

*Etude de la
Distribution des
Temps de Séjour
(DTS) pour des
réacteurs
« classiques »*



Manip n°17

T.P. de 2^{ème} Année GC, mars 2021

AM. BILLET modif L. BARTHE

Etude de la Distribution des Temps de Séjour pour des réacteurs « classiques » système air/eau

I. Rappels : méthode DTS

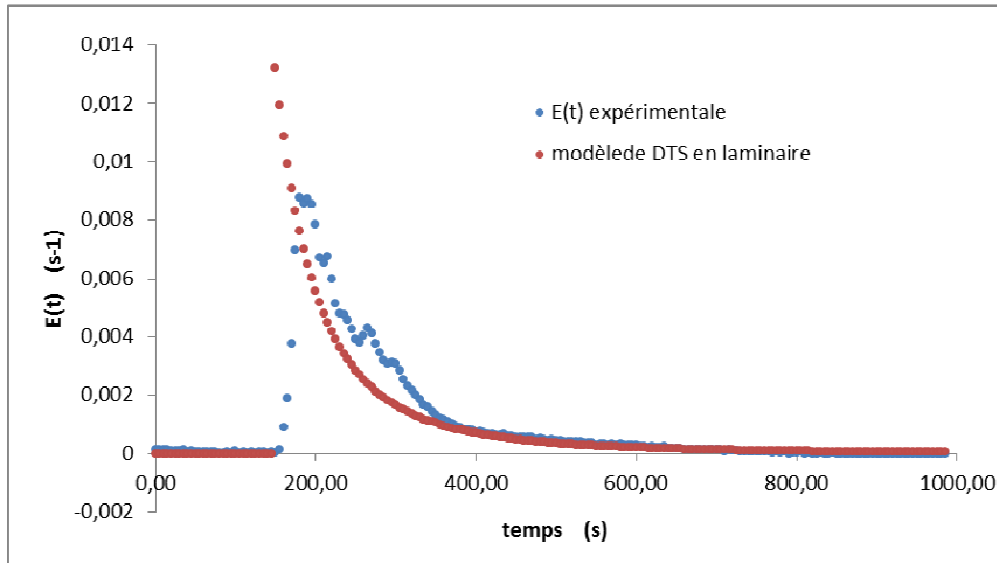
La méthode consistant à identifier pour un réacteur la Distribution des Temps de Séjour (DTS) permet de caractériser l'écoulement dans ce réacteur, et ainsi d'en comprendre le fonctionnement. Idéalement, on peut déduire de la DTS d'un réacteur le taux de conversion à attendre en sortie d'appareil, pour une réaction de cinétique donnée.

Pour caractériser l'écoulement, on injecte à l'entrée du réacteur un traceur de façon à ce que sa concentration soit mesurable au cours du temps à la sortie du réacteur ; l'injection peut se faire de 2 façons : par « impulsion » ou par « échelon ».

On définit alors la fonction DTS ainsi : $E(t).dt$ est la fraction du débit de sortie pour laquelle les molécules de fluide (ici : de traceur) ont séjourné dans le réacteur pendant une durée comprise entre t et $t+dt$. $E(t)$ est donc homogène à l'inverse d'un temps, et par convention $E(t)$ doit vérifier : $\int_0^{\infty} E(t).dt = 1$.

Les points importants à connaître sont les suivants :

- Pour un traçage impulsif, on peut montrer que $E(t)$ est proportionnelle à la concentration $c_f(t)$ du traceur en sortie du réacteur.
- La fonction $E(t)$ peut être caractérisée par ses moments.
 - le moment d'ordre 1 est appelé « temps de séjour moyen » et est défini par :
$$\mu_1 = \bar{t} = \int_0^{\infty} t.E(t).dt$$
 - le moment centré d'ordre 2 est appelé « variance centrée » et est défini par :
$$\mu'_2 = \sigma^2 = \int_0^{\infty} (t - \bar{t})^2 .E(t).dt$$
- Pour un réacteur idéal (cuve parfaitement mélangée ou réacteur tubulaire à écoulement « piston »), le temps de séjour moyen du fluide est égal au temps de passage τ dans le réacteur ($\tau=V/Q$).
- Une fois la DTS déterminée (expérimentalement) pour un réacteur, on peut bâtir un modèle pour représenter quantitativement l'écoulement dans cet appareil.

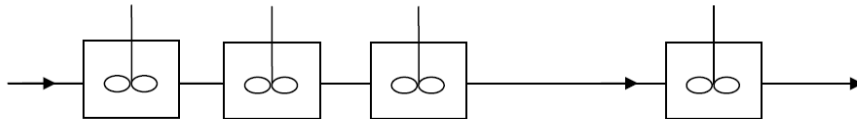


Exemple de modélisation hydrodynamique pour un réacteur tubulaire non garni

Les modèles les plus courants sont :

- le modèle des bacs parfaitement mélangés en cascade
- le modèle « piston » avec dispersion
- le modèle d'association de réacteurs idéaux.

✓ Pour le modèle des bacs en cascade, on rappelle :



N RAC en série

DTS :

$$E(t) = \left(\frac{N}{\bar{t}}\right)^N \cdot t^{N-1} \cdot \frac{\exp\left(-\frac{Nt}{\bar{t}}\right)}{(N-1)!}$$

Moments :

$$\bar{t} = N \cdot \bar{t}_N = N \cdot \tau_N \quad \sigma^2 = \frac{\bar{t}^2}{N}$$

Note : Pour toute application de la fonction $E(t)$ théorique issue de ce modèle, la fonction factorielle peut être prolongée à l'ensemble des nombres réels (à l'exception des nombres entiers négatifs ou nuls) grâce à la fonction Gamma d'Euler (notée Γ) :

$$z! = \Gamma(z + 1) = \int_0^{\infty} t^z e^{-t} dt$$

✓ Pour le modèle « piston avec dispersion axiale », on rappelle aussi les principes :

Flux de j : $F_j = Q \cdot c_j - D_A \cdot \frac{\partial c_j}{\partial z} \cdot S$ (convection + dispersion)

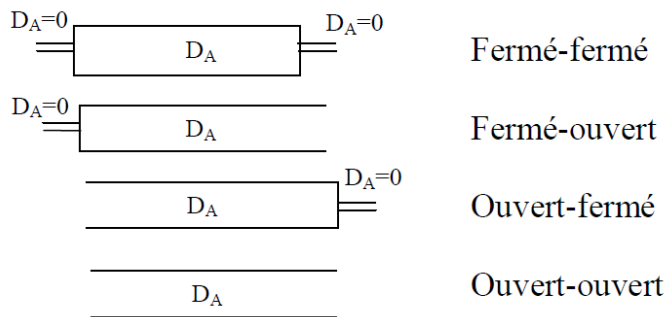
D_A : coefficient de dispersion axiale ($m^2 \cdot s^{-1}$)

S : section de la colonne

Bilan en régime transitoire avec réaction ($\sum_j v_j \cdot A_j = 0$) :

$$v_j r = v \cdot \frac{\partial c_j}{\partial z} - D_A \cdot \frac{\partial^2 c_j}{\partial z^2} + \frac{\partial c_j}{\partial t}$$

Pour cette équation de transport, les conditions aux limites sont de 2 types possibles (ouvert ou fermé), menant à 4 configurations possibles pour le réacteur :



Dans le cas de conditions aux limites ouvert-ouvert, il existe une solution analytique à l'équation de transport et la fonction DTS s'écrit rigoureusement :

$$E(t) = \frac{1}{2} \cdot \left(\frac{Pe}{\pi \cdot t} \right)^{\frac{1}{2}} \cdot \exp \left(\frac{-Pe \cdot (\bar{t} - t)^2}{4 \cdot t} \right)$$

Dans les autres cas, il n'y a pas de solution analytique. Cependant, les moments de la fonction DTS peuvent être calculés à l'aide du nombre adimensionnel de Peclet, qui quantifie l'importance du mélange devant la convection : $Pe = \frac{UL_{réacteur}}{D_A}$, où U est la

vitesse débitante dans le réacteur (m/s).

Conditions limites	Moment 1 : $\frac{\bar{t}}{\tau}$	Moment 2 : $\frac{\sigma^2}{\tau^2}$
Ouvert-ouvert	$1 + \frac{2}{Pe}$	$\frac{2}{Pe} + \frac{8}{Pe^2}$
Ouvert-fermé ou fermé-ouvert	$1 + \frac{1}{Pe}$	$\frac{2}{Pe} + \frac{3}{Pe^2}$
Fermé-fermé	1	$\frac{2}{Pe} - \frac{2}{Pe^2} \cdot (1 - \exp(-Pe))$

Pour ce type de modèle, et pour une cinétique de réaction d'ordre global supérieur à 1, on peut estimer la concentration de sortie d'un réactif par le modèle des filets en parallèle :

$$\frac{c_s}{c_0} = \int_0^{+\infty} \frac{c(t)}{c_0} \cdot E(t) \cdot dt$$

où $c(t)$ est la concentration de sortie au bout d'un fin filet de fluide de temps de séjour t (donc la concentration en sortie d'un réacteur idéal « piston » de temps de passage t).

Pour plus d'informations sur la méthode DTS, on se reportera, par exemple, aux Techniques de l'Ingénieur, ou au cours de Réacteurs Non Idéaux (ENSIACET, 2^{ème} année, départements GC et GPI).

II. Objectif du TP

L'objectif pédagogique du TP est avant tout de bien comprendre la notion de DTS, mais également de mettre cette notion en application: mettre en œuvre un traçage expérimental, analyser la courbe de réponse temporelle, identifier les grandeurs clés de l'écoulement : temps de séjour moyen, variance, nombre de bacs en série équivalent, nombre de Peclet, coefficient de dispersion axiale. A partir de ces grandeurs on pourra alors identifier un modèle pertinent d'écoulement pour ce réacteur, et ainsi extrapoler le taux de conversion pour une réaction de cinétique simple.

A travers ce TP on souhaite également que les étudiants appréhendent l'influence des conditions opératoires sur la DTS d'un réacteur (débit, régime d'écoulement, ou encore vitesse d'agitation).

III. Dispositif expérimental et préparation des expériences

III.1. Description du pilote

Le pilote disponible pour ce TP est un module permettant l'étude hydrodynamique par traçage de différents types de réacteurs classiques (agités ou tubulaires).

Il comprend :

- 2 réacteurs agités similaires, montés en série, et de volumes respectifs :
 $V_1=0,510$ L et $V_2=0,340$ L
- 1 réacteur agité de volume $V_3= 1,100$ L

- 1 réacteur tubulaire vide, de volume 0,640 L : $L_{\text{réacteur}} = 3,19$ m et $D_{\text{réacteur}} = 16$ mm
- 1 réacteur tubulaire à garnissage, de volume total 1,312 L : $L_{\text{réacteur}} = 0,83$ m et $D_{\text{réacteur}} = 44,9$ mm

Pour effectuer les expériences de traçage, le module comporte également les utilités suivantes :

- 2 bacs d'alimentation en eau, au-dessus du module, au sol (inutiles ici)
- 2 pompes doseuses (inutiles dans cette version du TP)
- 2 bacs d'alimentation gravitaire en eau, en tête de module
- 2 débitmètres à flotteur, étalonnés en L/h pour l'eau
- 5 sondes de conductivités
- 2 conductimètres
- des piquages positionnés sur les conduites d'alimentation des réacteurs et permettant d'injecter à la seringue une solution de traceur
- des sondes de température
- un enregistreur permettant de récupérer les signaux temporels de conductivité et de température
- un ordinateur équipé d'un logiciel d'acquisition et de visualisation des données

III.2. Préparation des expériences

a) **IMPORTANT** : *précautions à prendre au démarrage du pilote*

- **Vérifier que les bacs d'alimentation situés au-dessus du pilote sont pleins (les remplir si besoin)**
- **Allumer le tableau électrique général du pilote**
- **Identifier les variables affichées sur le tableau (conductivités, températures, vitesses d'agitation) et localiser sur le pilote les capteurs qui les lisent ; vérifier le positionnement de ces capteurs, et la gamme de lecture des variables (gamme maximale au démarrage)**

b) *Manipulations préalables aux expériences*

- Préparer 100 mL de solution de traceur : KOH (ou NaCl à défaut), $C = 0,2$ mol/L
- Remplir les bacs supérieurs à l'aide des pompes doseuses

c) Protocole pour le traçage d'un réacteur

- Remplir les bacs d'eau (au-dessus du pilote), si besoin
- Choisir le réacteur à tracer ; vérifier que, pour ce circuit d'alimentation, les vannes et les conduites sont dans la bonne configuration sur le circuit 'bac supérieur → réacteur → réservoir de recette'
- Choisir le débit volumique Q et si besoin la vitesse d'agitation N_{rpm}
- Alimenter le réacteur au débit choisi, agiter le cas échéant
- Pour ces valeurs choisies, calculer le temps de passage dans le réacteur $\tau = \frac{V}{Q}$; en déduire la durée approximative de l'expérience (3 ou 4 fois τ pour un réacteur non idéal)
- Déterminer la (ou les) sonde(s) de conductivité qui sera (seront) concernée(s) par l'expérience ; sur le tableau de commande, positionner les sélecteurs sur les bonnes positions : **sonde CE1, CE2, CE3 ou CE4 pour le conductimètre n°2**, cuve 1, 2 ou 3 pour l'afficheur de vitesse d'agitation
- Préparer une seringue contenant 5mL de solution saline
- Démarrer le logiciel d'acquisition Autolink **ⓐ** ; dans le menu, cliquer sur le réacteur choisi pour démarrer l'acquisition des données, puis sur « Export excel » où vous devez choisir un nom de fichier et lancer l'exportation (« start ») ; enfin cliquer sur « Tendence » pour afficher la conductivité au long de l'expérience
- Attendre la stabilisation du signal de conductivité (pour de l'eau, il doit être de l'ordre de 200-250 $\mu S/cm$)
- Injecter (de façon rapide) le traceur à l'entrée du réacteur et relever sur l'horloge de l'ordinateur la valeur du temps d'injection t_0
- Pendant l'expérience, surveiller sur le débitmètre que le débit Q reste constant ; surveiller le niveau d'eau dans le bac d'alimentation (au-dessus du pilote) et l'alimenter à l'aide d'une pompe si besoin
- Lorsque le signal de conductivité est revenu à sa valeur initiale, noter l'heure de fin d'expérience, et extraire le fichier de résultat : ouvrir Excel, et par « fichier → ouvrir » sélectionner le fichier (titre=date du jour) dans le dossier « Raccourci vers les fichiers bruts DTS » (sur le bureau)
- Sauvegarder le fichier sous un nouveau nom, quitter le logiciel **ⓐ**.

IV. Expériences demandées

IV.1. Etude DTS de cuves agitées, par traçage impulsif

- **Association de 2 cuves en cascade :**

✓ *Expérience 1* : $Q = 10 \text{ L/h}$ et $N_{rpm,1} = N_{rpm,2} = 500 \text{ tr/min}$

- Traçage des réacteurs : voir protocole en II.2 c)

Pour chaque réacteur de cette association de réacteurs :

- Traitement de signal et tracé de $E(t)$
- Mesure de \bar{t} par la méthode des moments ; comparaison avec V/Q ; commentaires
Calcul de la variance centrée σ^2 par le calcul statistique du moment d'ordre 2 ;
évaluation d'un nombre équivalent de cuves en série ; tracé de la fonction $E(t)$
théorique (modèle des N bacs en série) et commentaires ;
- Si la 1^{ère} cuve de la cascade s'avère être très bien mélangée, on évaluera également \bar{t} par la méthode graphique: lissage de la réponse temporelle par une fonction exponentielle et identification du facteur sous-exponentiel.
- Extrapolation de la conversion en réactif qu'on obtiendrait avec une réaction d'ordre 2 : $A+B \rightarrow C$, avec $r = kC_A C_B$ avec $k = 10 \text{ L/mol/h}$ et avec $C_{A0}=C_{B0}=1 \text{ mol/L}$

- **Cuve unique : cuve agitée n°3**

✓ *Expérience 2* : $Q = 10 \text{ L/h}$, $N_{rpm} = 500 \text{ tr/min}$

(note : cette expérience sera l'expérience de référence pour la cuve n°3)

- Traçage du réacteur : voir protocole en II.2 c)
- Traitement de signal et tracé de $E(t)$
- Mesure de \bar{t} par la méthode des moments ; comparaison avec V/Q ; commentaires
- Calcul de la variance centrée σ^2 par le calcul statistique du moment d'ordre 2 ;
évaluation d'un nombre équivalent de cuves en série ; tracé de la fonction $E(t)$
théorique (modèle des N bacs en série) et commentaires ;
- Extrapolation de la conversion en réactif qu'on obtiendrait avec une réaction d'ordre 2 : $A+B \rightarrow C$, avec $r = kC_A C_B$ avec $k = 10 \text{ L/mol/h}$ et avec $C_{A0}=C_{B0}=1 \text{ mol/L}$

✓ *Expérience 3 : $Q = 5 \text{ L/h}$, $N_{rpm} = 500 \text{ tr/min}$*

- Même étude que pour l'expérience 2
- Comparaison et commentaires

✓ *Expérience 4 : $Q = 10 \text{ L/h}$, $N_{rpm} = 0 \text{ tr/min}$*

- Même étude que pour l'expérience 2
- Noter et expliquer les différences observées sur les réponses temporelles de sortie; Proposer un modèle hydrodynamique adapté et préciser les paramètres qu'il faudrait identifier.

IV.2. Etude DTS en réacteurs de type tubulaire, par traçage impulsionnel

- *Réacteur tubulaire à garnissage :*

✓ *Expérience 5 : $Q = 10 \text{ L/h}$*

- Évaluer le volume occupé par le garnissage ; en déduire le volume utile de fluide dans le réacteur ; tracer le réacteur
- Tracé de $E(t)$ (courbe expérimentale)
- Calculer \bar{t} à l'aide de la courbe de $E(t)$ par la méthode des moments ; comparaison avec V/Q ; commentaires
- Calcul de la variance centrée σ^2 ; évaluation d'un nombre équivalent de cuves en série ; commentaires
- Discussion sur le type de conditions aux limites pour ce réacteur; calcul du nombre de Pe correspondant à cette expérience, pour les 2 types possibles de conditions aux limites, puis du coefficient de dispersion axiale D_{ax} ; commentaires
- Estimer le taux de conversion de la réaction d'ordre 2, à l'aide du modèle des N bacs et par la méthode des filets parallèles ; commentaires; comparaison avec le cas de la cuve bien agitée.

✓ *Expérience 6 : $Q = 5 \text{ L/h}$*

- Même étude que dans l'expérience 5, sans estimer le taux de conversion ; justifier les différences observées sur les courbes temporelles de sortie.

- Réacteur tubulaire vide :

✓ Expérience 7 : $Q = 10 \text{ L/h}$

- Tracer le réacteur
- Etude de la DTS expérimentale: tracer $E(t)$; calcul de V/Q ; mesure de \bar{t} et de σ ; calcul de N , du nombre de Peclet (comme pour l'expérience 5), et du coefficient de dispersion axiale D_{ax} ; tracer $E(t)$ théorique et la comparer à la fonction $E(t)$ expérimentale ;
- Evaluer le taux de conversion de sortie pour la réaction d'ordre global 2 (par la méthode des filets parallèles
- Comparer les différents résultats obtenus en tube vide et en tube à garnissage, expliquer les différences
- Calculer le nombre de Reynolds correspondant à ce réacteur et à ces conditions opératoires ; justifier analytiquement l'allure de la fonction DTS
- *Pour aller plus loin : imaginer une façon de déduire le profil radial de vitesse dans le réacteur à garnissage à partir de l'étude DTS.*

On fera une synthèse des résultats obtenus en comparant les DTS théoriques, et en examinant l'influence des variables opératoires (débits, temps de passage, vitesse d'agitation, ...) sur les paramètres des modèles utilisés (N ou Pe).

IMPORTANT : protocole de fin de TP

On rincera tous les réacteurs qui ont été utilisés en les alimentant en eau pendant 15 minutes ; pour les cuves, mettre l'agitation en route pour cette phase de rinçage.