

Suivi quantitatif des cinétiques de processus hétérogènes dans les milieux pulvérulents

Loïc Favergeon

Mines Saint-Etienne, Université de Lyon, CNRS, UMR5307 LGF, Centre SPIN, Saint-Etienne, France

Les réactions hétérogènes solide-gaz sont présentes dans de nombreux domaines industriels tels que la chimie, la métallurgie, le cycle du combustible nucléaire, le stockage de l'énergie, le captage du CO₂, etc... Les réacteurs industriels où se déroulent ces réactions sont des dispositifs complexes à appréhender : en effet le milieu granulaire formé par la phase solide et l'ensemble des gaz réactifs et produits voit ses propriétés modifiées à chaque instant par les réactions chimiques qui s'y déroulent. Le développement d'outils d'aide à la conception, à la maintenance et au diagnostic de ces installations apparaît donc comme un fort enjeu pour les ingénieurs en Génie des Procédés.

Ainsi le design de réacteurs industriels pour des systèmes réactionnels solide-gaz exige non seulement de connaître la cinétique chimique à l'échelle du grain, mais également de considérer la géométrie du réacteur, les sources de chauffage, les entrées et sorties de flux gazeux, le lit de poudre, etc...

Un traitement simplifié des équations de transfert de chaleur et de matière est possible sous certaines hypothèses. Il fait généralement appel à la loi d'additivité des temps caractéristiques [1], et conduit à des modèles du type modèle de grains [2] ou modèle de pores [3].

Dans le but de pouvoir décrire des réacteurs en tenant compte de modèles cinétiques plus complexes et de s'affranchir de ces hypothèses, nous avons développé une approche multi-physique permettant de coupler les équations de transferts de chaleur et de matière avec des lois cinétiques complexes décrivant les réactions solide-gaz [4].

Une étude approfondie de la cinétique de la réaction chimique à partir d'expériences de thermogravimétrie en conditions isothermes et isobares, de tests expérimentaux de validation d'hypothèses cinétiques, ainsi que des caractéristiques morphologiques des réactifs et produits solides, permet d'accéder à une loi de vitesse générale [5]. Cette expression permet de tenir compte de l'influence des grandeurs thermodynamiques et des caractéristiques du système solide-gaz (forme et taille des grains, nature de l'étape limitante, etc...). A cette échelle « microscopique », la vitesse de réaction $d\alpha/dt$ permet de calculer les sources de chaleur et de matière produites par la réaction.

A l'échelle « macroscopique » du milieu granulaire ou plus largement du réacteur, les équations bilans de chaleur et de matière sont résolues à chaque instant en tenant compte des transferts et des sources déterminées à l'échelle « microscopique ». La résolution de ces équations permet de calculer à chaque instant et à chaque endroit du réacteur la température et les pressions partielles des gaz intervenant dans la réaction.

[1] H.Y. Sohn, Metall. Trans, 9B, p 89-96 (1978)

[2] J. Szekeley et al., Chem. Eng. Sci., 25, p 1091-1107 (1970)

[3] S. Bhatia et al. AIChE J. 26, p 379-389 (1980)

[4] L. Favergeon et al. Oil Gas Sci. Techn. 68, p 1039-1048 (2013)

[5] M. Pijolat et al. Thermochim. Acta, 525 p 93-102 (2011)