe. Pour tenir compte des pertes thermiques globales au niveau du réacteur. Ils peuvent également permettre d'ajuster l'ensemble des pertes thermiques, si la configuration du réacteur est telle qu'elle ne permet pas leurs calculs par des corrélations. Ces coefficients globaux d'échange thermiques peuvent être estimés à partir d'expériences de type chauffage/refroidissement sur le réacteur.

3.2. Calcul des coefficients globaux d'échange de chaleur pour le crayon chauffant

3.2.1. Calcul du coefficient d'échange paroi de la résistance – mono-fluide

Le calcul du coefficient partiel d'échange thermique entre la paroi de la résistance du crayon chauffant et le monofluide fait intervenir les caractéristiques du monofluide (débit, température et propriétés physiques) ainsi que les dimensions du crayon chauffant (diamètre et longueur).

La relation donnant une estimation du coefficient partiel d'échange thermique $U_{fc,res}$ est calculée suivant cette relation :

$$U_{fc,res} = \left(\frac{\lambda_{fc}}{D_{eq}} \right) Nu \quad (1.24)$$

Où D_{eq} le diamètre équivalent du crayon chauffant (m) est calculé par la relation suivante :

$$D_{eq} = \frac{4 \frac{\pi}{4} (d_{cri}^2 - d_{croi}^2)}{\pi d_{croi}} = \frac{(d_{cri}^2 - d_{croi}^2)}{d_{croi}} \quad (1.25)$$

d_{cri} : Diamètre interne de la tige (m) ;

d_{croi} : Diamètre de la résistance électrique (m).

Le nombre de Nusselt, Nu , dépend du nombre de Reynolds qui est défini par :

$$Re = \frac{V_{fc} D_{ep} \rho_{fc}}{\mu_{fc}} \quad (1.26)$$

V_{fc} : Vitesse du mono-fluide circulant dans le crayon chauffant (m/s), elle est donnée par la relation suivante :

$$V_{fc} = \frac{F_{fc}}{\frac{\pi}{4} (d_{cri}^2 - d_{croi}^2)} \quad (1.27)$$

$Re = 0$: Lorsque le débit du mono-fluide utilisé est nul, on utilise l'équation suivante qui correspond au transfert thermique par convection naturelle : (**Bouhenchir**, (2000), **Bondy** et **Lippa**, (1983))

$$Nu = 0.8 k Pr^{0.33} Gr^{0.33} \quad (1.28)$$

Avec : $k = 0,15$

Gr et Pr sont les nombres adimensionnels de *Grashof* et de *Prandtl* respectivement, définis par les relations suivantes :

$$Gr = \frac{Deq^3 \rho_{fc}^2 g \beta |T_{pres} - T_{ch}|}{\mu_{fc}^2} \quad (1.29)$$

$$Pr = \frac{Cp_{fc} \mu_{fc}}{\lambda_{fc}} \quad (1.30)$$

Où β : Coefficient de dilatation volumique du monofluid à pression constante (K^{-1}) calculé à la température T_{ch} dans l'enveloppe du crayon chauffant ;

T_{pres} : Température de la paroi de la résistance du crayon chauffant ($^{\circ}C$).

$Re < 2100$, régime laminaire (**Bourne**, (1981)) :

$$Nu = 1.86 \left(Re Pr \frac{d_{eq}}{L_{resis}} \right)^{1/3} \left[\frac{\mu_{fc}}{\mu_p} \right]^{0.14} \quad (1.31)$$

$Re > 2100$, régime turbulent : (**Kern**, (1950))

$$Nu = 0.027 \left(Re^{0.8} Pr^{0.33} \right) \left[\frac{\mu_{fc}}{\mu_p} \right]^{0.14} \quad (1.32)$$

Avec :

L_{resis} : Longueur de la résistance électrique(m) ;

3.2.2. Calcul du coefficient d'échange mono-fluide - paroi externe de la tige

Le coefficient global d'échange entre le mono-fluide et la paroi de la tige, $U_{fc, pch}$ est déterminé en utilisant la relation suivante :

$$U_{fc, pch} = \frac{1}{\left[\frac{1}{U_{fc, res}} + \frac{e_{per}}{\lambda_{cr}} \frac{A_{fc, pch}}{A_{pchm}} \right]} \quad (1.33)$$

Avec :

$A_{fc, pch}$: Surface d'échange entre le mono-fluide et la paroi de la tige (m^2) ;

A_{pchm} : Surface d'échange représentant une moyenne entre la surface, (m^2) ; $A_{fc, pch}$ et la surface entre la tige et le milieu extérieur A_{pchm} (m^2) ;

e_{per} : Epaisseur de la paroi de la tige (m) ;

λ_{cr} : Conductivité thermique de la paroi de la tige supposée constante dans le domaine de température utilisé (kJ/m. s. K) ;

$\frac{e_{per}}{\lambda_{cr}}$: Résistance au transfert thermique à travers la paroi de la tige (m^2 . s. K/kJ) ;

$U_{fc, res}$: Coefficient partiel d'échange thermique (kJ/ m^2 . s. K), calculé dans le paragraphe précédent.

3.2.3. Calcul du coefficient d'échange entre la paroi externe de la tige et le milieu extérieur

En négligeant la résistance thermique provoquée par un éventuel encrassement de la paroi, le coefficient local d'échange $U_{pch, ext}$ lié à la convection naturelle est donné par une loi puissance de la forme : (**Bouhenchir**, (2000), **Bondy et Lippa**, (1983), **Perry et al.**, (1984)).

$$Nu = a(Gr Pr)^b \quad (1.34)$$

Avec :

$$Nu = \frac{U_{pch, ext} L_{crext}}{\lambda_{ext}} \quad (1.35)$$

$$Pr = \frac{Cp_{ext} \mu_{ext}}{\lambda_{ext}} \quad (1.36)$$

$$Gr = \frac{L_{crext}^3 \rho_{ext}^2 g \beta_{ext} |T_{pch} - T_{ext}|}{\mu_{ext}^2} \quad (1.37)$$

L_{crext} : Longueur externe de la tige (m) ;

T_{pch} : Température de la paroi de la tige ($^{\circ}C$).

Les propriétés physiques sont calculées à la température moyenne $T_f = \frac{T_{pch} + T_{air}}{2}$. Le tableau

(1.1) donne les valeurs a et b pour l'échange de chaleur à travers la surface d'un cylindre selon sa position :

Le coefficient $U_{pch,ext}$ est calculé par la relation :

$$U_{pch,ext} = \frac{\lambda_{ext}}{L_{crext}} Nu \quad (1.38)$$

Tableau 1.1 : Valeur de “a” et “b” selon la position de la conduite et le produit Gr.Pr (Bouhenchir, (2000)).

Configuration	Prod = Gr.Pr	a	b
Cylindre vertical $L_p = L_c$	Prod $> 10^9$	0.13	1/3
	$10^4 < \text{Prod} < 10^9$	0.59	1/4
	Prod $< 10^4$	1.36	1/6
Cylindre horizontal $L_p = L_{cex}$	Prod $> 10^9$	0.13	1/3
	$10^4 < \text{Prod} < 10^9$	0.53	1/4
	Prod $< 10^4$	1.09	1/6

3.3. Coefficients d'échange globaux pour les échangeurs de chaleur

Les échanges thermiques entre le mono-fluide, la plaque de l'échangeur et l'utilitaire de refroidissement sont décrits à travers l'estimation de coefficients partiels d'échange thermique par les corrélations suivantes qui dépendent du constructeur :

$$Nu = \frac{De_{hi}}{\lambda} = \alpha R_{eq}^\delta \text{Pr}^{1/3} \left[\frac{\mu}{\mu_p} \right]^{0.14} \quad (1.39)$$

Le diamètre équivalent, De utilisé pour les échangeurs à plaques est exprimé comme le double de l'espace entre deux plaques (Buonopane *et al.*, (1963)).

$$De = \frac{4a}{p_p} = 2\sigma \quad (1.40)$$

Où :

“a” représente la section de passage, p_p le périmètre mouillé par l'échange et σ : représente l'épaisseur entre deux plaques.

μ : Viscosité dynamique du fluide thermique dans l'échangeur. (kg/m.s) ;

μ_p : Viscosité dynamique à la température moyenne de la paroi de la plaque (kg/m.s) ;

R_{eq} : Nombre de Reynolds équivalent, il est de la forme

$$R_{eq} = \frac{DeV\rho}{\mu} \quad (1.41)$$

Tableau 1.2 : Valeurs des paramètres des corrélations utilisées dans le cas des échangeurs à plaques.

Types d'échangeur	Req	α	σ	Req	α	σ
APV	< 70	1,416	0.23	> 1000	0.178	0.76
ALFA - LAVAL	< 150	0.421	0.50	> 300	0.378	0.61
ROSENBLAV	< 25	0.755	0.46	> 40	0.520	0.61

Dans les zones d'écoulement où α et σ ne sont pas définis, on calcule le coefficient local d'échange par la corrélation suivante : (Buonopane *et al.*, (1963)).

$$h \frac{De}{\lambda} = 0.2536 R_{eq}^{0.65} \text{Pr}^{0.4} \quad (1.42)$$

Le dispositif expérimental, tel qu'il est, ne permet pas le passage du monofluide dans les échangeurs de chaleur durant la phase de chauffage par le crayon chauffant. Dans ce cas il se traduit un transfert de chaleur par convection naturelle entre les deux plaques de l'échangeur coté monofluide pour estimer le coefficient de chaleur dans ce cas nous avons utilisé la corrélation suivante qui est caractérisée par les nombres de Prandtl Pr et Grashoff Gr : (Perry et al., (1984)).

$$h \frac{De}{\lambda} = a(Gr Pr)^m \quad (1.43)$$

$$\text{Avec : } Pr = \frac{Cp \mu}{\lambda}$$

$$Gr = \frac{L^3 \rho^2 g \beta |T_p - T_f|}{\mu^2} \quad (1.44)$$

Où a et m sont deux constantes qui dépendent du produit algébrique $Gr \cdot Pr$

Pour une plaque verticale d'une longueur $L < 0.915m$.

$$Gr \cdot Pr < 10^4 \quad a = 1.36 \quad m = 1/5$$

$$10^4 < Gr \cdot Pr < 10^9 \quad a = 0.59 \quad m = 1/4$$

$$Gr \cdot Pr > 10^9 \quad a = 0.13 \quad m = 1/3$$

3.4. Calcul des coefficients globaux d'échange de chaleur dans les conduites.

3.4.1. Calcul du coefficient partiel d'échange de chaleur entre le monofluide et la paroi de la conduite.

L'estimation du coefficient d'échange local dans la conduite j ($j = 1, 2, \dots, 12$) fait intervenir les caractéristiques du mono-fluide (débit, température et propriétés physiques), ainsi que les dimensions de la conduite j (diamètre intérieur et la longueur).

Le coefficient global d'échange entre le monofluide et la paroi de la conduite j $U_{cond, pcond}^j$ est donc déterminé en utilisant la relation suivante :

$$U_{cond, pcond}^j = \frac{1}{\left[\frac{1}{U_{cpc}^j} + \frac{e_{pcond}^j}{\lambda_{pcond}^j} \frac{A_{cond, pcond}^j}{A_{pcondm}^j} \right]} \quad (1.45)$$

Avec :

A_{pcondm}^j : Surface d'échange représentant une moyenne arithmétique entre $A_{cond, pcond}^j$ et $A_{ext, pcond}^j$ (m^2) ;

e_{pcond}^j : Epaisseur de la paroi de la conduite j (m) ;

λ_{pcond}^j : Conductivité thermique de la paroi de la conduite j supposée constante dans le domaine de température utilisé (kJ/m.s.K) ;

U_{cpc}^j : Coefficient partiel d'échange de chaleur à l'intérieur de la conduite (KJ/m².s.K) calculé par la relation suivante :

$$U_{cpc}^j = \left(\frac{\lambda_{fc}}{d_{cin}^j} \right) Nu^j \quad (1.46)$$

Avec :

d_{cin}^j : Diamètre intérieur de la conduite j (m) ;

j : Indice de la conduite considérée par l'échange j= 1,...,12 ;

$T_{cond(i)}^j$: Température du mono-fluide dans la conduite J au niveau du bloc (i) (K) ;

λ_{fc} : Conductivité thermique du monofluide à la température T_{cond}^j (kJ/m. s. K) ;

N_u^j : Nombre adimensionnel de Nusselt qui dépend à la fois de la position de la conduite et du régime d'écoulement.

Durant les différentes phases de conduite thermique du réacteur, le monofluide reste en repos dans la conduite qui ne procède pas l'appareil choisi, dans ce cas il se produit un transfert de chaleur par convection naturelle entre le liquide accumulé et la paroi de la conduite.

Suivant la position de la conduite, on utilise les corrélations suivantes : (**Perry et al.**, (1984))

Pour une conduite verticale :

$$Nu = 0.138 Gr^{0.36} (Pr^{0.175} - 0.55) \text{ pour } Gr > 10^9 \quad (1.47)$$

$$Nu = 0.683 Gr^{0.25} Pr^{0.25} \left[\frac{Pr}{(0.861 + Pr)} \right]^{0.25} \text{ pour } Gr < 10^9 \quad (1.48)$$

Pour une conduite horizontale, d'un diamètre $D < 0.2032 m$, nous avons utilisé la corrélation (1.43) dont la longueur caractéristique est le diamètre de la conduite :

$Gr \cdot Pr < 10^4$	$a = 1.09$	$m = 1/5$
$10^4 < Gr \cdot Pr < 10^9$	$a = 0.53$	$m = 1/4$
$Gr \cdot Pr > 10^9$	$a = 0.13$	$m = 1/3$

Où Gr et Pr sont les nombres de *Grashoff* et *Prandtl* respectivement, donnés par l'équation (1.44) dont la longueur caractéristique L est égale à la longueur de la conduite verticale et au diamètre de la conduite horizontale.

Dans le cas où le mono-fluide passe par la conduite, nous avons utilisé les corrélations suivantes : (**Kern**, (1950)):

- $Re < 2100$, régime laminaire

$$Nu = 1.86 \left(Re Pr \frac{d_{cin}}{L_c} \right)^{1/3} \left[\frac{\mu_{fc}}{\mu_p} \right]^{0.14} \quad (1.49)$$

- $Re > 2100$, régime turbulent

$$Nu = 0.027 Re^{0.8} Pr^{0.33} \left[\frac{\mu_{fc}}{\mu_p} \right]^{0.14} \quad (1.50)$$

$$\text{Avec : } Re = \frac{\rho_{fc} V_{fc} d_{cin}}{\mu_{fc}} \quad (1.51)$$

$$Pr = \frac{Cp_{fc} \mu_{fc}}{\lambda_{fc}} \quad (1.52)$$

Où :

V_{fc} : Vitesse d'écoulement du monofluide (m/s)

$$V_{fc} = \frac{D_{fc}}{\frac{\pi}{4} d_{cin}^2} \quad (1.53)$$

Toutes les propriétés physiques sont calculées à la température du monofluide dans la conduite.

3.4.2. Calcul du coefficient d'échange paroi de la conduite - milieu extérieur

En négligeant la résistance thermique provoquée par un éventuel encrassement des parois, les coefficients locaux d'échange U_{ext} liés à la convection naturelle sont généralement donnés par une loi puissance, de la forme : (Perry *et al.*, (1984))

$$Nu = a(Gr Pr)^b \quad (1.53)$$

$$\text{Avec : } Nu = \frac{U_{ext} L_p}{\lambda_{ext}} ; \quad Pr = \frac{Cp_{ext} \mu_{ext}}{\lambda_{ext}}$$

$$Gr = \frac{L_p^3 \rho_{ext}^2 g \beta_{ext} |T_{pcond} - T_{ext}|}{\mu_{ext}^2} \quad (1.54)$$

L_p^j : Grandeur caractéristique de la partie concernée de la paroi de la conduite j.

Les propriétés physiques sont calculées à la température moyenne $T_f = \frac{T_{pcond}^j + T_{air}}{2}$

Le tableau (1.1) donne les valeurs a et b pour l'échange de chaleur à travers la surface d'un cylindre selon sa position.

Le coefficient U_{ext} est calculé par la relation :

$$U_{ext} = \frac{\lambda_{ext}}{L_p} Nu \quad (1.55)$$

Annexe 2. Propriétés des produits chimiques et partie calibration

2.1. Acétate de vinyle (AVc): $\text{CH}_3\text{COO} - \text{CH} = \text{CH}_2$

L'acétate de vinyle ($\text{CH}_3\text{COO} - \text{CH} = \text{CH}_2$) est préparé, en règle générale, en phase vapeur, en faisant réagir un grand excès d'acétylène sur de l'acide acétique (200°C) en présence de catalyseurs au zinc et au cadmium. On obtient un liquide incolore à odeur très pénétrante qui ne se polymérise en polyacétate de vinyle (PVAc) qu'en présence de catalyseurs et donne des solides durs très stables à la chaleur. Il peut être copolymérisé avec d'autres composés vinyliques ou d'autres monomères.

a- Utilisations

L'acétate de polyvinyle, en solution dans divers solvants, est utilisé comme adhésif et dans les peintures à séchage rapide. Par saponification du polyacétate de vinyle, on prépare l'alcool polyvinylique, très utilisé comme matière première pour adhésifs et comme agent de finition pour l'industrie textile et l'industrie du papier. Les colles d'acétate de vinyle conviennent parfaitement au collage des papiers, des tissus, des agglomérés de bois, des abrasifs et du verre lorsqu'elles sont utilisées en solution. Il existe d'autres dérivés de moindre importance tels que les acétochlorures, les acétals polyvinyliques et les éthers polyvinyliques.

b- Propriétés physico-chimiques

Masse moléculaire : 86.09 ; Température d'ébullition : 72.70°C ; Température de fusion : -93°C ; Point éclair (coupe ouverte) : -5°C ; Masse volumique à 20°C : 932.6 kg/m^3 ; Viscosité à 20°C : $0.43 \text{ mPa} \cdot \text{s}$; Enthalpie de polymérisation : 89.1 kJ/mol .

c- Réactivité

L'acétate de vinyle non stabilisé polymérise suivant un mécanisme radicalaire ; il forme aussi des copolymères avec de nombreux autres monomères, en particulier avec l'éthylène et le chlorure de vinyle.

d- Précautions d'emploi

➤ Risques d'explosion et d'inflammation

Les limites d'explosivité des vapeurs d'acétate de vinyle dans l'air sont égales à 2.6 et 13.4 % en volume.

À température ambiante, un mélange explosif peut exister dans le ciel gazeux d'un réservoir de stockage non inerte. Température d'auto-inflammation : 427°C .

➤ Stockage et manipulation

En présence d'inhibiteur, la stabilité du produit stocké à température ambiante (inférieure à 30°C) est bonne. L'acétate de vinyle présente une réaction dangereuse (emballement exothermique) avec les initiateurs de polymérisation (peroxydes). La simultanéité du risque d'explosion des vapeurs dans l'air et du risque d'accumulation d'électricité statique rend les manipulations de ce produit particulièrement dangereuses. Les lieux de transfert ou de transvasement doivent être bien ventilés et la distance de sécurité vis-à-vis des points chauds supérieure à 30m. L'usage de toute tuyauterie ou récipient en matière isolante est proscrit ; le produit doit être alimenté en fond du réservoir récepteur (par le biais d'un tube métallique

plongeant, éventuellement) ; l'emploi d'air ou d'oxygène pour effectuer les transvasements est interdit ; l'inertage préalable du réservoir récepteur est recommandé.

Utilisé comme monomère, l'acétate de vinyle est normalement stocké dans des récipients en acier. Le cuivre et les alliages de cuivre peuvent provoquer une décoloration et une inhibition de la polymérisation.

e- Toxicité

L'acétate de vinyle est modérément toxique [valeur moyenne d'exposition dans l'air (8 h/j) : VME = 10ppm, soit 30mg/m³]. Ce n'est pas un irritant sévère des voies respiratoires, les contacts prolongés avec la peau ou les yeux doivent cependant être évités : port de masque, de gants et de lunettes.

2.2. Méthacrylate de méthyle (MMA) : CH₂=C (CH₃) CO₂CH₃

Le **Méthacrylate de méthyle** est le monomère du polyméthacrylate de méthyle (Lucite, Plexiglas, Altuglas, Perspex). C'est un composé organique dont la formule chimique est la suivante : CH₂=C(CH₃)CO₂CH₃.

Cet ester méthylique de l'acide méthacrylique (MMA) est un monomère qui se présente sous la forme d'un liquide incolore utilisé pour la fabrication de verres transparents et de plastiques en Polyméthacrylate de méthyle (PMMA).

a- Stabilité et réactivité

Réactions Dangereuses : Rien de connu.

Produit(s) de Décomposition Dangereux : Méthacrylate de méthyle, Méthacrylate de n-Butyle, Dioxyde de carbone, Monoxyde de carbone.

b- Informations toxicologiques : Inhalation Probablement pas dangereux par inhalation.

Contact avec la Peau : Irritation peu probable.

Contient plus de 0.1% résiduel (Méthacrylate de méthyle, Méthacrylate de n-butyle).

Pendant une manipulation normale, cela ne constituera pas un danger. Si la matrice du polymère est détruite, par exemple lorsque le produit est dissout dans un solvant organique, les résidus chimiques seront libérés à partir de la matrice du polymère. Sous ces conditions, ils peuvent produire une réaction allergique sur les personnes déjà sensibilisées.

Contact avec les yeux : La poussière peut provoquer une irritation.

Ingestion : Faible toxicité orale.

Exposition Long Terme : Ce type de matière est utilisé depuis des années sans signe d'effets néfastes.

c- Informations Ecotoxicologiques

Devenir du Produit dans L'Environnement

Tonnage de matière produit en système partiellement fermé. Solide faiblement volatil. Le produit est essentiellement insoluble dans l'eau. Le produit a un faible potentiel de Bioaccumulation. Le produit devrait être peu mobile dans le sol.

Persistance et Dégradabilité

Le produit est non-biodégradable dans le sol. Il n'a pas été mis en évidence de dégradation dans le sol et dans l'eau.

d- Toxicité

Produit est supposé avoir une faible toxicité pour les organismes aquatiques.

e- Effets sur le traitement des effluents

La matière est essentiellement insoluble dans l'eau et peut par conséquent être séparé du milieu aqueux par un procédé de sédimentation et filtration lors du traitement des effluents de l'usine.

f- Transport

Non classé comme dangereux pour le transport.

g- Premiers secours

Inhalation : Retirer le sujet de la zone exposée. Alerter un médecin en cas de malaise.

Contact avec la Peau : Laver la peau à l'eau. Si des symptômes (irritations ou cloques) apparaissent, alerter un médecin.

Contact avec les yeux : Eliminer les particules en rinçant l'oeil, paupières ouvertes, avec une solution oculaire ou de l'eau claire. Alerter un médecin.

Ingestion Ne pas faire vomir. Rincer la bouche à l'eau. Alerter un médecin en cas de malaise.

h- Utilisations

La principale utilisation du méthacrylate de méthyle est la production de matière plastique acrylique en Polyméthacrylate de méthyle. Le méthacrylate de méthyle est aussi utilisé pour la production du co-polymère du méthacrylate de méthyle-butadiène-styrène (MBS), utilisé comme modificateur du PVC.

Les polymères du méthacrylate de méthyle et les co-polymères sont utilisés pour fabriquer des peintures à l'eau ils servent également à la formulation d'adhésifs. Une application récente est l'utilisation de films qui pour empêcher la lumière des écrans LCD d'ordinateurs et de téléviseurs de diffuser de manière non directionnelle.

Le méthacrylate de méthyle est également utilisé pour préserver de la corrosion les moulages anatomiques d'organes, comme le cœur et les artères coronaires.

2.3. Toluène :

Le **toluène**, également appelé **méthylbenzène** ou **phénylméthane** est un hydrocarbure aromatique sous la forme d'un liquide transparent, très répandu et utilisé comme produit de départ industriel ou comme solvant. Il dissout un grand nombre d'huiles, graisses, résines (naturelles ou de synthèse). Il a une odeur caractéristique (type dissolvant pour peinture) rappelant celle, douceâtre, du benzène apparenté.

Le **toluène** réagit comme un hydrocarbure aromatique normal par substitution électrophile aromatique. Le groupe méthyle le rend approximativement 25 fois plus réactif que le benzène dans ce genre de réactions. Par sulfonation il donne l'acide paratoluènesulfonique, tandis que sa chloration par le chlore en présence de chlorure ferrique donne un mélange d'isomères ortho et para de chlorotoluène. La nitration par l'acide nitrique donne un mélange d'ortho- et de para-nitrotoluène. En chauffant, la réaction se poursuit pour donner le dinitrotoluène et finalement le trinitrotoluène (TNT) qui est explosif.

a- Propriétés physiques

Le toluène est un liquide aux conditions normales de pression et de température. Il est quasi-insoluble dans l'eau (0.535 g/l à 25 °C), mais miscible à beaucoup de solvants organiques (acétone, oxyde de diéthyle, chloroforme, éthanol...), et soluble dans l'acide acétique glacial.

Le toluène a une constante molale cryoscopique de 3.55 °C·kg/mol et une constante molale ébullioscopique de 3.40 °C kg/mol. Sa vapeur est plus lourde que l'air, et forme avec de dernier un mélange explosif.

En RMN du proton, le toluène se présente sous la forme de plusieurs pics entre 7.28 ppm et 7 ppm pour les hydrogènes du cycle benzénique et d'un singulet à 2.38 ppm pour les hydrogènes du groupement méthyle. En RMN du carbone, le toluène se présente sous plusieurs pics, à 137.8 ppm pour le carbone en α du méthyl, à 129.09 ppm pour les carbones β , à 128.28 ppm pour les carbones γ et à 125.38 pour le carbone opposé au méthyle. Le carbone du groupement méthyl présente un pic à 25 ppm.

b- Toxicologie, écotoxicologie, précautions & métabolisme

C'est un produit nocif et écotoxique (souvent présent dans certains sols industriels pollués). Sa toxicité aiguë est faible, mais il a comme premiers organes-cibles le système nerveux central (cerveau, moelle). C'est aussi un irritant pour la peau, l'œil et le système respiratoire.

Chez l'animal de laboratoire, l'exposition à des taux significatifs de toluène induit des symptômes généraux : hyperactivité, irritation de la peau et surtout des muqueuses (écoulement nasal, larmes), irritation des voies respiratoires, avec essoufflement. À des taux d'exposition supérieurs à 2000 ppm dans l'air, le stade suivant est celui d'une narcose (ataxie, dégradation des fonctions cognitives, troubles de l'équilibre et altérations neurochimiques. La mort est due à un arrêt respiratoire induit par une déplétion du système nerveux central).

L'irritation augmente selon la durée d'exposition et la dose ; chez le lapin, un érythème modéré puis un œdème léger apparaît après 72 h, irréversibles à 7 jours, et - chez le lapin toujours - un rinçage de l'œil exposé après 4 et 30 secondes ne diminuent pas l'intensité de l'irritation.

Sa toxicité chronique a été étudié chez l'animal de laboratoire (souris, rat) chez lequel on observe :

- une augmentation de poids de divers organes impliqués dans la détoxification (foie, rein par exemple après exposition à 1250 ppm durant 15 jours chez le rat... à 2500 ppm le rat grossi, avec augmentation du poids du cerveau, du cœur, des poumons et des testicules, avec des symptômes de dyspnée et d'ataxie).
- une modification du taux de neurotransmetteurs

Une neurotoxicité affectant notamment l'hippocampe et le cervelet (avec altération de l'audition) (**Campo et al.**, (1998), **Guillot et al.**, (1982)). Une exposition longue (2 ans à 1500 ppm) chez le rat a induit une inflammation des muqueuses nasales avec érosion de l'épithélium olfactif, métaplasie et dégénérescence de l'épithélium respiratoire, mais en dessous de 300 ppm, aucun symptôme n'a été observé (La NOAEL ou concentration sans effet toxique observé était de 625 ppm pour une exposition de 6.5 heures par jour, 5 jours par semaine durant 15 semaines ; ou de 300 ppm sur une durée d'exposition de 2 ans. Par voie orale, la NOEL était pour le rat et la souris de 625 mg/kg/j pendant 13 semaines) (**Guillot et al.**, (1982), http://risk.lsd.ornl.gov/tox/rap_toxp.shtml).

2.4. Azobisisobutyronitrile (AIBN) : $C_8H_{12}N_4$ / $(CH_3)_2(CN)CN=NC(CN)(CH_3)_2$

TYPES DE RISQUES / EXPOSITIONS	RISQUES / SYMPTÔMES AIGUS	PRÉVENTION	PREMIER SECOURS / AGENTS D'EXTINCTION
INCENDIE	Très inflammable. Explosive.	Pas de flammes nues, pas d'étincelles et interdiction de fumer.	Eau en grande quantité, eau pulvérisée.
EXPLOSION	Les particules finement dispersées forment des mélanges explosifs dans l'air. Risques d'incendie et d'explosion quand dissous dans les solvants organiques.	Eviter le dépôt de poussières; système en vase clos, équipement électrique et éclairage protégés contre les explosions. Eviter l'accumulation de charges électrostatiques (par mise à la terre, par exemple). Ne pas exposer aux frottements ou aux chocs.	En cas d'incendie: maintenir les fûts, etc., à basse température en les arrosant d'eau.
CONTACT PHYSIQUE		EVITER LA DISPERSION DE POUSSIERE!	
Inhalation		Aspiration locale ou protection respiratoire.	Air frais, repos. Consulter un médecin.
Peau		Gants de protection.	Retirer les vêtements contaminés. Rincer la peau abondamment à l'eau ou prendre une douche.
Yeux		Lunettes de protection fermées ou protection oculaire associée à une protection respiratoire.	Rincer d'abord abondamment à l'eau pendant plusieurs minutes (retirer si possible les lentilles de contact), puis consulter un médecin.
Ingestion	Maux de tête. Nausées. Faiblesse. Convulsions.	Ne pas manger, ne pas boire ni fumer pendant le travail.	Faire vomir (seulement les personnes conscientes) Donner à boire une suspension, dans l'eau, de charbon actif. Consulter un médecin.
DÉVERSEMENTS & FUTES		CONDITIONNEMENT & ÉTIQUETAGE	
Consulter un expert! Ne pas laisser ce produit contaminer l'environnement. Ecarter toute source d'ignition. Balayer et récupérer la substance répandue dans des récipients couverts; si approprié, humidifier d'abord afin d'éviter la formation de poussière. Protection individuelle: appareil de protection respiratoire à filtre A/P2 pour vapeurs organiques et poussières nocives.		Classification UE Symbole: E, Xn R: 2-11-20/22-52/53 S: (2-)-39-41-47-61 Classification ONU Classe de danger ONU: 4.1	
INTERVENTION EN CAS D'URGENCE		STOCKAGE	
Code NFPA: H 3; F -; R 2.		A l'épreuve du feu. Conserver au froid. Séparer des	

Carte de données d'urgence pour le transport: TREM CARD (R)-41GSR2-S.	oxydants forts et des matières incompatibles.
DONNÉES IMPORTANTES	
<p>ASPECT PHYSIQUE; APPARENCE: Poudre blanche.</p> <p>DANGERS PHYSIQUES: À l'état sec, la substance peut se charger d'électricité statique par tourbillonnement, par transport pneumatique, par écoulement, etc.</p> <p>DANGERS CHIMIQUES: La substance se décompose sous l'effet de la chaleur, produisant des fumées toxiques comme le tétraméthylsuccinonitrile (voir ICSC 1121) et le cyanure. Peut se décomposer par explosion à la suite de chocs, de frottements ou de secousses. Peut exploser après échauffement. Réagit violemment avec les alcools, les oxydants, les cétones comme l'acétone, les aldéhydes et les hydrocarbures comme l'heptane en provoquant des risques d'incendie et d'explosion.</p> <p>LIMITES D'EXPOSITION PROFESSIONNELLE: Pas de TLV établie. Pas de MAK établie.</p>	<p>VOIES D'EXPOSITION: La substance peut être absorbée par l'organisme par ingestion.</p> <p>RISQUE D'INHALATION: L'évaporation à 20°C est négligeable; une concentration dangereuse de particules en suspension dans l'air peut cependant être atteinte rapidement par dispersion.</p> <p>EFFETS DES EXPOSITIONS DE COURTE DUREE: La substance peut avoir des effets sur le système nerveux central.</p> <p>EFFETS DES EXPOSITIONS PROLONGEES OU REPETEES: La substance peut avoir des effets sur le foie.</p>
PROPRIÉTÉS PHYSIQUES	
Densité: 1.1 g/cm ³ Solubilité dans l'eau à 20°C : nulle Tension de vapeur à 20°C : <1 Pa	Température d'auto-inflammation : 64°C
DONNÉES ENVIRONNEMENTALES	
La substance est nocive pour les organismes aquatiques. La substance peut causer des effets à long terme sur l'environnement aquatique.	
NOTES	
La température de décomposition ne figure pas dans les ouvrages de référence. Les données disponibles sur les effets de cette substance sur l'homme sont insuffisantes; par conséquent, la plus grande prudence est requise. Aceto azib, ADZN, AIBN, AIVN, AZDH, CHKHZ, Genitron, Pianofor AN, Porofor N, Porofor-57 et Vazo (64) sont des noms commerciaux.	

2.5. Travaux préalables à l'expérimentation

2.5.1. Partie calibration

Afin de pouvoir réaliser des expériences de copolymérisation, il est nécessaire de maîtriser la régulation de la température.

Par ailleurs, afin de suivre les réactions par calorimétrie, il est indispensable de connaître le bilan thermique.

2.5.2. Détermination du bilan calorimétrique

Le bilan thermique classique d'un réacteur calorimétrique s'écrit de la façon suivante:

$$Q_R + U A (T_{de} - T_R) = M C_p \frac{dT_R}{dt} + Q_{pertes} \quad (2.1)$$

Avec :

Q_R : La puissance de réaction en W

U : Coefficient d'échange entre le milieu réactionnel et la paroi du réacteur en m^2

T_{de} : Température moyenne de la double enveloppe en $^{\circ}C$

T_R : Température du milieu réactionnel en $^{\circ}C$

C_p : Capacité calorifique de la masse réactionnelle en $J/kg.^{\circ}C$

Q_{pertes} : Puissance représentant les pertes thermiques en W

2.5.3. Calibration automatique

Grâce au réacteur calorimétrique et le logiciel qui la compagne, nous pouvons déterminer de façon automatique les paramètres suivantes:

La température du mélange réactionnel, et la température d'entrée et de sortie de la double enveloppe.

L'étalonnage se fait en l'absence de réaction.

Le bilan thermique devient:

$$U A (T_{de} - T_r) = M C_p \frac{dT_r}{dt} + Q_{pertes} \quad (2.2)$$

Nous réalisons la calibration avec une masse d'eau (2000 g), une agitation de 200 rpm et une température de consigne 70 $^{\circ}C$. Nous obtenons les graphes suivants:

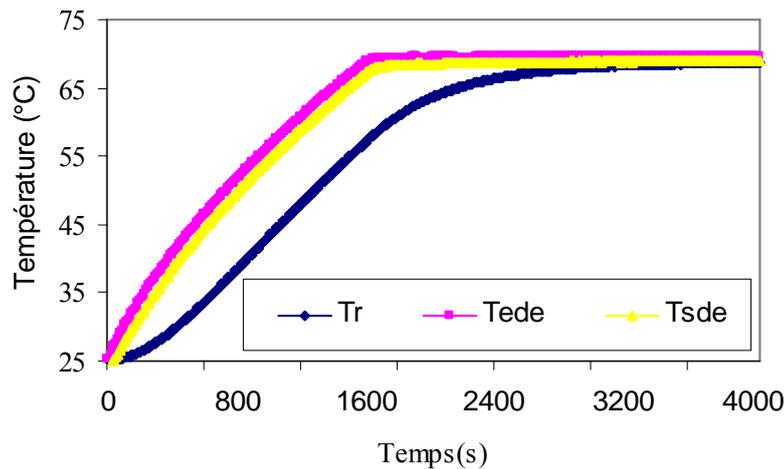


Figure 2.1 : Evolution des températures, de réacteur, entrée et de sortie de la double enveloppe pour une vitesse d'agitation 200 rpm

- Pour fixer la vitesse d'agitation, il est donc utile de varier la vitesse d'agitation (150 rpm, 200 rpm et 300 rpm) les résultats sont donnés sur les Figures suivantes pour les phases de chauffage.

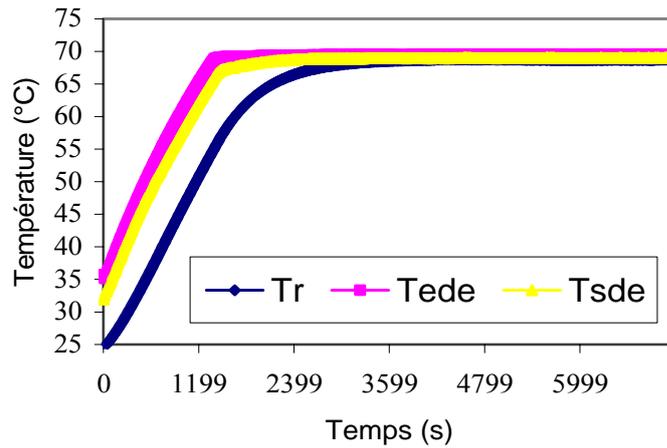


Figure 2.2 : Evolution des températures, de réacteur, d'entrée et de sortie de la double enveloppe pour une vitesse d'agitation 150 rpm

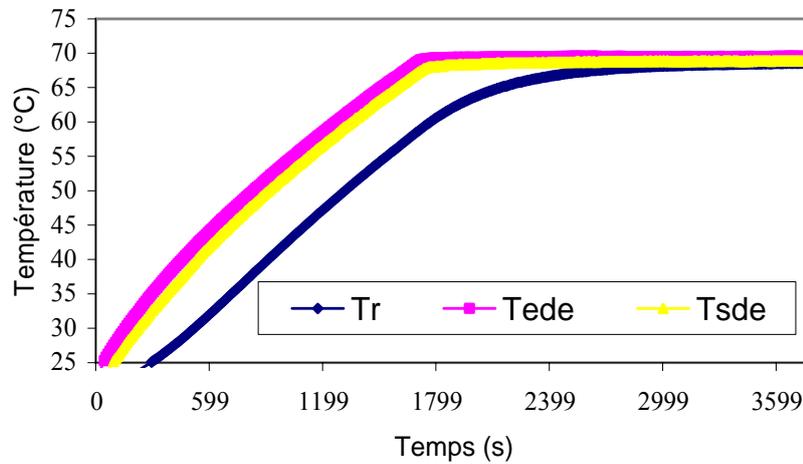


Figure 2.3 : Evolution des températures, de réacteur, d'entrée et de sortie de la double enveloppe pour une vitesse d'agitation 300 rpm

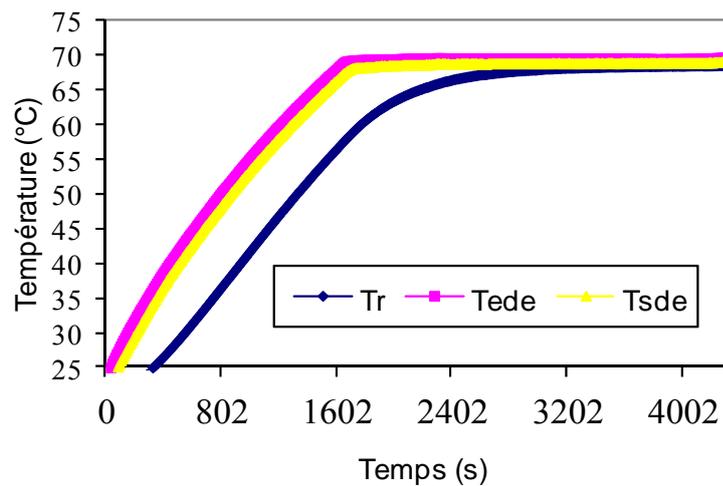


Figure 2.4 : Evolution des températures, de réacteur, d'entrée et de sortie de la double enveloppe pour une vitesse d'agitation 200 rpm, $m_{\text{eau}} = 1.5\text{l}$

Nous lançons la calibration pour 1.5 l de toluène, avec une agitation de 200 rpm et 300 rpm et une température de consigne 70 °C pour le bain thermostaté. Nous obtenons les graphes suivants:

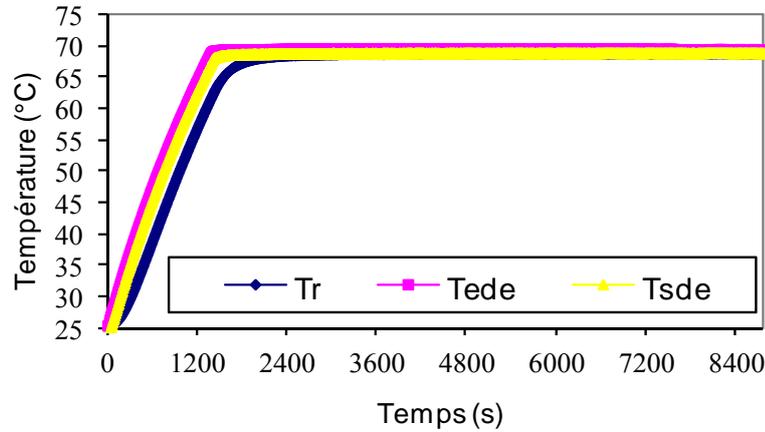


Figure 2.5 : Evolution des températures, de réacteur, d'entrée et de sortie de la double enveloppe pour une vitesse d'agitation 200 rpm, $m_{\text{Toluène}} = 1.51$

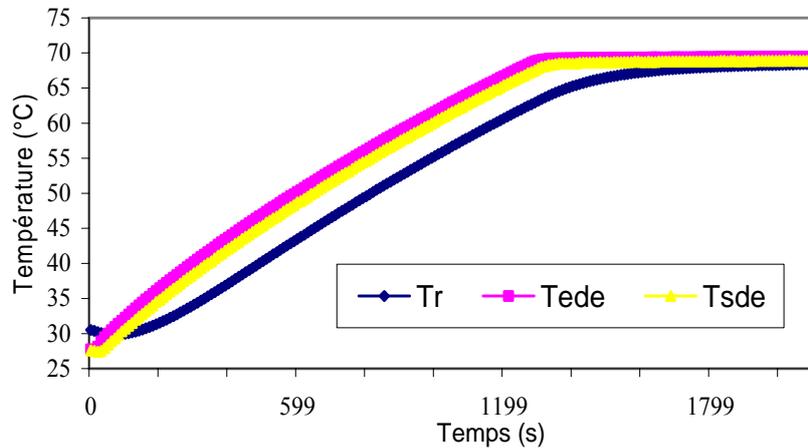


Figure 2.6 : Evolution des températures, de réacteur, d'entrée et de sortie de la double enveloppe pour une vitesse d'agitation 300 rpm, $m_{\text{Toluène}} = 1.51$

Même travail a été faite pour le refroidissement, pour une masse de 2000 g avec une agitation de 200 rpm et une température de consigne 25 °C.

2.5.4. Vérification des résultats de la calibration automatique

Pour vérifier ces résultats, en récupérant les valeurs des températures données par la calibration automatique sous Excel, puis en réalisant le bilan suivant:

En équilibre thermique on a :

$$U A (T_{de} - T_R) - Q_{perte} = 0 \tag{2.3}$$

Mais d'après les résultats obtenus on n'obtient pas zéro. Car $T_{de} \neq T_r$.

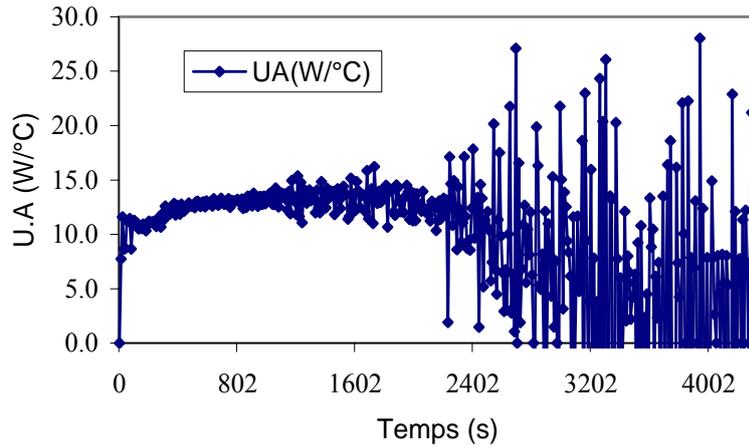


Figure 2.7 : Evolution UA pour une vitesse d'agitation 200 rpm, $m_{\text{eau}} = 1.5l$

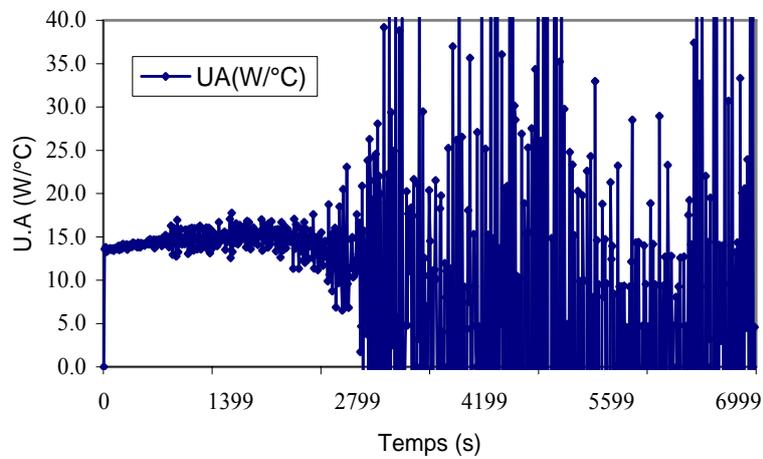


Figure 2.8 : Evolution UA pour une vitesse d'agitation 150 rpm, $m_{\text{eau}} = 2l$

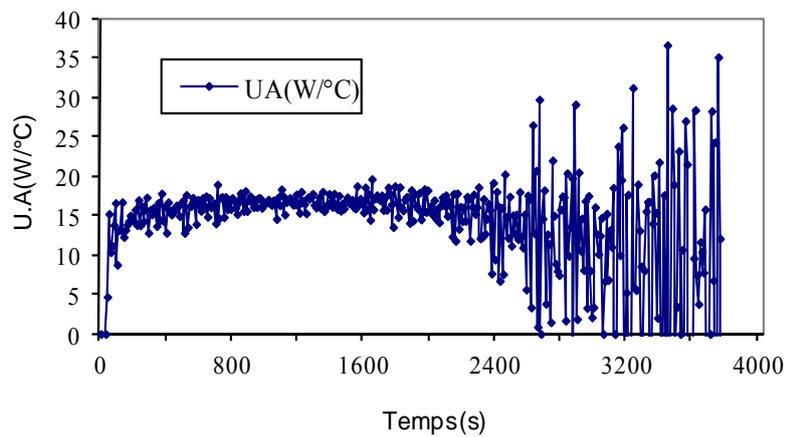


Figure 2.9 : Evolution UA pour une vitesse d'agitation 200 rpm, $m_{\text{eau}} = 2l$

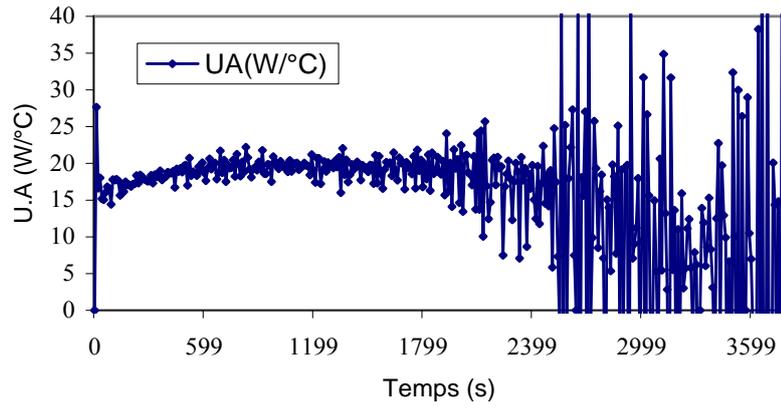


Figure 2.10 : Evolution UA pour une vitesse d'agitation 300 rpm, $m_{\text{eau}} = 21$

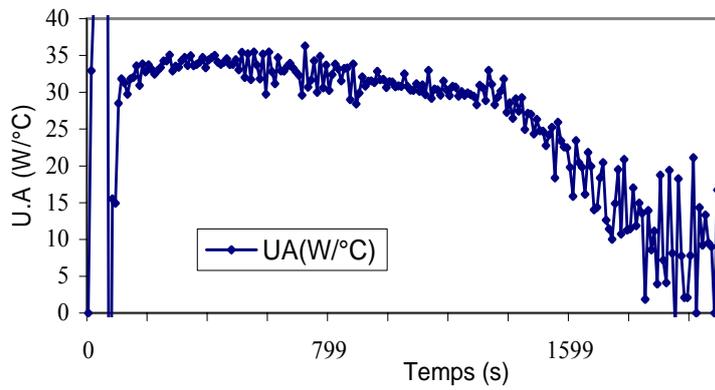


Figure 2.11 : Evolution UA pour une vitesse d'agitation 300 rpm, $m_{\text{Toluène}} = 1.51$

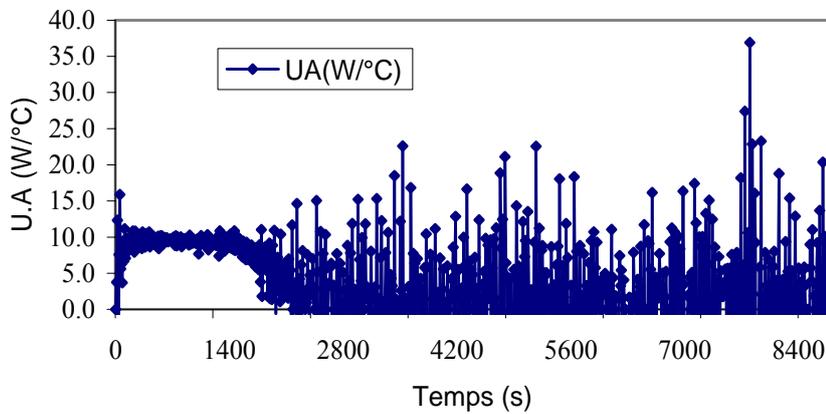


Figure 2.12 : Evolution UA pour une vitesse d'agitation 200 rpm, $m_{\text{Toluène}} = 1.51$

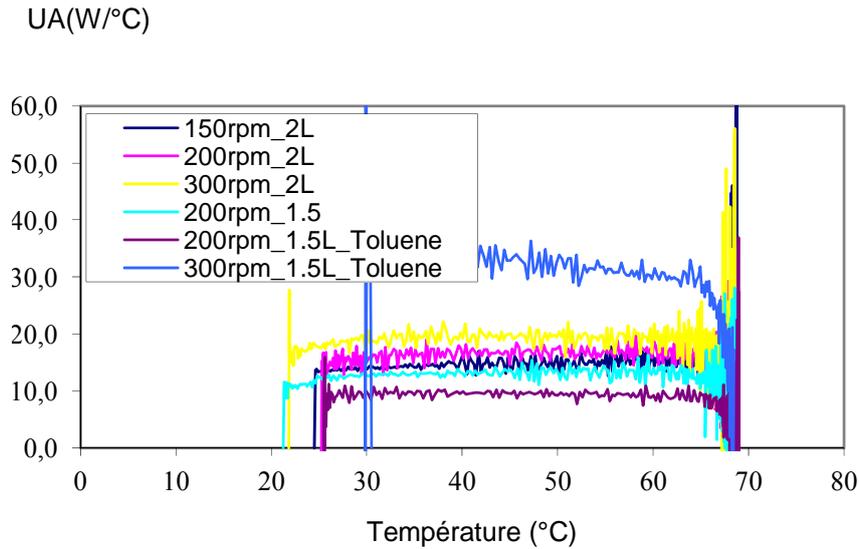


Figure 2.13 : Evolution UA pour différentes vitesses d'agitation

2.5.5. Estimation théorique du coefficient d'échange

Pour mieux comprendre le problème, nous avons tenté d'estimer à chaque instant la valeur du coefficient d'échange.

Pour d'estimer le coefficient d'échange à chaque instant, il faut revenir au bilan de base.

$$UA(T_{de} - T_R) = M Cp \frac{dT_R}{dt} \quad (2.4)$$

Qui peut aussi s'écrire en fonction des instants K et K+1

$$U = \frac{m Cp \left(\frac{T_{(k+1)} - T_{(k)}}{t_{(k+1)} - t_{(k)}} \right)}{A(T_{de} - T_R)} \quad (2.5)$$

On obtient les résultats qui sont représentés graphiquement

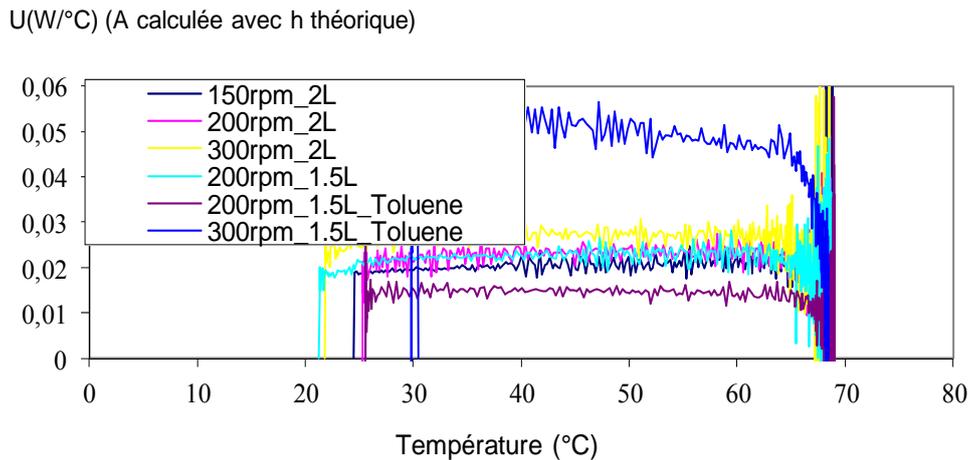


Figure 2.14 : Evolution U pour différentes vitesses d'agitation (A calculée avec h théorique)

2.5.6. Calcul du coefficient d'échange

On peut calculer U en mesurant la hauteur du mélange réactionnel puis, en calculant la surface d'échange et après on détermine la nouvelle valeur du coefficient d'échange. D'après la représentation graphique du coefficient d'échange en fonction de la température du mélange

réactionnel, on note une petite différence entre U calculée théoriquement et U calculé à partir de la mesure de la hauteur.

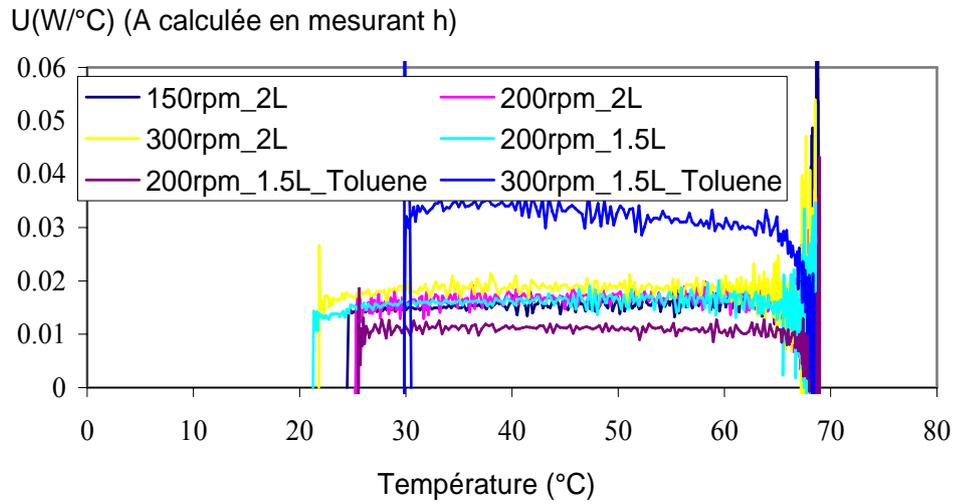


Figure 2.15 : Evolution U pour différentes vitesses d'agitation (A calculée avec h mesurée)