



**HAL**  
open science

# CONTRIBUTION OF BOND GRAPH MODELLING FOR SUPERVISION DESIGN OF CHEMICAL REACTORS

Ahmed, Khaled Redouane

► **To cite this version:**

Ahmed, Khaled Redouane. CONTRIBUTION OF BOND GRAPH MODELLING FOR SUPERVISION DESIGN OF CHEMICAL REACTORS . Engineering Sciences [physics]. Université des sciences et technologies de Lille 1, 2007. English. NNT: . tel-01736583

**HAL Id: tel-01736583**

**<https://hal.science/tel-01736583v1>**

Submitted on 18 Mar 2018

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'Ordre : 4088

Université des Sciences et Technologies de Lille  
Laboratoire d'Automatique Génie Informatique et Signal  
UMR CNRS 8146

**THÈSE**

Présentée en vue de l'obtention du grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ**

Spécialité : Productique, Automatique et Informatique Industrielle

Par

**KHALED Ahmed Redouane**

**CONTRIBUTION DE L'OUTIL BOND GRAPH POUR LA  
MODÉLISATION DES RÉACTEURS CHIMIQUES EN VUE  
DE LEUR SUPERVISION**

Soutenue publiquement le 14 Décembre 2007 devant la commission d'examen :

Président

Rapporteurs	<b>K. Nacer M'SIRDI</b>	Professeur, Université Paule Cézanne Aix Marseille.
	<b>Riad BENELMIR</b>	Professeur, Université Henri POINCARÉ, Nancy.
Examineurs	<b>Kamal YUCEF-TOUMI</b>	Professeur, MIT, Cambridge, USA.
	<b>Nouredine ZERHOUNI</b>	Professeur, École Nationale Supérieure de Mécaniques & Microtechniques, Besançon.
	<b>Geneviève DAUPHIN-TANGUY</b>	Professeur, Ecole Centrale de Lille.
	<b>Jean Philippe CASSAR</b>	Professeur, Ecole Polytechnique Universitaire de Lille.
	<b>Belkacem OULD BOUAMAMA</b>	Professeur, Ecole Polytechnique Universitaire de Lille. Directeur de thèse.
	<b>Aziz NAKRACHI</b>	Maître de conférences, Ecole Polytechnique Universitaire de Lille. Codirecteur de thèse.

# Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Madame Geneviève Dauphin-Tanguy, Professeur à l'École Centrale de Lille et Madame Mireille Bayart, Professeur à l'École Polytechnique Universitaire de Lille pour m'avoir accueilli dans leurs équipes (équipe Bond Graph et équipe SFSD).

Je remercie également mon directeur de thèses Belkacem Ould Bouamama, Professeur à l'École Polytechnique Universitaire de Lille et mon co-directeur de thèse Aziz NAKRACHI, Maître de conférences à l'École Polytechnique Universitaire de Lille pour m'avoir encadré, encouragé et soutenu tout au long de ce travail.

Je remercie Monsieur Nacer M SIRDI, Professeur à l'Université de Paule Cézanne d'Aix Marseille et Monsieur Riad BENELMIR, Professeur à l'Université de Henri Poincaré de Nancy, d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce présent mémoire.

Tous mes remerciements vont aussi à Monsieur Kamal Youcef-Toumi Professeur au MIT Massachusetts (USA), à Monsieur Nouredine ZERHOUNI Professeur à l'École Nationale Supérieure de Mécaniques & Microtechniques de Besançon, à Monsieur Jean Philippe CASSAR Professeur à l'École Polytechnique Universitaire de Lille, pour avoir accepté d'être les membres du jury de ma soutenance de thèse.

Je tiens à remercier aussi tous les membres des équipes SFSD et Bond Graph, thésards et permanents pour leur accueil et soutien durant ces années de thèse. Je remercie plus particulièrement sans ordre de préférence : Denis, Mohaned, Khaled, Rim, Kamel, Kumar, Mathieu, Touria, He-Xuan, Mohamed, Cindy, Malika, Michel, Marcelle.

Enfin, j'adresse mes remerciements et ma gratitude à mes parents pour leur aide et encouragements durant toutes mes années d'études.

# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 Généralités et prérequis</b>	<b>3</b>
1.1 Introduction aux réacteurs chimiques . . . . .	3
1.1.1 Définition . . . . .	3
1.1.2 Critères de classifications . . . . .	3
1.1.2.1 La nature et le nombre des phases en présence . . . . .	4
1.1.2.2 Le mode de fonctionnement du réacteur . . . . .	4
1.1.2.3 Mode d'activation de la réaction . . . . .	7
1.1.3 Classes des réacteurs chimiques . . . . .	8
1.2 Modèles dynamiques des réacteurs chimiques . . . . .	10
1.2.1 Introduction . . . . .	10
1.2.2 Modèles empiriques . . . . .	10
1.2.2.1 Les modèles entrée-sortie . . . . .	10
1.2.2.2 Les modèles dans l'espace d'état . . . . .	11
1.2.3 Les modèles phénoménologiques . . . . .	12
1.2.3.1 Bilan de la matière . . . . .	13
1.2.3.2 Bilan d'espèce . . . . .	13
1.2.3.3 Bilan d'énergie . . . . .	14
1.3 Pourquoi les bond graphs en génie des procédés . . . . .	14
1.4 Conclusion . . . . .	16
<b>2 État de l'art sur la modélisation des réacteurs chimiques</b>	<b>19</b>
2.1 Introduction . . . . .	19
2.2 Systèmes thermodynamiques et chimiques . . . . .	20
2.2.1 Variables de puissances en thermodynamique . . . . .	20
2.2.2 Modélisation des systèmes non réactifs . . . . .	21
2.2.2.1 Systèmes fermés . . . . .	21
2.2.2.2 Systèmes ouverts . . . . .	26

2.2.3	Modélisation des systèmes réactifs . . . . .	30
2.2.3.1	Modélisation des réactions chimiques . . . . .	30
2.2.3.2	Modélisation des phénomènes accompagnants les réactions : . . . . .	35
2.2.3.3	Modélisation des réacteurs chimiques . . . . .	37
2.3	Conclusion . . . . .	41
<b>3</b>	<b>Modélisation générique par bond graph des réacteurs chimiques</b>	<b>43</b>
3.1	Introduction . . . . .	43
3.2	Modélisation de la cinétique chimique . . . . .	43
3.2.1	Réactions homogènes . . . . .	43
3.2.2	Réactions hétérogènes . . . . .	50
3.2.2.1	Réactions hétérogènes catalytiques . . . . .	50
3.2.2.2	Réactions hétérogènes non catalytiques . . . . .	56
3.3	Modélisation des réacteurs chimiques . . . . .	61
3.3.1	Réacteurs homogènes . . . . .	61
3.3.1.1	Réacteur continu parfaitement agité . . . . .	66
3.3.1.2	Réacteur semi-fermé . . . . .	76
3.3.1.3	Réacteur fermé . . . . .	77
3.3.1.4	Réacteur continu tubulaire . . . . .	80
3.3.2	Réacteurs hétérogènes . . . . .	83
3.3.2.1	Réacteurs non catalytiques . . . . .	83
3.3.2.2	Réacteurs catalytiques . . . . .	87
3.4	Conclusion . . . . .	91
<b>4</b>	<b>Approche intégrée pour la conception d'un système de surveillance</b>	<b>93</b>
4.1	Introduction . . . . .	93
<b>Partie I</b>	<b>Infomratisation de la Conception des réacteurs chimiques</b>	<b>95</b>
4.2	Conception de biliothèques de modèles pour les réacteurs chimiques . . . . .	97
4.3	Modélisation automatique d'un procédé chimique . . . . .	98
4.3.1	Description de l'exemple d'application . . . . .	98
4.3.2	Modèle bond graph de chaque composant . . . . .	99
4.3.2.1	Modèle des pompes centrifuges . . . . .	99
4.3.2.2	Modèle des réservoirs . . . . .	100
4.3.2.3	Modèle des vannes . . . . .	101
4.3.2.4	Modèle du réacteur . . . . .	102
4.3.3	Vérification de la cohérence fonctionnelle et causale . . . . .	104

---

4.3.4	Simulation numérique . . . . .	105
<b>Partie II</b>	<b>Supervision des réacteurs chimiques</b>	<b>107</b>
4.4	Modèle bond graph d'un système de surveillance . . . . .	109
4.4.1	Représentation structurelle d'un système de surveillance . . . . .	109
4.4.1.1	Les contraintes . . . . .	109
4.4.1.2	Les équations structurelles $F_J$ . . . . .	110
4.4.1.3	Les équations de comportement $F_B$ . . . . .	110
4.4.1.4	Les équations de mesures $F_Y$ . . . . .	110
4.4.1.5	Les équations de commande $F_C$ . . . . .	110
4.4.1.6	Les équations des sources contrôlées $F_A$ . . . . .	111
4.4.2	Les variables . . . . .	111
4.4.3	Les paramètres . . . . .	111
4.4.4	Génération des relations de redondance analytique RRA . . . . .	112
4.4.5	Matrice de signature de défaillances . . . . .	115
4.5	Particularités de la surveillance des réacteurs chimiques par approche bond graph . . . . .	116
4.6	Conception d'un système de surveillance dans le cas des processus chimiques	117
4.6.1	Description du procédé d'application . . . . .	117
4.6.2	Génération du modèle dynamique du procédé . . . . .	119
4.6.3	Génération des RRA du processus . . . . .	122
4.6.4	Analyse de la surveillabilité du processus . . . . .	125
4.7	Conclusion . . . . .	129
	<b>Conclusions générales et perspectives</b>	<b>131</b>
1	Conclusions . . . . .	131
2	Perspectives . . . . .	132
	<b>Annexe</b>	<b>133</b>
1	Généralités sur les bond graphs . . . . .	133
1.1	Definition . . . . .	133
1.2	Eléments Bond Graph à un port . . . . .	134
1.2.1	Représentation . . . . .	134
1.2.2	Utilisation des variables dans la modélisation bond graph	134
1.2.3	Elements passifs . . . . .	136
1.2.4	Eléments actifs . . . . .	137
1.2.5	Eléments de jonction . . . . .	138

---

1.3	Eléments bond graphs à 2 ports . . . . .	139
1.3.1	Transformateur TF . . . . .	139
1.3.2	Gyrateur GY . . . . .	140
1.3.3	Carrousel de Thoma . . . . .	141
1.3.4	Liens d'information . . . . .	141
1.4	Eléments bond graph multiports ou champs C, I et R . . . . .	141
1.4.1	Multiport C . . . . .	142
1.4.2	Multiport I . . . . .	143
1.4.3	Multiport mixte IC . . . . .	144
1.4.4	Multiport R . . . . .	145
1.4.5	Multiport RS . . . . .	145
1.5	Notion de causalité . . . . .	145
1.5.1	Règle d'affectation de la causalité . . . . .	146
1.5.2	Chemin causal . . . . .	148
1.6	Bond graph bicausal . . . . .	150
1.7	Equations d'état associées au modèle bond graph . . . . .	151
1.7.1	Propriétés des variables d'état . . . . .	151
1.8	Eléments de pseudo bond graph . . . . .	152

**Bibliographie****153**

# Introduction générale

L'objectif de cette thèse est le développement d'une approche générique pour la modélisation des réacteurs chimiques afin d'améliorer la conception et la supervision des processus chimiques. Les travaux de recherche ont été réalisés au sein d'une opération transversale "Bond Graph-Surveillance" entre les équipes "Bond Graph" et "Sûreté de Fonctionnement des Systèmes Dynamiques (SFSD)" du Laboratoire d'Automatique, Génie Informatique et Signal (LAGIS, UMR CNRS 8146).

Cette recherche est une continuité des travaux développés depuis une dizaine d'années sur la conception intégrée des systèmes de supervision à l'aide de l'outil bond graph. Concrètement, il s'agit d'utiliser un seul outil pour la modélisation et la génération d'algorithmes de supervision. Cette démarche est basée sur l'exploitation des deux types de propriétés de l'outil bond graph :

1. Les propriétés comportementales et fonctionnelles grâce à son caractère multiphysique et générique.
2. Les propriétés structurelles et causales par son caractère graphique.

Dans ce domaine, un certain nombre de travaux a été développé et validé par des applications réelles et par un outil logiciel pour l'informatisation des procédures de génération des modèles et algorithmes de surveillance.

Les systèmes concernés par ces applications sont décrits par des modèles bond graph mettant en œuvre une seule énergie [65], puis par deux énergies (systèmes thermofluides) [44]. L'extension de ces résultats de recherche à des procédés chimiques représente un intérêt scientifique innovant.

Les phénomènes chimiques introduisent une complexité supplémentaire aux procédés énergétiques par l'adjonction des phénomènes de transformation de la matière. Le couplage des trois types de puissances (fluidique décrite par la paire de variables (pression, flux massique); thermodynamique représentée par la paire (température, flux d'entropie ou flux thermique en pseudo bond graph; chimique représentée par la paire (flux molaire, potentiel chimique)) caractérise la complexité des procédés traités dans le présent mémoire.

Sur le plan théorique il s'agit de développer des modèles bond graphs génériques de réacteurs et de phénomènes chimiques. Ces modèles sous forme d'une base de bibliothèque seront

utilisés pour la construction des modèles formels dynamiques des procédés chimiques.

Une contribution à la génération automatique de relations de redondance analytique formelles pour l'analyse de surveillabilité de ces systèmes sera aussi développée. La surveillance des procédés chimiques du point de vue de la protection de l'environnement et du personnel (contrôle de l'apparition de réactions secondaires par exemple) constitue une thématique d'actualité. Les algorithmes développés seront testés sur des exemples pédagogiques en absence de la disponibilité de procédés réels.

Ce mémoire sera réparti en quatre chapitres finalisés par une conclusion générale et de perspectives.

### **Chapitre 1: Généralités et pré requis**

On va présenter dans ce chapitre une classification des réacteurs chimiques en génie de procédés et un aperçu sur la modélisation classique des réacteurs dans la communauté des automaticiens.

### **Chapitre 2: Etat de l'art sur la modélisation des réacteurs**

Ce chapitre sera consacré à donner un aperçu sur la modélisation des systèmes thermodynamiques par approche bond graph. Nous présentons une synthèse sur les travaux existants qui concerne la modélisation des réacteurs chimiques afin de se positionner par rapport à ce qui existe sur le sujet.

### **Chapitre 3: Modélisation par bond graph des réacteurs chimiques**

Ce chapitre est consacré à développer des modèles bond graph de réacteurs dédiés à la conception et à la supervision des installations industrielles. Cette démarche de développement sera constituée de deux parties :

La première partie concerne la modélisation des réactions chimiques (homogènes et hétérogènes), où des phénomènes chimiques et physico-chimiques surviennent et accompagnent la transformation. L'objectif est de développer des éléments bond graph susceptibles d'être employés par la suite dans la modélisation des réacteurs.

La deuxième partie présente la modélisation des domaines hydrauliques, thermiques et chimiques des réacteurs. Les modèles développés dans la première et la deuxième partie seront combinés pour produire une base de modèles bond graph générique classifiés.

### **Chapitre 4: Approche intégrée pour la conception d'un système de surveillance**

Ce chapitre est consacré à l'informatisation de la procédure de génération des modèles dynamiques et d'algorithmes de surveillance dédiés à la supervision des processus chimiques. Cette partie permet : d'enrichir la bibliothèque de modèles des systèmes énergétiques [54][56] en introduisant des composants chimiques; une analyse de la surveillabilité des procédés.

# Chapitre 1

## Généralités et prérequis

### 1.1 Introduction aux réacteurs chimiques

#### 1.1.1 Définition

Un réacteur industriel est un appareil permettant d'accomplir une transformation chimique ou biochimique pour convertir des constituants moléculaires en d'autres constituants. Seulement, cette notion est limitée aux cas où la transformation est effectuée dans l'objectif de produire une ou plusieurs espèces chimiques prédéfinies. Dans une installation industrielle un " réacteur chimique" est généralement associé à un ensemble de composants industriels (exemple: des pompes, des vannes, des réservoirs, des échangeurs de chaleur, des chaudières, ..... etc.), ces composants placés en amont et en aval, permettent les traitements physiques des réactifs et des produits des réactions en cours [76][74].

#### 1.1.2 Critères de classifications

Même si ce type d'appareils apparaît comme un composant industriel complexe, on peut toutefois définir un certain nombre de critères de classification en se référant aux caractéristiques les plus apparentes à l'échelle macroscopique. En effet, ces critères de classification vont nous permettre de définir un ensemble de catégories de réacteurs et identifier ainsi un quelconque réacteur selon ces caractéristiques pour le classer sous la catégorie appropriée.

Dans ce sens, les critères de classification à l'échelle macroscopique d'un réacteur chimique sont définis comme suite : le nombre et la nature des phases en présence; le mode de fonction du réacteur; le mode d'activation et de la transformation chimique[34].

### 1.1.2.1 La nature et le nombre des phases en présence

Ce critère concerne l'état physique du mélange réactionnel. On peut distinguer deux types de réacteurs suivant ce critère:

- a) **Réacteurs monophasiques** : où le mélange réactionnel (considéré homogène) est alors sous forme d'une seule phase qui peut être gazeuse ou liquide.
- b) **Réacteurs polyphasiques** : dans ce type de réacteurs, appelés aussi réacteurs hétérogènes, le mélange réactionnel est constitué de plusieurs phases. On distingue deux types de mélanges :
  1. Mélanges polyphasiques composés de trois phases : Gaz + Liquide+Solide.
  2. Mélanges polyphasiques composés de deux phases appelés aussi mélanges biphasiques, où on peut rencontrer les combinaisons suivantes :
    - I. Gaz + Liquide.
    - II. Gaz + Solide.
    - III. Liquide + Solide.

Seulement, dans le cas où la phase solide est présente, il faut faire la distinction entre les cas où le constituant solide impliqué dans la réaction sert de catalyseur et ne prend donc pas part à la réaction, et ceux où les constituants solides présents prennent part à la transformation et sont de ce fait des réactifs ou des produits de la réaction.

### 1.1.2.2 Le mode de fonctionnement du réacteur

Ce critère dépend de la construction interne du réacteur et de l'écoulement du mélange réactionnel. En effet, ce sont les exigences pratiques de l'exploitation de l'installation qui déterminent le choix du mode de fonctionnement pour accomplir un processus désigné. Ainsi, on a le choix entre différents modes de fonctionnement, toutefois on a deux cas de réacteurs:

**1<sup>er</sup> cas** : on se base beaucoup plus sur un critère de classification lié à la construction interne du réacteur, par exemple on a : réacteurs à lit fluidisé; réacteurs à lit fixe; réacteurs fluidisés ;....etc. Ces réacteurs sont dans l'ensemble des réacteurs hétérogènes (beaucoup plus de détails seront donnés dans la partie concernant la modélisation par bond graph des réacteurs hétérogènes).

**2<sup>ème</sup> cas** : on se base sur un critère de classification lié au mode d'écoulement du mélange réactionnel, on distingue alors : les réacteurs fermés; les réacteurs semi continus; les réacteurs continus;....etc.

- a) **Réacteurs fermés** : Pour ce type de réacteurs la spécificité est que les constituants réactifs sont chargés au début de l'opération dans la cuve du réacteur. Une fois la transformation chimique accomplie, le mélange est soutiré ensuite vers l'extérieur Fig.1.1.

Pendant le temps que la réaction se déroule il n'y a pas de flux de matière entrant ou sortant du réacteur.

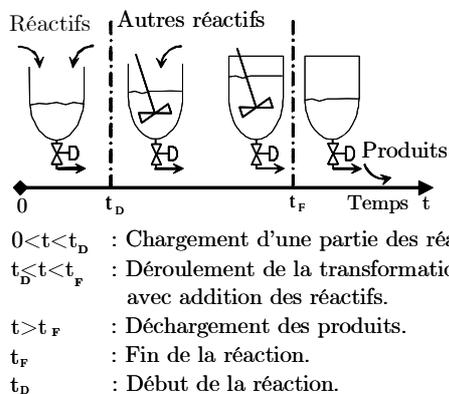
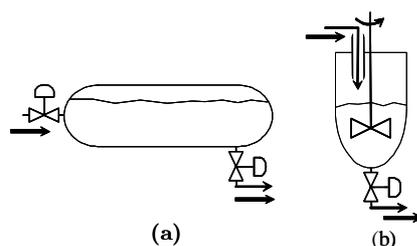


FIG. 1.1 – Réacteur fermé avec différentes étapes.

- b) **Réacteurs semi continus** : à l'instar des réacteurs fermés, pour ce type de réacteurs le déchargement des produits se fait là encore à la fin de l'opération. Seulement, les constituants réactifs sont introduits tout au long de la transformation chimique.
- c) **Réacteurs continus** : concernant les réacteurs continus considérés comme des systèmes ouverts, et à la différence des réacteurs fermés et semi continus, le chargement des constituants réactifs et le déchargement du mélange se font en parallèle durant la transformation chimique.

Pour ce type de réacteurs se manifeste un écoulement interne sous diverses formes, qui dépendent de la structure interne du réacteur et des propriétés physiques du mélange réactionnel. Dans ce sens, il est donc indispensable de définir les types d'écoulements pour définir et classer les cas rencontrés, d'où l'intérêt de faire la différence entre ces modes d'écoulements pour attribuer à chaque type de réacteurs continus ces caractéristiques qui le différencient par rapport aux autres. A cet effet, on a deux principaux types de réacteurs continus à l'image des deux modes d'écoulements idéaux Fig.1.2.



a) - Écoulement de type piston (réacteur tubulaire idéal)  
 b) - Écoulement à travers un récipient parfaitement agité  
 (réacteur à cuve parfaitement agité).

FIG. 1.2 – Réacteurs continus avec des modèles idéaux d'écoulement.

1. **Réacteurs continus parfaitement agités** : l'écoulement du mélange réactionnel se fait dans une cuve où le mélange réactionnel est considéré parfaitement agité. Ainsi, les concentrations des constituants réactifs entrant sont différentes de celles du milieu réactionnel qui a une composition identique à celle du flux sortant du réacteur. Ceci dit, à l'entrée du réacteur on a donc une discontinuité des concentrations des constituants réactifs dans le flux entrant, alors que dans l'ensemble du milieu réactionnel les concentrations des divers constituants sont uniformes. Ces réacteurs sont désignés en anglais par l'appellation CSTR (Continuous Stirred Tank Reactor).
2. **Réacteurs tubulaires** : l'écoulement est de type piston (régime laminaire) avec un flux de matière qui se déplace avec une vitesse désignée dans un tube. Dans ce cas, les constituants progressent se transformant progressivement. C'est ainsi que ce type de réacteur est parfois qualifié de réacteur à gradient de concentrations. Ainsi, les concentrations de chaque espèce chimique (réactifs, produits) dépend du temps et de l'espace.

Dans ces réacteurs continus, l'écoulement du mélange se déroule d'une façon plus complexe, ceci dit il existe un temps de séjour du mélange qui représente le temps de rétention d'une molécule entre son entrée et sa sortie [74]. Ainsi, les modèles des réacteurs continus déjà cités sont à vrai dire idéaux, car on n'a pas tenu compte de ce paramètre. En bond graph, la prise en considération de ce temps de séjour relève de la problématique de la modélisation des systèmes à retard pur, un problème qu'on ne va pas aborder (Le retard pur étant un temps pendant lequel le système n'échange pas de puissance). Dans ce sens, on va utiliser par la suite les modèles idéaux cités avant, qui sont largement employés par la communauté des automaticiens pour la commande des procédés.

Pour illustrer la différence au niveau de l'évolution des concentrations pour les divers types de réacteurs homogènes Fig.1.3, on a présenté l'exemple d'un réacteur monophasique

avec différents types de mode de fonctionnement, et dont la réaction de transformation est définie par :  $n_1 + n_2 \rightarrow n_3$ .

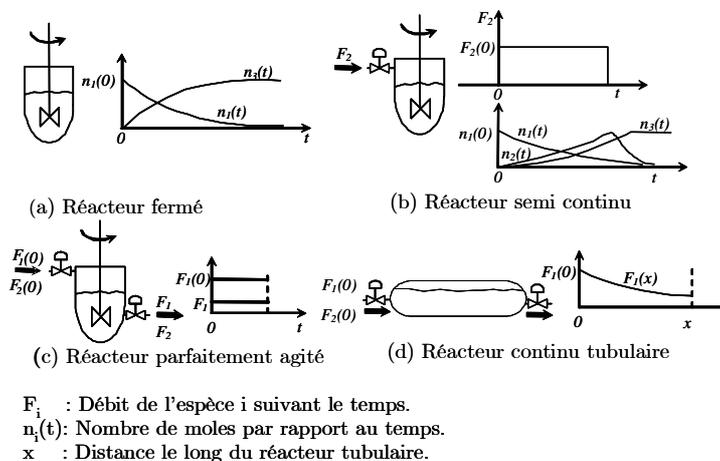


FIG. 1.3 – Différents types de réacteurs avec l'évolution des concentrations.

### 1.1.2.3 Mode d'activation de la réaction

Ce critère de classification dépend du déroulement de la réaction. Ainsi pour stimuler la réaction et augmenter sa vitesse on a deux types de facteur : les catalyseurs et la thermicité de la réaction.

**Les catalyseurs** Pour augmenter la vitesse d'une réaction et améliorer ainsi la productivité d'un procédé, les catalyseurs chimiques sont souvent utilisés pour interagir avec les molécules des réactifs et accélérer leur transformation et obtenir ainsi plus rapidement les produits désirés. Ces catalyseurs peuvent être sous forme de : particules solides (largement utilisés en génie des procédés), liquides, ions, enzymes, ....etc. Par rapport à ce critère de classification on a deux types de réacteurs :

- Réacteurs catalytiques** : dans lesquels le catalyseur est déjà présent dans le mélange réactionnel sous forme suspendue, ou fixé par un dispositif incorporé dans le réacteur appelé un lit.
- Réacteurs non catalytiques** : tous les constituants du mélange réactionnel sont impliqués dans le processus de transformation sauf les constituant considérés comme solvant ou substances inertes.

**Thermicité de la réaction** La plupart des réactions chimiques rencontrées en pratique sont caractérisées par la consommation ou le dégagement de chaleur. Ces réactions sont désignées respectivement par " réactions endothermiques " ou " réactions exothermiques "

respectivement. Ce facteur lié directement à toute transformation chimique a même une influence la cinétique de la réaction, d'où l'intérêt d'équiper le réacteur de dispositifs d'échange thermique capables de transférer ou non la chaleur correspondante dans un sens désiré. On distingue ainsi deux cas particuliers de réacteurs selon ce critère de classification à savoir :

- a) **Réacteurs adiabatiques**: souvent rencontré dans l'industrie, ils constituent simplement un cas particulier du cas général correspondant à une surface d'échange nulle entre le réacteur et le milieu extérieur, autrement dit il n'y a pas d'échange de chaleur entre le réacteur et le milieu extérieur.
- b) **Réacteurs isothermes** : Pour ce type de réacteurs, on note que les différences d'apparence sont assez souvent à l'origine de la localisation de la surface d'échange thermique. Ainsi, l'échange thermique peut être réalisé : à l'intérieur du réacteur; à travers les parois du réacteur; à l'extérieur du réacteur.

### 1.1.3 Classes des réacteurs chimiques

Ainsi, à partir des critères qu'on vient de citer, il est possible d'établir une classification des types de réacteurs évoqués selon les critères de classification retenus à savoir :

1. La nature et le nombre des phases en présence.
2. Le mode de fonctionnement du réacteur.
3. Le mode d'activation.

Lors de la description détaillée des divers types de réacteurs on s'est basé uniquement sur un seul critère de classification, alors que pour un cas pratique la classification sera faite selon tous les critères cités tableau (1.1). Ainsi, pour chacun des critères de classification, nous retrouverons des notions générales s'appliquant respectivement à tous les cas d'une ligne du tableau(1.1) ou à tous ceux d'une colonne. Nous avons par ailleurs indiqué dans ce tableau quelque cas pratiques particulièrement représentatifs des divers types de réacteurs de manière à donner une première idée du caractère concret de cette classification tableau(1.1)

Phases en présence	Mode de fonctionnement	
	Discontinu Fermé ou Semi-continu	Continu Tubulaire ou CSTR
L	polymérisation	Esterification
G+L	Fermentation	Absorption de polluants
L+L	Sulfonation d'aromatiques	Hydrolyse d'esters
(L ou G)+S+Catalyseur	Hydrogénation	cracking catalytique
(L ou G)+S	Régénération de cathalyseur	Combusion en lit fluidisé

TAB. 1.1 – Exemple de Classes de réacteurs (*G:Gaz, L:Liquide, S:Solide*)

## 1.2 Modèles dynamiques des réacteurs chimiques

### 1.2.1 Introduction

Pour modéliser un procédé chimique on dispose de plusieurs possibilités [19] parmi les différents types de modèles à savoir:

1. Modèles empiriques : tel que les modèles de fonction de transfert continues ou discrètes déduites de données entrées sortie du procédé; modèle de représentation d'état; modèle de réseaux de neurons [6],.....etc.
2. Modèles phénoménologiques : se sont des modèles mathématiques basés sur les principes physico-chimiques de conservation : de la matière; de l'énergie; de la quantité de mouvement; du bilan d'espèces.

En fait, c'est l'objectif (commande, analyse,....etc.) qui va définir quel est le modèle le plus adéquat qu'on doit employer [7].

### 1.2.2 Modèles empiriques

D'après leur appellation, les modèles empiriques sont décrits sur la base d'expériences et ils sont souvent employés en automatiques. Ils décrivent en temps continu ou discret [62][17][41][38] le comportement dynamique des systèmes concernés. Seulement, qu'ils soient des systèmes linéaires ou non linéaires[25], les modèles empiriques doivent faire l'objet d'une identification de leurs propres paramètres pour reproduire un comportement plus proche au comportement réel du système modélisé.

#### 1.2.2.1 Les modèles entrée-sortie

Les modèles linéaires de type entrée-sortie constituent la relation linéaire entre l'entrée et la sortie du système (sans faire intervenir les variables d'états) Fig.1.4.

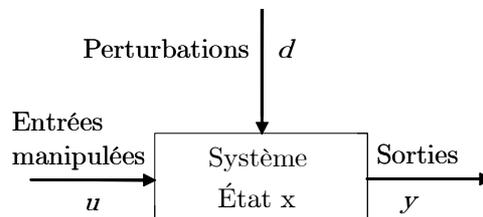


FIG. 1.4 – Schéma de bloc entrée-sortie du procédé.

Parmi ces modèles linéaire entrée-sortie, on trouve la fonction de transfert en temps continu décrite par :

$$G(s) = \frac{\bar{Y}(s)}{\bar{U}(s)} = \frac{b_0 + b_1 s + \dots + b_m s^m}{a_0 + a_1 s + \dots + a_n s^n}; m \leq n \quad (1.1)$$

Exprimée par rapport à la variable de Laplace  $s$ , elle est le rapport de la transformée de Laplace de la sortie du système sur la transformation de Laplace de l'entrée. Cette fonction de transfert représente en fait l'équation différentielle ordinaire représentant le comportement du système :

$$b_0 u(t) + b_1 \frac{du(t)}{dt} + \dots + b_m \frac{du(t)^m}{dt} = a_0 y(t) + a_1 \frac{dy(t)}{dt} + \dots + a_n \frac{dy(t)^n}{dt} \quad (1.2)$$

Concernant la représentation en temps discret, elle se traduit par la fonction de transfert exprimée en fonction de la transformée en  $z$  :

$$H_1(z) = \frac{b_0 + b_1 z^{-1} + \dots + b_m z^{-m}}{a_0 + a_1 z^{-1} + \dots + a_n z^{-n}}; m \leq n \quad (1.3)$$

Ces transformées en  $z$  correspondent en fait aux transformées de Fourier discrètes. Ce type de modèle linéaire très pratique pour l'analyse temporelle et fréquentielle est aisément déduit des équations différentielles du procédé dans les cas simples (CSTR par exemple).

### 1.2.2.2 Les modèles dans l'espace d'état

Dans l'espace d'état en temps continu, un système dynamique est représenté par la forme générale :

$$\begin{cases} \dot{x}(t) = f(x(t), u(t), t) \\ y(t) = h(x(t), u(t), t) \end{cases} \quad (1.4)$$

Où  $x$  est le vecteur d'état de dimension  $n$ ,  $u$  le vecteur d'entrée de dimension  $w$ ,  $y$  le vecteur de sortie de dimension  $m$ . En effet, le modèle de la sortie ne fait intervenir que des variables d'états  $x$  si on ne tient pas compte des perturbations qui influent ces états. En génie des procédés, le modèle précédent sera exprimé en fait sous la forme :

$$\begin{cases} \dot{x}(t) = f(x) + \sum_{i=1}^w g_i(x) u_i \\ y(t) = h(x) \end{cases} \quad (1.5)$$

Car les équations phénoménologiques font presque toujours intervenir de manière affine les entrées manipulées qui sont des grandeurs physiques, comme les débits, les pressions, les températures, .....ect. Ainsi, en temps discret, le modèle devient :

$$\begin{cases} x_{k+1} = f(x_k, u_k) \\ y_k = h(x_k) \end{cases} \quad (1.6)$$

Pour un système linéaire ou un système non linéaire linéarité, on peut représenter ces deux cas par le modèle dans l'espace d'état sous la forme :

$$\begin{cases} \dot{x}(t) = A x(t) + B u(t) \\ y(t) = C x(t) + D u(t) \end{cases} \quad (1.7)$$

Avec  $A$  matrice d'état de dimension  $(n_x \times n_x)$ ,  $B$  matrice de commande de dimension  $(n_x \times n_u)$ ,  $C$  matrice de sortie de dimension  $(n_y \times n_x)$ , tandis que  $D$  est la matrice de couplage de dimension  $(n_y \times n_u)$ . La matrice  $D$  est le plus souvent nulle.

En outre, cette représentation permet d'étudier la stabilité, la commandabilité et l'observabilité du système à travers les propriétés des matrices  $A$ ,  $B$ ,  $C$ . Toutefois, les matrices  $A$ ,  $B$ ,  $C$ ,  $D$  peuvent être fonction du temps, ainsi le système n'est plus donc à temps invariant. Le modèle linéaire dans l'espace d'état sous la forme discrète est décrit par :

$$\begin{cases} x_{k+1} = A x_k + B u_k \\ y_k = C x_k + D u_k \end{cases} \quad (1.8)$$

Les variables d'état représentent les variables d'énergies. Elles sont aisément déduites d'un modèle bond graph. En génie des procédés [73] elles représentent les énergies potentielles stockées par un élément multiport  $\mathbb{C}$  (volume massique ou molaire, énergie interne), et les énergies cinétiques modélisées par un élément  $I$  (quantité de mouvement par unité de surface).

### 1.2.3 Les modèles phénoménologiques

En génie des procédés on fait appel le plus souvent à des modèles qui décrivent le système à l'échelle macroscopique, car quand il s'agit d'employer le modèle pour un problème lié à l'analyse ou la commande, c'est inutile de concevoir un modèle trop détaillé à l'échelle moléculaire vue qu'il sera complexe. Le modèle macroscopique utilise les coefficients de transport entre phases, les constantes cinétiques pour décrire les opérations unitaires (réacteur, colonne de distillation, d'absorption, d'extraction, etc.) qui constituent un procédé complet.

Considérons un système réactif ouvert limité par une surface de contrôle. Parmi les équations qui constituent le modèle du procédé se trouvent les équations fondamentales de conservation : bilan de conservation de la matière; bilan de la conservations de quantité de mouvement; bilan de conservation de l'énergie, ou bilan de conservation du constituant  $A$ . Chacun de ces bilans peut être décrit sous la forme générale :

$$\begin{aligned}
& \text{Vitesse d'accumulation de A dans le volume du système} = \\
& \quad (\text{Entrée de A à travers la surface par unité de temps}) - \\
& \quad (\text{Sortie de A à travers la surface par unité de temps}) + \\
& \quad (\text{Génération de A dans le volume du système par unité de temps}) - \\
& \quad (\text{Consommation de A dans le volume du système par unité de temps})
\end{aligned}$$

Le transport à travers la surface de contrôle du système se fait par diffusion moléculaire ou par convection. La génération et la consommation sont dûes aux réactions chimiques qui se déroulent dans le réacteur considéré. Le modèle complet est la combinaison de ces équations qui seront différentielles ordinaires et accompagnées de conditions initiales, et cela lorsqu'il s'agit de systèmes à paramètres localisés (exemple : réacteurs fermés, réacteurs continus parfaitement agité, ....etc.). Dans le cas de systèmes à paramètres distribués (exemple : réacteur tubulaire; réacteurs colonne fluidisée; réacteurs à lit fixe; .. etc.), le modèle est constitué d'équations aux dérivées partielles, accompagnées de conditions initiales et de conditions aux limites. Ces modèles utiles pour l'analyse et le dimensionnement sont moins commodes pour la commande.

### 1.2.3.1 Bilan de la matière

C'est un bilan qui ne dépend pas de la transformation chimique, d'où son équation de conservation qui sera exprimée suivant les équations de Navier Stokes:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla(\rho \cdot v) = 0 \quad (1.9)$$

$\rho$  : la masse volumique du fluide [ $kg/m^3$ ].

$v$  : la vitesse eulerienne d'une particule fluide [ $m/s$ ].

### 1.2.3.2 Bilan d'espèce

Ce bilan fait apparaître l'effet de la réaction sur l'évolution d'une espèce chimique dont l'équation de conservation est définie par :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \nabla(v \cdot C_i) = R_i + D_i \nabla^2(C_i) \quad (1.10)$$

$C_i$  : la concentration du constituant  $i$ .

$D_i$  : le coefficient de diffusion.

$R_i$  : la production de la réaction du constituant  $i$ .

### 1.2.3.3 Bilan d'énergie

À l'instar des autres équations de conservation, ce bilan concerne la conservation de l'énergie du système. Cette énergie est sous la forme d'énergie cinétique; travail; chaleur, ..... etc. Ainsi l'équation de bilan sera décrite suivant les équations :

$$\frac{\partial(\rho.e)}{\partial t} + \vec{\nabla}[(\rho.e + p).\vec{v}] = \vec{\nabla}(\tau.\vec{v}) + \rho.\vec{f}.\vec{v} - \vec{\nabla}.\vec{q} + r \quad (1.11)$$

$\vec{v}$ : la vitesse eulerienne d'une particule fluide [ $m/s$ ].

$p$ : la pression [ $Pa$ ].

$\tau$ : le tenseur des contraintes visqueuses [ $Pa$ ].

$\vec{f}$ : la résultante des forces massiques s'exerçant dans le fluide [ $N/kg$ ].

$e$ : l'énergie totale par unité de masse [ $J/kg$ ].

$\vec{q}$ : le flux de chaleur perdu par conduction thermique [ $J/(m^2.s)$ ].

$r$ : la perte de chaleur volumique due au rayonnement [ $J/(m^3.s)$ ].

## 1.3 Pourquoi les bond graphs en génie des procédés

Les systèmes en génie des procédés possèdent un comportement fortement non linéaire dû principalement aux interactions mutuelles entre plusieurs phénomènes (diffusion, convection, réactions chimiques, ...etc.) de natures diverses (thermique, physico-chimique, thermodynamique, chimique..etc.). Le comportement dynamique de ce type de système est décrit généralement par des équations différentielles ordinaires à paramètres localisés ou par des équations différentielles aux dérivées partielles. Ainsi, la mise en équations par les méthodes classiques et la déduction des variables d'état est souvent complexe et nécessite des connaissances pluridisciplinaires de la part du concepteur du modèle. L'intérêt de choisir l'outil bond graph comme une approche de modélisation provient du fait que c'est un langage unifié capable de mettre en évidence la localisation des variables d'état, et représenter d'une façon claire les différents phénomènes qui peuvent avoir lieu dans un système. En outre, à la différence de la modélisation classique, on peut affiner le modèle sans réécrire les équations de comportement en rajoutant ou en supprimant des éléments bond graph en fonction des hypothèses de modélisation. Pour affiner un modèle par rapport à certains phénomènes, il suffit alors simplement d'ajouter par exemple des éléments dissipation  $R$  pour les phénomènes de transfert thermique (suite à des pertes thermiques) ou de résistances hydraulique (présence de pertes de charges); des éléments  $C$  pour la compressibilité des fluides, pour les capacités thermiques des parois et pour le stockage de masse et de volume; des éléments  $I$  pour tout apparition de phénomènes d'inertie dûs au mouvement d'un fluide.

En plus de cette caractéristique de la possibilité d'adaptation statique (ajout d'élément  $R$ ), ou dynamique (ajout d'éléments  $C$  ou  $I$ ) du modèle, la modélisation par bond graph permet d'anticiper des éventuels problèmes de simulation. Enfin les propriétés causales et

structurelles du modèle graphique sont exploitées pour la conception et l'analyse du système de commande et de supervision. Dans le domaine de génie des procédés les bond graph couplés sont utilisés dans une démarche intégrée pour le développement d'algorithmes de surveillance des procédés thermofluides. Les propriétés graphiques de l'outil bond graph ont permis de développer des logiciels pour automatiser les procédures de génération de modèles dynamiques et des algorithmes de supervision, un logiciel nommé FDIPad a été développé par le laboratoire LAGIS [54][56], les modèles traités concernent les procédés thermofluides. Le présent travail a pour ambition d'étendre ces résultats de recherches aux procédés chimiques. Ainsi, une grande partie sera consacrée à la modélisation des procédés chimiques. Ces modèles seront ensuite exploités pour la surveillance.

Pour formuler la problématique de modélisation d'un système, examinons les quatre niveaux de modélisation représentés par l'outil bond graph .

1. Le niveau technologique de la modélisation est présenté en bond graph par le bond graph à mots (Word bond graph en anglais). Ce niveau de modélisation consiste à construire l'architecture du système par l'assemblage de différents sous-systèmes qui échangent de la puissance. L'interconnexion des composants est assurée par un couple de variables effort-flux. Les éléments de base sont des composants du procédé industriel (échangeur de chaleur, bouilleur, conduite, ....etc.). Ce niveau de modélisation, facile à mettre en oeuvre conduit à un modèle fonctionnel (au même titre que des approches telles que SADT [24], en remplaçant les blocs "fonction" par des blocs "organe technologique remplissant cette fonction"). Il est à noter que cette représentation est "physique" déjà à ce niveau car à l'entrée de chaque composant nous mettons en évidence les variables de puissance ainsi que leur direction (par le sens des demi-flèches).
2. Le niveau physique consiste à analyser les phénomènes physiques qui seront pris en considération dans la modélisation (inertie, frottement, compressibilité, ...) et à reproduire l'architecture du système graphiquement, avec un langage unique pour tous les domaines où apparaissent les échanges de puissance entre éléments. À ce niveau, la modélisation s'appuie sur une description énergétique des phénomènes. On introduit les concepts fondamentaux de la physique : dissipation d'énergie, transformation, accumulation, ...etc. C'est à ce niveau qu'intervient la prise en compte des bilans d'énergies, de matières, de quantités de mouvements...etc.
3. Le niveau mathématique en bond graph consiste à écrire les lois constitutives des éléments bond graph représentant les phénomènes physiques. Les éléments de base de ce niveau sont des opérateurs mathématiques : intégrateurs; dérivateurs et les fonctions algébriques. Le modèle mathématique est sous forme d'équations (algébriques, différentielles ou algébro-différentielles) ou de matrice de transfert dans le cas linéaire. Les modèles obtenus sont linéaires ou non linéaires. Les équations d'état sont déduites directement du modèle bond graph suivant un algorithme de génération. Le nombre de

variables d'état (qui apparaissent sur le bond graph sous forme dérivée et qui sont des variables d'énergie) est égal au nombre d'éléments  $C$  et  $I$  mis en causalité intégrale.

4. Le niveau algorithmique est lié directement au traitement de l'information. Les concepts manipulés sont donc des concepts informatiques. Ce niveau nous permet donc de représenter l'algorithme du modèle et la manière dont celui-ci doit être calculé. Ce problème est résolu en bond graph par une affectation systématique de la causalité représentée par un trait perpendiculaire au lien. C'est pourquoi nous considérons que ce niveau se confond presque avec le niveau mathématique. Les notions de causalité (relation de cause et effet) jouent un rôle important à ce niveau et permettent d'orienter la programmation du modèle vers une simulation plus robuste en affectant une causalité intégrale. Toutefois dans le domaine de la surveillance à base de modèles, les causalités préférentielles sont de type dérivée car les conditions initiales ne sont en général pas connues, ce qui diminue le nombre de variables inconnues à éliminer dans la génération des relations de redondance analytique.

En conclusion, l'outil bond graph à caractère pluridisciplinaire apparaît alors adapté pour la modélisation, l'analyse et surveillance des systèmes en génie des procédés. Ce langage répond particulièrement bien à ces besoins par les caractéristiques suivantes :

1. Une approche énergétique qui permet une décomposition du système étudié en sous-systèmes échangeant de la puissance, et qui structure la procédure de modélisation.
2. Une terminologie unifiée pour tous les domaines physiques, fondée sur la notion d'analogie entre phénomènes.
3. Une représentation graphique pour visualiser les transferts de puissance, mais aussi de causalité.
4. Une habilité qui permet d'adapter et d'affiner le modèle en ajoutant ou en supprimant des éléments bond graph représentant des phénomènes.
5. Une génération systématique des équations mathématiques issues du modèle bond graph sous forme d'équations différentielles ou algèbro-différentielles.

## 1.4 Conclusion

Dans cette partie on a évoqué la classification des différents types de réacteurs chimiques et les critères de classification, ceci a permis ainsi de définir un certain nombre de catégories de réacteurs. Cette démarche de classification va nous faciliter la procédure de modélisation par l'approche bond graph, car on va concevoir par la suite des modèles bond graph génériques appropriés à chaque catégorie de réacteurs.

Ainsi, les différents types de modélisation des réacteurs chimiques par les approches classiques ont été rappelés. L'intérêt de l'outil bond graph pour la modélisation des réacteurs

---

chimiques a été développé. Cependant, avant d'aborder la thématique de la modélisation des réacteurs chimiques par bond graph, on va tout d'abord présenter un état de l'art dans le chapitre qui va suivre sur les travaux qui existent dans la littérature sur le sujet.



## Chapitre 2

# État de l'art sur la modélisation des réacteurs chimiques

### 2.1 Introduction

Pour satisfaire les exigences du marché et la demande croissante de la clientèle, l'industrie en génie des procédés est contrainte de perfectionner constamment ses procédés et installations industrielles pour améliorer ainsi, la productivité et la rentabilité des processus de production. Parallèlement aux objectifs de production, la sûreté de fonctionnement des installations; la protection de l'environnement et du personnel doivent être garanties afin d'éviter des défaillances qui peuvent provoquer :

1. Des incendies graves (incendies, explosion, pollution, ....etc.) conduisant à des dommages sur le personnel et l'environnement ou les biens.
2. Des interruptions de production suite à l'indisponibilité des équipements.

Ainsi, pour faire face à cette problématique un outil systématique de conception et d'analyse est indispensable, que ce soit : pour optimiser la procédure de perfectionnement et augmenter ainsi l'efficacité et le rendement des équipements; ou pour promouvoir la détection et la localisation de défaillances liées à l'exploitation des installations.

Bien que des outils de conception (tel que : ASPEN; HYSIM; PROSIM...etc.) ou de diagnostic existent déjà dans le secteur du génie des procédés, l'approche bond graph [33][58][21] s'est montrée récemment [57][45][9][4][65] pertinente pour accomplir les deux fonctions (conception et supervision) à la fois.

En outre, on peut affiner le modèle en ajoutant ou en supprimant des éléments en fonction des hypothèses considérées et du cahier des charges, et obtenir ainsi la configuration optimale désirée. En effet, Cette caractéristique associée à la conception de l'installation est considérée primordiale, car les processus chimiques et thermodynamiques sont en réalité non stationnaires : les coefficients d'échange de chaleur; les constantes de vitesse des réactions et

la conductivité thermique des conduites varient en fonction du régime technologique (encrassement, vieillissement du catalyseur, ...etc) [73][14] ce qui nécessite effectivement d'adapter le modèle selon la situation traitée.

L'utilisation des modèles bond graph comme un outil intégré pour la modélisation et la conception des systèmes de supervision a été développée et appliquée aux systèmes thermodfluides dans [44][23][52].

Dans ce type de procédés les deux phénomènes couplés sont de type : fluide et thermique. Dans ce cas les variables de puissances manipulées sont les couples (pression  $P$ , débit volumique  $\dot{V}$ ) et (température  $T$ , flux d'entropie  $\dot{S}$ ) en vrai bond graph, ou (pression  $P$ , débit massique  $\dot{m}$ ) et (température  $T$ , flux d'enthalpie  $\dot{H}$  ou de chaleur  $\dot{Q}$ ) en pseudo bond graph. La modélisation par bond graph des réacteurs chimiques, où les phénomènes de transformation de la matière s'ajoutent à ceux introduits par les phénomènes thermofluidique est peu développée dans la littérature en raison de la complexité de ce type de systèmes. Cette complexité est due au couplage des trois phénomènes (fluidiques, thermiques et chimiques).

Dans ce chapitre, nous allons présenter et discuter les modèles bond graph existant dans la littérature, et se positionner par rapport à ces travaux afin de proposer une démarche pour simplifier la modélisation et la conception de modèles bond graph génériques pour le diagnostic des réacteurs chimiques.

## 2.2 Systèmes thermodynamiques et chimiques

### 2.2.1 Variables de puissances en thermodynamique

On distingue en thermodynamique deux types de variables :

1. Les variables intensives qui sont des grandeurs indépendantes de la quantité de matière, et dont l'uniformité est un indice d'équilibre d'un système, on peut citer : la température  $T$ ; la pression  $P$ ; le potentiel chimique  $\mu$ ; ...etc. Ces variables correspondent aux variables d'effort en bond graph.
2. Les variables extensives qui sont proportionnelles à la quantité de matière, et elles ont la caractéristique d'être additives, parmi ces variables on a : la masse  $m$ ; nombre de moles  $n$ ; volume  $V$ ; ...etc. Ces variables correspondent en bond graph aux variables de déplacement (l'intégrale du flux).

En théorie bond graph on utilise la paire effort-flux pour décrire n'importe quel système. Le choix des variables de puissances n'est pas trivial dans le domaine du génie des procédés en raison de la complexité de ce type de procédés. Pour plus de détails on pourra consulter la référence [73]. Globalement, en vrai bond graph (le produit effort-flux est une puissance) on utilise les paires :  $(T, \dot{S})$ ,  $(P, \dot{V})$  et  $(\mu, \dot{n})$ .

L'emploi de ces variables introduit des variables d'effort thermiques et chimiques (entropie  $S$ , potentiel chimique  $\mu$ ) qui sont de nature complexe et pas commode pour des problèmes de simulation. On a introduit alors des variables pseudo bond graph dont le produit des variables d'effort et de flux ne représente pas une puissance [73][22] mais plus intuitive et facile à manipuler. Il faut préciser que les propriétés structurelles et causales en vrai bond graph resteront valables en pseudo bond graph (voir en annexe).

Ces variables de puissances en pseudo bond graph sont représentées par les paires : ( $T$  [ $K$ ] ou  $h$  enthalpie spécifique [ $J/kg$ ],  $\dot{H}$  flux d'enthalpie [ $J/s$ ]) pour les phénomènes thermiques de convection (transport d'un fluide); ( $T$ ,  $\dot{Q}$  flux de chaleur [ $J/s$ ]) pour les phénomènes thermiques de conduction; ( $P$  [ $Pa$ ],  $\dot{m}$  [ $kg/s$ ]) pour le fluide; et ( $C$  concentration [ $mol/l$ ],  $\dot{n}$  [ $mol/s$ ]) pour les phénomènes chimiques.

Enfin, il faut noter que pour tous types de systèmes, le nombre des variables d'effort est égal au nombre de degrés de liberté décrivant le système, ce nombre peut être déterminé aisément dans le cas des systèmes mécanique ou électrique. Pour les systèmes en génie des procédés il faut calculer la variance qui représente le nombre de degré de liberté d'un système thermodynamique, autrement dit c'est le nombre minimal de variables intensives à déterminer pour pouvoir calculer les autres paramètres intensifs décrivant l'équilibre du système, l'expression de la variance est donnée ainsi par la règle de Gibbs exprimée par :

$$\Omega = N - r + 2 - \Pi \quad (2.1)$$

Tel que :

2 : représente les deux variables à fixer, température et pression.

$N$  : le nombre total d'espèces chimiques.

$r$  : le nombre d'équations chimiques indépendantes.

$\Pi$  : le nombre de phases, seulement, chaque constituant solide forme une phase.

Toutefois, après avoir déterminé le nombre de degré de libertés, on peut supprimer ou rajouter d'autres variables selon la nécessité.

## 2.2.2 Modélisation des systèmes non réactifs

### 2.2.2.1 Systèmes fermés

Dans les premiers ouvrages [33] dédiés à la modélisation par approche bond graph, la représentation des systèmes du point de vue thermodynamique avait pour objectif, de concevoir des modèles dynamiques loin des états d'équilibre. Cette étude détermine les conditions et les états d'équilibre du système à partir de l'évolution du modèle.

Cette démarche d'analyse s'inscrit sous la thématique de la thermodynamique des processus irréversibles, elle représente les premières orientations de la modélisation des systèmes en génie des procédés.

On a considéré ainsi, un système non réactif fermé et isolé Fig.2.1, constitué d'un gaz parfait pur. La substance est supposée en équilibre local, où la température  $T$  et la pression  $P$  sont uniformes dans toute la substance. Le système est décrit par les grandeurs spécifiques massiques suivantes: énergie interne  $u$ ; volume  $v$ ; entropie  $s$ . Ces variables sont reliées aux grandeurs globales par les relations :  $V = m v$ ;  $U = m u$ ;  $S = m s$ ; tel que  $m$  désigne la masse totale de la substance.

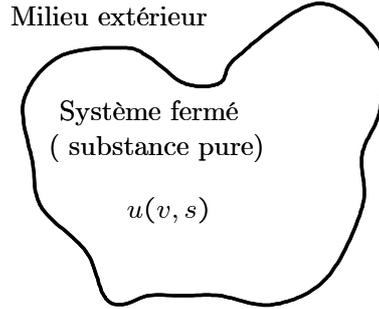


FIG. 2.1 – *Système non réactif.*

**Modélisation par énergie :** Ainsi, le système a été représenté par un élément  $\mathbb{C}$  multiport, emmagasinant de l'énergie interne spécifique  $u$ , dont la forme est exprimée en fonction de  $v$  et  $s$  tel que:

$$u = (v, s) \quad (2.2)$$

Ce qui peut se traduire par l'équation de Gibbs, similaire aux relations habituelles en bond graph qui exprime l'énergie stockée dans un multiport  $\mathbb{C}$  où :

$$du = Tds - Pdv \quad (2.3)$$

On a :

$$T(s, v) = \frac{\partial u}{\partial s} \text{ et } -P(s, v) = \frac{\partial u}{\partial v} \quad (2.4)$$

Ce qui donne la condition de conservation de l'énergie dans l'élément  $\mathbb{C}$  exprimée par :

$$\left. \frac{\partial T}{\partial v} \right|_s = \frac{\partial^2 u}{\partial v \partial s} = \left. \frac{-\partial P}{\partial s} \right|_v \quad (2.5)$$

L'expression désignée par l'équation (2.5) peut être reconnue aussi comme une relation réciproque, semblable à celles utilisées dans les autres domaines énergétiques (électrique, hydraulique et mécanique) quand il s'agit de caractériser un élément multiport  $\mathbb{C}$  stockant de l'énergie. En thermodynamique, cette forme d'équation est dite « relation réciproque de Maxwell ». Le modèle bond graph acausal du système peut être représenté par Fig.2.2 ci-dessous :



FIG. 2.2 – Modèle bond graph acausal d'un système non réactif.

Etant donné que  $T$  et  $P$  sont des variables d'effort,  $s$  et  $v$  sont les variables de déplacement, on déduit des équations (2.3)(2.4) les relations constitutives d'un élément  $\mathbb{C}$  liant l'effort au déplacement  $\Phi(e,q) = 0$ .

$$T = T(s,v), P = P(s,v) \quad (2.6)$$

Ce qui implique que l'élément multiport  $\mathbb{C}$  sera en causalité intégrale Fig.2.3.

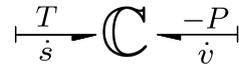


FIG. 2.3 – Modèle bond graph causal d'un système non réactif.

Pour extraire les relations constitutives  $T(s,v)$  et  $P(s,v)$  de l'élément multiport  $\mathbb{C}$ , l'équation (2.3) a été mise sous la forme :

$$ds = \frac{du}{T} + P \frac{dv}{T} \quad (2.7)$$

De l'équation d'état du gaz parfait  $P v = R T$  et de l'équation (2.8) de la chaleur spécifique  $C_v$  à volume constant donnée par :

$$\left( \frac{\partial u}{\partial T} \right)_v = C_v \quad (2.8)$$

une autre mise en forme à variable séparées de l'équation (2.3) est déduite et exprimée ainsi par:

$$ds = C_v \frac{dT}{T} + R \frac{dv}{v} \quad (2.9)$$

La solution de l'équation (2.9) sera donnée par l'expression ci-dessous sachant que  $C_v$  est constante et  $s_0=0$ :

$$s = C_v \ln \left( \frac{T}{T_0} \right) + R \ln \left( \frac{v}{v_0} \right) \quad (2.10)$$

De l'équation (2.10) la première loi constitutive  $T(s,v)$  de l'élément multiport  $\mathbb{C}$  est exprimée comme suite :

$$T(s,v) = T_0 \left( \frac{v}{v_0} \right)^{-\frac{R}{C_v}} \exp \left( \frac{s}{C_v} \right) \quad (2.11)$$

À partir de la formule de Mayer ( $C_p - C_v = R$ ) et de la relation de la chaleur spécifique  $C_p$  définie par :

$$\left(\frac{\partial h}{\partial T}\right)_P = C_p \quad (2.12)$$

La loi constitutive de la variable d'effort fluidique peut être déduite de l'équation (2.9). Elle est exprimée par :

$$P(s,v) = P_0 \left(\frac{v}{v_0}\right)^{-\frac{C_p}{C_v}} \exp\left(\frac{s}{C_v}\right) \quad (2.13)$$

D'autre part, à partir des relations réciproques de Maxwell définies par l'équation (2.5), on aura la fonction de l'énergie interne  $u(s,v)$  stockée par la substance donnée par :

$$u(s,v) = C_v T_0 \left[ \left(\frac{v}{v_0}\right)^{\frac{R}{C_v}} \exp\left(\frac{s}{C_v}\right) - 1 \right] \quad (2.14)$$

**Modélisation par co-énergie :** Le système peut être représenté aussi à travers la co-énergie qui correspond aux autres fonctions d'états spécifiques qui sont l'enthalpie  $h$ , l'énergie libre d'Helmholtz  $f$  et l'énergie libre de Gibbs  $g$  déduites à partir de la transformation de "Legendre" de l'énergie interne spécifique  $u$ . Cette transformation se traduit par la commutation entre causalité intégrale et dérivée des ports de l'élément  $\mathbb{C}$  dans la Fig.2.3. Considérons l'enthalpie spécifique  $h$  donnée par :

$$h(s,P) = u + Pv \quad (2.15)$$

et ses dérivées partielles par rapport aux variables  $(s, P)$  sont définies par :

$$T(s,P) = \frac{\partial h}{\partial s} \text{ et } v(s,P) = \frac{\partial h}{\partial P} \quad (2.16)$$

$T(s,P)$  et  $v(s,P)$  sont les nouvelles relations constitutives du multiport  $\mathbb{C}$ . Les relations réciproques de Maxwell de  $h$  seront définies ainsi par :

$$\left.\frac{\partial T}{\partial P}\right|_s = \frac{\partial^2 h}{\partial P \partial s} = \left.\frac{-\partial v}{\partial s}\right|_P \quad (2.17)$$

La forme du modèle bond graph du système en utilisant la co-énergie  $h$  est représenté ainsi dans la Fig.2.4:

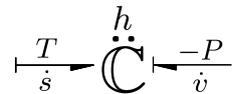


FIG. 2.4 – Multiport  $\mathbb{C}$  accumulant l'enthalpie spécifique  $h$ .

L'énergie libre spécifique de Helmholtz  $f$  est définie par :

$$f(T,v) = u - Ts \quad (2.18)$$

et ses dérivées partielles par rapport aux nouvelles variables  $(T,v)$  sont :

$$-s(T,v) = \frac{\partial f}{\partial T} \text{ et } P(T,v) = \frac{\partial f}{\partial v} \quad (2.19)$$

où  $s(T,v)$  et  $v(T,s)$  sont les nouvelles relations constitutives du multiport  $\mathbb{C}$ , définies aussi par les relations réciproques de Maxwell :

$$\left. \frac{\partial s}{\partial v} \right|_T = \frac{\partial^2 f}{\partial T \partial v} = \left. \frac{\partial P}{\partial T} \right|_v \quad (2.20)$$

Le modèle bond graph du système en utilisant la coénergie  $f$  est représenté dans la Fig.2.5.

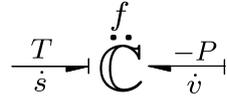


FIG. 2.5 – Multiport  $\mathbb{C}$  accumulant l'énergie libre spécifique de Helmholtz  $f$ .

Pour l'énergie libre spécifique de Gibbs  $g$ , exprimée par :

$$g(T,P) = u - Ts + Pv \quad (2.21)$$

À l'instar des autres fonctions, les dérivées partielles et les relations réciproques de Maxwell de  $g$  sont données par :

$$\left. \frac{-\partial s}{\partial P} \right|_T = \frac{\partial^2 g}{\partial T \partial P} = \left. \frac{\partial v}{\partial T} \right|_P, \quad (2.22)$$

La forme du modèle bond graph du système en utilisant la co-énergie  $g$  est représenté dans la Fig.2.6 ci-dessous.

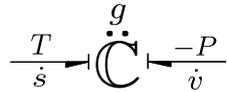


FIG. 2.6 – Multiport  $\mathbb{C}$  accumulant l'énergie libre spécifique de Gibbs  $g$ .

En résumé, la fonction de l'énergie interne spécifique  $u$  et les fonctions de coénergie,  $h$ ,  $f$ ,  $g$ , ont été exprimées en fonction de leurs propres variables naturelles selon la transformation de Legendre. Les lois constitutives du système peuvent être déduites par différentiation à partir des relations réciproques de Maxwell, ce qui assure que les éléments  $\mathbb{C}$  multiport seront conservateurs d'énergie ou de co-énergie.

Néanmoins, on pourrait écrire des fonctions constitutives sans faire appel aux fonctions  $h$ ,  $f$ ,  $g$ ,  $u$ , la seule difficulté est que ces lois constitutives arbitraires ne peuvent pas permettre l'existence d'une fonction d'énergie interne du système  $u(s,v)$ . Un exemple classique des lois constitutives arbitraires est celui de l'équation d'état des gaz parfaits, où il a été mentionné dans [33] que si l'équation d'état des gaz parfaits a été utilisée comme loi constitutive, l'énergie interne  $u$  ne pourra être qu'en fonction de la température  $T$ , et que la forme de  $u(T)$  restera indéfinie, chose qui ne peut pas permettre l'analyse de l'état d'équilibre du système, d'où provient la nécessité d'utiliser les fonctions d'états et les relations réciproques de Maxwell pour obtenir  $u(s,v)$ .

### 2.2.2.2 Systèmes ouverts

À la différence des systèmes fermés, dont la variation de l'énergie est décrite par l'équation de Gibbs, pour les systèmes ouverts la variation de l'énergie dépend beaucoup plus du déplacement de la matière [22][42][30][27][69][29][52]. Lors du déplacement d'un fluide, le bilan d'entropie n'est pas conservatif ainsi on choisie le bilan de chaleur (d'énergie), il est plus judicieux d'utiliser en qualité de variable de flux thermique le flux d'enthalpie  $\dot{H}$  [J/s]. Pour de faible vitesses, en négligeant l'énergie cinétique, le flux d'enthalpie dépend du débit massique tel que :

$$\dot{H} = \dot{m} h = \dot{m} C_p T \quad (2.23)$$

Les deux énergies fluidique et thermique sont alors couplées, on utilise en qualité de variable de puissance les paires :  $(T, \dot{H})$  et  $(P, \dot{m})$  [22]. Nous sommes en présence de pseudo-bond graph (le produit effort-flux n'est plus une puissance) : la puissance véhiculée est représentée ici par la variable flux.

Considérons l'exemple du réservoir à piston Fig.2.7 cité dans [22], où le système est un liquide incompressible qui rentre dans un réservoir à piston avec un débit massique  $\dot{m}_e$ , et sort avec un débit massique  $\dot{m}_s$ . Il peut fournir au milieu extérieur un travail d'extension désigné par  $W$  et reçoit par conduction une quantité de chaleur  $Q$ . La température et la pression sont considérées uniformes dans tout le liquide contenu dans le réservoir.

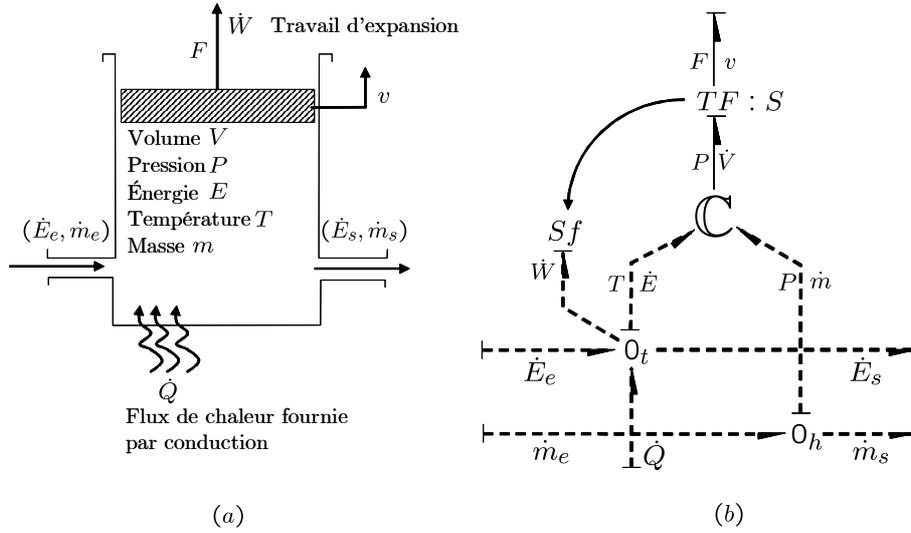


FIG. 2.7 – (a) Schéma de système réservoir à piston. (b) Modèle bond graph du système.

Ainsi, on a les équations de bilan de masse et d'énergie représentées par les jonctions  $0_h, 0_t$  respectivement, et qui représentent en même temps l'uniformité de la pression  $P$  et la température  $T$  dans le réservoir. Les équations sont données par celles aux jonctions :

$$\begin{cases} 0_t : \dot{E} = \dot{E}_e - \dot{E}_s - \dot{W} + \dot{Q} \\ 0_h : \dot{m} = \dot{m}_e - \dot{m}_s \end{cases} \quad (2.24)$$

Dans les conduites, l'énergie est véhiculée par le mouvement de la matière, ainsi on trouve les flux des énergies d'entrée et de sortie  $(\dot{E}_e, \dot{E}_s)$  reliées respectivement aux flux massiques  $(\dot{m}_e, \dot{m}_s)$  par les relations :

$$\begin{cases} \dot{E}_e = \dot{m}_e \left( u_e + \frac{P_e}{\rho} + \frac{\rho v_f^2}{2} \right) \\ \dot{E}_s = \dot{m}_s \left( u_s + \frac{P_s}{\rho} + \frac{\rho v_f^2}{2} \right) \end{cases} \quad (2.25)$$

telles que  $(u_e, u_s)$  et  $(P_e, P_s)$ , sont les énergies internes spécifiques et les pressions en amont et en aval,  $v_f$  étant la vitesse du fluide,  $\rho$  sa masse volumique. En pratique, le terme  $\frac{\rho v_f^2}{2}$  est négligeable pour des vitesses relativement faibles. Sachant que :

$$u + \frac{P}{\rho} = h \quad (2.26)$$

on obtient :

$$\dot{E}_{e,s} = \dot{m}_{e,s} \left( u_{e,s} + \frac{P_{e,s}}{\rho} \right) = \dot{m}_{e,s} h_{e,s}(T, P) \quad (2.27)$$

Pour déterminer  $h_{e,s}(T,P)$  on a :

$$\frac{dh_{e,s}(T,P)}{dt} = \left( \frac{\partial h_{e,s}}{\partial T} \right)_P \left( \frac{\partial T}{\partial t} \right) + \left( \frac{\partial h_{e,s}}{\partial P} \right)_T \left( \frac{\partial P}{\partial t} \right) \quad (2.28)$$

Considérons la pression constante dans les canalisations et sans pertes de charges, à partir de l'équation (2.12) de la chaleur spécifique, on obtient ainsi :

$$\dot{E}_{e,s} = \dot{m}_{e,s} h_{e,s} = \dot{m}_{e,s} C_p T_{e,s} \quad (2.29)$$

Par ailleurs, pour déterminer les relations constitutives de l'élément multiport  $\mathbb{C}$ , il faut mettre les équations de bilans sous d'autres formes, car la forme actuelle peut donner suite à divers cas possibles selon les conditions définies. L'énergie accumulée dans le réservoir par le multiport  $\mathbb{C}$  est donnée par :

$$\dot{E} = \dot{U} + \dot{E}_c + \dot{E}_p \quad (2.30)$$

Sachant que l'énergie cinétique  $E_c$  et l'énergie potentielle  $E_p$  sont négligeables par rapport à l'énergie interne  $U$ , l'équation du bilan d'énergie devient sous la forme:

$$\dot{U} = \dot{m}_e C_p T_e - \dot{m}_s C_p T - P\dot{V} + \dot{Q} \quad (2.31)$$

De la transformation de Legendre équation (2.15) reliant énergie interne  $U$  et l'enthalpie  $H$ .

$$\dot{U} = \dot{H} - \dot{P}V - P\dot{V} \quad (2.32)$$

on obtient :

$$\dot{H} - \dot{P}V = \dot{m}_e C_p T_e - \dot{m}_s C_p T + \dot{Q} \quad (2.33)$$

D'un autre coté, sachant que  $H = H(T,P)$  on a :

$$\dot{H} = \left( \frac{\partial H}{\partial T} \right)_P \left( \frac{\partial T}{\partial t} \right) + \left( \frac{\partial H}{\partial P} \right)_T \left( \frac{\partial P}{\partial t} \right) \quad (2.34)$$

$$\left( \frac{\partial H}{\partial T} \right)_P = m C_p, \quad \left( \frac{\partial H}{\partial P} \right)_T = V(1 - \alpha T) \quad (2.35)$$

Tel que  $\alpha$  est le coefficient de compressibilité [61] dont la valeur est nulle car le liquide est supposé incompressible. En remplaçant  $\dot{H}$  par son expression l'équation (2.34), l'équation (2.31) du bilan d'énergie s'écrit ainsi sous la forme :

$$m C_p \dot{T} - \alpha V T \dot{P} = \dot{m}_e C_p T_e - \dot{m}_s C_p T + \dot{Q} \quad (2.36)$$

Pour  $\alpha = 0$ :

$$mC_p\dot{T} = \dot{m}_e C_p T_e - \dot{m}_s C_p T + \dot{Q} \quad (2.37)$$

En mettant par convention que :

$$\dot{H} = mC_p\dot{T} \quad (2.38)$$

on obtient :

$$\dot{H} = \dot{m}_e C_p T_e - \dot{m}_s C_p T + \dot{Q} \quad (2.39)$$

La variable de flux décrivant l'accumulation de l'énergie thermique est alors définie par  $\dot{H}$ , et le modèle bond graph du système peut se mettre sous la forme Fig.2.8. Les lois constitutives de l'élément multiport  $\mathbb{C}$  seront définies par :

$$\begin{pmatrix} T \\ P \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \Phi_1(m, V, H) \\ \Phi_2(m, V, H) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{mC_p} H \\ \frac{g}{A} m \end{pmatrix} \quad (2.40)$$

avec  $V$ ,  $H$  et  $m$  étant les variables de déplacement.

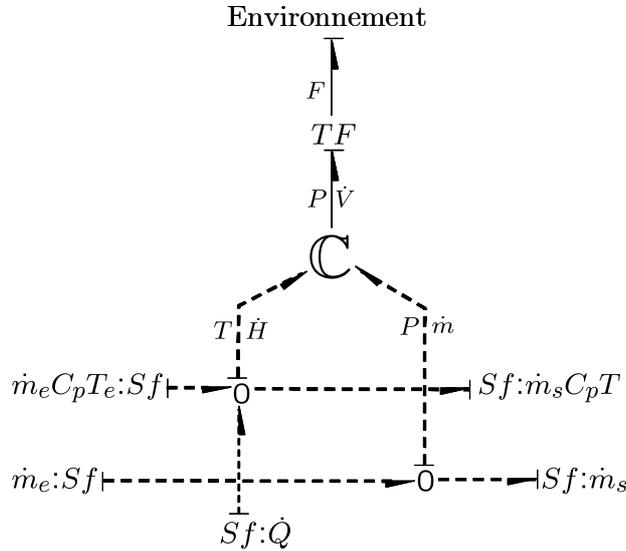


FIG. 2.8 – Modèle pseudo bond graph du système ouvert où le liquide est incompressible.

Une autre situation peut être envisagée Fig.2.9 où on fixe le piston pour imposer un volume constant  $V_0$ . L'équation (2.31) du bilan d'énergie devient :

$$\dot{U} = mC_v\dot{T} = \dot{m}_e C_p T_e - \dot{m}_s C_p T + \dot{Q} \quad (2.41)$$

Sachant que :

$$\frac{dU}{dt} = \left( \frac{\partial U}{\partial T} \right)_V \left( \frac{\partial T}{\partial t} \right) + \left( \frac{\partial U}{\partial V} \right)_T \left( \frac{\partial V}{\partial t} \right) = mC_v \dot{T} \quad (V \text{ constant}) \quad (2.42)$$

La variable flux décrivant l'accumulation de l'énergie thermique à volume constant est définie par  $\dot{U}$ , où les lois constitutives de l'élément multiport  $\mathbb{C}$  seront définies par un cas simple d'un fluide en régime sous saturé dans un réservoir:

$$\begin{pmatrix} T \\ P \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{mC_v} U \\ \frac{g}{A} m \end{pmatrix} \quad (2.43)$$

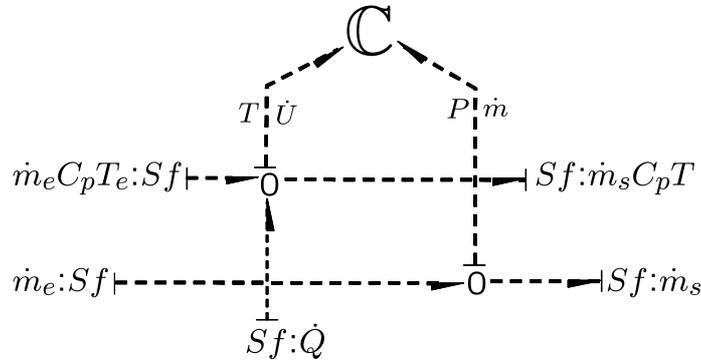


FIG. 2.9 – Modèle pseudo bond graph du système à volume constant.

Le tableau 2.1 résume le choix de la variable flux à manipuler en pseudo bond graph en fonction du phénomène thermodynamique traité.

## 2.2.3 Modélisation des systèmes réactifs

### 2.2.3.1 Modélisation des réactions chimiques

La modélisation par bond graph des systèmes réactifs a été traitée initialement dans les travaux de [50][40], où l'objectif était la représentation des systèmes réactifs au voisinage l'équilibre. Afin de donner un aperçu sur la procédure de modélisation des transformations chimiques citées aussi dans [31], on considère l'exemple d'un système fermé constitué d'un mélange de  $m$  constituants  $A_i$  ( $i = 1, \dots, m$ ), où se déroule une réaction réversible exprimée par :



Pour les systèmes réactifs, un autre couple de variables extensives et intensives se rajoute à l'équation de Gibbs, il est désigné respectivement par  $(n_i, \mu_i)$ , où  $n_i$  est le nombre de moles

Formes du flux d'énergie $\dot{E}$	Flux $f$
Transfert de chaleur par conduction.	Flux de chaleur $\dot{Q}$ .
Transfert de chaleur par convection (La chaleur est véhiculée par le flux de matière).	Flux d'enthalpie $\dot{H} = \dot{m} C_p T$ .
Travail d'expansion.	Flux de travail $\dot{W}$ .
Accumulation de chaleur dans un système thermofluide à volume constant.	Flux d'énergie interne $\dot{U}$ .
Accumulation de chaleur dans un système incompressible.	Flux d'enthalpie $\dot{H}$ .

TAB. 2.1 – Variables flux en pseudo bond graph du domaine thermique

d'un constituant  $i$  et  $\mu_i$  son potentiel chimique. La variation de l'énergie interne sera exprimée alors par:

$$dU = TdS - PdV + \sum_{i=1}^m \mu_i \cdot dn_i \quad (2.45)$$

On peut représenter ainsi les modèles bond graph Fig.2.10 du système par des multiport  $\mathbb{C}$  en ce basant sur ce qui a été développé auparavant pour le cas des systèmes non réactifs.

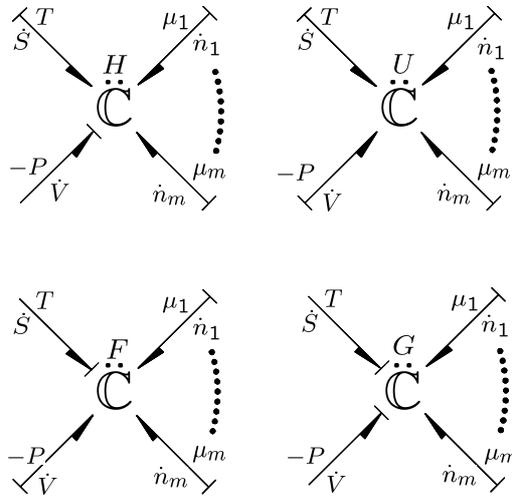


FIG. 2.10 – Élément  $\mathbb{C}$  multiport thermofluide d'un système réactif.

D'autre part, si on considère que la température  $T$  et la pression  $P$  sont constantes, la fonction de l'énergie libre de Gibbs  $G$  sera ainsi la plus commode parmi les autres fonctions pour représenter la transformation chimique même si du point de vue bond graph l'énergie libre de Gibbs  $G$  n'est pas une énergie mais une co-énergie dont la forme est désignée par :

$$dG = -SdT + VdP + \sum_{i=1}^m \mu_i dn_i \quad (2.46)$$

$$dG = \sum_{i=1}^m \mu_i dn_i \text{ avec } (T \text{ et } P \text{ constantes}) \quad (2.47)$$

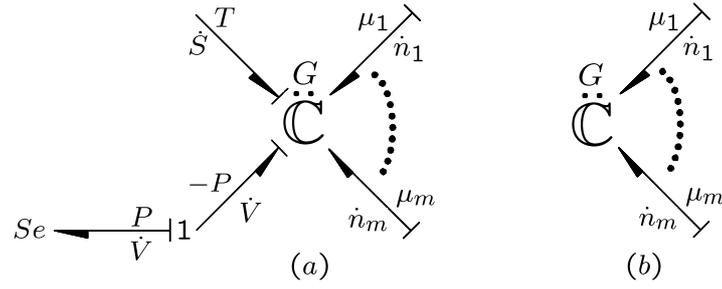


FIG. 2.11 – (a) Multiport  $\mathbb{C}$  accumulant l'énergie libre de Gibbs  $G$ . (b) Multiport  $\mathbb{C}$  accumulant l'énergie libre de Gibbs  $G$  où  $T$ ,  $P$  sont constantes.

En ce qui concerne la loi constitutive du multiport  $\mathbb{C}$  Fig.2.11 elle est définie par une relation liant l'effort  $\mu_i$  au déplacement  $n_i$  équation (2.48).

$$\mu_i(n_i, T, P) = \left. \frac{\partial G}{\partial n_i} \right|_{T, P} = \mu_i^\circ + RT \ln a_i(n_i) = \Phi_{\mathbb{C}}(n_i) \quad (2.48)$$

Telle que la fonction  $a_i(n_i)$  représente l'activité du constituant  $i$  dont la forme dépend de la phase et la nature du mélange. Pour les cas traités dans [1] on a considéré que le mélange est une solution parfaite, ce qui implique que :

$$\mu_i = \mu_i^\circ + RT \ln \left( \frac{n_i}{V} \right) \quad (2.49)$$

Après avoir modélisé le phénomène de stockage de l'énergie libre de Gibbs  $G$  nécessaire pour la transformation, et qui représente sa force motrice, on va s'intéresser à la cinétique de la transformation. Ce phénomène spécifique aux systèmes réactifs détermine avec quelle manière l'énergie stockée est consommée. Dans les travaux de [1][40][46] la vitesse de réaction a été définie au voisinage de l'équilibre telle que :

$$J = \frac{\dot{n}_i}{\nu_i} = v_f - v_r = [k_f(T)\Pi a_i^{\nu_f} - k_r(T)\Pi a_i^{\nu_r}] V \quad (2.50)$$

$V$  est le volume du mélange réactionnel,  $J$  la vitesse d'avancement de la réaction,  $\nu_f$  et  $\nu_r$  sont les ordres partiels de la réaction et correspondent aussi au coefficients stoechiométriques des réactions directe et inverse respectivement.

D'autre part, on a :

$$\dot{G} = \sum_{i=1}^N \mu_i \cdot \dot{n}_i = \dot{G} = J \sum_{i=1}^N \nu_i \cdot \mu_i = J(A_f - A_r) = -JA \quad (2.51)$$

$A_f$  et  $A_r$  sont respectivement les affinités chimiques des réactifs et des produits, et  $A$  est l'affinité chimique totale. Le couple des variables de puissance est formé maintenant de deux nouvelles variables qui sont l'affinité chimique  $A$  et la vitesse de l'avancement de la réaction  $J$ . Ceci peut être représenté par la transformation  $(\mu_i, \dot{n}_i) \xrightarrow{TF} (\nu_i \mu_i, \dot{n}_i/\nu_i) = (A, J)$  ce qui

constitue une loi d'un transformateur  $TF$ , où les modules représentent la stoechiométrie de la réaction.

Du point de vue phénoménologique, la cinétique de la réaction peut être représentée par un élément résistif Fig.2.12 dont la loi constitutive qui relie le flux  $J$  et l'effort  $A$  est exprimée par deux formes:

$$\begin{cases} J = \Phi_R(A) \\ J = \Phi_{\mathbb{R}}(A_f, A_r) \end{cases} \quad (2.52)$$

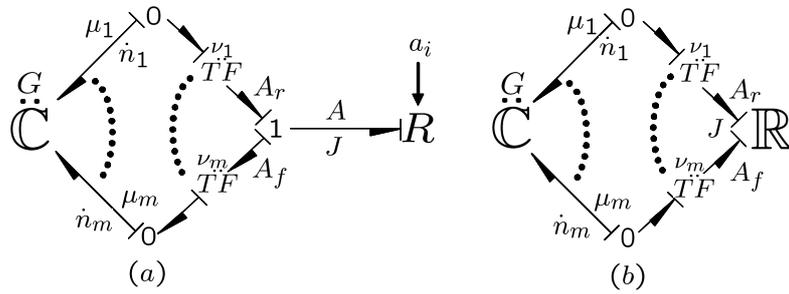


FIG. 2.12 – Modèle bond graph d'un système réactif. (a) Avec un élément résistif  $R$  simple modulé. (b) Avec un élément résistif multiport  $\mathbb{R}$ .

En ce qui concerne la première forme  $\Phi_R(A)$  cités dans [1][31], la variable de flux  $J$  est déduite de la loi de cinétique chimique au voisinage de l'équilibre extraite de la loi d'action de masse :

$$\begin{aligned} J &= v_f - v_r = (k_f(T)\Pi a_i^{\nu_f} - k_r(T)\Pi a_i^{\nu_r}) V \\ &= v_f \left(1 - \frac{v_r}{v_f}\right) = v_f \left(1 - \frac{k_f(T)\Pi a_i^{\nu_f}}{k_r(T)\Pi a_i^{\nu_r}}\right) V \end{aligned} \quad (2.53)$$

En remplaçant les activités chimiques par leurs valeurs définies par l'équation (2.48) du potentiel chimique on obtient ainsi :

$$J = k_f(T)\Pi a_i^{\nu_f} \left(1 - \exp\left(\frac{A}{RT}\right)\right) V = \Phi_R(A, a_i) \quad (2.54)$$

Cette loi constitutive est réciproque, car elle peut être ainsi en causalité conductance ou résistance, à l'inverse de la seconde loi constitutive  $\Phi_R(A_f, A_r)$  définie dans [40][1], dont l'expression est donnée par :

$$J = k(T) \left( \exp\left(\frac{A_f}{RT}\right) - \exp\left(\frac{A_r}{RT}\right) \right) V \quad (2.55)$$

Cette résistance multiport  $\mathbb{R}$  est non réciproque, la causalité ne peut pas être inversée, c'est une causalité conductance imposée.

### 2.2.3.2 Modélisation des phénomènes accompagnants les réactions :

Dans l'objectif d'affiner les modèles bond graph proposés des systèmes réactifs, on a ajouté certains phénomènes accompagnant la réaction chimique. Ces phénomènes peuvent avoir une nature thermique, électrochimique ou autre. Dans [71] l'auteur évoque dans son travail l'aspect thermique suite à la création de l'entropie due à la transformation chimique. Pour ce faire, on a considéré le cas d'une réaction réversible  $\nu_A A + \nu_B B \rightleftharpoons \nu_C C + \nu_D D$ , dont le modèle bond graph est donné par Fig.2.13. Chaque constituant est considéré comme un système ouvert à masse variable, où la température et la pression sont supposées constantes, et chaque constituant se comporte ainsi comme une capacité multiport  $\mathbb{C}$  qui échange de la matière désignée par le flux molaire  $\dot{n}$  avec le milieu extérieur Fig.2.13. Cet échange de matière va entraîner par conséquent un échange de chaleur représentée par le flux d'entropie  $\dot{S}$  et un échange de travail représenté par le débit volumique  $\dot{V}$ .

La représentation de l'aspect thermique s'est faite à travers l'élément résistif multiport  $\mathbb{RS}$  qui décrit à la fois : la cinétique de la réaction; et le phénomène de dissipation de la puissance chimique dû aux phénomènes irréversibles de la réaction, ce qui engendre une création d'entropie. Le multiport  $\mathbb{RS}$  est considéré à la fois comme une résistance chimique et une source d'entropie  $\Delta\dot{S}$ .

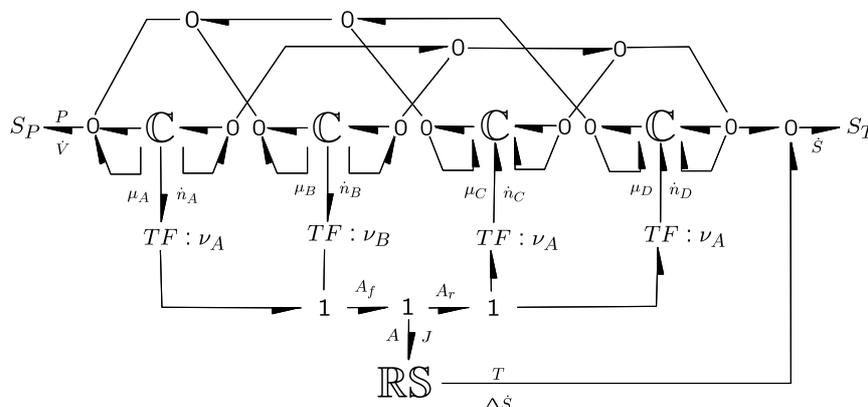


FIG. 2.13 – Modèle bond graph de J. Thoma d'un système réactif, avec l'ajout de l'élément  $\mathbb{RS}$ .

Dans ce sens, la création d'entropie apparaît dans le modèle exprimé par deux grandeurs  $\Delta\dot{S}$  et  $\dot{S}_s$  qui représentent respectivement :

1. Le flux d'entropie générée par la réaction, il est modélisé par l'élément  $\mathbb{RS}$  et exprimé par:

$$T\Delta\dot{S} = J(\nu_A\mu_A + \nu_D\mu_B - \nu_C\mu_C - \nu_D\mu_D) \quad (2.56)$$

2. Le flux de l'entropie de la réaction exprimé par :

$$T\dot{S}_s = TJ(\nu_A S_A + \nu_D S_B - \nu_C S_C - \nu_D S_D) \quad (2.57)$$

En faisant la somme de l'équation (2.56) et (2.57) le flux de la chaleur de réaction sera donc représenté par :

$$\Delta\dot{H}_r = T\dot{S} = T\dot{S}_s + T\Delta\dot{S} = J(\nu_A h_A + \nu_D h_B - \nu_C h_C - \nu_D h_D) \quad (2.58)$$

Tel que  $h_A, h_B, h_C, h_D$  sont les enthalpies de formation de chaque constituant, et  $\dot{S}$  représente le flux d'entropie dû à la chaleur de réaction.

Les modèles bond graph des phénomènes électrochimiques ont été initialement traités dans [31][70]. Un modèle bond graph d'une demi cellule à zinc galvanisé a été développé dans [31], mettant en évidence l'aspect électrochimique et thermique (chaleur dégagée par la réaction).

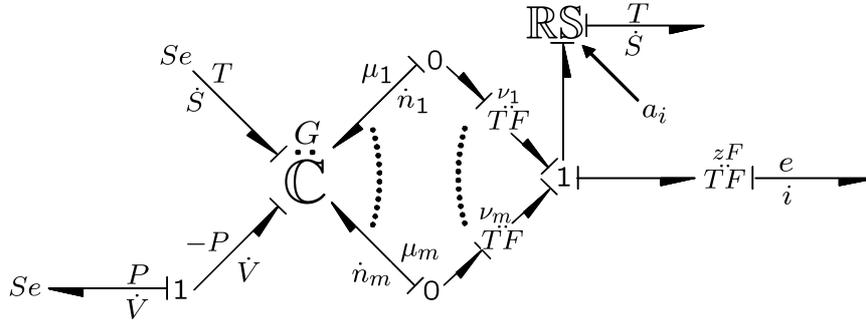


FIG. 2.14 – Modèle bond graph de D. Karnopp d'une demi cellule à Zinc galvanisé.

Concernant ce phénomène de génération de courant, comme le montre la Fig.2.14 le courant et le potentiel électrique engendrés par cette réaction d'oxydoréduction sont exprimés par les relations constitutives du transformateur  $TF$  modulé par  $zF$ .

$$\begin{cases} i = zFJ \\ e = A/zF \end{cases} \quad (2.59)$$

où  $z$  est le nombre d'électrons échangés et  $F$  est la constante de Faraday. La puissance chimique  $AJ$  est transformé ainsi en deux formes de puissance, électrique et thermique.

2.2.3.3 Modélisation des réacteurs chimiques

Selon les travaux réalisés jusqu'à présent concernant la modélisation par bond graph des réacteurs chimiques, on peut distinguer deux types de modèles : les modèles utilisant les vrais bond graph et ceux utilisant les pseudo bond graph. Les différences entre les deux démarches sont liées particulièrement aux choix des variables de puissance et la procédure d'extraction des lois constitutives. Dans ce qui va suivre on va évoquer chacune de ces démarches.

**Modèle vrai bond graph** En ce qui concerne la première démarche, c'est une suite des premiers travaux traitant les systèmes fermés réactifs [31]. Les variables de puissances choisies effort-flux correspondent respectivement au variables intensives et aux flux des variables extensive[10][15]. Le modèle vrai bond graph qu'on peut citer est celui traité dans [11][20]. Dans son travail, l'auteur traite le cas d'un CSTR dans lequel se trouve un mélange de gaz parfaits où se déroule une réaction réversible  $\nu_A A + \nu_B B \rightleftharpoons \nu_C C$  sous une pression  $P$  et volume constant  $V$ . Le mélange est considéré homogène et le réacteur est isotherme et parfaitement agité.

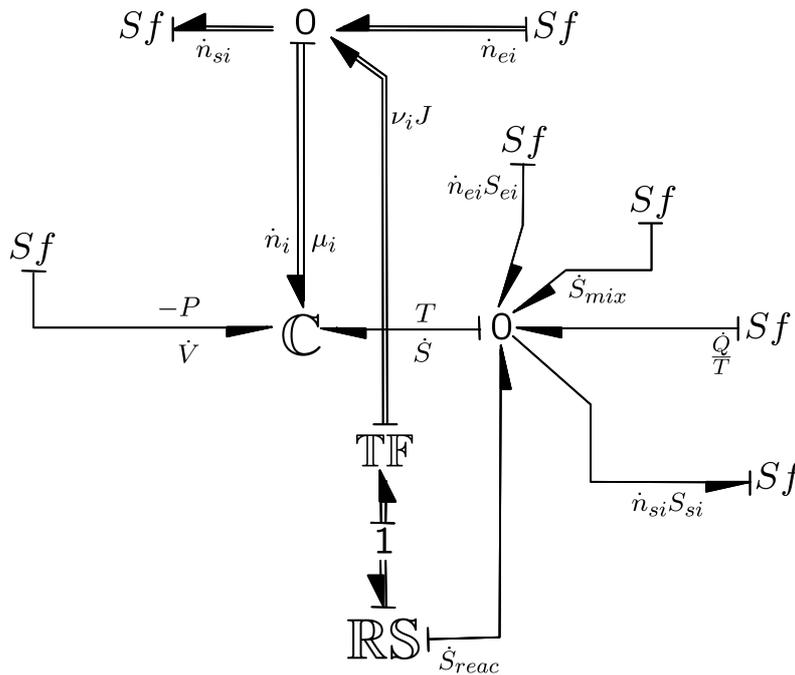


FIG. 2.15 – Modèle bond graph d'un CSTR [11].

L'énergie interne  $U$  stockée par le réacteur est représentée par un multiport  $\mathbb{C}$  Fig.2.15 connecté aux deux bilans représentés par les jonctions 0 équation (2.60) qui représentent respectivement le bilan de constituants et le bilan d'entropie :

$$\begin{cases} \frac{dn_i}{dt} = \dot{n}_{ei} - \dot{n}_{si} + \bar{\nu}_i J \\ \frac{dS}{dt} = \sum \dot{n}_{ei} S_{ei} - \sum \dot{n}_{si} S_{si} + \frac{\dot{Q}}{T_{ext}} + \dot{S}_{reac} + \dot{S}_{mix} \end{cases} \quad (2.60)$$

Les lois constitutives de cet élément  $\mathbb{C}$  déduites à partir des les équations (2.9) et (2.60) liant les efforts  $(T, P, \mu_i)$  aux déplacement  $(S, V, n_i)$  sont exprimées comme suite :

$$\begin{pmatrix} T \\ P \\ \mu_i \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_0 \exp \left( \frac{S + R \sum_{i=1}^3 n_i \ln \left( \frac{n_i}{N} \right) + RN \ln \left( \frac{RNT_0}{VP_0} \right) - \sum_{i=1}^3 n_i s_{0i}}{\sum_{i=1}^3 n_i C p_i - RN} \right) \\ \frac{NRT}{V} \\ \mu_i^\circ + RT \ln \left( \frac{n_i}{N} \right) \end{pmatrix} \quad (2.61)$$

Tel que  $(T_0, s_{0i})$  représentent la température de référence et l'entropie molaire standard;  $N$  est le nombre de moles total des constituants contenus dans le réacteur;  $\dot{S}_{mix}$  est le flux d'entropie dû au phénomènes irréversibles.

En ce qui concerne la cinétique de la réaction, elle est représentée par l'élément  $\mathbb{RS}$  qui représente aussi le phénomène de production d'entropie  $\dot{S}_{reac}$ , on a déjà trouvé cet élément  $\mathbb{RS}$  dans les modèles cités dans [71][31] Fig.2.14, les relations constitutives de l'élément  $\mathbb{RS}$  dans le cas du modèle Fig.2.15 sont données par :

$$J = \left[ \left( \frac{V}{N} \right)^{\nu_A + \nu_B} k_f(T) \exp \left( \frac{A_f}{RT} \right) - \left( \frac{V}{N} \right)^{\nu_C} k_r(T) \exp \left( \frac{A_r}{RT} \right) \right] V \quad (2.62)$$

$$\dot{S}_{reac} = \frac{1}{T} \begin{pmatrix} A_f & A_r \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J \\ -J \end{pmatrix} \quad (2.63)$$

Ce modèle développé respecte la règle de conservation d'énergie dans les éléments bond graph grâce au choix des variables de puissances. Toutefois, il présente certaines limitations lors de l'extraction des lois constitutives de l'élément  $\mathbb{C}$ , car la démarche a été établie sous l'hypothèse que le mélange est un gaz parfait, impliquant par conséquence l'utilisation de la loi des gaz parfait  $PV = nRT$ . En réalité, pour ce même exemple et pour d'autres applications de mélanges gazeux, les caractéristiques de ces gaz changent, et l'équation des gaz parfaits ne devient plus un modèle valable pour décrire le comportement de ces gaz. Ce sont des équations d'état de gaz réels qui représentent dès lors le comportement de ces gaz, parmi elles on peut citer [75] celles de Van Der Waals, Redlich Kwong dont l'expression est donnée par :

$$\left( P + \frac{a}{(T)^{\frac{1}{2}} V(V+b)} \right) (V-b) = RT \quad (2.64)$$

Ainsi, il est clair qu'à partir de cette relation ou autres, il est difficile d'extraire les lois constitutives de l'élément  $\mathbb{C}$ , car cette démarche est reliée au calcul de fonctions inverses, et des conditions de leurs existences, ce qui ne peut pas être imposé ou même correspondre aux conditions opératoires.

De plus, pour le cas des mélanges liquides, ou les mélanges hétérogènes il n'existe pas une équation d'état qui caractérise le comportement de ces mélanges, ce qui rend la tâche de l'extraction des relations constitutives difficile, voire impossible pour ce type de systèmes qui représentent une partie considérable en génie des procédés.

D'autre part, pour des applications de commande ou de supervision, il est plus judicieux d'utiliser le bilan d'énergie au lieu du bilan d'entropie, ce qui a été déjà expliqué précédemment [22], et d'un autre côté, le choix de représenter le bilan d'entropie a été établi du point de vue de la thermodynamique des systèmes irréversibles. Comme exemple de la limitation suite à l'utilisation du bilan d'entropie, on peut citer le cas de la variable température  $T$  qui ne peut être commandée ou superviser que par le biais du bilan d'énergie.

D'un autre coté, l'entropie irréversible générée ne peut pas être calculée aisément dans le cas des réacteurs, car les phénomènes irréversibles dûs aux frottements sont difficiles à modéliser, particulièrement ceux liés aux phénomènes d'agitations, frottements du mélange avec les parois, frottements dans le mélange dûs aux turbulences. Pour le cas des réacteurs dont la construction interne est compliquée comme le cas des réacteurs hétérogènes, la tâche de calculer la production d'entropie due au phénomènes irréversibles est beaucoup plus difficile.

Du point de vue supervision, certains équipements ont été déjà modélisés par pseudo bond graph pour des arguments cités dans [22], comme le cas des compresseurs; des pompes centrifuges; des échangeurs de chaleurs;....etc. Alors pour intégrer le modèle d'un réacteur parmi ces équipements, il est nécessaire que le domaine thermique soit représenté en pseudo bond graph (représenter le bilan d'énergie au lieu du bilan d'entropie) afin d'obtenir un modèle global pour la détection de défaillances.

**Modèles pseudo bond graph** Une autre démarche a été proposée dans la littérature pour la modélisation des réacteurs chimiques. Elle est basée sur le choix de variables pseudo bond graph [77][26][43][53] dans tous les domaines énergétiques (thermique, chimique). Le travail qui pourra représenter cette approche le mieux est celui cité dans [16] où on considère un CSTR parfaitement agité dans lequel se déroule une réaction irréversible  $\nu_A A + \nu_B B \rightarrow \nu_C C + \nu_D D$  endothermique. Les équations de bilan de constituants et d'énergie sont représentées par les jonctions  $0_c$  et  $0_t$  Fig.2.16.

$$\begin{cases} 0_c : V \frac{dC_i}{dt} = \dot{n}_{ei} - \dot{n}_{si} + \bar{v}_i J \\ 0_t : \dot{H} = \sum \dot{m}_{ei} C_{pi} T_{ei} - \dot{m}_s C_p T + \dot{Q} \end{cases} \quad (2.65)$$

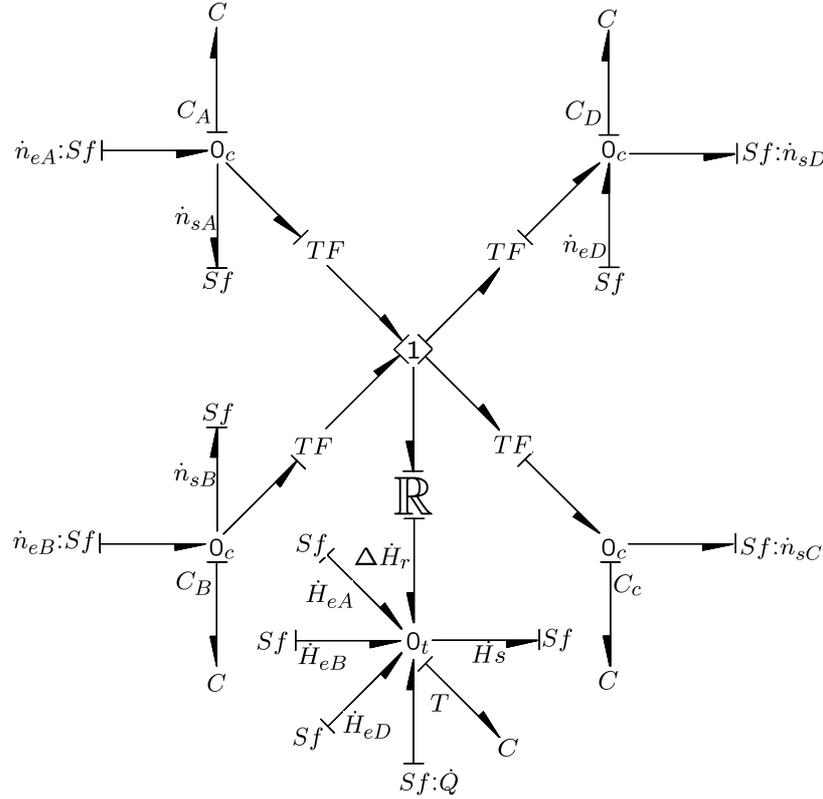


FIG. 2.16 – Modèle pseudo-bond graph d'un CSTR.

À la différence de l'approche vrai bond graph, les variables de puissances choisies sont naturelles et commodes à manipuler, mais le produit effort flux ne donne pas une puissance. Les variables choisies sont respectivement : le flux molaire  $\dot{n}_i$  et la concentration  $C_i$  dans le domaine chimique, le flux d'enthalpie  $\dot{H}$  et la température  $T$  dans le domaine thermique.

Dans ce sens, les lois constitutives des éléments pseudo bond graph s'imposent à partir du côté relationnel, à titre indicatif pour les capacités chimiques  $C$  leurs lois constitutives sont représentées par :

$$C_i = \frac{1}{V} \int \dot{n}_i dt = \frac{n_i}{V}, \text{ avec } (i = A, B, C, D) \quad (2.66)$$

Cette relation est analogue à la relation électrique liant la tension  $v$  à la charge  $q$ :

$$v = \frac{1}{c} \int i dt \quad (2.67)$$

$c$ : étant la capacité électrique.

Les capacités sont reliées aux bilans de constituant  $0_c$  de chaque espèce, et la réaction chimique est représentée par une résistance dont la loi constitutive est la loi d'action de masse classique, reliant la vitesse d'avancement  $J$  et les concentrations des réactifs définie par :

$$J = k(T)C_A^{\nu_A}C_B^{\nu_B}V \quad (2.68)$$

En même temps cet élément définit le couplage entre domaine chimique et thermique à travers la modulation par la température  $T$  de la constante de réaction  $k(T)$ . En ce qui concerne le bilan d'énergie, la capacité représente une relation entre la température et la chaleur accumulée par le mélange dans le réacteur, dont la relation constitutive est définie par :

$$T = \frac{1}{\rho V C_P} \int \dot{H} dt \quad (2.69)$$

Bien que ce modèle de [16] représente un intérêt pour la simulation vue sa simplicité, il présente certaines limitations au niveau de la représentation des transformations chimiques qui apparaissent dans certains cas, à savoir le cas des réacteurs électrochimiques. Dans ce dernier cas on a besoin d'informations concernant la dynamique de la réaction qui se manifeste par l'énergie libre de Gibbs  $G$  et l'affinité chimique de la réaction  $A$  qui représente la force motrice de la réaction. Un autre cas est celui des réactions réversibles où la dynamique de la réaction représentée par l'énergie libre de Gibbs  $G$  est nécessaire pour choisir le catalyseur ou l'inhibiteur pour anticiper et éviter les zones d'équilibre chimiques qui représente des zones mortes de non production.

## 2.3 Conclusion

Dans cette partie on a exposé l'évolution de la modélisation par bond graph des systèmes thermodynamiques, et des réacteurs chimiques. Les points suivants à noter sont :

1. La plupart des auteurs ont choisi des hypothèses et des considérations qui ne concernent qu'une certaine catégorie de réacteurs, ce qui a conduit à reproduire des modèles particuliers qui ne peuvent pas être utilisés pour d'autres types de réacteurs.
2. L'absence d'un aboutissement des modèles élaborés vers des objectifs définis (l'analyse, la commande, la supervision, étude énergétique,...etc) pour prouver l'utilité de l'approche bond graph pour la modélisation de ce type de systèmes. Ainsi, l'approche bond graph a été utilisée dans ces travaux seulement comme un outil de simulation.
3. L'inexistence d'une approche globale ou une méthodologie pour la modélisation des réacteurs chimiques par bond graph comme le cas des systèmes électriques, mécaniques,...etc. Le chapitre suivant sera consacré à la modélisation des réacteurs chimiques par bond

graph. Les modèles des réacteurs seront conçus et classés dans l'objectif d'être utilisés pour la détection et des défaillances et la conception de systèmes de surveillance pour les installations chimiques.

## Chapitre 3

# Modélisation générique par bond graph des réacteurs chimiques

### 3.1 Introduction

Dans ce chapitre on va présenter la modélisation des réacteurs chimiques en tenant compte des phénomènes chimiques et physico-chimiques (diffusion, absorption,...etc.) qui peuvent avoir lieu, et qui représentent un critère de classification des réacteurs industriels. La modélisation des réacteurs chimiques sera abordée en évoquant la modélisation des domaines hydrauliques et thermiques en s'appuyant sur les équations de bilans des différents types de réacteurs. Les modèles obtenus seront combinés avec ceux des réactions chimiques pour reproduire les modèles génériques des réacteurs.

L'ensemble des modèles a été développé afin de simplifier la procédure de modélisation, et permettre ainsi de classifier et formuler la modélisation des réacteurs et réactions chimiques.

### 3.2 Modélisation de la cinétique chimique

#### 3.2.1 Réactions homogènes

Même si la modélisation des réactions homogènes a été déjà abordée auparavant par [1][11][16], les solutions et les modèles bond graph proposés jusqu'à présent sont spécifiques aux cas traités, et non adaptés pour servir comme solution pour le cas général. Pour concevoir les modèles génériques des réacteurs homogènes, de nouveaux éléments bond graph seront proposés dans cette partie.

Considérons l'élément multiport désigné par  $\mathbb{RCH}$  (**R**ésistance **CH**imique). Cet élément a été conçu pour permettre de représenter à la fois, la stoechiométrie et la cinétique des réactions homogènes en tenant compte de :

1. La réversibilité ou l'irréversibilité de la réaction.

2. La nature du mélange (solution parfaite ou idéale, mélange de gaz...etc.).
3. La stoechiométrie de la réaction (ce qui peut faciliter la représentation des stoechiométries complexes tel est le cas : des réactions en série, des réactions en parallèle,...etc.).
4. La représentation de la réaction au voisinage ou loin de l'équilibre pour le cas des réactions réversibles ou électrochimiques.

Ainsi, la structure de l'élément multiport  $\mathbb{RCH}$  est constituée de deux éléments bond graph multiport, à savoir:

- a) Des transformateurs multiport  $\mathbb{TF}$  qui représentent la stoechiométrie de la réaction.
- b) Une résistance multiport  $\mathbb{R}$  qui représente la cinétique de la réaction, dont la loi constitutive a été améliorée par rapport à la forme développée dans [1][40], et cela afin de permettre d'adapter l'élément  $\mathbb{RCH}$  à tous types de cinétiques ou stoechiométrie réactionnelle. Face à certains cas particuliers qui se présentent, dont la loi est une forme irrégulière par rapport à la forme habituelle (la réaction n'est pas représentée par la loi d'action de masse), la modélisation de la cinétique chimique doit faire l'objet d'un traitement particulier.

L'élément multiport  $\mathbb{RCH}$  est en causalité conductance Fig.3.1 où l'effort constitue l'ensemble des potentiels chimiques des constituants désignés par  $\mu_i$ , et le flux constitue les vitesses d'avancement des constituants  $\dot{\xi}_i = (\nu_i^r - \nu_i^f)J$ , tel que  $J$  est la vitesse d'avancement globale de la réaction, et  $(\nu_i^r, \nu_i^f)$  sont les coefficients stoechiométriques du constituant  $i$ . L'élément  $\mathbb{RCH}$  est connecté aux jonctions 0 qui représentent les bilans d'espèces de chaque constituant impliqué dans la réaction.

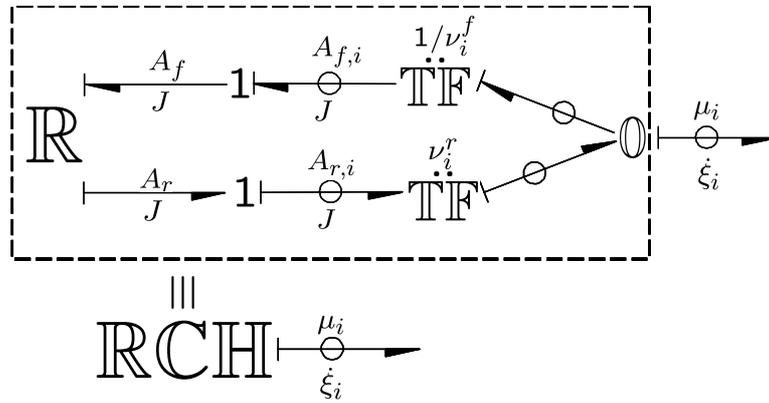
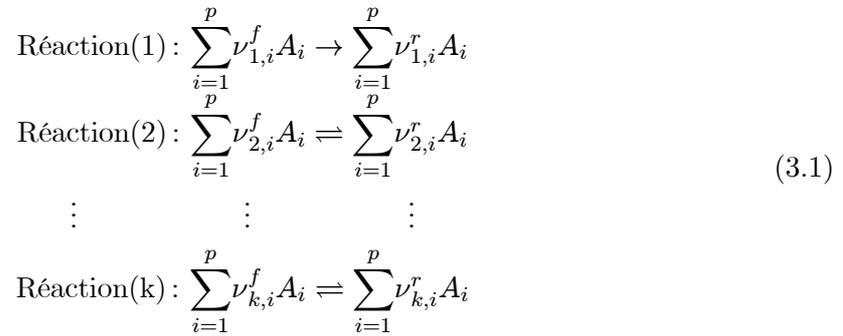


FIG. 3.1 – Élément  $\mathbb{RCH}$  et sa structure interne (avec  $A_{f,i}, A_{r,i}$  les affinités chimiques des réactions directe et inverse d'un constituant  $i$ ).

Pour expliquer en détail la démarche de modélisation des réactions chimiques par le biais de l'élément  $\mathbb{RCH}$ , examinons le cas général d'un mélange formé de  $p$  constituants (réactifs + produits) où se déroule  $k$  réactions qui peuvent être réversibles ou irréversibles dont le système d'équations qui représente le mécanisme réactionnel est défini par :



Le modèle bond graph modélisant l'ensemble des  $k$  réactions est représenté dans la Fig.3.2 ci-dessous, où pour chaque réaction on a affecté un élément  $\mathbb{RCH}$ .

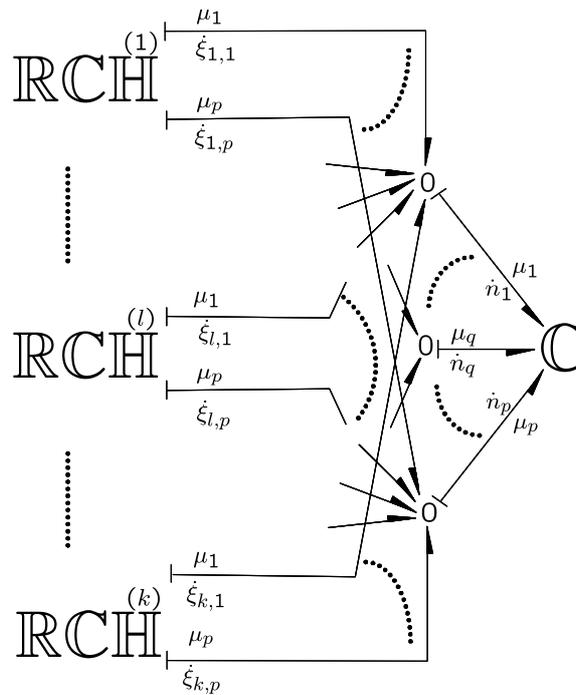
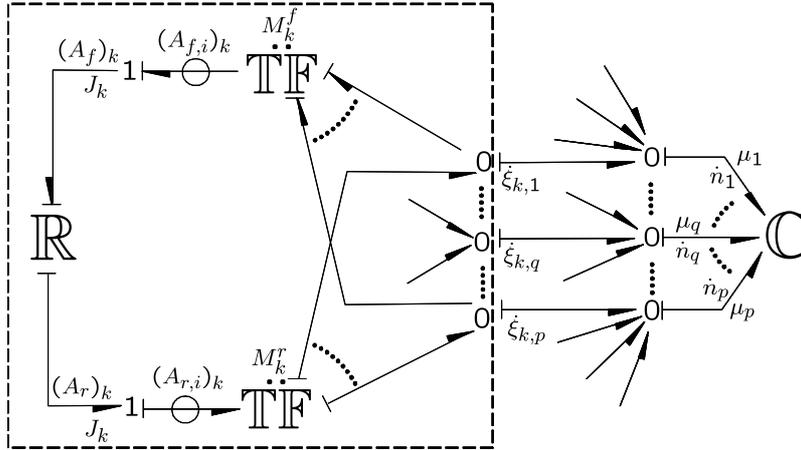


FIG. 3.2 – Modèle bond graph d'un système de réactions en utilisant l'élément  $\mathbb{RCH}$ .

La structure interne détaillée de l'élément  $\mathbb{RCH}$  est donnée par la Fig.3.3 ci-dessous qui représente le modèle de la  $k^{\text{ème}}$  réaction. Cette structure est similaire pour l'ensemble de toutes les réactions, seulement ce sont les lois constitutives des éléments  $\mathbb{R}$  et les modules des transformateurs  $\mathbb{TF}$  qui varient en fonction de la cinétique et la stoechiométrie réactionnelle de chaque réaction représentée.

FIG. 3.3 – Structure interne détaillée de l'élément RCH de la  $k^{\text{ème}}$  réaction.

### 1. Élément multiport TF

Les valeurs des modules attribués aux transformateurs TF sont définies à partir de la matrice stoechiométrique de chaque réaction modélisée par un élément RCH Fig.3.2. On a  $\nu$  la matrice stoechiométrique de l'ensemble de toutes les réactions:

$$\nu = \begin{pmatrix} \nu_{1,1}^r - \nu_{1,1}^f & \cdots & \nu_{1,p}^r - \nu_{1,p}^f \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \nu_{k,1}^r - \nu_{k,1}^f & \cdots & \nu_{k,p}^r - \nu_{k,p}^f \end{pmatrix} \begin{matrix} \text{Réaction (1)} \\ \vdots \\ \text{Réaction (k)} \end{matrix} \quad (3.2)$$

On considère la matrice stoechiométrique  $\nu_k$  de la  $k^{\text{ème}}$  réaction donnée par :

$$\nu_k = \begin{pmatrix} 0 & \cdots & 0 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \nu_{k,1}^r - \nu_{k,1}^f & \cdots & \nu_{k,p}^r - \nu_{k,p}^f \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

Cette matrice  $\nu_k$  peut être décomposée en deux parties :  $\nu_k^r$  qui représente la matrice stoechiométrique des réactions inverses et  $\nu_k^f$  qui représente la matrice stoechiométrique des réactions directes, tel que :

$$\nu_k = \nu_k^r + \nu_k^f = \begin{pmatrix} 0 & \cdots & 0 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \nu_{k,1}^r & \cdots & \nu_{k,p}^r \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & \cdots & 0 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ -\nu_{k,1}^f & \cdots & -\nu_{k,p}^f \end{pmatrix} \quad (3.4)$$

Ainsi les modules des transformateurs multiport peuvent se mettre sous la forme de matrices symétriques  $M_k^f$  et  $M_k^r$  Fig.3.3 comme suit :

$$M_k^f = \begin{pmatrix} & & & 0 & \dots & 0 \\ & & & \vdots & \ddots & \vdots \\ & & & 1/\nu_{k,1}^f & \dots & 1/\nu_{k,p}^f \\ & 0 & \dots & 0 & & \\ & \vdots & \ddots & \vdots & & 0 \\ 1/\nu_{k,1}^f & \dots & 1/\nu_{k,p}^f & & & \end{pmatrix} \quad (3.5)$$

$$M_k^r = \begin{pmatrix} & & & 0 & \dots & 0 \\ & & & \vdots & \ddots & \vdots \\ & & & \nu_{k,1}^r & \dots & \nu_{k,p}^r \\ & 0 & \dots & 0 & & \\ & \vdots & \ddots & \vdots & & 0 \\ \nu_{k,1}^r & \dots & \nu_{k,p}^r & & & \end{pmatrix} \quad (3.6)$$

**Exemple 3.2.1 :**

Considérons le mélange composé des constituants:  $A, B, C, D, E, F$ . Il se déroule dans ce mélange deux réactions :



Les matrices des modules des transformateurs des deux réactions sont  $m_j^f, m_j^r$  ( $j = 1, 2$ ) sont données comme suit :

$$m_1^f = \begin{pmatrix} 1/\nu_A & 1/\nu_B & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

$$m_1^r = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \nu_C & \nu_D & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

$$m_2^f = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1/\nu'_C & 0 & 1/\nu'_E & 0 \end{pmatrix} \quad (3.11)$$

$$m_2^r = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \nu'_B & 0 & 0 & 0 & \nu'_F \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

Les matrices des modules des transformateurs TF,  $M_k^f$ ,  $M_k^r$  sont données alors par :

$$M_1^f = \begin{pmatrix} 0 & m_1^f \\ m_1^f & 0 \end{pmatrix}, M_1^r = \begin{pmatrix} 0 & m_1^r \\ m_1^r & 0 \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

$$M_2^f = \begin{pmatrix} 0 & m_2^f \\ m_2^f & 0 \end{pmatrix}, M_2^r = \begin{pmatrix} 0 & m_2^r \\ m_2^r & 0 \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

Le modèle bond graph de la première est illustré par la Fig.3.4.

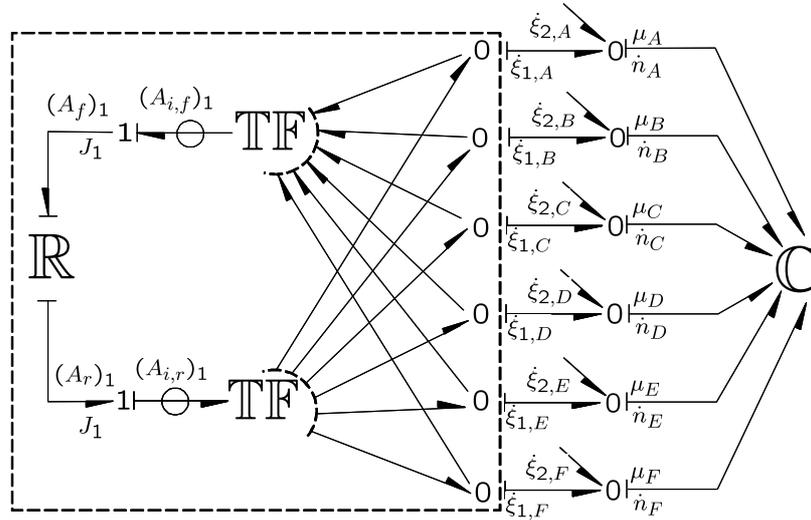


FIG. 3.4 – Modèle bond graph de la structure interne de l'élément RCH de la première réaction.

## 2. Élément multiport $\mathbb{R}$

Pour mettre l'élément  $\mathbb{R}$  sous une forme adaptée à toute sorte de cinétique chimique (réactions homogènes), la loi constitutive de cet élément à la différence des lois proposées

auparavant [1][16], avait été affinée de telle sorte à être une loi générique. Ceci dit, on peut générer à partir de cette loi divers types de lois constitutives en fonction de :

- a). La phase des constituants.
- b). La réversibilité de la réaction.
- c). La stoechiométrie réactionnelle.

En effet, la loi constitutive de l'élément  $\mathbb{R}$  est définie toujours par une relation effort -flux reliant la vitesse d'avancement de réaction  $J$  et les affinités chimiques  $(A_f, A_r)$ . La forme générale de cette relation est donnée par :

$$J = \Phi_{\mathbb{R}}(A_f, A_r) \quad (3.15)$$

Cette loi générique sera définie ainsi pour le cas général d'un mélange composé de  $p$  constituants par l'équation (3.16), étant donné que  $j$  est l'indice d'une réaction, pour  $j=1, \dots, k$  on a :

$$J_j = \left[ k_f(T) \prod_{i=1}^p \Psi_i^{\nu_{j,i}^f (1-\delta_{rev,j}) \delta_{equi,j}} \exp\left(\frac{-A_{f,j}^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{A_{f,j}}{RT}\right) - \delta_{rev,j} k_r(T) \prod_{i=1}^p \Psi_i^{\nu_{j,i}^r (1-\delta_{rev,j}) \delta_{equi,j}} \exp\left(\frac{-A_{r,j}^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{A_{r,j}}{RT}\right) \right] V \quad (3.16)$$

Tel que  $J_1, \dots, J_k$  sont les vitesses d'avancement de chaque réaction. elles sont définies par l'expression :

$$J_j = \frac{\dot{\xi}_{j,1}}{(\nu_{j,1}^r - \nu_{j,1}^f)} = \dots = \frac{\dot{\xi}_{j,p}}{(\nu_{j,p}^r - \nu_{j,p}^f)} \quad (3.17)$$

Ainsi pour toute réaction on a :

$A_f, A_r$  : affinités chimiques des réactions inverses et directes.

$A_f^\circ, A_r^\circ$  : affinités chimiques standards des réactions inverses et directes.

$k_r, k_f$  : constantes de la vitesse de réaction, dont la forme est définie par la loi d'Arrhenius  $k = k_0 \exp(-E_a/RT)$ , avec l'énergie d'activation de la réaction.

$\delta_{rev}$  : variable booléenne de réversibilité, elle prend la valeur 0 si la réaction est irréversible et prend la valeur 1 si la réaction est réversible.

$\delta_{equi}$  : variable booléenne d'état d'équilibre chimique, elle prend la valeur 0 quand on veut représenter la réaction loin de l'équilibre, et elle prend la valeur 1 quand on veut représenter la réaction au voisinage de l'équilibre.

$\Psi_i$  : une fonction qui dépend de la phase et des propriétés du mélange avec :

1. Pour le cas d'un mélange de gaz on a :  $\Psi_i = 1/(RT\gamma_i)$ , avec  $\gamma_i$  le coefficient d'activité du constituant  $i$ .

2. Pour le cas des solutions (solvant+soluté) on a :  $\Psi_i = 1/\gamma_i$  avec  $\gamma_i$  le coefficient d'activité du constituant  $i$ .

### Exemple 3.2.2 :

Considérons le cas d'un mélange de  $p$  constituants considérés comme gaz parfait, où se déroule une seule réaction irréversible :



En remplaçant par les valeurs correspondantes des variables booléennes ( $\delta_{rev}, \delta_{equi}$ ) et des fonctions  $\Psi_i$ , la loi constitutive de l'élément  $R$  sera exprimée ainsi par la forme :

$$J = \left[ k_f(T) \prod_{i=1}^p \left( \frac{1}{RT\gamma_i} \right)^{\nu_i^f} \exp\left(\frac{-A_f^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{A_f}{RT}\right) \right] V \quad (3.19)$$

## 3.2.2 Réactions hétérogènes

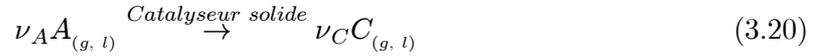
Ce type de réactions particulières et qui revêt un intérêt industriel est très présent en génie des procédés. Ainsi on le retrouve impliqué notamment dans le cas des réacteurs hétérogènes, où le mélange réactif est constitué de deux, voire de trois phases impliquées dans la réaction, et par conséquence on constate la présence de divers phénomènes physico-chimiques complexes (exemple: diffusion, absorption, .. etc.) ayant une influence directe sur l'évolution de la réaction, d'où la nécessité de représenter de tels phénomènes. Peu de travaux concernant la modélisation des réactions hétérogènes par bond graph sont développés dans la littérature. Pour remédier à cette problématique, il est indispensable de distinguer tout d'abord, les différentes cinétiques physico-chimiques de cette classe de réactions, et cela, afin de faciliter par la suite leur modélisation.

### 3.2.2.1 Réactions hétérogènes catalytiques

Cette sous-classe se différencie par rapport aux autres réactions hétérogènes par la présence d'un catalyseur solide qui a le rôle de stimuler la réaction et augmenter ainsi sa vitesse d'évolution. Un catalyseur solide est constitué de grains qui peuvent prendre différentes formes de volume, exemple : sphérique, cylindrique, ...etc. Ces grains peuvent être suspendus dans le mélange réactif, ou fixé par le biais d'un dispositif technologique appelé lit. Pour classer la cinétique des réactions catalytiques, on va se baser sur la phase des constituants impliqués dans la réaction, ainsi on peut distinguer :

1. Les réactions catalytiques Gaz-Solide (Catalyseur).
2. Les réactions catalytiques Liquide-Solide (Catalyseur).
3. Les réactions catalytiques Liquide-Gaz-Solide (catalyseur).

**Réactions catalytiques Fluide (Gaz ou Liquide avec solide (Catalyseur))** Le mélange réactif est composé d'un catalyseur solide et d'un seul constituant en phase gaz ou liquide. La forme de la réaction est définie par :



La transformation chimique (Fig.3.5) du constituant  $A$  se déroule précisément sur les parois intérieures des pores situés dans chaque grain solide. Ainsi, après la diffusion et l'infiltration du constituant  $A$  dans les pores, il est adsorbé par le catalyseur sur les surfaces des parois ce qui permet la transformation du constituant  $A$  en  $C$ , et engendré ainsi un double phénomène de production et de désorption du constituant  $C$ .

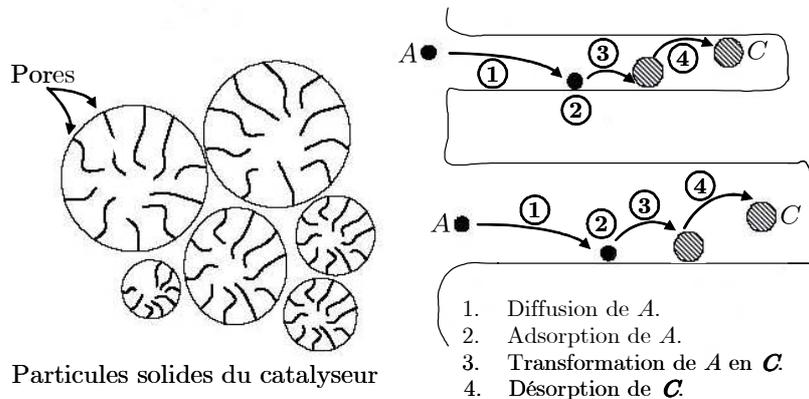


FIG. 3.5 – *Processus de transformation chimique dans une réaction Solide (Catalyseur)-Fluide.*

**Éléments multiports RCL et RCG** Pour représenter cette cinétique catalytique de transformation, il est essentiel de tenir compte de l'influence des phénomènes physico-chimiques sur l'évolution de la réaction. Pour modéliser la cinétique chimique on propose les éléments multiport RCL (**R**ésistance chimique d'une réaction **C**atalytique avec un constituant **L**iquide) et RCG (**R**ésistance chimique d'une réaction **C**atalytique avec un constituant **G**az) Fig.3.6. Ces éléments permettent de modéliser les phénomènes de transformation dans une réaction catalytique (catalyseur solide).

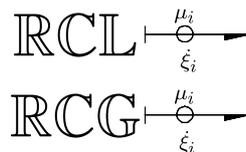


FIG. 3.6 – *Éléments multiport représentant la cinétique catalytique dans une réaction Solide(Catalyseur)-Fluide (Gaz ou Liquide).*

La structure interne (Fig.3.7) des éléments multiports résistifs  $\mathbb{RCL}$  et  $\mathbb{RCG}$  est proche de celle de l'élément multiport  $\mathbb{RCH}$ . Seulement, la loi constitutive de l'élément  $\mathbb{R}$  est différente de celle employée dans le cas des réactions homogènes, ce qui est dû à la spécificité de ce type de réactions et des phénomènes physico-chimiques qui sont impliqués.

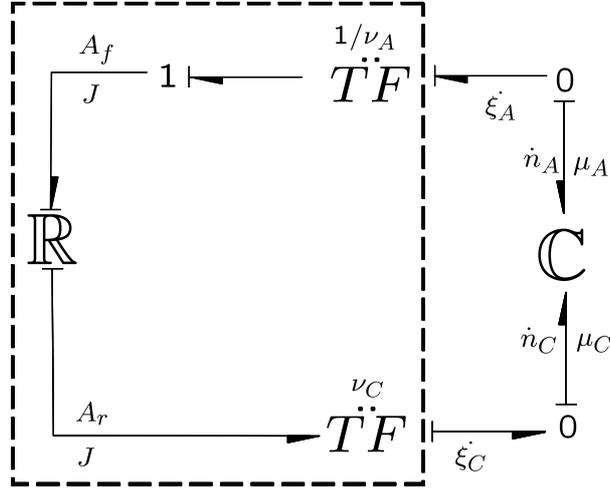


FIG. 3.7 – Structure interne détaillée des éléments  $\mathbb{RCL}$  et  $\mathbb{RCG}$ .

Ainsi, à partir de la loi de la cinétique physico-chimique des réactions catalytiques (catalyseur solide) citée dans [61][46][39], on a défini la loi constitutive de l'élément  $\mathbb{R}$  reliant la vitesse d'avancement de réaction  $J$  et l'affinité chimique  $A_f$ , elle est donnée ainsi par l'expression :

$$J = \varepsilon k(T) \Psi_A^{\nu_A} \exp\left(\frac{-A_f}{RT}\right) \exp\left(\frac{A_f}{RT}\right) V \quad (3.21)$$

Où  $\varepsilon$  est le coefficient d'efficacité qui varie entre 0 et 1, et qui définit l'influence des phénomènes physico-chimiques sur la transformation chimique. Ce même coefficient dépend d'un paramètre désigné par "module de Thiele  $M_T$ " exprimé à son tour dans notre cas par :

$$M_T = L \left( \frac{(\nu_A + 1)kC_A^{\nu_A - 1}}{De} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.22)$$

Tel que  $L$  est la longueur moyenne des pores,  $De$  est le coefficient de diffusion dans les grains,  $\nu_A$  est l'ordre de la réaction,  $k$  est la constante de vitesse de réaction,  $C_A$  est la concentration de  $A$ . Pour  $\varepsilon$  il est exprimé par une fonction qui dépend de  $M_T$ . La forme de cette fonction dépend du type des grains du catalyseur tel que :

$$\varepsilon = \begin{cases} \frac{1}{M_T} \tanh M_T & \text{pour une forme palette} \\ \frac{1}{M_T} \frac{I_1(2M_T)}{I_0(2M_T)} & \text{pour une forme cylindrique, où } I_n \text{ est la fonction de Bessel} \\ \frac{1}{M_T} \left( \frac{1}{\tanh 3M_T} - \frac{1}{3M_T} \right) & \text{pour une forme sphérique} \end{cases} \quad (3.23)$$

Dans le cas où le mélange catalyseur est constitué de grains de formes différentes, le coefficient global d'efficacité  $\varepsilon$  du catalyseur est défini par :

$$\varepsilon = X_1\varepsilon_1 + X_2\varepsilon_2 + \dots + X_n\varepsilon_n \quad (3.24)$$

Avec  $X_x$  est la fraction volumique et  $\varepsilon_x$  est le coefficient d'efficacité de la forme spécifique  $x$  du grain catalyseur [39].

**Réactions catalytiques Liquide-Gaz-solide (catalyseur)** En ce qui concerne ce deuxième cas de réactions catalytiques, la réaction se déroule en présence d'un catalyseur solide et de deux constituants de phases différentes (Gaz -Liquide) L'expression décrivant la réaction est donnée ainsi par :



Cependant avant l'accomplissement de cette réaction catalytique qui représente l'étape finale de la transformation des constituants, d'autres phénomènes de nature physico-chimique ont déjà précédé cette étape. Ces phénomènes physico-chimiques jouent à vrai dire le rôle de résistances sur le parcours des particules  $A$  et  $B$  (Fig.3.8) qui se dirigent vers le grain catalyseur pour se transformer suivant la réaction définie par l'équation (3.25). Ainsi on peut distinguer trois résistances physico-chimiques :

1. La résistance du film gaz qui représente le phénomène de transport par absorption des particules  $A$  du gaz vers l'interface Gaz-Liquide pour raison de différence de pression est décrite par :

$$\dot{N}_A = K_{Ag} a (P_A - P_{Ai}) V_r \quad (3.26)$$

$K_{Ag}$ : Coefficient du film gaz ( $\text{mol}/\text{Pa} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{s}$ )

$V_r$ : Volume du mélange réactif ( $\text{m}^3$ )

$a$ : Surface de l'interface Gaz-Liquide/ Volume du mélange réactif.

$P_A$ : Pression de  $A$  en phase gaz.

$P_{Ai}$ : Pression de  $A$  sur l'interface Gaz-Liquide.

$\dot{N}_A$ : flux molaire de transport par absorption des particules  $A$  par différence de pression.

2. La résistance du film liquide représente le transport par absorption des particules  $A$  de l'interface Gaz-Liquide vers le liquide par différence de concentration. Ce phénomène dépend de la solubilité de  $A$ , elle est définie par la loi de Henry :

$$P_{Ai} = H_A C_{Ai} \quad (3.27)$$

$$\dot{N}_A = K_{Al} a (C_{Ai} - C_A) V_r = K_{Ag} a (P_A - P_{Ai}) V_r \quad (3.28)$$

$K_{Al}$ : Coefficient du film liquide ( $l/m^2 s$ ).

$H_A$ : Coefficient de la loi d'Henry ( $Pa m^3 \text{ liquide} / mol$ )

$C_A$ : Concentration de  $A$  dans le mélange liquide.

$C_{Ai}$ : Concentration de  $A$  sur l'interface Gaz-Liquide.

$\dot{N}_A$ : flux molaire de transport par absorption des particules  $A$  par différence de concentration.

3. La résistance du second film liquide représente le transport des particules  $A$  et  $B$  du liquide vers la particule en raison de la différence de concentration entre le liquide et le catalyseur solide. Ce phénomène de transport est décrit par :

$$\dot{N}_A = K_{Ac} a_c (C_A - C_{As}) V_r = K_{Al} a (C_{Ai} - C_A) V_r = \dot{\xi}_A \quad (3.29)$$

$K_{Ac}$ : Coefficient du deuxième film liquide ( $m^3 l / m^2 \text{ cat } s$ )

$a_c$ : (Surface totale de l'ensemble des grains catalyseur) / (Volume du mélange réactif).

$C_{As}$ : Concentration de  $A$  dans le grain solide.

$\dot{N}_A$ : flux molaire de transport par absorption des particules  $A$  par différence de concentration dans la particule solide.

$\dot{\xi}_A$ : Vitesse de taux d'avancement  $A$ .

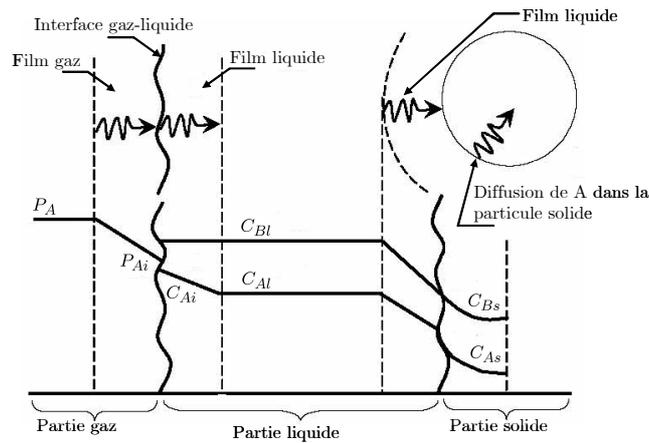


FIG. 3.8 – Schéma montrant les résistances physico-chimiques impliquées dans une réaction Solide (Catalyseur)-Liquide-Gaz.

**Élément multiport RCF** Ainsi, pour représenter la cinétique de la réaction en tenant compte des résistances physico-chimiques, on propose l'élément multiport qu'on désigne par RCF (**R**ésistance d'une réaction **C**atalytique avec des **F**luides de phases différentes). Cet élément est représenté par son modèle bond graph dans la Fig.3.9.

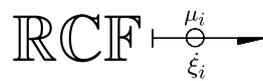


FIG. 3.9 – Élément multiport RCF représentant la cinétique chimique d'une réaction Solide (Catalyseur)-Liquide- Gaz.

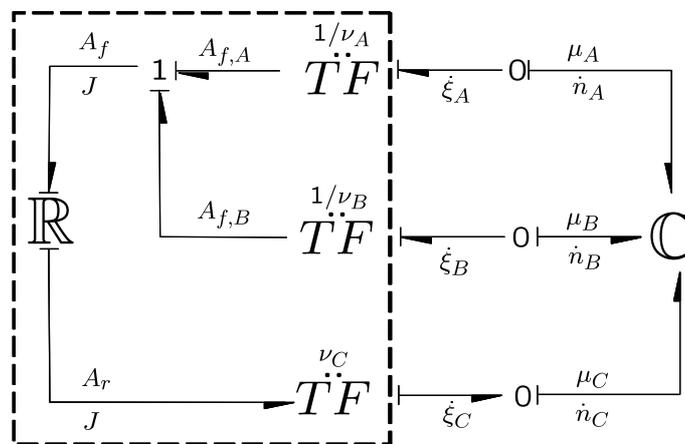


FIG. 3.10 – Structure interne détaillée de l'élément RCF.

La loi constitutive de l'élément résistif  $\mathbb{R}$  déduite à partir des équations (3.26, 3.27, 3.28, 3.29) (on procède par l'élimination des variables inconnues  $P_{Ai}$ ,  $C_{Ai}$ ) est exprimée par l'équation (3.30) (sachant que  $C_A \approx C_{As}$ ).

$$J = \frac{\left( \frac{V_r P_A}{\nu_A H_A} \right)}{\left( \frac{1}{H_A K_{Ag} a} + \frac{1}{K_{Al} a} + \frac{1}{K_{Ac} a_c} + \frac{1}{\Theta(A_f)} \right)} \quad (3.30)$$

avec :

$$\Theta(A_f) = \varepsilon f_l k(T) \Psi_A^{\nu_A} \Psi_B^{\nu_B} \nu_A \exp\left(-\frac{A_f^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{A_f}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_A^\circ - \mu_A}{RT}\right) \quad (3.31)$$

$f_l$ : (Volume du liquide)/(Volume du mélange).

$\frac{1}{H_A K_{Ag} a}$ : Résistance du film gaz.

$\frac{1}{K_{Al} a}$ : Résistance du premier film liquide.

$\frac{1}{K_{Ac} a_c}$ : Résistance du deuxième film liquide.

Enfin, il faut préciser que cet élément a été conçu sous une hypothèse faite par [39], où on considère que la vitesse des transformations physico-chimique est égale à la vitesse de réaction. Autrement dit, chaque constituant réactif qui se trouve dans le grain de catalyseur se transforme instantanément suivant la réaction catalytique définie, il n'y a pas de temps d'attente entre la transformation physico-chimique et chimique.

### 3.2.2.2 Réactions hétérogènes non catalytiques

**Réaction Liquide-Gaz** Ces réactions se caractérisent par l'absence d'un catalyseur, étant donné que tous les constituants présents dans le mélange sont impliqués dans la réaction avec des phases différentes. Ainsi, à l'instar des réactions catalytiques, des phénomènes physico-chimiques apparaissent et accompagnent la transformation chimiques. A cet effet, on peut distinguer trois différentes classes de ce type de réactions en fonction des phases présentes :

1. Les réactions Liquide-Solide.
2. Les réactions Gaz-Solide.
3. Les réactions Liquide-Gaz.

**Réactions non catalytiques Liquide-Gaz** Cette sous-classe de réactions hétérogènes non catalytiques est très présente en particulier dans le cas des réacteurs à lit fluidisés, où la forme générale de la transformation chimique est donnée par :

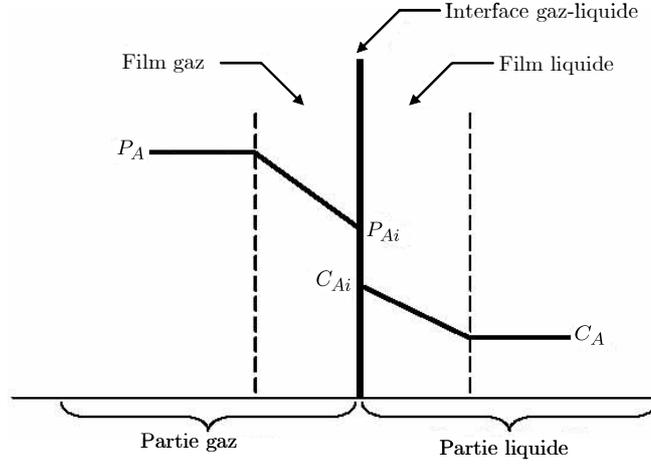


FIG. 3.11 – Schéma montrant les résistances physico-chimiques impliquées dans une réaction Liquide Gaz.

En outre, on peut spécifier dans ce cas de réactions, deux résistances physico-chimiques Fig.3.11 qui influencent l'évolution de la réaction. Elles sont définies comme suit :

1. La résistance du film gaz, représentant le phénomène de transport par absorption des particules de  $A$  du gaz vers l'interface Liquide-Gaz pour raison de différence de pression.

$$\dot{N}_A = K_{Ag}a(P_A - P_{Ai})V_r \quad (3.33)$$

2. La résistance du film liquide qui représente le transport par absorption des particules  $A$  de l'interface Liquide-Gaz vers le liquide par différence de concentration Fig..3.11.

$$\dot{N}_A = K_{Al}a(C_{Ai} - C_A)V_r \quad (3.34)$$

**Élément multiport RLG** Pour représenter l'ensemble des résistances physico-chimiques, on a proposé l'élément multiport **RLG** (**R**ésistance chimique d'une réaction **L**iquide-**G**az) Fig.3.10. Sa structure interne est similaire à celle de l'élément multiport **RCF** dans le cas où la vitesse de réaction est considérée égale à la vitesse de transformation physico-chimique de  $A$ , si non cet élément sera un élément simple **RLG** et on doit tenir compte dans ce cas là de la transformation chimique en ajoutant un élément **RCH**.

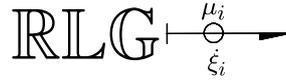


FIG. 3.12 – Élément multiport  $\mathbb{RLG}$  représentant la cinétique chimique d'une réaction Liquide-Gaz.

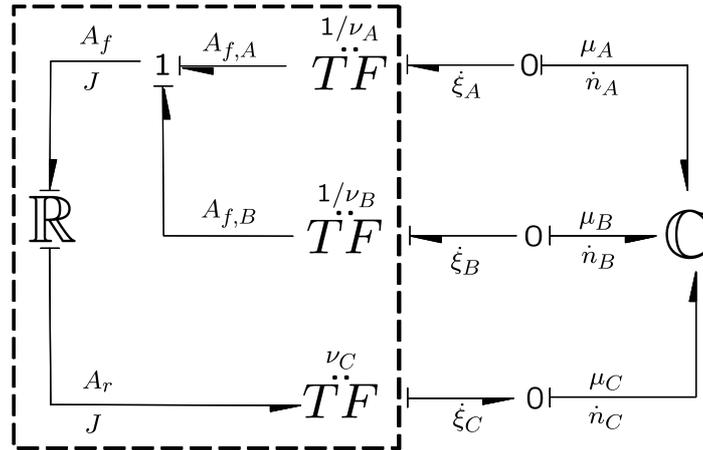


FIG. 3.13 – Structure interne détaillée de l'élément  $\mathbb{RLG}$ .

Ainsi, des équations (3.33,3.34), la loi constitutive de l'élément  $\mathbb{R}$  présenté dans la Fig.3.13 sera donnée par:

$$J = \frac{\left( \frac{V_r P_A}{\nu_A H_A} \right)}{\left( \frac{1}{H_A K_{Ag} a} + \frac{1}{K_{Al} a E} + \frac{1}{\Theta(A_f)} \right)} \quad (3.35)$$

avec :

$$\Theta(A_f) = f_l k(T) \Psi_A^{\nu_A} \Psi_B^{\nu_B} \nu_A \exp\left(-\frac{A_f^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{A_f}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_A^\circ - \mu_A}{RT}\right) \quad (3.36)$$

$E$  est un coefficient qui varie entre 0 et 1 et qui module la résistance du film gaz. Le calcul détaillé de  $E$  peut être consulté dans [39].

**Réaction Fluide-Solide** Concernant ce type de réactions hétérogènes, le mélange est constitué de deux phases : phase solide sous forme de grains sphériques, et phase liquide (ou Gaz). Ainsi, on peut différencier deux cas possibles, dont le premier concerne la situation où la particule solide garde son volume durant la réaction tout en se transformant en un autre constituant (Fig.3.14). En revanche pour le deuxième cas, le volume de la particule solide

diminue progressivement avec la conversion due à la transformation chimique. L'équation décrivant ce type de réactions est décrite ainsi par :

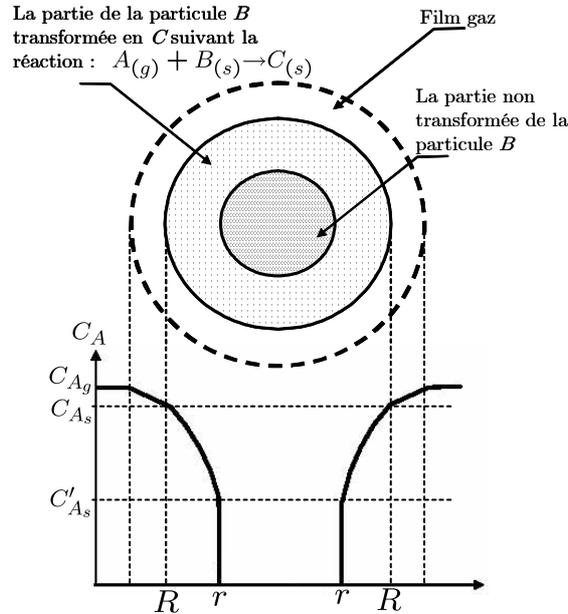


FIG. 3.14 – Schéma d'une particule solide en réaction chimique.

À l'instar des réactions hétérogènes citées avant, cette classe de réactions se caractérise par la présence de phénomènes physico-chimiques susceptibles d'être modélisés par un élément bond graph résistif qui représente :

1. La résistance du transport par absorption de  $A$  du milieu liquide à la particule provoquée par la différence de concentration.
2. La résistance de transport par diffusion de  $A$  à travers la partie convertie du constituant  $B$ .

**Remarque :**

Seulement il faut noter que dans le cas où la partie convertie de  $B$  se transforme sous forme liquide, la deuxième résistance n'est pas considérée.

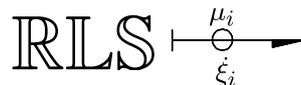


FIG. 3.15 – Élément multiport RLS représentant la réaction chimique Solide-Fluide (Gaz ou liquide).

**Élément multiport**  $\mathbb{R}LS$  De ce fait, et afin de représenter la cinétique de cette classe de réaction en tenant compte des phénomènes physico-chimiques, on a proposé l'élément multiport  $\mathbb{R}LS$  (**R**ésistance d'une réaction entre constituant **L**iquide et **S**olide) représenté dans la Fig.3.15. La structure interne est similaire à celle présenté dans la Fig.3.10. La loi constitutive de l'élément  $\mathbb{R}$  exprimée par l'équation (3.38) a été déduite en utilisant la théorie du modèle SCM (Shrinking Core Model) citée dans [39] décrivant la réaction Solide-Liquide. Cette loi peut être employée également dans le cas où la particule change de volume.

$$J = \frac{S_{ex} \exp\left(-\frac{A_f}{RT}\right) \exp\left(\frac{A_f}{RT}\right)}{\left(\frac{1}{K_g} + \frac{\delta R}{2De} + \frac{3}{k'}\right)} \quad (3.38)$$

On définit  $J$  la vitesse d'avancement de la réaction en tenant compte des phénomènes de transport et de diffusion. Pour le cas où le volume de la particule change avec la progression de la réaction, la surface extérieure est calculée parallèlement. Alors si on considère que  $r$  est le rayon variable de la particule on a :

$$S_{ex} = 4\pi r^2 \quad (3.39)$$

Sachant que :

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\frac{\nu_B C_A}{\rho_B}}{\left(\frac{1}{R^2 K_{g,l}} + \frac{(R-r)r}{RDe} + \frac{3}{k'}\right)} \quad (3.40)$$

$K_{g,l}$ : Coefficient du film liquide qui entoure la particule solide.

$S_{ex}$ : Surface externe du grain solide.

$\delta$ : Coefficient booléen qui prend la valeur 1 quand la particule ne change pas son volume, dans le cas contraire ce coefficient prend la valeur 0.

$r$ : Rayon de la particule solide.

$C_A$ : Concentration de  $A$  en dehors de la particule.

$De$ : Coefficient de diffusion de la particule solide.

$k'$ : Constante de réaction par unité de surface.

$R$ : Rayon initial de la particule.

$\rho_B$ : Masse volumique du solide  $B$ .

### 3.3 Modélisation des réacteurs chimiques

#### 3.3.1 Réacteurs homogènes

Pour cette catégorie de réacteurs, les constituants qui composent le mélange réactionnel sont de phase identique, mais les modes de fonctionnements sont différents. Les réacteurs peuvent être employés et classés ainsi, selon leurs caractéristiques fonctionnelles pour accomplir un processus spécifique en étant impliqué dans l'installation globale du procédé. Des lors, il convient donc via ce critère de distinguer deux principaux types de réacteurs homogènes: les réacteurs à paramètres localisés représentés par des équations différentielles ordinaires tels que : les réacteurs continus, les réacteurs fermés, les réacteurs semi fermés,...etc; les réacteurs à paramètres distribués représentés par des équations différentielles à dérivées partielles tels que les réacteurs tubulaires. Ainsi, à travers la présentation de ces deux types de réacteurs, on va exposer la procédure de modélisation et concevoir ainsi des classes de modèles bond graphs génériques pour les réacteurs homogènes. Ces modèles seront adaptés à des applications liées à la commande, l'analyse structurelle et la supervision des procédés industriels.

**Bilan de masse** On considère le cas général d'un réacteur homogène de volume  $V_r$ .  $\dot{m}_{ei}$  et  $\dot{m}_s$  sont respectivement les flux massiques à l'entrée du réacteur qui correspondent aux constituants (actifs ou inertes), et le flux massique à la sortie du réacteur.

Dans le cas des réacteurs à paramètres localisés, on va supposer que le mélange est en équilibre global du point de vue thermodynamique, ceci dit les variables intensives sont uniformes dans tout le mélange, à savoir : la pression  $P$ , la température  $T$ , et le potentiel chimique de chaque constituant  $\mu_i$ . Notons toutefois, que la masse volumique  $\rho$  totale est considérée aussi uniforme et varie en fonction de la composition du mélange, ce qui dépend essentiellement de l'évolution des réactions en cours. Les masses volumiques des constituants  $\rho_i$  varient en fonction de la température  $T$  et de la pression  $P$  du mélange réactif (particulièrement dans le cas des fluides compressibles, tandis que dans la situation où le mélange est considéré incompressible elles restent constantes .

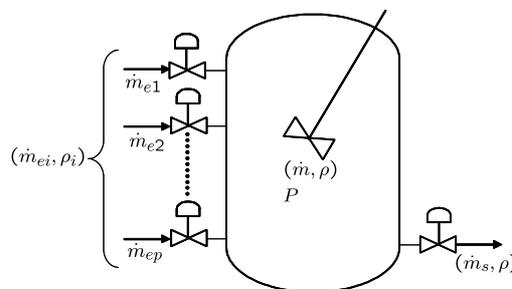


FIG. 3.16 – Schéma général d'un réacteur homogène en domaine hydraulique.

Le débit massique  $\dot{m}$  et la pression  $P$  sont utilisés en qualité de variables de puissance en pseudo bond graph. La masse volumique étant variable, il est en effet plus juste d'utiliser  $\dot{m}$  à la place du débit volumique  $\dot{V} = \dot{m}/\rho$ , car manipuler  $\dot{V}$  devient plus complexe en simulation. Le modèle pseudo bond graph dans le domaine thermique est donné par Fig.3.17. Dans ce modèle, l'équation à la jonction 0 représente le bilan de masse défini par :

$$\frac{dm}{dt} = \sum_{i=1}^p \dot{m}_{ei} - \dot{m}_s \quad (3.41)$$

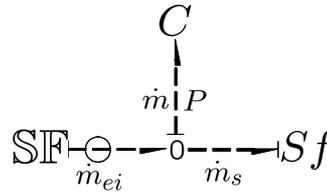


FIG. 3.17 – Modèle pseudo bond graph général d'un réacteur homogène en domaine hydraulique.

L'élément  $C$  est caractérisé par une relation liant la pression  $P$  et la masse  $m$ ,  $P = \Phi_C(m)$ ,  $m$  est la variable de déplacement généralisé ( $\int \dot{m} dt = m$ ) et  $P$  et la variable d'effort.

En ce qui concerne les réacteurs à paramètres distribués, l'hypothèse de l'uniformité des variables intensives sur l'ensemble du mélange réactionnel n'est plus valable, car la matière dans ce cas se déplace et se transforme en même temps, d'où la forme de l'équation du bilan de masse donnée par l'équation ci-dessous avec  $\nabla$  l'opérateur de divergence, et  $v$  le vecteur de la vitesse de déplacement du mélange.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla(\rho v) = 0 \quad (3.42)$$

Ainsi, on constate que l'équation de conservation de matière est exprimée en terme de la masse volumique  $\rho$  et non pas en fonction de la masse  $m$ , d'où la difficulté de normaliser le choix des variables de puissance de ce type de réacteurs avec celui décrit plus haut (réacteurs à paramètres localisés).

**Bilan général d'énergie** Dans l'objectif de présenter le modèle bond graph du domaine thermique correspondant au bilan d'énergie, on considère les flux d'énergie véhiculée par la matière à l'entrée et la sortie du réacteur désignés respectivement par :  $\dot{E}_e$  et  $\dot{E}_s$ , ainsi que  $\dot{E}$  le flux d'énergie stockée par le mélange réactionnel. En plus, on a d'autres sources d'énergie qui viennent s'ajouter, en particulier  $\dot{Q}$  le flux de chaleur fourni par le milieu extérieur, et  $\dot{W}$  le flux du travail effectué par le réacteur ou reçu du milieu extérieur.

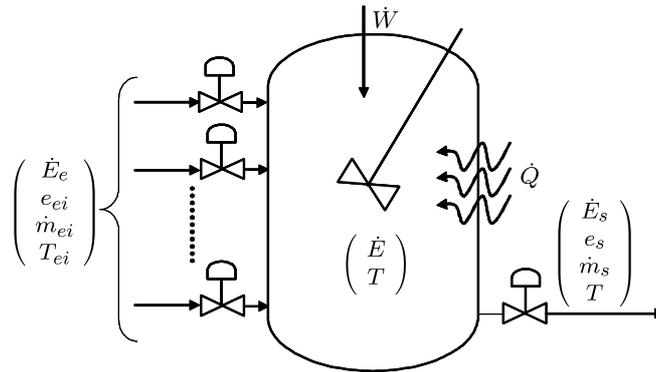


FIG. 3.18 – Schéma général d'un réacteur homogène en domaine thermique.

Pour le cas des réacteurs à paramètres localisés, on considère que la température  $T$  est uniforme dans tout le mélange réactionnel suite à l'hypothèse faite auparavant. Ainsi, on choisit comme variables de puissance le flux d'énergie (de toutes formes :  $\dot{E}$ ,  $\dot{Q}$ ,  $\dot{W}$ , ...etc) et la température  $T$ . Le domaine thermique sera représenté ainsi par le modèle pseudo bond graph Fig.3.19 ci-dessous.

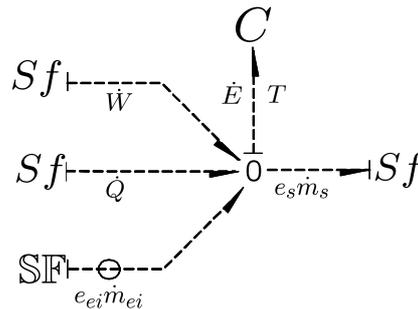


FIG. 3.19 – Modèle pseudo bond graph général d'un réacteur homogène en domaine thermique.

$e_{ei}$  et  $e_s$  désignent les flux des énergies spécifiques par unité de masse. Il faut noter que le modèle pseudo bond graph présenté tel qu'il est dans la Fig.3.19 ne peut pas servir comme support de simulation ou d'analyse, on ne peut que l'employer comme point de départ pour extraire d'autres classes de modèles. Ce sont le mode de fonctionnement et les conditions opératoires qui vont faire la différence entre ces classes de modèles, ce qui va être présenté en détail par la suite. L'équation du bilan thermique générée à partir du modèle sera donnée par :

$$\frac{dE}{dt} = \sum_{i=1}^p \dot{m}_{ei} e_{ei} - \dot{m}_s e_s + \dot{Q} + \dot{W} \quad (3.43)$$

Concernant les réacteurs à paramètres distribués, le modèle présenté dans la Fig.3.19 est valable uniquement au niveau local (avec adaptation), car la température  $T$  n'est pas uniforme

dans tout le mélange. Alors, en employant le modèle Fig.3.19 on va se trouver avec plusieurs circuits  $RC$  en série [2] qui représentent : le stockage de la chaleur à chaque point considéré et le transfert thermique entre deux nœuds. On obtient ainsi un modèle bond graph discrétisé du domaine thermique.

**Bilan d'espèces** Considérons d'abord le cas des réacteurs à paramètres localisés, où on considère la présence de  $k$  réactions chimiques  $R_j = \{R_1, \dots, R_k\}$  qui se déroulent dans un mélange réactionnel bien agité. Suite à l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique global citée au début, le potentiel chimique  $\mu_i$  de chaque constituant est uniforme dans tout le mélange. On a les concentrations  $C_{ei}$  et les flux molaires  $\dot{n}_{ei}$  des constituants à l'entrée du réacteur, les concentrations  $C_i$  et les flux molaire  $\dot{n}_{si}$  des constituants à la sortie du réacteur.

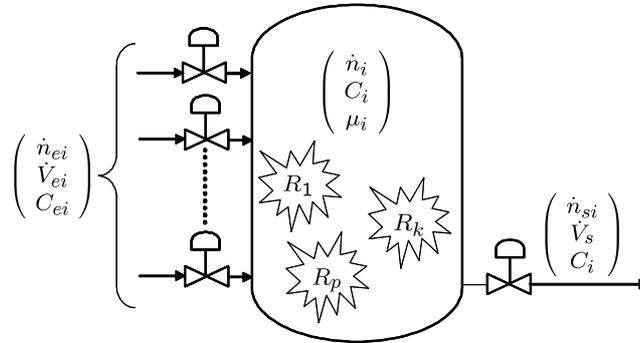


FIG. 3.20 – Schéma général d'un réacteur homogène en domaine chimique.

En ce qui concerne le modèle bond graph du domaine chimique Fig.3.21, l'usage de l'élément  $\mathbb{RCH}$  qui a été présenté auparavant a permis de représenter la transformation chimique d'une façon détaillée, tout en tenant compte de la cinétique et la stoechiométrie des réactions en cours.

L'élément capacitif  $\mathbb{C}$  reflète la présence d'un phénomène de stockage de l'énergie chimique nécessaire pour l'évolution des réactions, où la relation constitutive de cet élément relie le potentiel chimique  $\mu_i$  (effort) et le nombre de moles  $n_i$  (déplacement généralisé), et dont la forme varie en fonction de l'état physique du mélange (mélange gaz, mélange liquide).

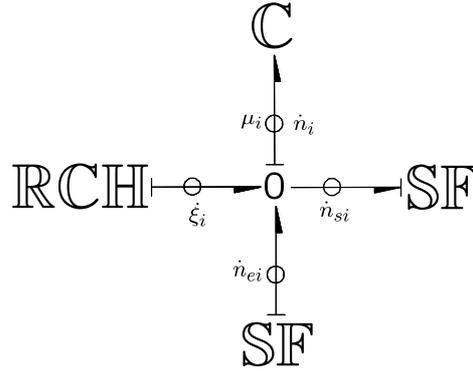


FIG. 3.21 – Modèle bond graph général d'un réacteur homogène en domaine chimique.

La jonction 0 vectorielle (Fig.3.21) représente l'ensemble des jonctions 0 qui représentent l'uniformité des potentiels chimiques  $\mu_i$  et les bilans d'espèces, dont la forme est donnée par l'équation d'un constituant particulier  $i$  :

$$\frac{dn_i}{dt} = \dot{n}_{ei} - \dot{n}_{si} + \sum_{j=1}^k (\nu_{j,i}^r - \nu_{j,i}^f) J_j \text{ avec } i = 1, \dots, p \quad (3.44)$$

Cependant, en ce qui concerne les réacteurs à paramètres distribués, la concentration et le potentiel chimique des constituants sont uniformes dans des portions locales (après discrétisation). Dans ce type de réacteurs un phénomène de diffusion est présent entre portions et permet ainsi le déplacement des constituant entre zones. Ce phénomène physico-chimique qui dépend de la concentration est défini par la loi de Fick, où le flux de diffusion d'un constituant  $i$  est exprimé par :

$$\vec{J}_i = -D_i \vec{\nabla} C_i \quad (3.45)$$

Avec  $D_i$  le coefficient de diffusion que nous supposons indépendant de la concentration. Ainsi, l'équation du bilan d'espèce pour un constituant particulier est donnée par :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \nabla(vC_i) = R_i + D_i \nabla^2(C_i) \quad (3.46)$$

Avec  $v$  qui représente la vitesse du déplacement du mélange dans le réacteur.  $R_i$  représente la production du constituant  $i$  en présence de  $j$  réactions avec :

$$R_i = \sum_{j=1}^k (\nu_{j,i}^r - \nu_{j,i}^f) (J_j \setminus V) = \sum_{j=1}^k \nu_{ij} r_j \quad (3.47)$$

Pour la modélisation du modèle bond graph en domaine chimique, le modèle des réacteurs à paramètres localisés (Fig.3.21) peut servir en partie pour être employé sur le niveau local, ainsi l'ensemble des modèles locaux va donner le modèle bond graph discrétisé d'un réacteurs à paramètres distribués, ce qui va être expliqué en détail par la suite.

### 3.3.1.1 Réacteur continu parfaitement agité

Dans cette partie, on va exposer la procédure de modélisation des réacteurs continus et représenter en particulier : les différents sous-modèles bond graphs de chaque domaine énergétique (hydraulique, thermique, chimique), ainsi que les éléments bond graphs correspondant à chacun, qu'ils soient des éléments résistifs, capacitifs ou autres. Dans ce sens, les sous-modèles énergétiques élaborés seront accommodés pour obtenir à la fin le modèle générique des réacteurs continus homogènes. Cependant, à travers cette partie, les éléments bond graph et les structures abordées seront employés pour les autres types de réacteurs à paramètres localisés ou distribués.

Dans ce mode de fonctionnement le réacteur travaille en continu, c'est-à-dire qu'il est alimenté par les réactifs, et que les produits de la réaction sont soutirés de manière parallèle. Ainsi, deux configurations peuvent être employées pour cet usage: ou bien un seul réacteur, ou bien un ensemble de réacteurs connectés en série. En effet, on suppose que dans l'ensemble du mélange réactionnel, les concentrations  $C_i$  sont uniformes ainsi les toutes les variables intensives.

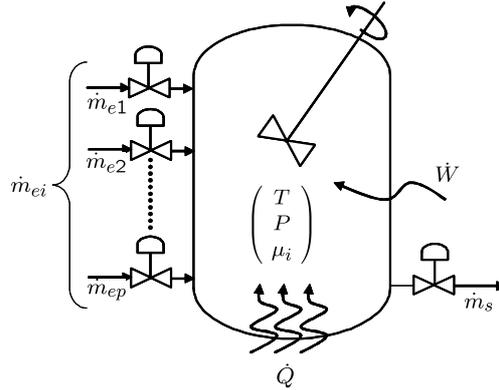


FIG. 3.22 – Schéma d'un réacteur homogène continu.

Ainsi, visant à développer un sous modèle bond graph dans le domaine thermique, il a été nécessaire de tenir compte des conditions opératoires de température, pression, volume, dont la grandeur représente un autre facteur distinctif dans ce type de réacteurs, où le mode de fonctionnement est commun. Ainsi, on sera amené pour cela à affiner le modèle pseudo-bond graph du bilan d'énergie cité avant en fonction des conditions opératoires prédéfinies. Pour commencer, on considère que le bilan d'énergie généré à partir du modèle bond graph Fig.3.18 est défini par :

$$\frac{dE}{dt} = \sum_{i=1}^p \dot{m}_{ei} e_{ei} - \dot{m}_s e_s + \dot{Q} + \dot{W} \quad (3.48)$$

Sachant que les énergies totale  $E$  et spécifique massique  $e$  sont données par :

$$E = U + K + \Phi \quad (3.49)$$

$$e = u + k + \Phi \quad (3.50)$$

En négligeant les énergies cinétiques  $K$ ,  $k$  et potentielles  $\Phi$ ,  $\Phi$ , par rapport aux énergies internes  $U$ ,  $u$ , l'équation du bilan d'énergie va se mettre ainsi sous la forme :

$$\frac{dU}{dt} = \sum_{i=1}^p (\dot{m}_e)_i (u_e)_i - \dot{m}_s u_s + \dot{Q} + \dot{W} \quad (3.51)$$

D'autre part, notons que le travail total  $W$  peut être décomposé sous la forme de la somme de trois termes définie par :

$$\dot{W} = \dot{W}_f + \dot{W}_e + \dot{W}_a = \left[ \sum_{i=1}^p (\dot{m}_e)_i \left( \frac{P_e}{\rho_e} \right)_i - \dot{m}_s \frac{P_s}{\rho} \right] + [-P\dot{V}] + \dot{W}_a \quad (3.52)$$

Avec  $W_f$  le travail dû au flux de la matière,  $W_a$  le travail d'agitation,  $W_e$  le travail d'expansion ou de contraction du mélange. En remplaçant chaque type de travail par sa forme analytique l'équation devient :

$$\frac{dU}{dt} = \sum_{i=1}^p (\dot{m}_e)_i (u_e)_i - \dot{m}_s u_s + \dot{Q} + \left[ \sum_{i=1}^p (\dot{m}_e)_i \left( \frac{P_e}{\rho_e} \right)_i - \dot{m}_s \frac{P_s}{\rho} \right] + [-P\dot{V}] + \dot{W}_a \quad (3.53)$$

D'un autre côté on a :

$$h = u + \frac{P}{\rho} = c_p T \quad (3.54)$$

$$H = U + PV \quad (3.55)$$

On obtient :

$$\frac{dH}{dt} = \sum_{i=1}^p (\dot{m}_e)_i (h_e)_i - \dot{m}_s h_s + \dot{Q} + V\dot{P} + \dot{W}_a \quad (3.56)$$

À partir des relations de Maxwell on peut déduire la forme de la dérivée de l'enthalpie  $\dot{H}$  définie par :

$$\frac{dH}{dt} = \left( \frac{\partial H}{\partial T} \right)_{P, n_i} \frac{dT}{dt} + \left( \frac{\partial H}{\partial P} \right)_{T, n_i} \frac{dP}{dt} + \sum_{i=1}^p \left( \frac{\partial H}{\partial n_i} \right)_{P, n_i} \frac{dn_i}{dt} \quad (3.57)$$

$$= V\rho c_p \frac{dT}{dt} + (1 - \alpha T)V \frac{dP}{dt} + \sum_{i=1}^p \bar{H}_i \frac{dn_i}{dt} \quad (3.58)$$

En remplaçant  $\dot{H}$  dans l'équation (3.56) par sa relation analytique, le bilan thermique se mettra ainsi sous la forme :

$$V\rho c_p \frac{dT}{dt} = \sum_{i=1}^p \dot{V}_{ei} \rho_i c_{pi} T_{ei} - \sum_{i=1}^p \dot{V}_{ei} \rho_i c_{pi} T + \dot{Q} + \dot{W}_a - \sum_{j=1}^k \Delta H_{rj} J_j + \alpha TV \dot{P} \quad (3.59)$$

Beaucoup plus de détails concernant l'obtention de l'équation (3.59) sont présentés dans [61]. Avec  $(\dot{V}_{ei}, \rho_i, c_{pi})$  respectivement : le flux volumique du constituant  $i$  à l'entrée du réacteur; la masse volumique du constituant  $i$ ; la chaleur spécifique massique du constituant  $i$ , alors que  $(\dot{V}_s, \rho, c_p)$  sont : le débit volumique de sortie du réacteur; la masse volumique du mélange; la chaleur spécifique massique du mélange. Si on considère par convention que  $H$  représente la chaleur emmagasinée par le mélange réactif, la loi constitutive de l'élément  $C$  représentant ce phénomène de stockage sera décrite ainsi par :

$$T = \frac{1}{V\rho c_p} \int \dot{H} dt \quad (3.60)$$

Ainsi, l'équation (3.59) du bilan thermique peut se mettre sous la forme d'une jonction 0 dans le modèle pseudo bond graph en domaine thermique présenté dans la Fig.3.23.

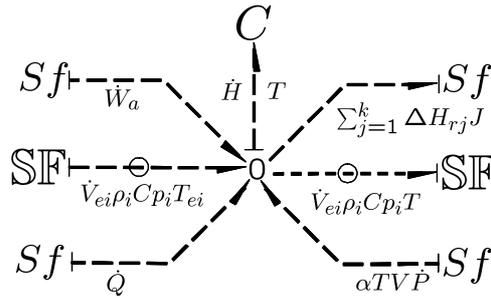


FIG. 3.23 – Modèle pseudo-bond graph générique d'un réacteur homogène continu en domaine thermique.

Dans le cas où on considère que la pression est constante ( $\dot{P} = 0$ ), ou le mélange réactif est incompressible ( $\alpha = 0$ ), alors le modèle bond graph de la Fig.3.23 va se mettre sous la forme du modèle présenté dans la Fig.3.24 ci-dessous.

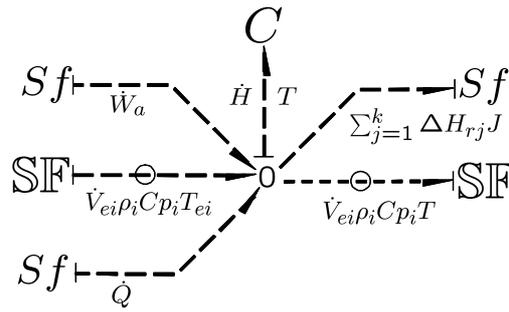


FIG. 3.24 – Modèle pseudo-bond graph générique d'un réacteur homogène continu en domaine thermique pour mélanges incompressibles.

Pour le modèle pseudo-bond graph du bilan de masse, sa forme va dépendre principalement de la phase du mélange réactif et du mode de fonctionnement du réacteur. Ainsi en reprenant le modèle cité auparavant, les débits massiques peuvent être réécrits en fonction des débits volumiques d'entrée et de sortie :

$$\begin{aligned} \frac{dm}{dt} &= \sum_{i=1}^p \dot{m}_{ei} - \dot{m}_s & (3.61) \\ &= \sum_{i=1}^p \dot{V}_{ei} \rho_i - \dot{V}_s \rho \end{aligned}$$

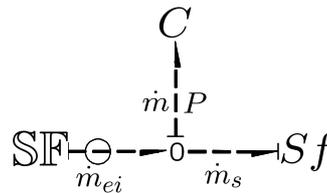


FIG. 3.25 – Modèle pseudo bond graph générique d'un réacteur homogène continu en domaine hydraulique.

Seulement, on constate que la masse volumique du mélange  $\rho$  est une variable à déterminer, étant donné que c'est une grandeur variable qui dépend des proportions de chaque constituant qui varient en fonction de l'évolution de la réaction, on a :

$$\rho = \frac{m}{V} \tag{3.62}$$

En considérant que les interactions intermoléculaires n'ont pas une influence considérable sur la variation du volume, on peut mettre le volume sous la forme :

$$V \approx \sum_{i=1}^p n_i V_i = \sum_{i=1}^p n_i \frac{M_i}{\rho_i} \quad (3.63)$$

$V_i$  : Volume molaire du constituant  $i$  ( $l/mol$ )

$n_i$  : Nombre de mole du constituant  $i$

$M_i$  : Masse molaire du constituant  $i$

$\rho_i$  : Masse volumique du constituant  $i$

Ainsi on obtient la masse volumique totale dans le cas des mélanges liquide sous la forme :

$$\rho = \frac{\sum_{i=1}^p n_i M_i}{\sum_{i=1}^p n_i \frac{M_i}{\rho_i}} \quad (3.64)$$

Dans le cas des mélanges gaz le volume molaire du mélange de chaque constituant correspond au volume du réacteur, la masse volumique du mélange sera donnée ainsi par la forme :

$$\rho = \frac{\sum_{i=1}^p n_i M_i}{V} \quad (3.65)$$

À propos de l'élément capacitif  $C$ , il faut noter que sa relation constitutive prend différentes formes en fonction de la phase du mélange, ainsi si on considère le cas d'un mélange liquide on a la forme linéaire classique citée dans [73] où :

$$P = \Phi_c(m) = \frac{g}{S} \int \dot{m} dt \quad (3.66)$$

Tandis que pour un mélange de gaz, la forme change, on distingue ainsi deux cas: le premier concerne la situation où on considère que le mélange a un comportement d'un gaz parfaits. Ainsi la relation constitutive de l'élément  $C$  sera déduite à partir de l'équation des gaz parfait

$$PV = nRT \quad (3.67)$$

d'où :

$$P_i = \Phi_c(m) = \frac{n_i RT}{V} \quad (3.68)$$

$$P = \sum_{i=1}^p P_i = \Phi_c(m) = \frac{\sum_{i=1}^p n_i \rho RT}{m} \quad (3.69)$$

avec  $P_i$  la pression partielle du constituant  $i$ ,  $P$  la pression du mélange. Pour le cas où on considère que le mélange gaz a un comportement d'un gaz réel, il y a différentes formes d'équations d'état pour caractériser son comportement. La forme générale est donnée par :

$$f(P,V,T,n) = 0 \tag{3.70}$$

Alors pour déterminer la forme de la relation constitutive de l'élément  $C$ , il suffit de mettre l'équation d'état sous la forme  $P = \Phi_c(m,T,n_i)$ . Ainsi on considère l'équation d'état du gaz sous la forme de l'équation de Van Der Waals des gaz réels [75] définie par :

$$\left( P_i + \frac{n_i^2 a}{V^2} \right) (V - n_i b) = n_i RT \tag{3.71}$$

La relation constitutive sera ainsi donnée par la forme non linéaire :

$$P = \sum_{i=1}^p P_i = \Phi_c(m) = \sum_{i=1}^p \frac{n_i RT}{\frac{m}{\rho} - Nb} - \frac{n_i^2 a}{\left(\frac{m}{\rho}\right)^2} \tag{3.72}$$

En ce qui concerne le modèle bond graph du domaine chimique, il est présenté par la Fig.3.26 où les éléments capacitifs simples  $C$  (dites aussi capacités chimiques) ont un comportement de nature non linéaire dont la loi constitutive reliant le potentiel chimique  $\mu_i$  et le nombre de moles  $n_i$  est donnée par l'expression généralisée du potentiel chimique :

$$\mu_i = \mu_i^* + RT \ln a_i \tag{3.73}$$

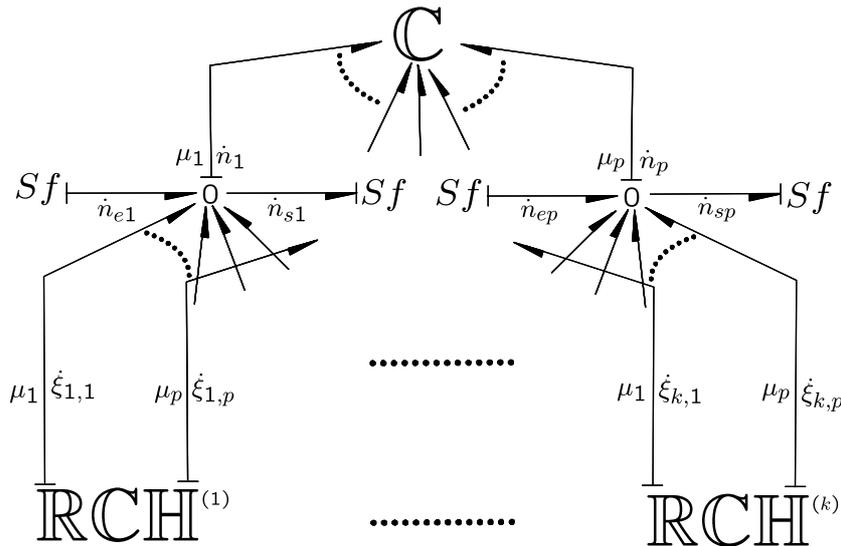


FIG. 3.26 – Modèle bond graph générique d'un réacteur homogène continu en domaine chimique.

avec  $\mu_i^*$  le potentiel chimique de référence qui dépend de la température  $T$  et la pression  $P$ , et pour lequel on considère que le constituant  $i$  est en état de référence. Le terme  $a_i$  représente l'activité de l'espèce  $i$  dont la forme est donnée par :

$$a_i = \gamma_i \frac{X_i}{X_i^*} \quad (3.74)$$

$X_i$  : variable d'état de composition chimique pour le constituant  $i$ .

$X_i^*$  : valeur de référence prise par la variable dans l'état de référence choisi pour le constituant  $i$ .

$\gamma_i$  : coefficient d'activité du constituant  $i$ .

L'activité  $a_i$  est une grandeur sans dimension, la valeur de cette entité nécessite la connaissance des variables  $X_i$ , ainsi que la valeur du coefficient d'activité  $\gamma_i$  qui représente une mesure des interactions existant entre les particules. Dans le cas des systèmes réels, les interactions entre particules deviennent importantes et prennent des valeurs généralement comprises entre 0 et 1.

Visant à mettre la relation constitutive de l'élément  $C$  sous une forme plus détaillée, on va procéder à définir la variable d'état  $X_i$  qui se détermine en fonction des propriétés et de la phase du mélange réactif.

### 1. Cas d'un mélange de gaz

Dans ce cas, la variable d'état de composition chimique  $X_i$  est la pression partielle  $P_i$ , ainsi on prend comme état de référence le gaz dans son état standard ( $P^\circ = 1bar$ ). L'activité chimique  $a_i$  devient ainsi donc sous la forme :

$$a_i = \gamma_i \frac{P_i}{P^\circ} = \gamma_i P_i \quad (3.75)$$

Comme l'état de référence choisie pour le gaz est l'état standard, le potentiel chimique de référence est égal au potentiel chimique standard  $\mu_i^* = \mu_i^\circ$  d'où :

$$\mu_i = \mu_i^\circ + RT \ln \gamma_i P_i \quad (3.76)$$

Le terme  $\gamma_i$  est appelé aussi fugacité du gaz; il traduit l'écart entre les comportements parfait et réel du gaz. Pour déterminer la loi constitutive de l'élément  $C$  on fait appel à l'équation d'état du gaz parfait; ainsi on obtient la relation constitutive pour le cas d'un mélange de gaz sous la forme :

$$\mu_i = \mu_i^\circ + RT \ln \gamma_i \frac{n_i RT}{V} \quad (3.77)$$

Dans le cas d'un mélange de gaz considéré de comportement parfait, le coefficient d'activité prend la valeur 1, d'où l'équation (3.77) devient :

$$\mu_i = \mu_i^\circ + RT \ln \frac{n_i RT}{V} \quad (3.78)$$

## 2. Cas d'un mélange de liquides

La variable d'état de composition chimique  $X_i$  est définie dans ce cas par la fraction molaire  $x_i$ , telle que :

$$X_i = x_i = \frac{n_i}{N} \quad (3.79)$$

avec  $N$  le nombre total de moles. L'état de référence pour un liquide est le liquide pur, ainsi  $X_i^* = x_i^* = 1$ . On obtient alors la relation constitutive de la capacité chimique  $C$  dans le cas d'un mélange liquide :

$$\mu_i = \mu_i^\circ + RT \ln \gamma_i x_i \quad (3.80)$$

Ainsi pour un mélange liquide que l'on considère idéal  $\gamma_i = 1$ , et on obtient la forme :

$$\mu_i = \mu_i^\circ + RT \ln x_i \quad (3.81)$$

## 3. Cas des solutions (solvant+soluté)

a). Solution diluée (idéale  $\gamma_i = 1$ )

La variable d'état de composition chimique du constituant  $i$  est sa concentration molale  $m_i$  donnée par :

$$X_i = m_i = \frac{\text{nombre de moles du constituant } i}{1 \text{ kg de solvant}} \quad (3.82)$$

En pratique, on préfère utiliser la concentration molaire  $C_i$  définie par :

$$X_i = m_i = \frac{\text{nombre de moles du constituant } i}{1 \text{ L de solution}} \quad (3.83)$$

En effet, dans le cas des solutions aqueuses diluées, la masse du soluté étant négligeable devant celle du solvant, on peut ainsi donc confondre molalité et molarité. L'état de référence pour un soluté  $i$  est une solution de concentration extrapolée à dilution infinie.

$$\mu_i = \mu_i^\circ + RT \ln C_i \quad (3.84)$$

Le potentiel chimique de référence s'exprime en fonction du potentiel chimique standard du soluté (potentiel chimique du soluté à la concentration  $C^\circ = C_i = 1 \text{ mol.L}^{-1}$  extrapolée à dilution infinie et sous ( $P = P^\circ = 1 \text{ bar}$ ))

b). Solution concentrée (ou  $\gamma \neq 1$ )

Les interactions entre particules ne sont plus négligeables. L'activité s'écrit ainsi sous la forme:

$$a_i = \gamma_i \frac{C_i}{C^o} = \gamma_i C_i \quad (3.85)$$

$$\mu_i \approx \mu_i^\circ + RT \ln \gamma_i C_i \quad (3.86)$$

On constate que l'on peut toujours écrire le potentiel chimique sous la forme :

$$\mu_i = \mu_i^* + RT \ln a_i = \mu_i^* + RT \ln \left( \gamma_i \frac{X_i}{X_i^*} \right) \quad (3.87)$$

avec :

$\mu_i^*$  Potentiel chimique standard du constituant  $i$

$\gamma_i$  Coefficient d'activité égale à 1 pour un système idéalisé

$X_i = P_i$  (état gaz)

$= x_i$  (état liquide pur)

$= C_i$  (soluté)

$X_i^* = 1$  (unité SI)

Pour conclure cette partie, on va combiner tous les modèles bond graphs des différents domaines énergétiques pour représenter le modèle générique d'un réacteur continu parfaitement agité et illustrer ainsi le couplage entre les différents domaines (thermique, chimique, hydraulique). Le modèle est représenté ainsi par la Fig.3.27. On distingue ainsi, un élément multiport  $\mathbb{C}$  qui regroupe toutes les capacités des différents domaines énergétiques (hydraulique, chimique, thermique), ainsi que l'ensemble des jonctions  $0$  qui représentent les trois bilans de conservations. Cependant, il faut souligner aussi que l'élément multiport  $\mathbb{C}$  sera employé pour les autres types des réacteurs homogènes, car sa structure et ses relations constitutives ne dépendent pas du mode de fonctionnement, mais beaucoup plus des conditions opératoires et de l'état physique du mélange.

Le vecteur d'état du modèle est constitué des variables d'énergie suivantes :

$$X = [n_1, \dots, n_p, H, m] \in R^{p+2} \quad (3.88)$$

Où :

$p$  est le nombre de constituants du mélange.

$n_i$  : le nombre de moles du constituant  $i$  ( $i = 1, \dots, p$ ).

$m$  : la masse totale du mélange.

$H$  : la chaleur stockée par le mélange.



Les relations constitutives des transformateurs sont écrites uniquement pour les flux, tel que :

$$\dot{n}_i = \dot{m} \frac{x_i}{M_i} \quad (3.89)$$

$x_i$  : la fraction molaire du constituant  $i$ .

$M_i$  : la masse molaire du constituant  $i$  [ $kg/mol$ ]

$\dot{n}_i$  : le débit molaire du constituant  $i$  [ $mole/s$ ].

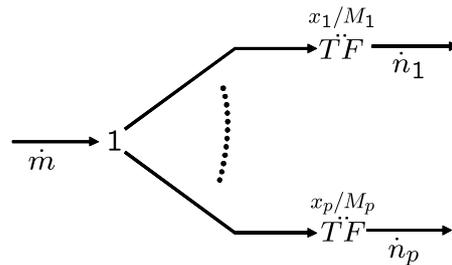


FIG. 3.29 – Modèle bond graph du Démultiplexeur chimique d'un mélange.

### 3.3.1.2 Réacteur semi-fermé

En ce qui concerne le mode de fonctionnement des réacteurs semi - fermés, la cuve du réacteur est alimentée progressivement par les réactifs jusqu'à atteindre le volume désiré. Une fois la réaction accomplie, les produits seront soutirés. Ainsi, à la différence des réacteurs homogènes continus il n'y a pas de flux de sortie de matière en parallèle avec le flux d'entrée.

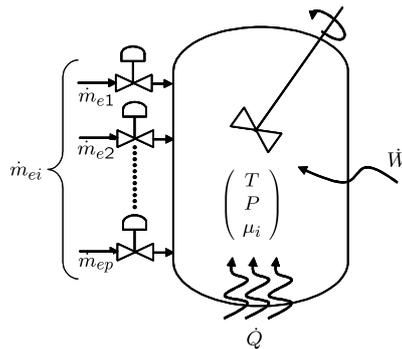


FIG. 3.30 – Schéma d'un réacteur homogène semi fermé.

Le modèle bond graph de ce type de réacteurs est élaboré à partir du modèle bond graph généralisé des réacteurs continus (Fig.3.27), et cela en supprimant les source de flux hydraulique, thermique et chimique en couplage avec le flux de sortie de la matière. Le modèle bond graph générique d'un réacteur semi fermé est présenté sur la Fig.3.31.

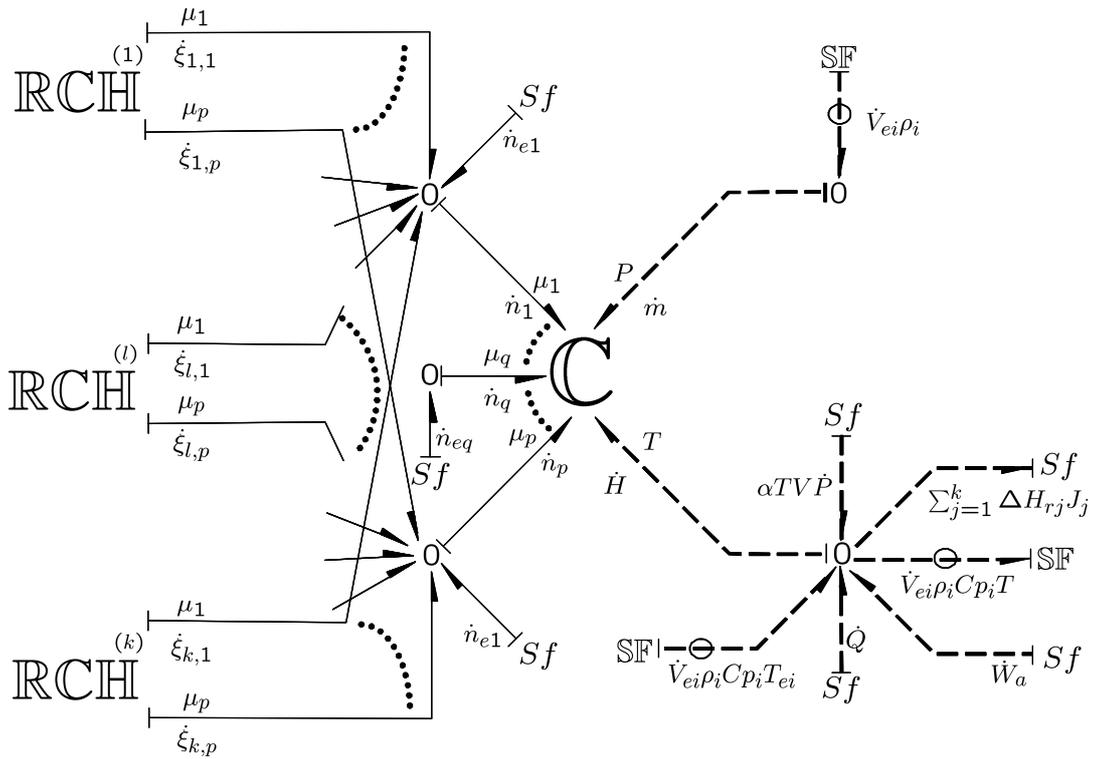


FIG. 3.31 – Modèle bond graph générique d'un réacteur homogène semi fermé.

### 3.3.1.3 Réacteur fermé

Pour ce type de réacteurs, la différence avec les autres modes de fonctionnement réside dans le fait qu'il n'y a ni flux d'entrée ni flux de sortie durant la transformation chimique. Les réactifs sont introduits dans la cuve au début de l'opération, après une mise en conditions de température  $T$  et de pression  $P$ . C'est après l'accomplissement de la transformation que le mélange réactionnel est soutiré.

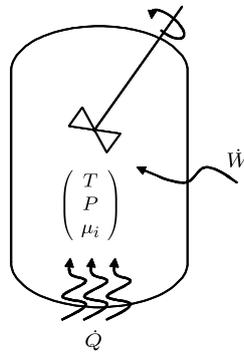


FIG. 3.32 – Schéma d'un réacteur homogène fermé.

Ainsi pour représenter les réacteurs fermés, on emploie le modèle des réacteurs continus, où il suffit juste de supprimer toutes les sources de flux qui dépendent des flux d'entrée et de sortie de la matière. Le modèle bond graph généralisé d'un réacteur fermé est défini ainsi par la Fig.3.33.

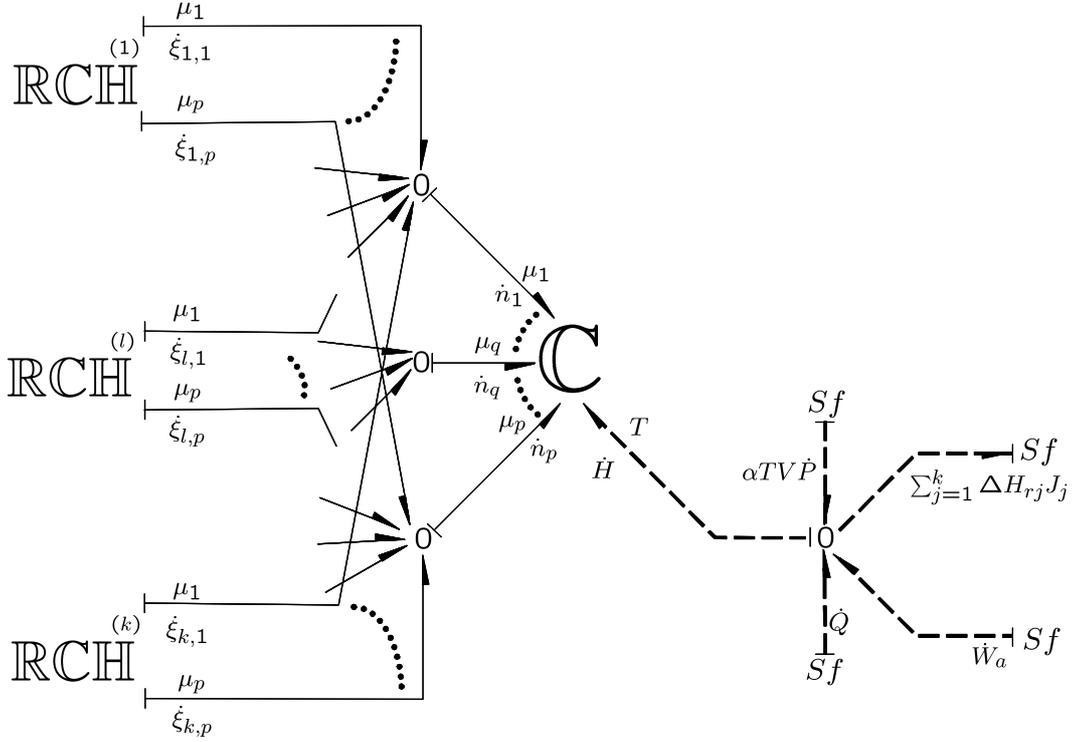


FIG. 3.33 – Modèle bond graph générique d'un réacteur homogène fermé.

Seulement, dans certaines situations, particulièrement dans le cas des mélanges gaz où le volume réactionnel  $V$  est constant, la forme de l'équation du bilan d'énergie change en fonction de la nouvelle condition ( $V$  constant). Pour cela on remplace  $\dot{P}$  dans l'équation du bilan d'énergie par sa forme de dérivées partielles définie par :

$$\frac{dP}{dt} = \left( \frac{\partial P}{\partial T} \right)_{V, n_i} \frac{dT}{dt} + \left( \frac{\partial P}{\partial V} \right)_{T, n_i} \frac{dV}{dt} + \sum_{i=1}^p \left( \frac{\partial P}{\partial n_i} \right)_{T, V} \frac{dn_i}{dt} \quad (3.90)$$

Vu que  $\dot{V} = 0$ , l'équation du bilan d'énergie devient ainsi sous la forme :

$$\left[ V \rho c_p - \alpha T V \left( \frac{\partial P}{\partial T} \right)_{V, n_i} \right] \frac{dT}{dt} = \dot{Q} + \dot{W}_a - \sum_{j=1}^k \left[ \Delta H_{rj} - \alpha T V \sum_i \nu_{ji} \left( \frac{\partial P}{\partial n_i} \right)_{T, V} \right] J_j \quad (3.91)$$

Sachant que :

$$V\rho c_v = \left[ V\rho c_p - \alpha TV \left( \frac{\partial P}{\partial T} \right)_{V, n_i} \right] \quad (3.92)$$

le bilan d'énergie se mettra ainsi sous la forme :

$$V\rho c_v \frac{dT}{dt} = \dot{Q} + \dot{W}_a - \sum_{j=1}^k \Delta H_{rj} J_j + \alpha TV \sum_{i=1}^p \sum_{j=1}^k \nu_{ji} \left( \frac{\partial P}{\partial n_i} \right)_{T,V} J_j \quad (3.93)$$

En définissant par convention que la chaleur emmagasinée par le mélange réactif à volume constant correspond à l'énergie interne  $U$ , où la loi constitutive représentant ce phénomène capacitif est donnée par :

$$T = \frac{1}{V\rho c_v} \int \dot{U} dt \quad (3.94)$$

le modèle bond graph représentant le domaine thermique où le mélange réactif est à volume est représenté par la Fig.3.34.

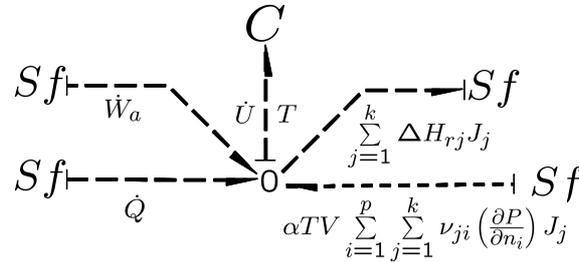


FIG. 3.34 – Modèle pseudo bond graph générique d'un réacteur homogène fermé en domaine thermique pour un mélange de gaz.

La forme  $(\partial P/\partial n_i)_{T,V}$  est déterminée à partir de l'équation d'état qui caractérise le mélange. Si on considère que le mélange réactif est constitué de gaz parfaits, alors  $\alpha T = 1$  et  $(\partial P/\partial n_i)_{T,V} = RT/V$ . Ainsi, le modèle bond graph de la Fig.3.34 devient sous la forme du modèle présenté dans la Fig.3.35, l'équation du bilan d'énergie qu'il représente est exprimée par :

$$\dot{U} = V\rho c_v \frac{dT}{dt} = \dot{Q} + \dot{W}_a - \sum_{j=1}^k \left[ \Delta H_{rj} - RT \sum_{i=1}^p \nu_{ji} \right] J_j \quad (3.95)$$

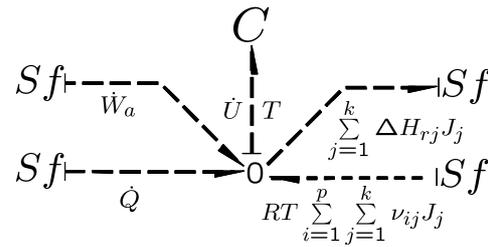


FIG. 3.35 – Modèle pseudo bond graph générique d'un réacteur homogène fermé en domaine thermique pour mélanges de gaz parfaits.

La forme du modèle bond graph générique d'un réacteur fermé est présenté par la Fig.3.36, et cela dans le cas où le mélange est de phase gaz.

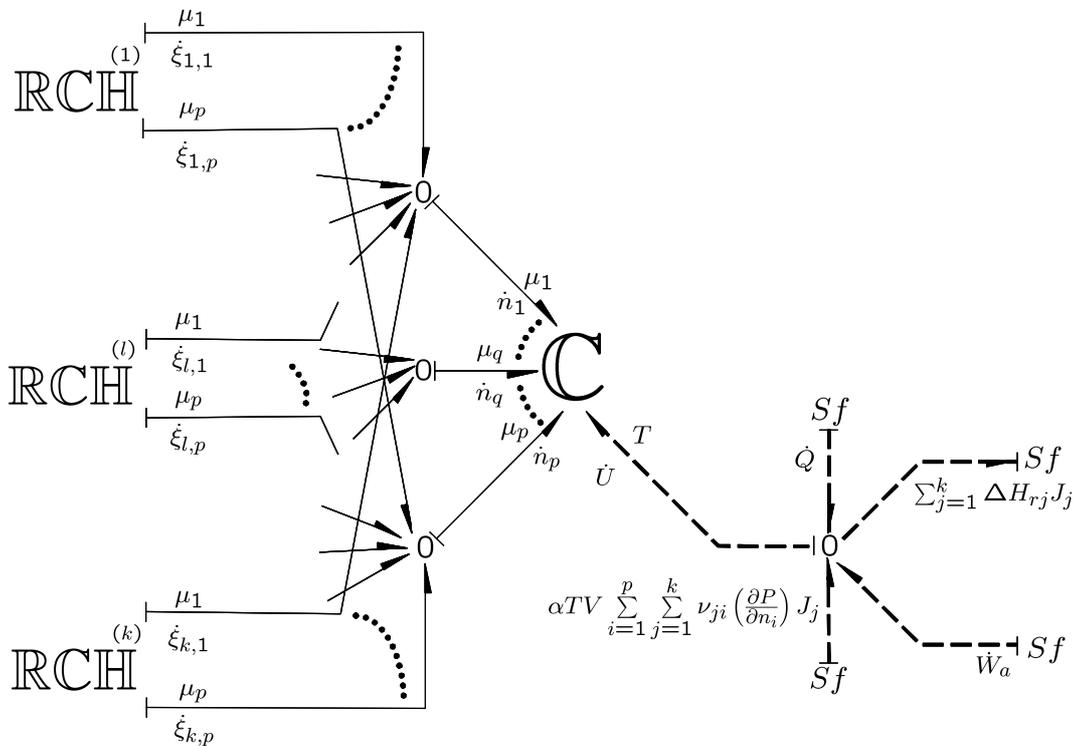


FIG. 3.36 – Modèle bond graph générique d'un réacteur homogène fermé pour les mélanges gaz.

### 3.3.1.4 Réacteur continu tubulaire

Comme son nom l'indique, ce type de réacteur est sous la forme d'un tube, où le mélange réactionnel est en écoulement piston lorsqu'il progresse dans le réacteur. On considère que les variables intensives : température  $T$ ; concentration  $C_i$ ; potentiel chimique  $\mu_i$  sont constantes sur une même section, autrement dit elles ne varient que suivant l'axe des abscisses  $z$  et dans

le temps. Les pertes de charge sont négligeables, il n'y a pas de chute de pression causée par le frottement entre le mélange réactionnel et les parois du réacteur. Par conséquent, la vitesse de progression  $v_z$  suivant l'axe  $z$  est ainsi constante. Les équations des bilans de constituants et de chaleur en régime transitoire sont exprimées respectivement par :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + v_z \frac{\partial C_i}{\partial z} = R_i + \frac{\partial}{\partial z} \left( D_i \frac{\partial C_i}{\partial z} \right) \quad (3.96)$$

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_p v_z \frac{\partial T}{\partial z} = \Delta \dot{H}_r + \dot{Q} \quad (3.97)$$

Pour représenter ce type de réacteur à paramètres distribués par l'approche bond graph, et concevoir ainsi un modèle adapté pour des applications liées à la supervision et la commande, on a été amené à discrétiser ses équations de bilan pour obtenir un modèle bond graph à paramètres localisés, ce qui a pour avantage de faciliter l'intégration du modèle avec les autres types de réacteurs homogènes, surtout quand il s'agit de modéliser des installations qui comportent les deux types de réacteurs homogènes. Après discrétisation suivant l'axe des abscisses  $z$  Fig.3.37, on obtient alors les équations de bilans de la  $k^{eme}$  portion exprimées par:

$$\begin{cases} \frac{dn_{i,k}}{dt} = v_z \frac{n_{i,k-1} - n_{i,k}}{\Delta z} + D_i \frac{n_{i,k+1} - 2n_{i,k} + n_{i,k-1}}{\Delta z^2} + V_k R_{i,k} \\ \rho C_p \frac{dT_k}{dt} = \rho C_p v_z \frac{T_{k-1} - T_k}{\Delta z} + \Delta \dot{H}_{r,k} + \dot{Q}_k \end{cases} \quad (3.98)$$

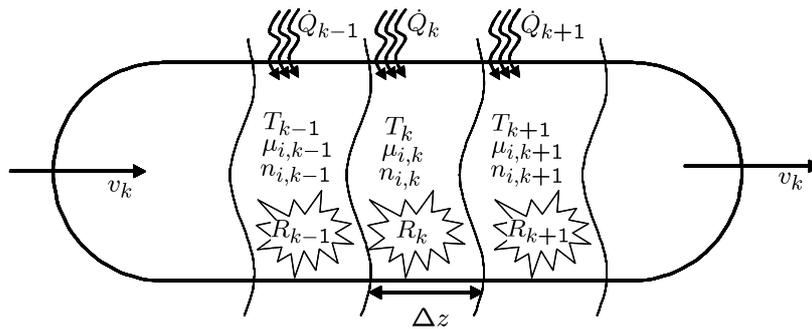


FIG. 3.37 – Schéma de discrétisation d'un réacteur homogène tubulaire.

Ainsi pour représenter le modèle bond graph généralisé d'un réacteur tubulaire, on considère que le réacteur est constitué d'un ensemble de tranches de longueur  $\Delta z$  et de section  $S$ , ainsi le modèle de chaque tranche sera défini par la figure ci-dessous :

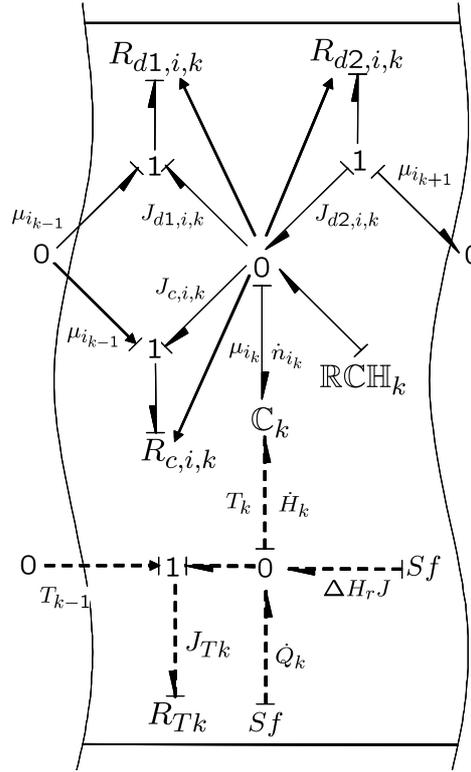


FIG. 3.38 – Modèle bond graph discrétisé d'une portion de réacteur tubulaire.

Pour les domaines chimique et thermique, on a les éléments multi ports  $C_k$  et  $RCH_k$  qui sont identiques à ceux utilisés auparavant pour le cas des réacteurs homogènes à paramètres localisés, seulement on tient compte du fait que la réaction se déroule dans un volume local  $V_k$ . À propos des sources de flux et des résistances physico-chimiques, à chacune on a attribué un phénomène et une loi constitutive tels que :

$R_{d2,i,k}$  Résistance de diffusion entre la portion  $k$  et  $k + 1$ , sa relation constitutive relie le flux molaire de diffusion  $J_{d2,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k+1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{d2,i,k} = \frac{D_i V_k}{\Delta z^2} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k+1} - \mu_{i,k}}{RT}\right) - 1\right)$$

$R_{d1,i,k}$  Résistance de diffusion entre la portion  $k - 1$  et  $k$ , sa relation constitutive relie le flux molaire de diffusion  $J_{d1,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k-1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{d1,i,k} = -\frac{D_i V_k}{\Delta z^2} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k} - \mu_{i,k-1}}{RT}\right) - 1\right)$$

$R_{c,i,k}$  Résistance liée à la convection, sa relation constitutive relie le flux molaire de convection  $J_{c,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k-1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{c,i,k} = \frac{v_z V_k}{\Delta z} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k-1} - \mu_{i,k}}{RT}\right) - 1\right) \quad (3.99)$$

Pour le domaine thermique on a la résistance  $R_{T_k}$  liée au transfert de chaleur par convection, sa relation constitutive relie le flux de chaleur  $J_{c,i,k}$  et les températures  $T_{k-1}, T_k$  :

$$J_{T_k} = \rho C_p v_z \frac{T_{k-1} - T_k}{\Delta z} \quad (3.100)$$

La source de flux liée à la chaleur de conduction est donnée par :

$$MSf = \dot{Q}_k \quad (3.101)$$

Cette forme de source de flux et les éléments résistifs ont pour avantage de maintenir l'aspect graphique de cet outil de modélisation et pouvoir ainsi négliger un de ces phénomènes si on le désire en intervenant directement sur le modèle bond graph. La méthode de calcul des lois constitutives des résistances  $R_{2d,i,k}, R_{1d,i,k}, R_{c,i,k}, R_{T_k}$  a été établie à partir de [51].

### 3.3.2 Réacteurs hétérogènes

Dans cette partie, on va présenter la modélisation par bond graph des réacteurs hétérogènes, une thématique qui n'a pas été développée jusqu'à présent à cause de la complexité des phénomènes physico-chimiques (diffusion, absorption, désorption, ... etc.) qui peuvent intervenir. Ceci est dû à l'origine, à l'hétérogénéité du mélange. Seulement après avoir modélisé la cinétique des réactions hétérogènes, il est plus aisé d'aborder cette problématique en tenant compte de la spécificité de chaque type de réacteurs. À la différence des réacteurs homogènes, la classification des réacteurs hétérogènes se base sur le mode d'activation et le nombre des phases (biphasique, triphasique, ... etc) présentes, et leur implication dans le processus de transformation; ainsi la présentation et la citation des différents modèles bond graph des réacteurs va se faire suivant ces critères de classification.

#### 3.3.2.1 Réacteurs non catalytiques

**Réacteur continu fluidisé** Pour ce type de réacteurs hétérogènes, la réaction se déroule en présence de deux phases (gaz-liquide). Pour expliquer le mode de fonctionnement on présente l'exemple schématisé dans la Fig.3.39, où on considère que les deux constituants réactifs sont de phases différentes (liquide et gaz).

Le constituant liquide  $B$  est déjà présent, alors que le constituant gaz  $A$  s'introduit par injection, cette dernière étant généralement réalisée au moyen d'un tube perforé (couronne) placé au-dessous du réacteur. La vitesse superficielle du gaz est inférieure à celle qui peut être admise pour le cas des colonnes à bulles qui va être traité par la suite.

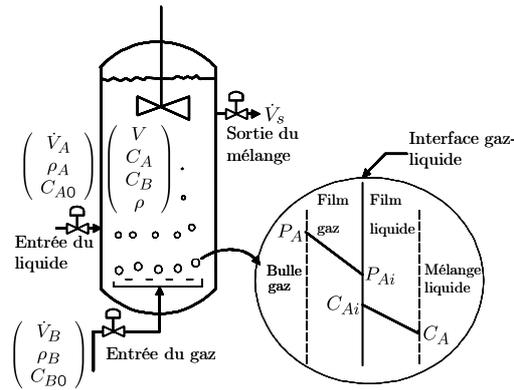
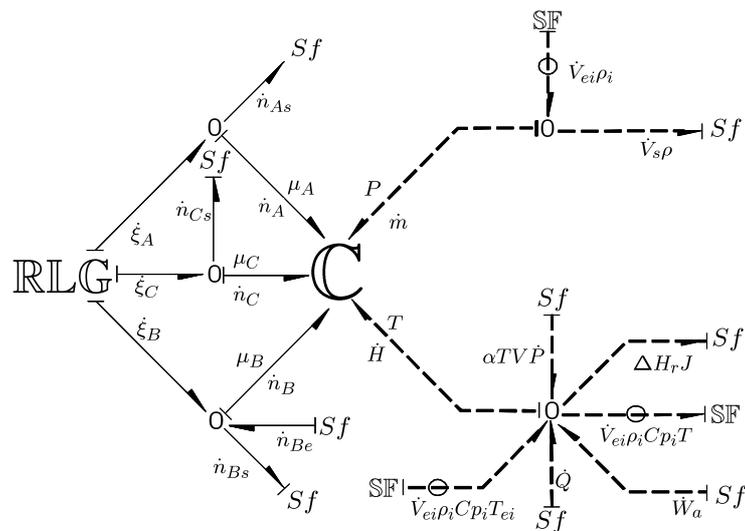


FIG. 3.39 – Schéma d'un réacteur continu fluidisé.

Ainsi, la réaction se distingue par le fait qu'elle est accompagnée par un phénomène physico-chimique de dissolution du constituant  $A$ , qui conduit au passage du milieu gaz au milieu liquide du constituant  $A$  à travers le double film gaz-liquide, et ceci pour pouvoir réagir avec le constituant  $B$ . Cette procédure a été déjà évoquée en détail précédemment. La transformation physico-chimique des constituants réactifs se fait ainsi suivant :



Comme on a déjà mentionné auparavant, pour représenter ce phénomène physico-chimique de dissolution, dont la cinétique de transformation dépend de la concentration des constituants et de la cinétique chimique, on a employé l'élément résistif **RLG** conçu pour représenter la cinétique physico-chimique de dissolution du constituant  $A$ .

FIG. 3.40 – Modèle bond graph d'un réacteur continu fluidisé pour la réaction  $A + B \rightarrow C$ .

Ainsi, si on considère que les variables intensives sont uniformes dans tout le mélange, le modèle bond graph des phases liquides est donné par la Fig.3.40. Dans le modèle bond graph (Fig.3.40) on distingue aussi l'élément multiports  $\text{RLG}$  qui représente la cinétique physico-chimique de la réaction en cours, alors que l'élément multiport  $\text{C}$  est similaire dans sa structure à celui employé pour le cas des réacteurs homogènes.

**Colonne à bulles** Il s'agit d'une colonne cylindrique verticale dont la longueur est plus importante par rapport au cas des réacteurs continus fluidisés. Elle est remplie de constituants réactifs en phase liquide et munie à la base d'un dispositif pour l'injection du constituant réactif gaz. Ce dernier forme des bulles qui montent à travers le mélange liquide, où la quantité du gaz qui n'a pas été transformée ou dissoute dans le liquide s'échappe au sommet de la colonne (Fig.3.41). Concernant l'agitateur, il a pour rôle, de maximiser la dispersion du constituant gaz dans le mélange liquide afin d'améliorer le rendement de la réaction.

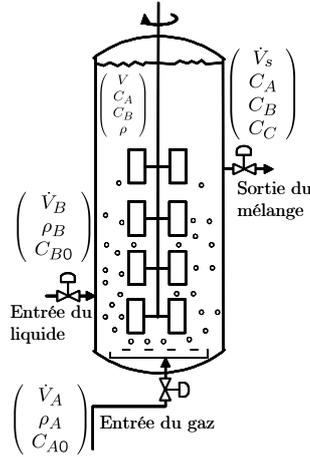


FIG. 3.41 – Schéma d'une colonne à bulles.

Considérons l'exemple traité auparavant, où on a la réaction définie par l'équation (3.102). Même si la transformation chimique est similaire à celle du réacteur continu fluidisé, comme la longueur de la colonne est considérable par rapport à sa section, elle fait partie des systèmes à paramètres distribués, dont les équations des bilans d'espèces et d'énergie [76](chaleur) sont représentées par :

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} = -v_z \frac{\partial C_A}{\partial z} + R_A + D_A \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial^2 C_i}{\partial z^2} \right) \quad (3.103)$$

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = -\rho C_p v_z \frac{\partial T}{\partial z} + \Delta \dot{H}_r + \dot{Q} \quad (3.104)$$

Il faut noter aussi que à la différence des réacteurs tubulaires, il n'existe pas de diffusion mais un phénomène physico-chimique dû à la remontée des bulles dans la colonne. Il s'agit de

dispersion axiale, dont l'expression est représentée par le produit du coefficient de dispersion  $D_A$  et la dérivée seconde ( $\partial^2 C_i \backslash \partial z^2$ ) dans l'équation (3.103) (La dispersion radiale est supposée négligeable).

Pour représenter le modèle bond graph des colonnes à bulles, on procède à la discrétisation. On obtient ainsi le système d'équations de bilans:

$$\frac{dn_{A,k}}{dt} = v_z \frac{n_{A,k-1} - n_{A,k}}{\Delta z} + D_A \frac{n_{A,k+1} - 2n_{A,k} + n_{A,k-1}}{\Delta z^2} + \dot{\xi}_{A,k} \quad (3.105)$$

$$\rho C_p \frac{dT_k}{dt} = \rho C_p v_z \frac{T_{k-1} - T_k}{\Delta z} + \Delta \dot{H}_{r,k} + \dot{Q}_k \quad (3.106)$$

Ceci permet ainsi d'avoir le modèle bond graph présenté dans la Fig.3.42 ci-dessous.

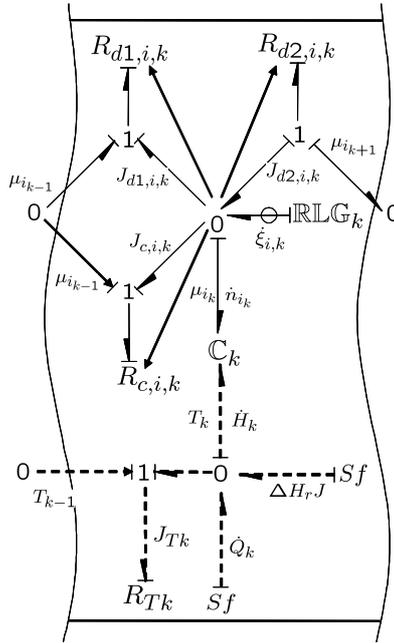


FIG. 3.42 – Modèle bond graph discrétisé d'une portion de colonne à bulles.

Ce modèle bond graph n'est pas très différent de celui du réacteur continu fluidisé, sauf que c'est une représentation d'une partie locale de la colonne à bulles. En plus, on a d'autres éléments qui s'ajoutent comme les sources de flux et les résistances de dispersion et de convection dans le domaine chimique :

$R_{d2,i,k}$  Résistance de dispersion axiale entre la portion  $k$  et  $k + 1$ , sa relation constitutive relie le flux molaire  $J_{d2,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k+1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{d2,i,k} = \frac{D_i V_k}{\Delta z^2} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k+1} - \mu_{i,k}}{RT}\right) - 1\right)$$

$R_{d1,i,k}$  Résistance de dispersion axiale entre la portion  $k - 1$  et  $k$ , sa relation constitutive relie le flux molaire  $J_{d1,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k-1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{d1,i,k} = -\frac{D_i V_k}{\Delta z^2} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k} - \mu_{i,k-1}}{RT}\right) - 1\right)$$

$R_{c,i,k}$  Résistance liée à la convection, sa relation constitutive relie le flux molaire de convection  $J_{c,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k-1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{c,i,k} = \frac{v_z V_k}{\Delta z} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k-1} - \mu_{i,k}}{RT}\right) - 1\right) \quad (3.107)$$

Pour le domaine thermique on a la résistance  $R_{T_k}$  liée au transfert de chaleur par convection, sa relation constitutive relie le flux de chaleur  $J_{c,i,k}$  et les températures  $T_{k-1}, T_k$  :

$$J_{T_k} = \rho C_p v_z \frac{T_{k-1} - T_k}{\Delta z} \quad (3.108)$$

### 3.3.2.2 Réacteurs catalytiques

**Réacteurs à lit fixe** Ce genre de réacteur a une construction particulière, où un dispositif appelé lit fixe est constitué d'un empilement compact et immobile de grains de catalyseur à l'intérieur de la cuve. Une grille placée à la partie basse interdit aux particules de s'écouler vers le bas. Cette région sera le lieu où va se dérouler la réaction, que ce soit pour un réactif de phase liquide ou gaz. Les fluides réactionnels sont injectés au-dessous ou au-dessus du lit.

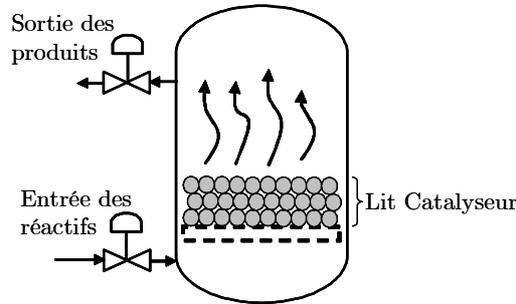


FIG. 3.43 – Schéma d'un réacteur à lit fixe.

Pour illustrer la procédure de modélisation, on considère l'exemple d'un constituant gaz  $A$  qui se transforme à un constituant  $B$  par l'intermédiaire du catalyseur solide. Ainsi les équations de bilan [76] de  $A$  au niveau du lit fixe seront exprimées par :

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} = -v_z \frac{\partial C_A}{\partial z} + \eta(1 - \varepsilon)R_A + \varepsilon D_A \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial C_A}{\partial z} \right) \quad (3.109)$$

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = -\rho C_p v_z \frac{\partial T}{\partial z} + \Delta \dot{H}_{r,k} + \dot{Q} \quad (3.110)$$

Avec :

$\varepsilon$  : porosité externe du lit

$\eta$  coefficient d'efficacité du catalyseur

$v_z$  Vitesse de montée du constituant  $A$

À l'instar de la colonne à bulles et des réacteurs tubulaires, on procède à la discrétisation du modèle distribué pour pouvoir définir les éléments qui peuvent être inclus dans le modèle bond graph, on obtient ainsi :

$$\frac{dn_{A,k}}{dt} = v_z \frac{n_{A,k-1} - n_{A,k}}{\Delta z} + \varepsilon D_A \frac{n_{A,k+1} - 2n_{A,k} + n_{A,k-1}}{\Delta z^2} + \eta(1 - \varepsilon)\dot{\xi}_{A,k} \quad (3.111)$$

$$\rho C_p \frac{dT_k}{dt} = \rho C_p v_z \frac{T_{k-1} - T_k}{\Delta z} + \Delta \dot{H}_r + \dot{Q}_k \quad (3.112)$$

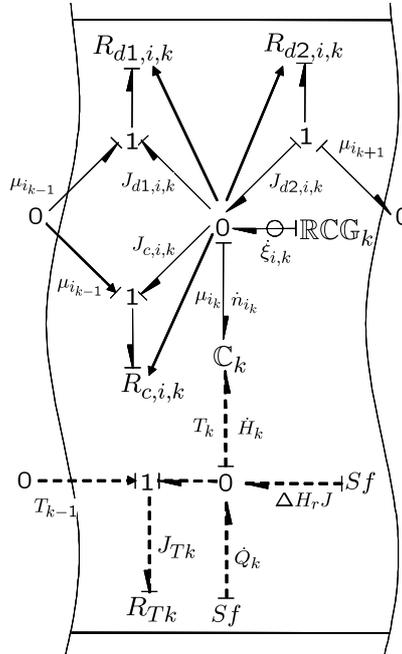


FIG. 3.44 – Modèle bond graph discrétisé d'une portion d'un réacteur à lit fixe.

L'élément distinctif principal dans ce modèle par rapport aux autres modèles déjà cités est l'élément  $\mathbb{RCCG}$ . Cet élément représente la cinétique de la réaction catalytique.

$R_{d2,i,k}$  Résistance de diffusion dans le lit entre la portion  $k$  et  $k+1$ , sa relation constitutive relie le flux molaire de diffusion  $J_{d2,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k+1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{d2,i,k} = \frac{D_i V_k}{\Delta z^2} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left( \exp\left(\frac{\mu_{i,k+1} - \mu_{i,k}}{RT}\right) - 1 \right)$$

$R_{d1,i,k}$  Résistance de diffusion dans le lit entre la portion  $k-1$  et  $k$ , sa relation constitutive relie le flux molaire de diffusion  $J_{d1,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k-1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{d1,i,k} = -\frac{D_i V_k}{\Delta z^2} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k} - \mu_{i,k-1}}{RT}\right) - 1\right)$$

$R_{c,i,k}$  Résistance liée à la convection, sa relation constitutive relie le flux molaire de convection  $J_{c,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k-1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{c,i,k} = \frac{v_z V_k}{\Delta z} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k-1} - \mu_{i,k}}{RT}\right) - 1\right) \quad (3.113)$$

Pour le domaine thermique on a la résistance  $R_{T_k}$  liée au transfert de chaleur par convection, sa relation constitutive relie le flux de chaleur  $J_{c,i,k}$  et les températures  $T_{k-1}, T_k$  :

$$J_{T_k} = \rho C_p v_z \frac{T_{k-1} - T_k}{\Delta z} \quad (3.114)$$

Cependant, le modèle bond graph obtenu peut être utilisé pour le cas d'un système réactif en état liquide. Néanmoins, il faut tenir compte de son état physique dans l'élaboration des relations constitutives, particulièrement quand il s'agit des éléments C et RCG.

**Réacteur à lit fluidisé** Pour ce type de réacteurs hétérogènes, le mode de fonctionnement est similaire à celui des colonnes à bulles. Seulement pour l'accomplissement de la réaction, un catalyseur solide est ajouté sous forme de particules en suspension à cause de l'écoulement ascendant des fluides gazeux [13], les particules catalyseur sont ainsi amenées dans un état dit de fluidisation, et constituent le lit fluidisé.

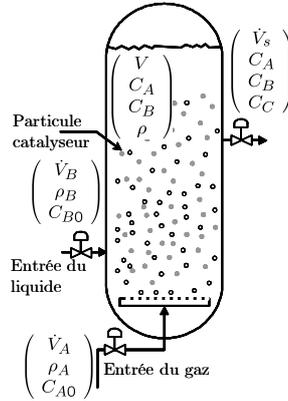


FIG. 3.45 – Schéma d'un réacteur à lit fluidisé.

Les réacteurs à lit fluidisé appartiennent aux systèmes à paramètres distribués, dont les équations de bilans sont exprimées par différents modèles tels que : modèle de Kunii et Levenspiel, modèle de Werther, modèle de May-Van Deemter, . . . etc [39]. Pour ce faire, on va employer un modèle simplifié [76] pour illustrer clairement les différents phénomènes physico-chimiques et leur procédure de modélisation. Le modèle simplifié est représenté par :

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} + v_z \frac{\partial C_A}{\partial z} = R_A + \frac{\partial}{\partial z} \left( D_A \frac{\partial C_A}{\partial z} \right) \quad (3.115)$$

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_p v_z \frac{\partial T}{\partial z} = \Delta \dot{H}_r + \dot{Q} \quad (3.116)$$

Pour modéliser le réacteur à lit fluidisé par bond graph, on procède à la discrétisation du modèle mathématique et on distingue les différents phénomènes physico-chimiques. On obtient ainsi :

$$\frac{dn_{A,k}}{dt} = v_z \frac{n_{A,k-1} - n_{A,k}}{\Delta z} + D_A \frac{n_{A,k+1} - 2n_{A,k} + n_{A,k-1}}{\Delta z^2} + \dot{\xi}_{A,k} \quad (3.117)$$

Le modèle bond graph du réacteur à lit fluidisé se distingue par rapport aux autres modèles par l'élément  $\mathbb{R}\text{CF}$  qui représente la résistance physico-chimique qui reflète la cinétique de transformation physico-chimique du constituant gaz.

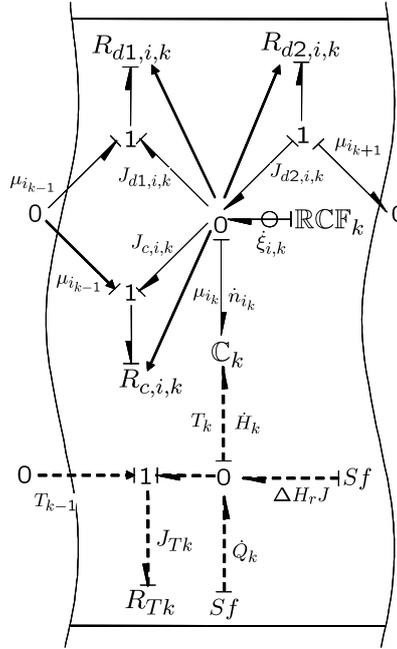


FIG. 3.46 – Modèle bond graph discrétisé d'une portion d'un réacteur à lit fluidisé.

Les résistances présentées sur le modèle bond graph du réacteur à lit fluidisé sont :

$R_{d2,i,k}$  Résistance de dispersion axiale entre la portion  $k$  et  $k + 1$ , sa relation constitutive relie le flux molaire  $J_{d2,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k+1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{d2,i,k} = \frac{D_i V_k}{\Delta z^2} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left( \exp\left(\frac{\mu_{i,k+1} - \mu_{i,k}}{RT}\right) - 1 \right)$$

$R_{d1,i,k}$  Résistance de dispersion axiale entre la portion  $k - 1$  et  $k$ , sa relation constitutive relie le flux molaire  $J_{d1,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k-1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{d1,i,k} = -\frac{D_i V_k}{\Delta z^2} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k} - \mu_{i,k-1}}{RT}\right) - 1\right)$$

$R_{c,i,k}$  Résistance liée à la convection, sa relation constitutive relie le flux molaire de convection  $J_{c,i,k}$  et les potentiels chimiques  $\mu_{i,k-1}, \mu_{i,k}$  :

$$J_{c,i,k} = \frac{v_z V_k}{\Delta z} \exp\left(\frac{\mu_i^\circ}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_{i,k}}{RT}\right) \left(\exp\left(\frac{\mu_{i,k-1} - \mu_{i,k}}{RT}\right) - 1\right) \quad (3.118)$$

Pour le domaine thermique on a la résistance  $R_{T_k}$  liée au transfert de chaleur par convection, sa relation constitutive relie le flux de chaleur  $J_{c,i,k}$  et les températures  $T_{k-1}, T_k$  :

$$J_{T_k} = \rho C_p v_z \frac{T_{k-1} - T_k}{\Delta z} \quad (3.119)$$

### 3.4 Conclusion

Une bibliothèque d'éléments et de modèles bond graph pour la représentation de la cinétique chimique et physico-chimique des réacteurs industriels a été constituée. La classification adoptée tient compte du mode de fonctionnement, du nombre et du type de phases impliquées dans la réaction.

La conception de ces modèles permet:

1. L'interconnexion des réacteurs entre eux mêmes ou avec d'autres modèles bond graphs de composants thermofluides (pompes centrifuges, vannes, réservoirs, . . . .etc.).
2. Le raffinement ou la simplification du modèle peut se faire directement au niveau graphique.
3. La simulation des modèles élaborés par le biais de Symbols2000 pour concevoir une plateforme informatique dédiée à la conception et la supervision des réacteurs chimiques (ce qui fait l'objet du chapitre suivant).



## Chapitre 4

# Approche intégrée pour la conception d'un système de surveillance

### 4.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à l'implémentation de la procédure de modélisation pour la conception et la surveillance de procédés chimiques. Nous avons utilisé les modèles bond graphs génériques développés plus haut pour concevoir une bibliothèque de modèles des réactions et réacteurs chimiques. Cette bibliothèque de modèles a été conçue sous FDIPad, une boîte à outils mise en place sous le logiciel Symbols2000 [47] au sein de l'équipe. Cette démarche est une continuité du travail de [44] où une bibliothèque de composants thermofluides a été développée. Le choix de Symbols2000 comme outil de développement est dû au fait qu'il dispose de certaines applications pour l'analyse structurelle et la surveillance des systèmes et des fonctionnalités de calcul symbolique. Le schéma global de la procédure pour la conception intégrée de modules de diagnostic des processus chimiques est donné par la Fig.4.1. A partir du plan des instruments détaillés (P&ID) de l'installation on constitue le modèle architectural du processus.

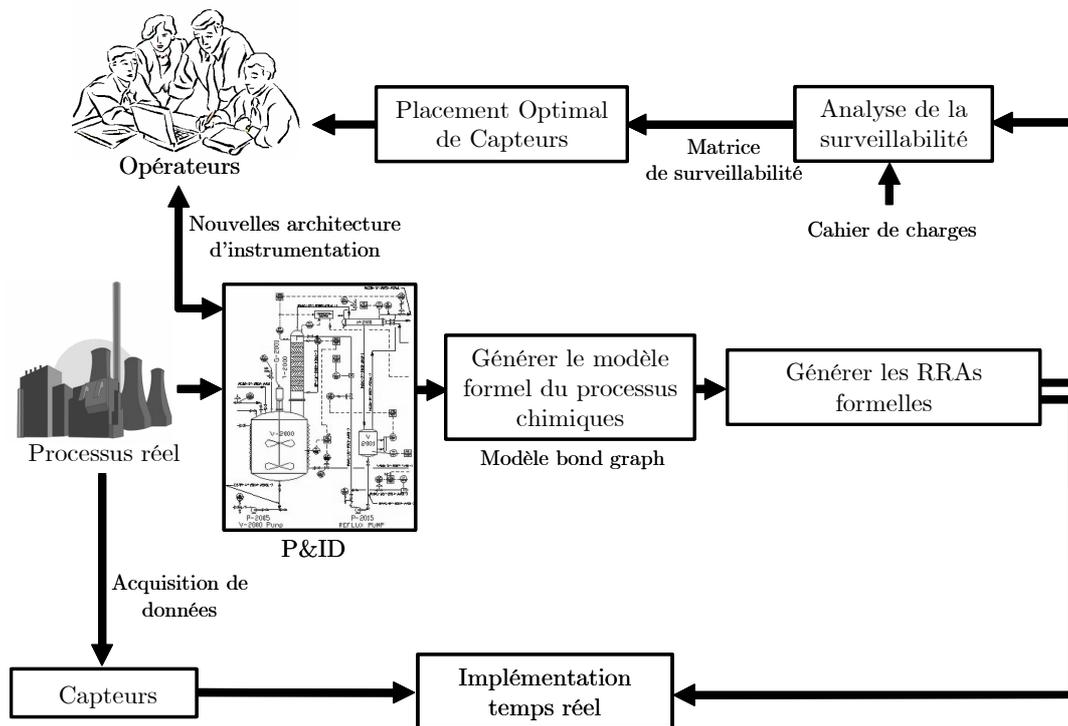


FIG. 4.1 – Procédure de conception intégrée d'un système de surveillance.

Ce modèle est constitué de l'interconnexion de composants technologiques pour lesquels la base de modèles est développée. Cette base de modèles est composée principalement de trois groupes d'objets : les procédés physiques ; les capteurs et les contrôleurs. Ces objets sont classifiés selon une approche bond graph et fonctionnelle.

Les processus physiques sont des éléments qui stockent ou transportent de l'énergie (exemple : vanne ; réservoir ; ... etc.). Ces modèles existent dans la bibliothèque déjà définie. Ainsi la base de modèles peut être enrichie par de nouveaux objets. Notant que les modèles développés sont des modèles destinés à la surveillance donc élaborés avec des défaillances de type : bouchage ou fuite, ... etc. Les modèles sont alors assemblés pour reconstruire le modèle de défaillances global.

Des règles (basées sur l'analyse fonctionnelle) sont développées dans [44] pour respecter les contraintes causales de connexion. Les propriétés structurelles et causales du modèle graphique ainsi réalisé sont exploitées pour générer le modèle mathématique ( sous forme d'équation d'état). Sur la base d'un cahier de charges (sélection de défauts et de composants qu'on souhaite surveiller) sont générés un ensemble de Relations de Redondance Analytique (RRA) et la matrice de surveillabilité correspondante. Si le cahier des charges n'est pas satisfait, on propose alors une nouvelle architecture d'instrumentation sur le modèle graphique initial. Les RRA générées peuvent alors être évaluées (connaissant les valeurs numériques des paramètres ) par implémentation en temps réel des résidus.

**Première partie**

**Infomratisation de la Conception  
des réacteurs chimiques**



## 4.2 Conception de bibliothèques de modèles pour les réacteurs chimiques

Pour constituer la bibliothèque de modèles, on a utilisé la technologie de capsules qui consiste à mettre le modèle bond graph générique sous forme d'un objet à ports ouverts qui peut être connecté ou non à d'autres composants en fonction du type d'élément à associer. A titre d'exemple deux éléments de stockage ne peuvent pas être connectés sans associer entre eux un élément de transport d'énergie (une vanne par exemple). Concernant les contraintes causales, deux types de causalités sont considérées dans la conception des modèles de la base de données, une causalité préférentielle intégrale ou dérivée selon que le modèle est destiné à la simulation ou au diagnostic. Cette causalité préférentielle ne concerne que les éléments dynamiques  $C$  et  $I$ . L'autre type de causalité est arbitraire et concerne les éléments de type  $R$  (conductance, vannes, transfert de chaleur, . . . etc.). Dans ce cas on prévoit une causalité générique (conductance ou résistance).

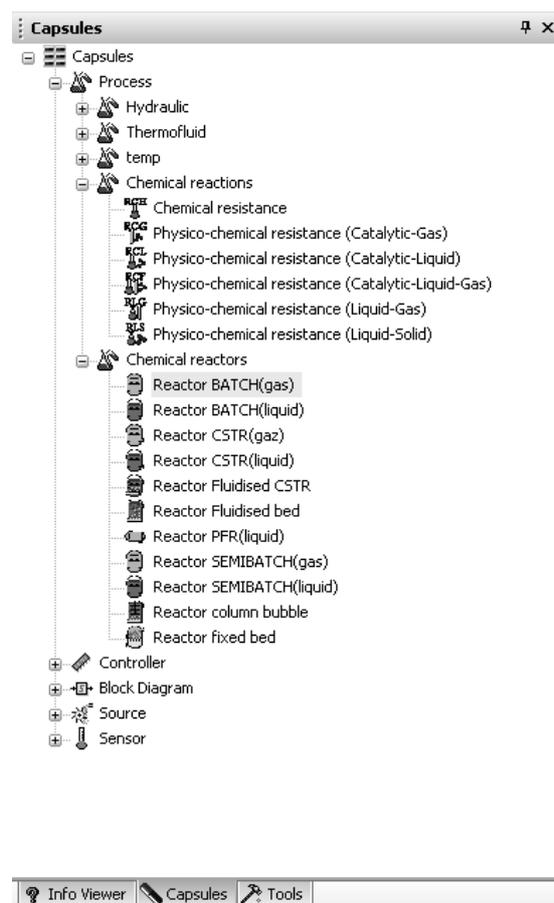


FIG. 4.2 – Bibliothèque de capsules des réactions et réacteurs chimiques.

Les capsules des réactions chimiques englobent uniquement le modèle bond graph du domaine chimique constitué des modèles de la cinétique et de la stoéchiométrie de réaction. Ces capsules de réactions peuvent être utilisées pour l'étude du phénomène de transformation de la matière uniquement.

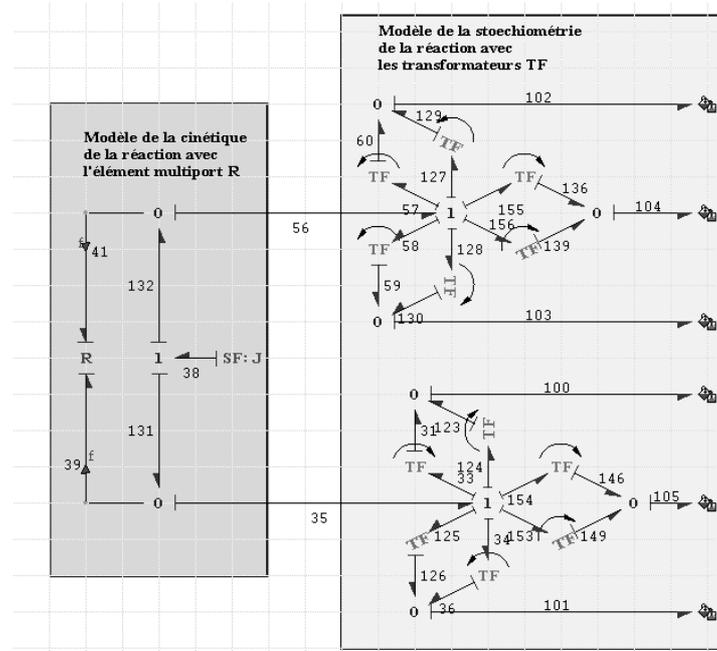


FIG. 4.3 – Modèle interne de la capsule de l'élément multiport RCH.

### 4.3 Modélisation automatique d'un procédé chimique

Pour présenter en détail la procédure de génération automatique de modèles en utilisant la bibliothèque de capsules développée avec FDIPad, on considère l'exemple d'un procédé chimique Fig.4.4

#### 4.3.1 Description de l'exemple d'application

Le procédé chimique Fig.4.4 est constitué d'un réacteur CSTR dans lequel se déroule une réaction irréversible athermique ( $A + B \rightarrow C$ ). Deux réservoirs contenant les réactifs A et B alimentent le réacteur à travers deux vannes automatiques (Vanne 1, Vanne 2) commandées par deux régulateurs tout-ou-rien (Régulateur 2, Régulateur 3) pour maintenir le niveau du mélange constant dans le réacteur.

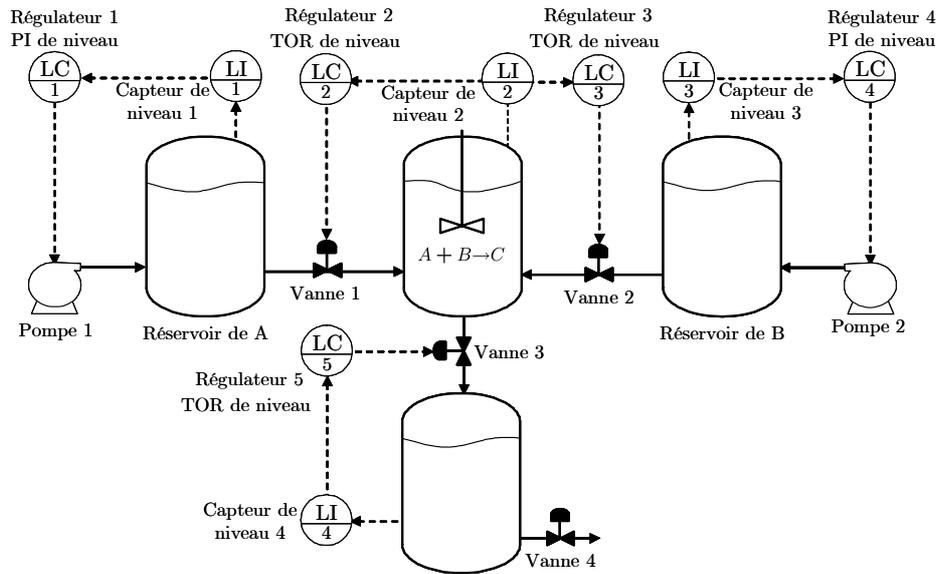


FIG. 4.4 – Plan des instruments détaillé du procédé chimique.

Les deux réservoirs ( Réservoir A, Réservoir B) sont alimentés en constituants par deux pompes (pompe 1, pompe 2) commandées par des régulateurs PI ( Régulateur 1, Régulateur 4) pour que le niveau soit constant dans les deux réservoirs. Le mélange réactionnel est débité vers un troisième réservoir dont la régulation du niveau est assurée par une vanne d'alimentation ( vanne 3) commandée par un régulateur tout-ou-rien ( Régulateur 5).

### 4.3.2 Modèle bond graph de chaque composant

#### 4.3.2.1 Modèle des pompes centrifuges

La pompe est un composant d'alimentation (eau, matière première, etc.). elle est considérée comme une source d'effort qui génère une différence de pression  $\Delta P$  [44]. La principale action hydrostatique de la pompe est représentée par un transformateur  $TF$  (ou un transformateur modulé  $MTF$  dans le cas d'une vitesse de rotation variable) entre la puissance mécanique et la puissance hydraulique. Dans le modèle bond graph de la pompe (Fig.4.5) on a tenu compte des phénomènes mécaniques, hydrauliques, électriques et thermiques. Dans ce modèle nous n'avons pas modélisé la partie électrique (le moteur) de la pompe mais nous l'avons juste considérée comme une source d'effort  $Se$ . La transformation électromécanique est représentée par le gyrateur  $GY$ . L'élément  $I$  est le moment d'inertie de l'arbre en rotation et l'élément  $RS$  représente ici les frottements puisqu'on considère qu'ils génèrent de la chaleur  $\dot{Q}$ , qui contribue à l'augmentation du flux d'enthalpie convoyé par le fluide dans la conduite. La transformation de l'énergie mécanique en énergie hydraulique est modélisée par un élément  $MTF$ . Le débit massique  $\dot{m}$  délivré par la pompe est fonction de la caractéristique

de la pompe.  $R_2$  représente les fuites dans la pompe (une partie du débit idéal s'échappe du corps de l'hélice).

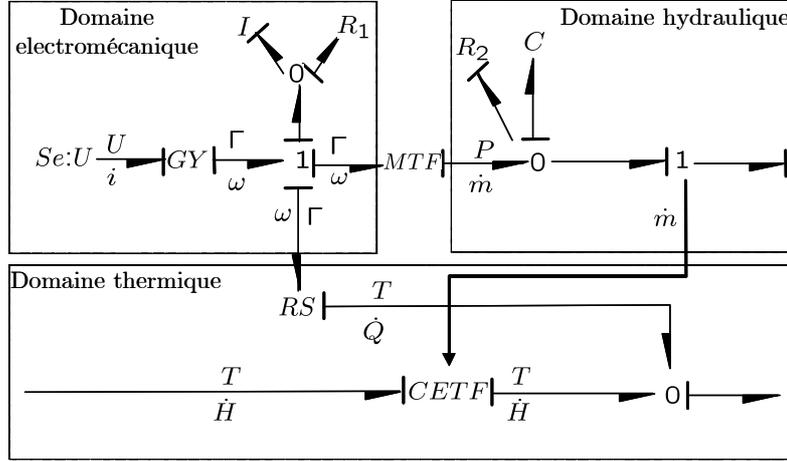


FIG. 4.5 – *Modèle bond graph de la pompe.*

#### 4.3.2.2 Modèle des réservoirs

Le modèle pseudo-bond graph du réservoir est donné par la Fig.4.6. Sur le modèle pseudo-bond graph, l'élément bond graph multiport  $\mathbb{C}$  stocke de l'énergie hydraulique (due à la masse du liquide) et thermique (enthalpie). Les variables d'effort pseudo-bond graphs sont la pression et la température, et les variables de flux sont le débit massique et le flux d'enthalpie. Les expressions des relations constitutives de l'élément  $\mathbb{C}$  sont données par les relations suivantes:

$$\begin{bmatrix} P \\ T \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{g}{A} \int \dot{m} dt \\ \frac{1}{mC_p} \int \dot{H} dt \end{bmatrix} \quad (4.1)$$

avec  $A$  la section du réservoir,  $g$  la constante de gravité,  $m$  la masse totale du liquide calculée à partir de la variable d'état associée au stockage hydraulique et  $C_p$  la capacité thermique spécifique du liquide à pression constante. Les pertes de chaleur vers l'environnement extérieur sont négligées.

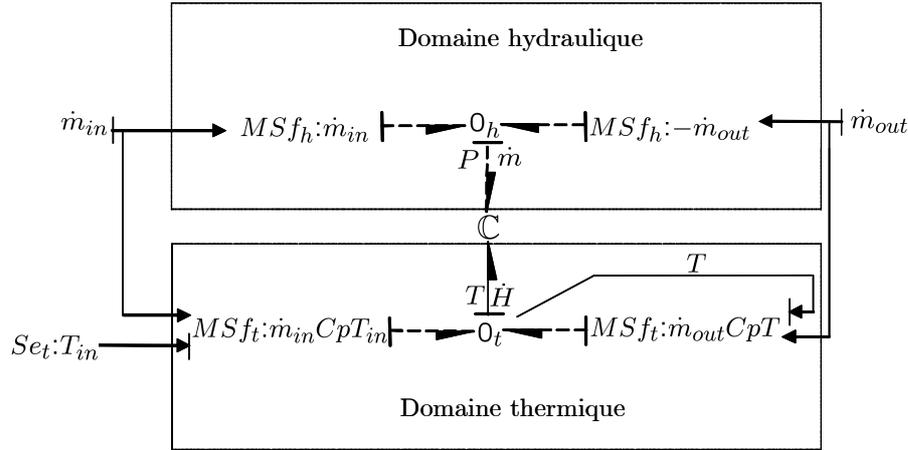


FIG. 4.6 – Modèle bond graph du réservoir.

#### 4.3.2.3 Modèle des vannes

D'après la causalité résistance affectée à l'élément  $R$  de la Fig. 4.7, les sorties obtenues sont le flux thermique  $\dot{H}$  et le débit massique  $\dot{m}$ . Les flux, thermique et massique, retournés par l'élément  $R$ , sont donnés par l'équation.(4.2). A noter qu'en appliquant le principe de la continuité, on a  $\dot{m}_{in} = \dot{m}_{out} = \dot{m}$ .

$$\begin{bmatrix} \dot{m} \\ \dot{H} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \Phi_{RH}(T_{in}, P_{in}, P_{out}) \\ \Phi_{RT}(T_{in}, P_{in}, P_{out}) \end{bmatrix} \quad (4.2)$$

où  $\Phi_{RH}$  et  $\Phi_{RT}$  sont deux fonctions non linéaires qui dépendent principalement de l'état thermodynamique du fluide et des hypothèses de modélisation prises en compte.

La forme générique du modèle bond graph de la Fig.4.7 est utile dans le cas où la restriction de la vanne peut augmenter à cause d'un débit supersonique. Dans ce cas, le débit massique,  $\dot{m}$ , dépend non seulement de la différence de pression mais aussi du rapport entre la pression d'entrée  $P_{in}$  et la pression de sortie  $P_{out}$ . Il est alors possible de prédire, sous l'hypothèse d'un fluide isentropique [32], le débit en utilisant les mesures des pressions en amont et en aval (équation (4.3)).

$$\dot{m} = A(x) \sqrt{\frac{P_{in}}{T_{in}}} \sqrt{\frac{2\gamma}{R_G(\gamma-1)}} \sqrt{P_r^{2/\gamma} - P_r^{\gamma+1/\gamma}} \quad (4.3)$$

avec

$$P_r = \frac{P_{out}}{P_{in}}, \quad (4.4)$$

$$P_r \leq P_{crit} = \left( \frac{2}{\gamma + 1} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma - 1}} \quad (4.5)$$

Pour un débit critique (choked flow).  $P_r$  et  $T_{in}$  sont respectivement le rapport de pression et la température d'entrée,  $R_G$  est une constante du gaz,  $A(x)$  est une fonction qui donne la valeur de la section à la sortie de la restriction en fonction de la position de la vanne  $x$ ,  $\gamma = c_p/c_v$ , et  $c_p$  et  $c_v$  sont respectivement les capacités thermiques spécifiques du fluide à pression constante et à volume constant. La forme résistance de la causalité affectée à l'élément  $R$  Fig 4.7, permet de calculer le débit massique  $\dot{m}$  et le flux thermique  $\dot{H}$  dans la vanne dans le cas d'un fluide sous-saturé.

$$\begin{pmatrix} \dot{m} \\ \dot{H} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_d \cdot \text{sign}(P_{in} - P_{out}) \cdot \sqrt{|P_{in} - P_{out}|} \\ C_d \cdot \text{sign}(P_{in} - P_{out}) \cdot \sqrt{|P_{in} - P_{out}|} \cdot c_p \cdot T_{in} \end{pmatrix} \quad (4.6)$$

avec

$$\frac{1}{R_H} = C_d = \sqrt{\frac{\rho \cdot D^5 \cdot \pi^2}{8 \cdot L \cdot \lambda}} \quad (4.7)$$

$C_d$  est le coefficient de perte de charge dans la vanne,  $\rho$  la masse volumique du fluide,  $\nu$  la viscosité dynamique et enfin  $D$  et  $L$  sont respectivement le diamètre et la longueur de la conduite. Dans le cas d'un fluide saturé, la température à l'entrée de la conduite  $T_{in}$  peut être calculée en fonction de la pression en utilisant les tables thermodynamiques.

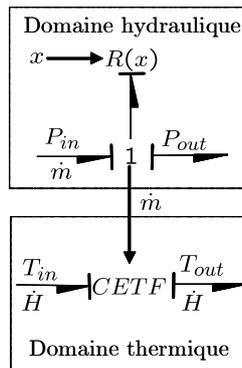


FIG. 4.7 – Modèle bond graph de la vanne

#### 4.3.2.4 Modèle du réacteur

Le modèle bond graph du réacteur est représenté dans la Fig.4.8. Dans le domaine fluide les sources de flux  $Sf$  correspondent aux débits massiques d'entrée  $\dot{m}_{Ain}$  et  $\dot{m}_{Bin}$  et de sortie  $\dot{m}_{out}$ . La jonction 0 représente le bilan de masse où  $m$  est la masse du mélange dans le réacteur.

Dans le domaine thermique, les flux de chaleur entrants ou sortants du réacteur sont présentés par les sources de flux  $MSf$  modulées par les débits massiques  $\dot{m}_{Ain}$ ,  $\dot{m}_{Bin}$  et  $\dot{m}_{out}$ . Les expressions de ces sources de flux sont données par :

$$\left\{ \begin{array}{l} MSf : \dot{H}_{Ain} = \dot{m}_{Ain} \cdot C_{pA} \cdot T_A \\ MSf : \dot{H}_{Bin} = \dot{m}_{Bin} \cdot C_{pB} \cdot T_B \\ MSf : \dot{H}_{out} = \dot{m}_{out} \cdot C_p \cdot T \end{array} \right. \quad (4.8)$$

où  $T_{Ain}, T_{Bin}$  sont les températures d'entrée des substances  $A$  et  $B$ , et  $C_{pA}, C_{pB}$  sont les chaleurs spécifiques de ces constituants,  $C_p$  et  $T$  sont la chaleur spécifique et la température du mélange. D'autre part, on a d'autres sources de chaleur telle que la chaleur de réaction  $\Delta\dot{H}_R$  exprimée par :

$$\Delta\dot{H}_r = J \cdot \Delta H_r \quad (4.9)$$

avec  $J$  vitesse du taux d'avancement de la réaction,  $\Delta H_r$  la chaleur de réaction. Dans le domaine chimique la cinétique de la réaction est représentée par l'élément multiport  $\mathbb{RCH}$ , les sources de flux molaire  $MSf$  sont modulées aussi par les débits massiques d'entrée et de sortie, avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} MSf : \dot{n}_{Ain} = \dot{m}_{Ain} \cdot \frac{C_{Ain}}{\rho_A} \\ MSf : \dot{n}_{Bin} = \dot{m}_{Bin} \cdot \frac{C_{Bin}}{\rho_B} \\ MSf : \dot{n}_{Aout} = \dot{m}_{out} \cdot \frac{n_A}{m} \\ MSf : \dot{n}_{Bout} = \dot{m}_{out} \cdot \frac{n_B}{m} \\ MSf : \dot{n}_{Cout} = \dot{m}_{out} \cdot \frac{n_C}{m} \end{array} \right. \quad (4.10)$$

Le modèle bond graph global Fig.4.8 a été reproduit en combinant tous les modèles bond graph correspondant à chaque phénomène en incluant les différents couplages. L'élément capacitif multiport couplé  $\mathbb{C}$  regroupe les différents types d'énergies stockées dans le réacteur, sa relation constitutive est exprimée par :

$$\begin{pmatrix} \mu_A \\ \mu_B \\ \mu_C \\ \mu_D \\ P \\ T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mu_A^\circ + R \cdot \frac{1}{mC_p} H \cdot \ln \gamma_A \left( \frac{n_A}{V} \right) \\ \mu_B^\circ + R \cdot \frac{1}{mC_p} H \cdot \ln \gamma_B \left( \frac{n_B}{V} \right) \\ \mu_C^\circ + R \cdot \frac{1}{mC_p} H \cdot \ln \gamma_C \left( \frac{n_C}{V} \right) \\ \mu_D^\circ + R \cdot \frac{1}{mC_p} H \cdot \ln \gamma_D \left( \frac{n_D}{V} \right) \\ \frac{q}{S} \int \dot{m} dt \\ \frac{1}{mC_p} \int \dot{H} dt \end{pmatrix} \quad (4.11)$$

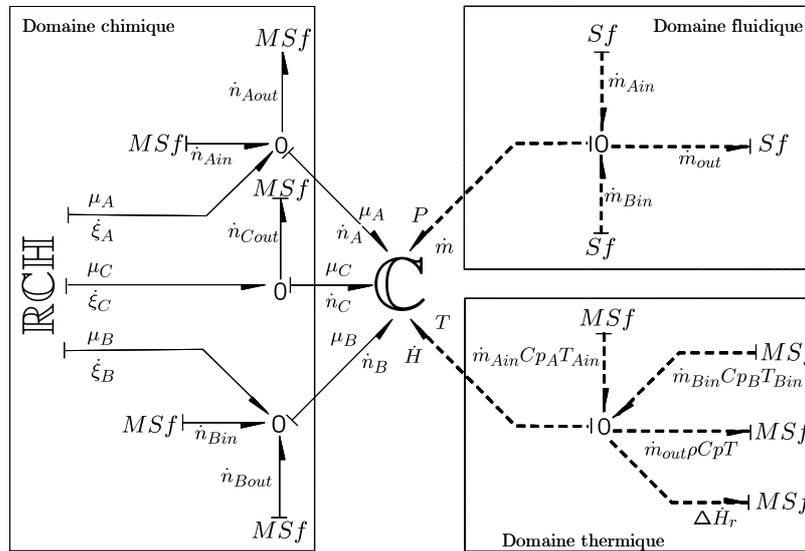


FIG. 4.8 – Modèle bond graph du réacteur.

### 4.3.3 Vérification de la cohérence fonctionnelle et causale

Lorsque les modèles bond graphs des différents composants sont disponibles, on procède à leur interconnexion pour former le modèle global du procédé. FDIPad dispose d'un ensemble d'applications pour vérifier certaines règles permettant la validation du modèle avant son utilisation. Ainsi, afin de garantir la validité du modèle, des règles de connexion sont développées. Ces règles de connexion sont de deux types :

Des règles d'ordre fonctionnel qui permettent de vérifier la cohérence fonctionnelle en connectant deux composants. Ces règles sont basées sur une grammaire développée dans [54].

Sommairement on distingue des processeurs de type **A** (Accumulation d'énergie, tel qu'un réservoir), de type **C** (Conversion d'énergie, comme le cas d'un moteur) et de type **T** (Transport d'énergie, le cas d'une vanne, conduite). Cette grammaire interdit la mise en série

de deux processeurs **A** ( $\mathbf{A} \otimes \mathbf{A}$  n'est pas autorisée). Il faut mettre un processeur **T** (Transport) entre les deux processeurs **A** pour avoir  $\mathbf{A} \otimes \mathbf{T} \otimes \mathbf{A}$ . Une règle d'ordre causal. On établit pour chaque composant (capsule) deux types de causalités. Une causalité préférentielle (intégrale ou dérivée pour les processeurs de type **A** selon que le modèle est utilisé pour la simulation ou le diagnostic) et une causalité quelconque attribuée aux éléments de type **C** ou **T**.

La vérification de ces règles pour la construction du modèle global et les procédures de génération automatique des modèles sous forme d'états sont affichées dans un menu convivial sur l'interface graphique du logiciel développé, comme indique la Fig.4.9.

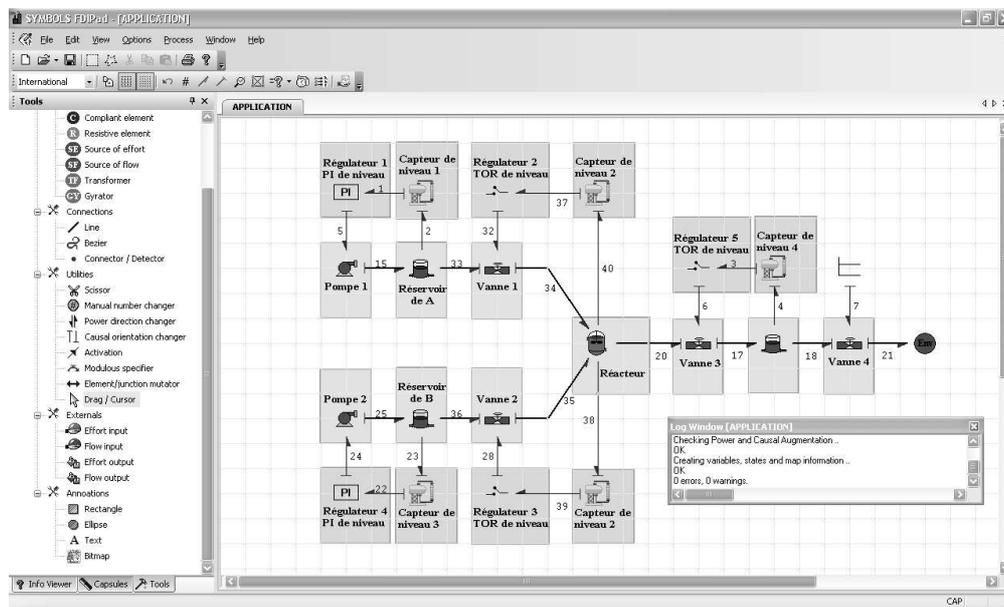


FIG. 4.9 – Procédure de validation du modèle global.

#### 4.3.4 Simulation numérique

Pour illustrer l'évolution du procédé par simulation, le fichier du modèle bond graph est compilé pour obtenir un fichier de simulation en C++ ou d'un schéma bloc de simulation sous forme S-function Matlab/Simulink. Cela va permettre de créer une interface graphique de simulation Fig.4.10. Ainsi, on attribue aux paramètres du modèle et aux conditions initiales les valeurs numériques qui leur correspondent pour obtenir les courbes d'évolution des différentes variables qu'on désire traiter (variables d'état, RRA,...etc).

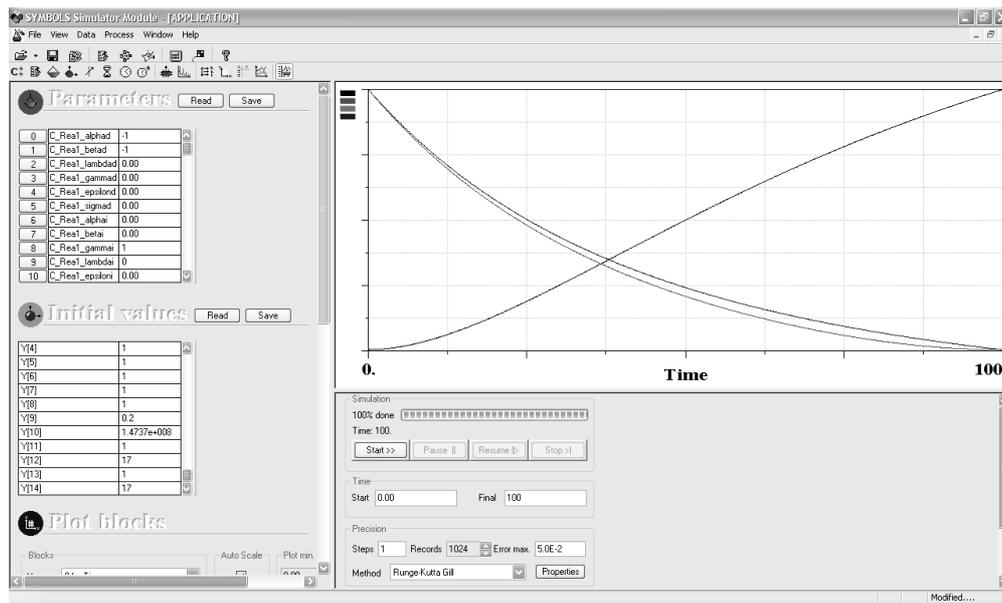


FIG. 4.10 – Interface de simulation montrant les courbes d'évolution du nombre de moles de A, B et C.

## Deuxième partie

# Supervision des réacteurs chimiques



## 4.4 Modèle bond graph d'un système de surveillance

Dans cette partie on va aborder la problématique de la supervision des processus chimiques. Pour cela, nous allons présenter d'abord la procédure de conception d'un système de surveillance par l'approche bond graph. Les notions de « relations de redondance analytiques *RRA* » et de « matrice de signature de défaillances » seront ainsi évoquées. Ensuite, on va présenter les particularités de la supervision dans le domaine chimique par rapport aux autres domaines énergétiques (hydraulique, thermique, électrique, . . . etc.). Nous allons montrer aussi comment l'aspect générique de l'outil utilisé permettra de mettre en œuvre une conception intégrée d'un système de surveillance à base de modèle. Enfin un exemple d'application d'un processus chimique sera traité, où la procédure de l'informatisation de la modélisation et de la surveillance sera présentée.

Un système de surveillance représenté par approche bond graph est constitué particulièrement de deux parties : Une partie qui produit de la puissance et de l'énergie (modèle bond graph du processus et l'ensemble des actionneurs) et une deuxième partie qui constitue le système d'information (c'est à dire les capteurs, observateurs et système de commande). Les algorithmes de surveillance (de détection et d'isolation de fautes *FDI*) reçoivent les informations issues des capteurs (détecteurs d'effort *De* et de flux *Df*) et délivrent au système de supervision les alarmes.

En effet, la génération des indicateurs d'alarmes est basée principalement sur les relations de redondance analytique *RRA*, dont la forme est une équation qui inclut toutes les variables connues du système. La génération de ces équations permet d'engendrer des résidus, dont la valeur est statistiquement nulle en fonctionnement normal, alors que dès l'apparition d'un défaut, elle s'éloigne de zéro.

Cependant, pour établir ce processus de génération des *RRA*, le système doit être décomposé d'un point de vue en la paire  $[C, Z]$ , avec  $Z = \{z_1, z_2, \dots, z_n\}$  l'ensemble des variables et des paramètres du système, et  $C = \{c_1, c_2, \dots, c_n\}$  l'ensemble des contraintes (équations qui décrivent l'évolution des variables).

### 4.4.1 Représentation structurelle d'un système de surveillance

#### 4.4.1.1 Les contraintes

Du point de vue bond graph, les contraintes  $C$  sont représentées par les équations structurelles ( $F_J$ ), de comportement ( $F_B$ ), de mesure ( $F_Y$ ), du système de commande ( $F_C$ ) et des sources contrôlées ( $F_A$ ).

$$C = \{F_J, F_B, F_Y, F_C, F_A\} \quad (4.12)$$

#### 4.4.1.2 Les équations structurelles $F_J$

Elles représentent l'ensemble des lois de conservation ( de masse, d'énergie, etc. ) et/ou des équations d'équilibre. Elles sont déduites des équations aux jonctions. Le nombre d'équations  $F_J$  est égal au nombre d'équations dans les "jonctions 0" plus celles des "jonctions 1" plus celle des éléments 2-ports (transformateur  $TF$ , et gyrateur  $GY$  ).

$$F_J = \{F_{J0}\} \cup \{F_{J1}\} \cup \{F_{TF}\} \cup \{F_{GY}\} \quad (4.13)$$

$F_J \in R^{n_j+2*n_{2p}}$ ,  $n_j$  est le nombre de jonctions 0 et 1, et  $n_{2p}$  est le nombre d'éléments  $TF$  et  $GY$ .

#### 4.4.1.3 Les équations de comportement $F_B$

Elles décrivent les phénomènes physiques exprimant la façon dont l'énergie est transformée au niveau des éléments bond graphs ( $R$ ,  $C$ , et  $I$ ), autrement appelées lois constitutives.

$$F_B = \{F_C\} \cup \{F_I\} \cup \{F_R\} \quad (4.14)$$

$F_B \in R^{n_e}$ ,  $n_e$  est le nombre total des liens de puissance dans les éléments bond graph,  $R$ ,  $C$  et  $I$ .

#### 4.4.1.4 Les équations de mesures $F_Y$

Elles représentent la façon dont les capteurs transforment les variables de puissance du processus en signaux de sortie qui peuvent être utilisés dans l'élaboration des lois de commande ou dans la détection et l'isolation des défaillances. Ces équations sont exprimées ainsi par des détecteurs de flux ( $Df$ ) et d'effort ( $De$ ):

$$F_Y = \{F_{De}\} \cup \{F_{Df}\} \quad (4.15)$$

$F_Y \in R^{n_s}$ ,  $n_s$  est le nombre de détecteurs ou capteurs.

#### 4.4.1.5 Les équations de commande $F_C$

Elles décrivent les lois de commande exprimées en fonction des valeurs des consignes et de mesure des capteurs. L'équation est décrite ainsi par :

$$F_C(u_{ref}, Y_m, R_{reg}) = 0 \quad (4.16)$$

où  $R_{reg}$  est un paramètre du régulateur (gain, temps d'intégration, etc.),  $u_{ref}$ , et  $Y_m$  représentent respectivement la consigne et les sorties des capteurs. On a donc  $F_C \in R^{n_r}$  avec  $n_r$  le nombre de régulateurs.

#### 4.4.1.6 Les équations des sources contrôlées $F_A$

Elles représentent des sources contrôlées ou modulées par les signaux de commande (pompe régulée, électrovanne, ... etc). Les signaux d'entrée  $u$  sont fournis par les régulateurs, et les signaux de sortie sont les variables régulées issues des sources modulées  $MSe$  et  $MSf$ , avec :

$$F_{A1}(MSf, u) = 0, F_{A2}(MSe, u) = 0 \quad (4.17)$$

$F_A \in R^{n_a}$  où  $n_a$  est le nombre total de sources (modulées ou non). Ainsi, le nombre total de contraintes sur un modèle bond graph est donc :

$$C \in R^{n_j + 2*n_{2p} + n_e + n_s + n_a + n_r}$$

#### 4.4.2 Les variables

L'ensemble des contraintes  $F$  s'appliquent à l'ensemble des variables  $Z$  : connues ( $K$ ) et inconnues ( $X$ ).

$$Z = X \cup K \quad (4.18)$$

Les variables inconnues  $X$  sont les variables de puissance (flux et effort) correspondant aux les liens de puissance du modèle bond graph. Le vecteur  $X$  contenant toutes les variables de puissance est défini par :

$$X(t) = \{e_1(t), f_1(t)\} \cup \{e_2(t), f_2(t)\} \dots \cup \{e_{n_c}(t), f_{n_c}(t)\} \quad (4.19)$$

tel que  $n_c$  est le nombre de liens de puissance. La dimension du vecteur  $X$  est donc  $2 * n_c \Rightarrow X \in R^{2*n_c}$ . Le sous-ensemble  $K$  des variables connues contient les valeurs des sources, les sorties des régulateurs ( $u$ ) ainsi que les variables mesurées par les capteurs ( $Ym$ ).

$$K = MSe \cup MSf \cup Se \cup Sf \cup Ym \quad (4.20)$$

Finalement,  $K \in R^l$  avec  $l = n_s + n_a$ . Donc  $Z \in R^{l+2*n_c}$ .

#### 4.4.3 Les paramètres

$\phi \in R^p$  est le vecteur des paramètres qui correspondent aux valeurs caractéristiques des éléments  $R$ ,  $C$  et  $I$ , i.e. le coefficient de flux, la valeur de la capacité. D'autres paramètres peuvent être ajoutés à ce vecteur, tel que la consigne  $u_{ref}$ , etc..

#### 4.4.4 Génération des relations de redondance analytique RRA

La génération des RRA pour le calcul des résidus est réalisée par la procédure de l'élimination de l'ensemble des variables inconnues en une seule opération. L'élimination des variables inconnues est systématique sur un modèle bond graph grâce ses propriétés causales et structurelles. La démarche consiste à générer de façon systématique les RRA et les résidus correspondants, ainsi que la matrice de signature des défaillances. Ainsi, après génération on obtient les RRA dont la forme globale est définie par:

$$f(De,Df,Se,Sf,MSe,MSf,\theta_m) = 0 \tag{4.21}$$

avec  $\theta_m$  l'ensemble des paramètres mesurés ou estimés du système.  $De$  et  $Df$  sont les indications de capteurs,  $Se$  et  $Sf$ ,  $MSe$  et  $MSf$  sont les entrées.

Afin de mieux expliquer l'algorithme déjà développé dans [44], considérons l'exemple pédagogique représenté par le système hydraulique de la Fig.4.11 et son modèle en causalité intégrale Fig.4.12.

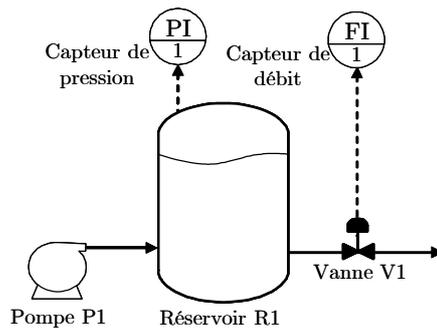


FIG. 4.11 – Exemple d'illustration pour la génération des RRA.

$FI$  et  $PI$  sont des détecteurs de débits et de pression.  $P1$ ,  $R1$ ,  $V1$  représentent respectivement la pompe, le réservoir et la vanne.

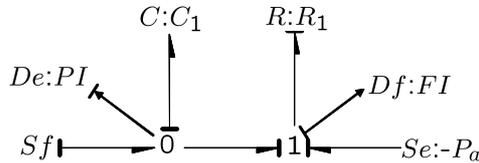


FIG. 4.12 – Modèle bond graph en causalité intégrale (simulation).

La procédure de génération des RRA à partir d'un modèle bond graph d'un système est donnée ainsi par les étapes suivantes :

1. Mettre le modèle bond graph en causalité dérivée préférentielle en employant la notion

de dualisation des détecteurs (Fig. 4.13)(en inversant la causalité des détecteurs), Le détecteur d'effort dualisé  $SSe$  et le détecteur de flux dualisé  $SSf$  imposent leurs valeurs aux jonctions 0 et 1. Rappelons que si un capteur ne peut pas être dualisé, cela signifie qu'il existe une redondance matérielle (deux capteurs mesurant la même variable). C'est le cas où nous avons plusieurs capteurs connectés à une même jonction, alors seul un des capteurs peut être dualisé.

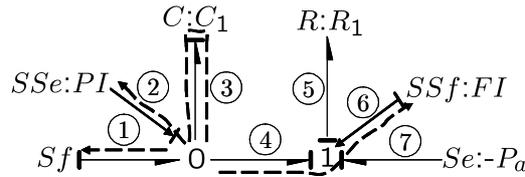


FIG. 4.13 – Modèle bond graph en causalité dérivée (surveillance).

Un capteur (détecteur) dans un modèle destiné à la simulation permet d'indiquer la valeur numérique de la variable mesurée: il transforme la variable de puissance en un signal (sa réaction est nulle). Le chemin causal allant de la variable inconnue (à mesurer) vers le capteur (variable connue), permet d'analyser l'observabilité ou la commandabilité (quand il s'agit d'un chemin d'une source vers une variable d'état). Le sommet du graph est la variable inconnue et la destination la variable mesurée.

Un capteur (détecteur) dans un modèle bond graph destiné à la surveillance permet d'exprimer l'ordre d'élimination d'une variable inconnue. Le chemin causal allant de la variable mesurée (capteur) vers la variable inconnue permet d'analyser la calculabilité de la variable inconnue, c'est le cas de la génération des relations de redondance analytique. Le sommet du graph est la variable mesurée  $De$  ou  $Df$  et la destination représente la variable inconnue. L'ordre d'élimination est associé à un graph orienté (Fig.4.14). Le détecteur dualisé devient alors une source  $SSe$  ou  $SSf$  imposée à la jonction. La valeur du capteur est alors imposée à la contrainte.

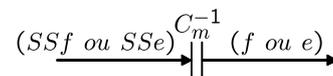


FIG. 4.14 – Graphe orienté pour la surveillance.

2. Les RRA sont déduites à partir des équations aux jonctions associées aux détecteurs. Dans notre cas nous avons les équations issues des jonctions 0 et 1, Fig.4.13.

$$f_2 = f_1 - f_3 - f_4 \quad (4.22)$$

$f_2$  est le flux fourni par le capteur  $De : PI$ . Ce flux est bien nul puisqu'un capteur est considéré comme un élément qui ne délivre pas de puissance. Un capteur d'effort reçoit une énergie qu'il transforme en un signal proportionnel à la pression, mais il n'interagit pas avec le système physique.  $f_2$  est alors considéré comme le générateur du résidu.

$f_1$ ,  $f_3$  et  $f_4$  sont les variables inconnues qu'il faut éliminer par le parcours d'un chemin causal (représenté en pointillés dans le schéma Fig.4.13).  $f_3$  est éliminée par le chemin suivant. Fig.4.15.

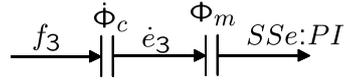


FIG. 4.15 – Graphe orienté pour l'élimination de  $f_3$ .

Où  $\Phi_c$  est l'équation de comportement de l'élément  $C$  en causalité dérivée.

$$f_3 = C_1 \dot{e}_3 \quad (4.23)$$

$\Phi_m$  est l'équation de mesure du capteur. Ce chemin causal du bond graph va de la variable inconnue  $f_3$  à la variable connue  $SSe : PI$ . Ce chemin est associé à un graph orienté qui nous indique l'ordre d'élimination de  $f_3$ . Il est donné par la Fig.4.15.

$f_4$  est éliminé directement du chemin causal, le graph orienté correspondant est donné par la Fig.

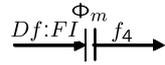


FIG. 4.16 – Graph orienté pour l'élimination de  $f_4$ .

Alors la RRA est déduite en remplaçant dans l'équation de la jonction 0 les expressions des variables inconnues, on a :

$$f_4 = FI \quad (4.24)$$

$$f_3 = C_1 \dot{e}_3 = C_1 \frac{dPI}{dt} \quad (4.25)$$

$PI$  est l'indication du capteur de pression.

$$RRA_1 = Sf - FI - C_1 \frac{dPI}{dt} \quad (4.26)$$

Le graphe structurel de la  $RRA_1$  est donné par la Fig.4.17.



	Composants				
RRA	Comp <sub>1</sub>	.....	Comp <sub>j</sub>	.....	Comp <i>k</i>
$r_{11}$	$S_{11}$		$S_{j1}$	0	$S_{k1}$
.	.	.	.	.	.
$r_{i1}$	$S_{1i}$		$S_{ji}$		$S_{ki}$
.	.	.	.	.	.
$r_{m1}$	$S_{1m}$		$S_{jm}$	;	$S_{km}$

TAB. 4.1 – Matrice de signature de défaillance globale

## 4.5 Particularités de la surveillance des réacteurs chimiques par approche bond graph

La nature complexe des phénomènes physico-chimiques impose certaines spécificités propres au domaine chimique et qui le distinguent par rapport aux autres domaines énergétiques (hydraulique, thermique, électrique...etc.). Ainsi on note que :

1. Les phénomènes physico-chimiques ne représentent pas des composants physiques comme le cas des domaines hydraulique ou électrique (exemple : pompe, vanne, résistance électrique, ...etc.), ils sont beaucoup plus abstraits (exemple: une réaction chimique est considérée comme une source de production et de transformation de constituants, ce qui peut être analogue à une pompe centrifuge dans le domaine hydraulique).
2. Dans le domaine chimique on ne peut pas envisager la détection des défaillances matérielles liées aux composants physiques (fuite, bouchage, ... etc.). Ces types de défauts sont associés aux phénomènes fluidiques et thermiques. Cependant, d'autres types de défaillances de nature chimique peuvent être détectées par le biais de RRA chimiques. A titre d'exemple : dans le domaine du contrôle de qualité en industrie pharmaceutique, agroalimentaire ou pétrochimique, on peut considérer comme défaillance, le dépassement de la teneur désirée d'un constituant dans un produit; l'apparition de réactions secondaires indésirables dans un processus peut être perçue comme défaillance.
3. À la différence des autres domaines, où on a divers types de capteurs (thermiques, hydrauliques,...etc.), dans le domaine chimique on ne dispose pas toujours d'un capteur spécifique pour chaque constituant, d'où la nécessité de concevoir en cas de besoin des observateurs afin de combler le manque d'information.

4. Dans la procédure de génération des RRA, on est ramené à mettre le modèle en causalité dérivée préférentielle. Seulement, on est confronté à la problématique « des relations non linéaires non inversibles », ce qui est le cas de la relation constitutive de l'élément RCH, où la causalité est imposée. Alors pour palier ce problème, on doit ajouter obligatoirement à chaque jonction 0 chimique (bilan de constituant) un détecteur d'effort (capteur fictif de potentiel chimique) dualisé (Fig.4.18).

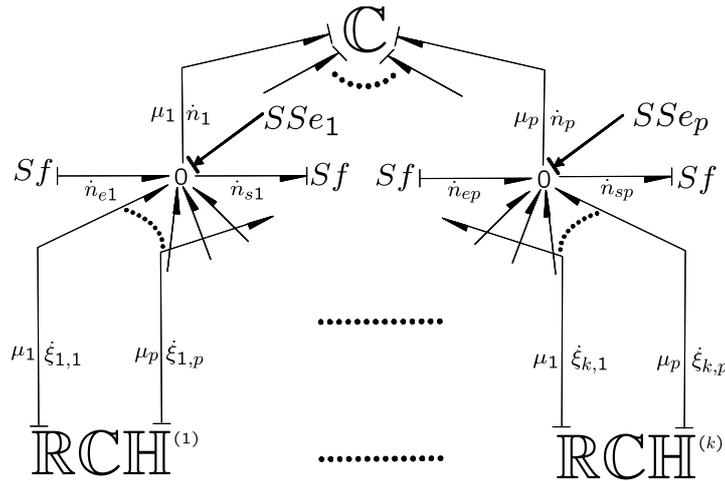


FIG. 4.18 – Modèle bond graph d'une réaction en causalité dérivée par dualisation des détecteurs.

## 4.6 Conception d'un système de surveillance dans le cas des processus chimiques

### 4.6.1 Description du procédé d'application

Afin de mettre en œuvre la procédure de conception d'un système de surveillance par approche bond graph dans le cas des processus chimiques, on va traiter pour cette raison un exemple d'application Fig.4.20 qui inclut un réacteur CSTR adiabatique, dans lequel se déroule une réaction irréversible exothermique  $A \rightarrow C$  dont la loi d'action de masse est exprimée par :

$$r = kC_A \tag{4.31}$$

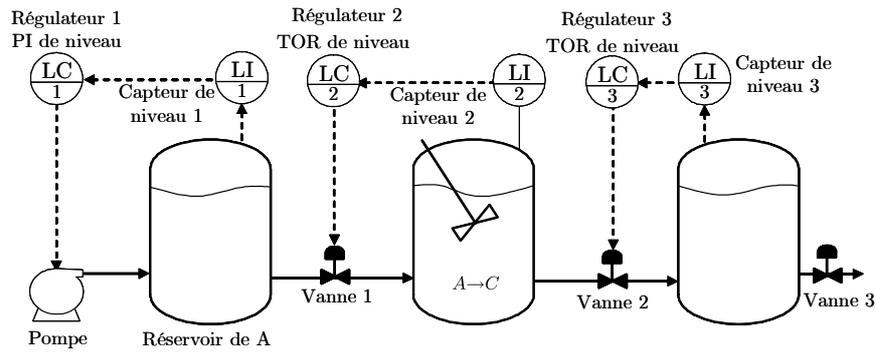


FIG. 4.19 – PI&D de l'exemple d'application pour la supervision.

Le modèle global architectural est constitué de la connexion des composants de la bibliothèque des modèles Fig.4.20.

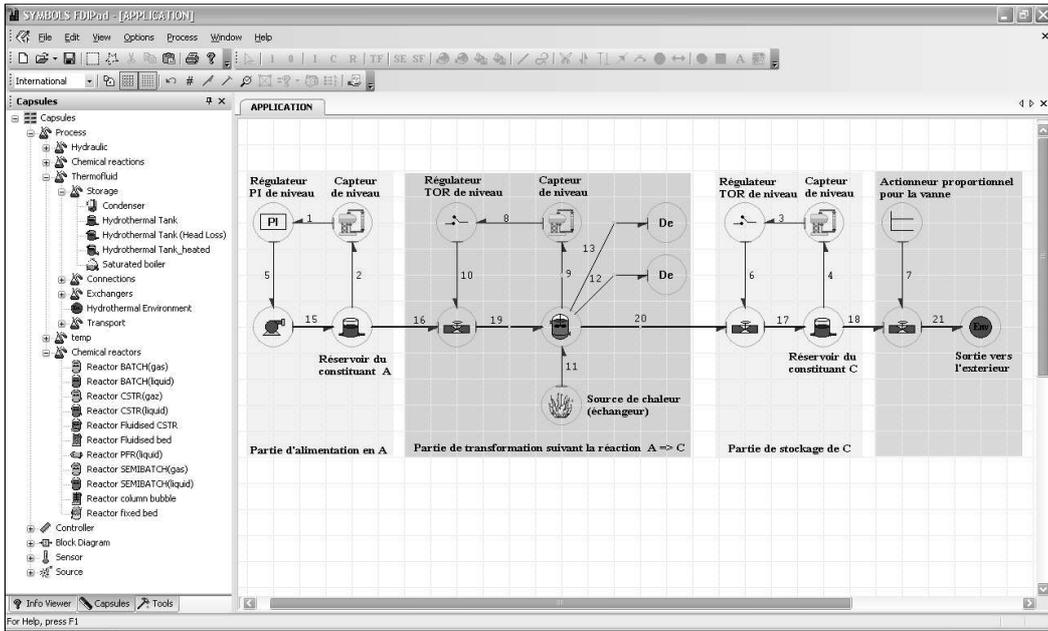


FIG. 4.20 – Modèle bond graph du procédé sous FDIPad.

1. La première partie concerne l'alimentation du réacteur par le constituant A (réactif). Elle est constituée d'un réservoir de stockage. La régulation du niveau est garantie par le biais d'un régulateur PI agissant sur une pompe centrifuge qui alimente le réservoir continuellement.
2. La deuxième partie englobe le réacteur où le constituant A se transforme en constituant C. La commande du niveau dans le réacteur est assurée par un régulateur TOR (tout ou rien) qui agit sur une vanne à l'entrée du réacteur.

3. La troisième partie concerne le stockage du constituant  $C$ . Le réservoir contenant les constituants  $(C,A)$  est commandé en niveau par un régulateur (tout ou rien) qui agit sur une vanne automatique à la sortie du réacteur.

Lors de la modélisation de ce procédé on a tenu compte du couplage des domaines thermique-hydraulique-chimique dans le cas du réacteur, et du couplage thermique-hydraulique dans le cas des composants thermofluides (réservoirs, pompe, vannes). Pour les capteurs, les actionneurs et les régulateurs, ils sont considérés comme des composants d'information.

### 4.6.2 Génération du modèle dynamique du procédé

Le modèle dynamique du procédé global est généré systématiquement à partir du modèle bond graph. Il est mis sous la forme non linéaire de représentation d'état :

$$\begin{cases} \dot{x}(t) = f(x(t),u(t),t) \\ y(t) = h(x(t),u(t),t) \end{cases} \quad (4.32)$$

Par la suite, on va présenter l'algorithme de génération d'un modèle dynamique en employant le modèle bond graph. Les variables d'état  $x$  sont les variables d'énergie associées aux éléments  $I$  et  $C$ . Pour obtenir le modèle dynamique, on peut procéder suivant une démarche systématique :

1. Écrire les lois de structure (lois de conservations) aux jonctions en tenant compte de la causalité.
2. Écrire les lois constitutives associées aux éléments en tenant compte de la causalité de l'élément.
3. Combiner ces différentes lois pour expliciter les dérivées des variables d'état en fonction des variables d'état et des entrées.

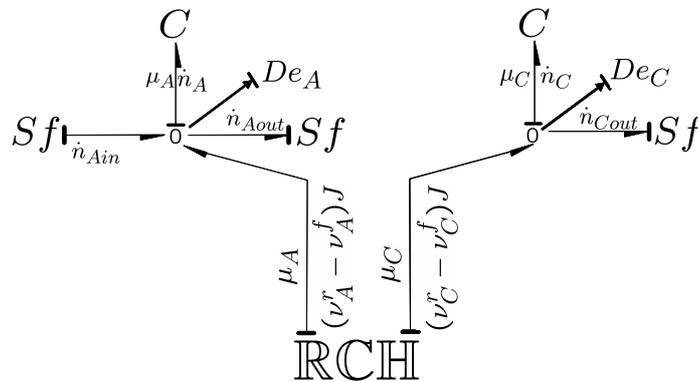


FIG. 4.21 – Modèle bond graph du domaine chimique dans le réacteur (en causalité intégrale).

À titre d'exemple, dans le cas du réacteur on a 2 variables d'état dans le domaine chimique seulement associées à deux éléments capacitifs (Fig.4.21). Ces variables sont  $[n_A n_C]$  et désigne le nombre de moles de A et C. Dans le modèle dynamique généré par FDIPad (Fig.4.22) ces variables correspondent à Y[3] Y [4] respectivement. Les lois de jonction 0 (correspondent aux équations de bilan d'espèce) sont exprimées par :

$$\begin{cases} \dot{n}_A = \dot{n}_{Ain} - \dot{n}_{Aout} + J(\nu_A^r - \nu_A^f) \\ \dot{n}_C = -\dot{n}_{Cout} + J(\nu_C^r - \nu_C^f) \end{cases} \quad (4.33)$$

Les lois constitutives des éléments  $C$  et  $\mathbb{R}$  dans le domaine chimique sont données par :

$$\begin{aligned} J &= \Phi_R(Af) = V.k_0 \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \exp\left(\frac{A_f}{RT}\right) \exp\left(\frac{A_f^\circ}{RT}\right) \\ \mu_A &= \Phi_C(n_A) = \mu_A^\circ + RT \ln\left(\frac{n_A}{V}\right) \\ \mu_C &= \Phi_C(n_C) = \mu_C^\circ + RT \ln\left(\frac{n_C}{V}\right) \end{aligned} \quad (4.34)$$

Pour compléter la génération du modèle dynamique du domaine chimique, on ajoute les autres variables d'état dans le réacteur, à savoir la masse du mélange réactionnel  $m$  et l'enthalpie  $H$  (chaleur stockée par le mélange) désignés sur la Fig.4.22 respectivement par Y[1] et Y [2]. Les relations constitutives des capacités hydraulique et thermique dans le réacteur sont ainsi définies par :

$$P = \frac{g}{S}m \quad (4.35)$$

$$T = \frac{1}{mC_P}H \quad (4.36)$$

À partir des équations (4.34,(4.35,4.36), et sachant que  $Af = \sum_{i=1}^2 \nu_i^f \mu_i = \mu_A$  on obtient :

$$J = \Phi_R(n_A, m, H) = n_A \cdot \frac{\rho}{m} \cdot k_0 \exp\left(\frac{-E_a \cdot m \cdot Cp}{RH}\right) \exp\left(\frac{\mu_A^\circ \cdot m \cdot Cp}{RH}\right) \quad (4.37)$$

On a aussi :

$$\begin{aligned} \dot{n}_{Ain} &= \dot{m}_{Ain} \cdot \frac{C_{Ain}}{\rho_A} \\ \dot{n}_{Aout} &= \dot{m}_{out} \cdot \frac{n_A}{m} \\ \dot{n}_{Cout} &= \dot{m}_{out} \cdot \frac{n_C}{m} \end{aligned} \quad (4.38)$$

Avec  $C_{Ain}$  la concentration de A à l'entrée du réacteur,  $\dot{m}_{in}$  le débit massique d'entrée,  $\dot{m}_{out}$  le débit massique de sortie (les débits massiques à l'entrée et la sortie du réacteur sont en

fonction des lois de commande des régulateurs TOR). On obtient ainsi la représentation d'état du domaine chimique dans le réacteur définie par :

$$\begin{pmatrix} \dot{n}_A \\ \dot{n}_C \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \dot{m}_{Ain} \cdot \frac{C_{Ain}}{\rho_A} - \dot{m}_{out} \cdot \frac{n_A}{m} + (\nu_A^r - \nu_A^f) \Phi_R(n_A, m, H) \\ -\dot{m}_{out} \cdot \frac{n_C}{m} + \Phi_R(n_A, m, H) (\nu_C^r - \nu_C^f) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_A(x, u) \\ f_C(x, u) \end{pmatrix} \quad (4.39)$$

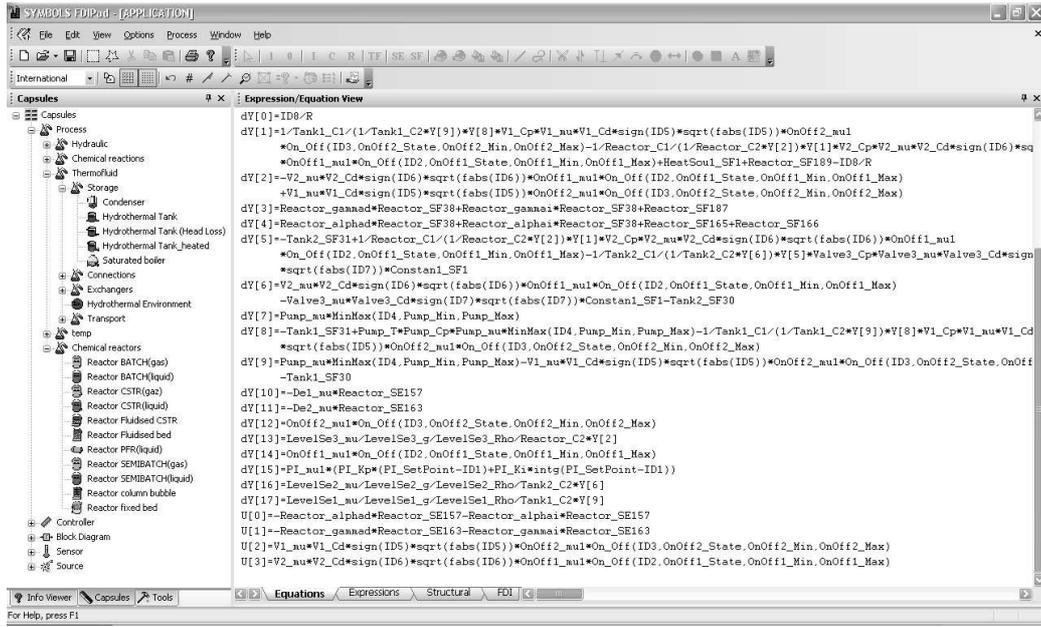


FIG. 4.22 – Représentation d'état du processus générée à partir du modèle bond graph.

En parallèle à la génération du modèle dynamique par FDIPad, on peut modifier aussi les paramètres ou les expressions du modèle (Fig.4.23) où des valeurs numériques peuvent leur être attribuées. Cette fonctionnalité est importante car elle permet d'introduire n'importe quelle non linéarité.

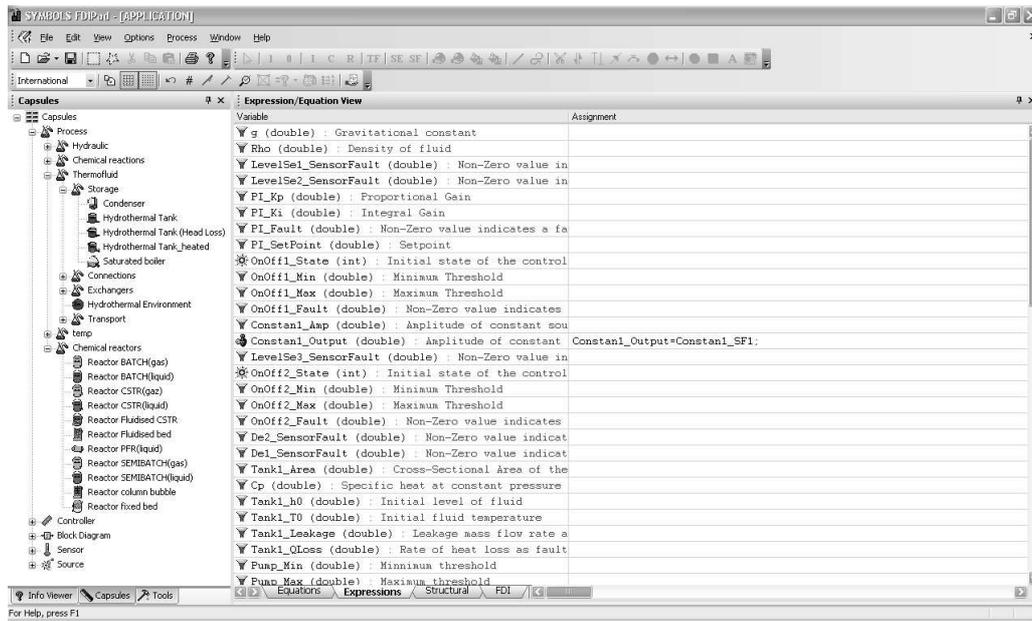


FIG. 4.23 – Liste des paramètres employés dans le modèles bond graph.

### 4.6.3 Génération des RRA du processus

Les relations de redondance analytiques RRA peuvent être générées aussi systématiquement par le biais de FDIpad Fig.4.24. L'existence de boucles causales ou algébriques peut être détecté.

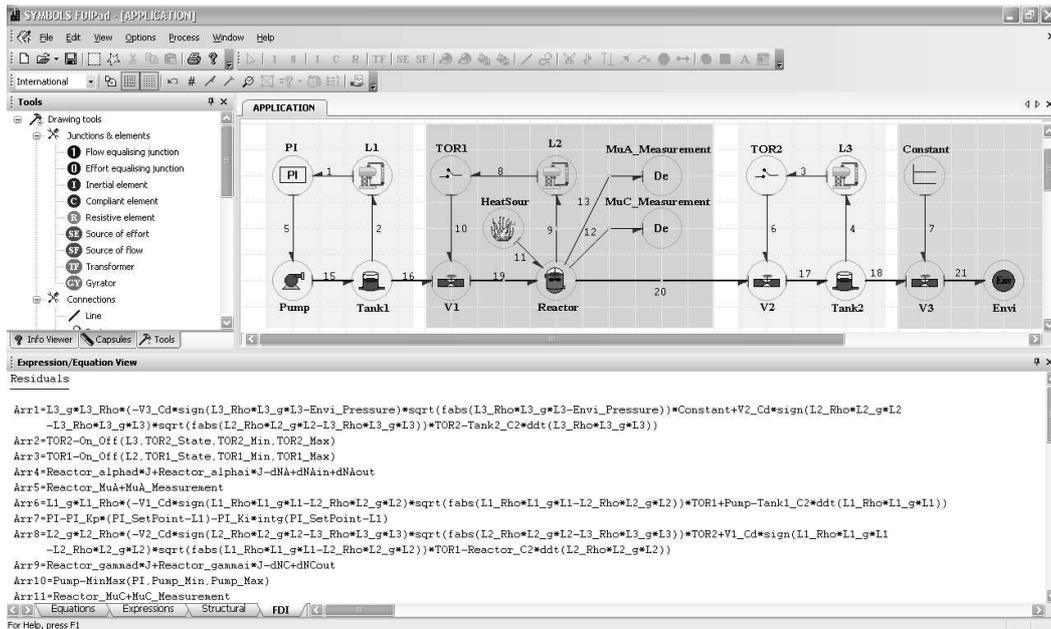


FIG. 4.24 – Liste des RRA générées à partir du modèle bond graph du procédé.

Pour expliquer en détail l'algorithme de la génération des RRA on va reprendre le modèle du domaine chimique dans le réacteur.

- 1). Mettre le modèle bond graph en causalité dérivée préférentielle (Fig.4.25) en employant la notion de dualisation des détecteurs. Les détecteurs d'effort dualisés  $SSe$  imposent leur valeur aux jonctions 0.

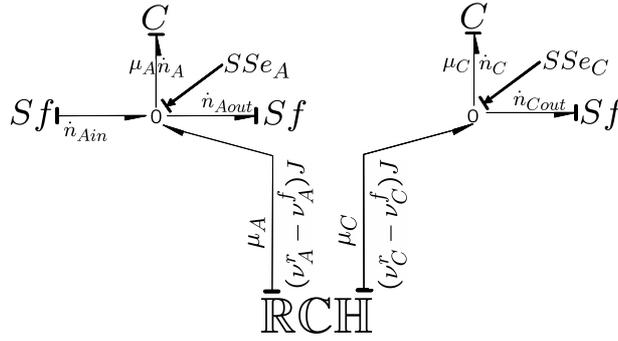


FIG. 4.25 – Modèle bond graph du domaine chimique en causalité dérivée par dualisation des détecteurs.

- 2). On écrit les contraintes du modèle définies par :

**1. Les équations de comportement  $F_B$**

Les relations constitutives des capacités en causalité dérivée sont définies par :

$$\begin{aligned} n_A &= V \exp\left(\frac{\mu_A - \mu_A^\circ}{RT}\right) \\ n_C &= V \exp\left(\frac{\mu_C - \mu_C^\circ}{RT}\right) \end{aligned} \tag{4.40}$$

La relation constitutive de la résistance ne change pas car sa causalité n'a pas changé.

$$J = \Phi_R(Af) = V \cdot k_0 \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_A}{RT}\right) \exp\left(\frac{\mu_A^\circ}{RT}\right) \tag{4.41}$$

**2. Les équations de jonctions  $F_J$**

Les équations de jonctions 0 qui correspondent au bilan d'espèces sont données par :

$$\begin{cases} -\dot{n}_A + \dot{n}_{Ain} - \dot{n}_{Aout} + J(v_A^r - v_A^f) = 0 \\ -\dot{n}_C + \dot{n}_{Cout} + J(v_C^r - v_C^f) = 0 \end{cases} \tag{4.42}$$

### 3. Les équations de mesures $F_Y$

On a deux types de capteurs impliqués dans l'acquisition d'information dans le réacteur, le capteur de niveau du mélange (nous donne le niveau mesuré  $L_{mesuré}$ ), les capteurs de potentiels chimiques (nous donne le potentiel chimique mesuré  $\mu_{mesuré}$ ). On obtient ainsi les équations :

$$m_{mesuré} = \rho.S.L_{mesuré}, \quad (S \text{ la surface de la section du réacteur}) \quad (4.43)$$

$$\begin{aligned} \dot{n}_{A,mesuré} &= \frac{\dot{\mu}_{A,mesuré}}{RT} S.L_{mesuré} \exp\left(\frac{\mu_{A,mesuré} - \mu_A^\circ}{RT}\right) \\ \dot{n}_{C,mesuré} &= \frac{\dot{\mu}_{C,mesuré}}{RT} S.L_{mesuré} \exp\left(\frac{\mu_{C,mesuré} - \mu_C^\circ}{RT}\right) \end{aligned} \quad (4.44)$$

**Remarque :** il faut noter que les capteurs de potentiel chimiques sont fictifs, la mesure du potentiel chimique  $\mu_{mesuré}$  est reconstituée soit par un capteur de concentration ou par un observateur d'état (de concentration ou nombre de moles).

### 4. Les équations de commande $F_C$

On a deux régulateurs TOR (tout-ou-rien) en amont et en aval. Les équations de commande des débit massiques d'entrée  $\dot{m}_{in}$  de sortie  $\dot{m}_{out}$  sont exprimées par :

$$\begin{aligned} \dot{m}_{in} &= \Phi_{TOR}(u_1) \\ \dot{m}_{out} &= \Phi_{TOR}(u_2) \end{aligned} \quad (4.45)$$

### 5. Les équations des sources $F_A$

Les équations de sources de flux molaire  $Sf$  sont définies par :

$$\begin{aligned} \dot{n}_{Ain} &= \dot{m}_{in}.C_{Ain}/\rho_A \\ \dot{n}_{Aout} &= \dot{m}_{out}.n_A/m \\ \dot{n}_{Cout} &= \dot{m}_{out}.n_C/m \end{aligned} \quad (4.46)$$

- 3). Il faut éliminer les variables inconnues et les remplacer ainsi par les variables connues (variables de mesure, variables de commande). Á partir des équations(4.46,4.45,4.42,4.43,4.44) on obtient les RRA chimiques (elles correspondent dans la Fig.4.24 à Arr4 et Arr9).

$$\begin{cases} RRA_A : -\dot{n}_{A,mesuré} + \Phi_{TOR}(u_1).C_{Ain}/\rho_A - \Phi_{TOR}(u_2).n_A/m_{mesuré} + J_{mesuré}(\nu_A^r - \nu_A^f) = 0 \\ RRA_C : -\dot{n}_{C,mesuré} + \Phi_{TOR}(u_2).n_C/m_{mesuré} + J_{mesuré}(\nu_C^r - \nu_C^f) = 0 \end{cases} \quad (4.47)$$

#### 4.6.4 Analyse de la surveillabilité du processus

Pour la conception du système de surveillance, il est important aussi qu'un cahier de charges soit établi pour déterminer les composants physiques (vanne, réservoir, capteur, . . . .etc.) qu'on désire superviser (détection et localisation des défaillances) (Fig.4.26).

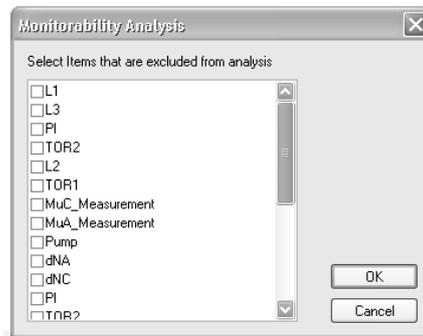


FIG. 4.26 – Boite de dialogue *FDIPad* pour la détermination des composants à surveiller à partir du cahier des charges.

Les défaillances qu'on peut rencontrer souvent dans le cas des systèmes thermofluides sont de nature hydraulique de type fuite (pour les réservoirs); bouchage (pour les conduites et vannes). Cependant, dans notre cas d'autres types de défaillances de nature chimique peuvent avoir lieu (exemple: apparition de réactions secondaires, . . . .etc.).

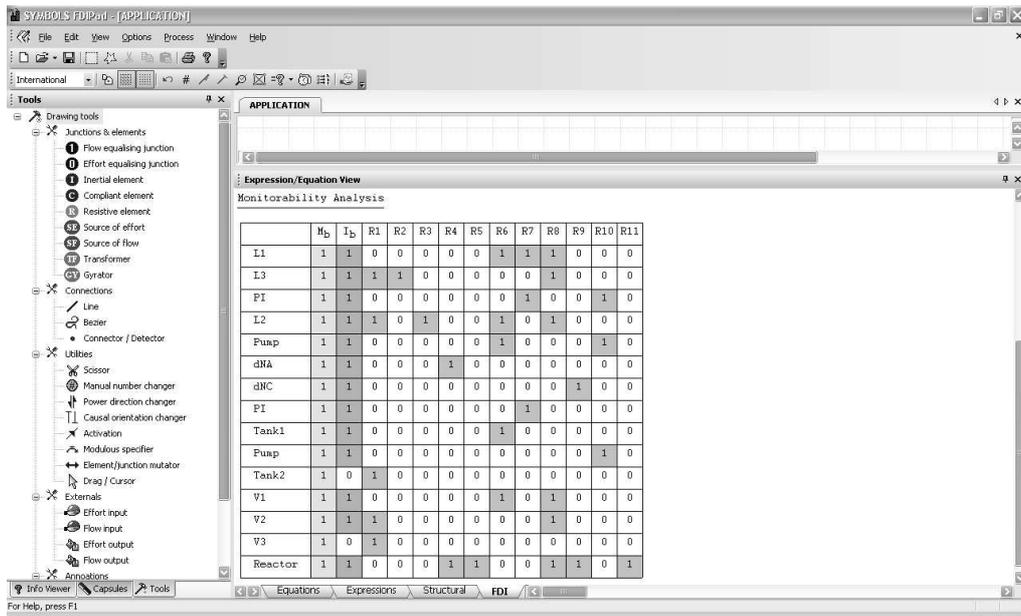


FIG. 4.27 – La table de signature de défaillances du procédé suivant le cahier des charges de la surveillance.

À partir d'un cahier de charges fixé on obtient la matrice de signature de défaillance générée par FDIpad (Fig.4.27) où  $M_b, I_b$  représentent respectivement la Détectabilité et l'Isolabilité de la défaillance d'un composant donné.  $M_b$  et  $I_b$  prennent la valeur "1" si la défaillance est respectivement détectable et isolable sinon ils prennent la valeur "0".

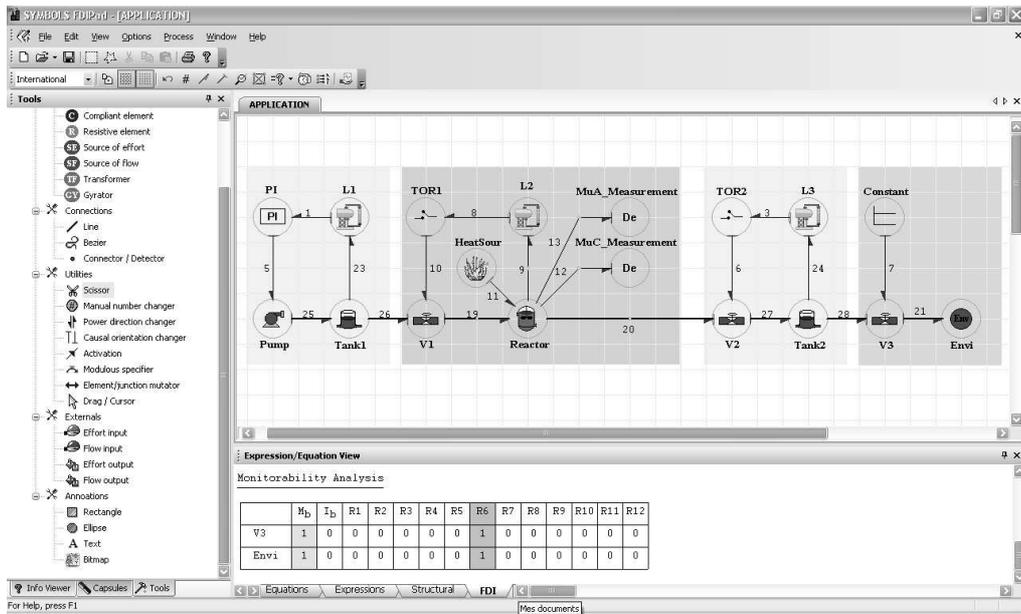


FIG. 4.28 – Table de signature de défaillance de la vanne V3 et de l'environnement.

A titre d'exemple, les défaillances de la vanne V3 (Fig.4.28) et de l'environnement sont détectables mais elles ne peuvent pas être isolées. La raison est qu'il existe un seul résidu R6 sensible aux défaillances des deux composants ce qui représente en terme de surveillance un manque d'informations.

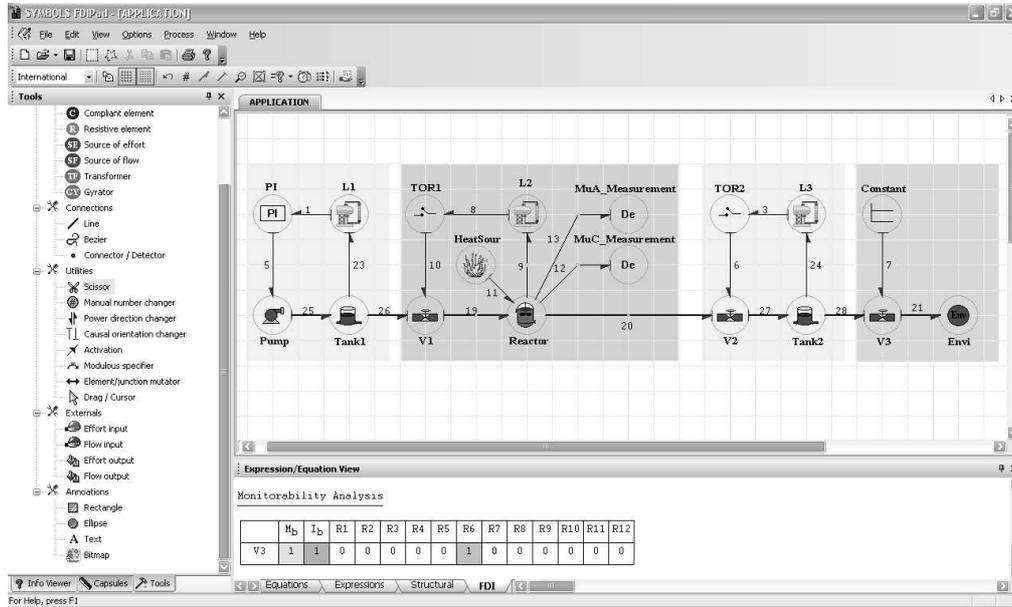


FIG. 4.29 – Amélioration de la surveillabilité par changement de cahier de charges.

Dans ce genre de situations où la défaillance d'un composant est non isolable, il faut ajouter au composant un nouveau capteur pour générer une RRA supplémentaire et améliorer ainsi la surveillabilité du système. On peut aussi changer le cahier des charges ce qui est notre cas (Fig.4.28). Ainsi on a supprimé l'environnement de notre cahier de charge car ce n'est pas un composant physique. La défaillance de la vanne V3 devient ainsi isolable (Fig.4.29).

On note aussi que les résidus générés peuvent être simulés sur le logiciel FDIPad en introduisant différents scénarios de défaillances (fuite de réservoir, bouchage de vanne, ... etc.). Concernant les défaillances de nature chimique, en particulier l'apparition de réactions secondaires, pour cela on va traiter le cas d'un réacteur CSTR où se déroulent deux réactions réversible et irréversible. On considère que la première réaction est élémentaire et la deuxième est secondaire.



Le modèle bond graph du réacteur a été établi sous FDIPad. Ensuite on a généré son modèle

dynamique sous forme d'une S-fonction Fig.4.30 pour l'utiliser sous Simulink/Matlab, où on a reconstitué les RRA chimiques des 6 constituants.

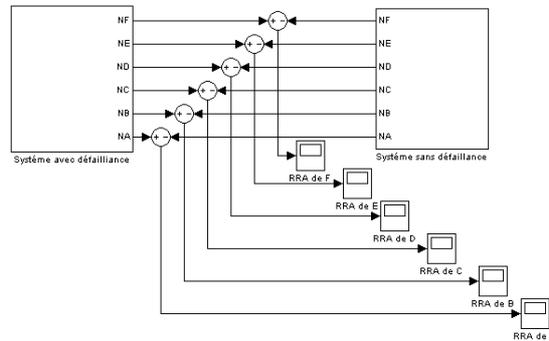


FIG. 4.30 – *Modèle d'un système de surveillance pour la détection de réactions secondaires (sous Simulink/Matlab).*

Pour tester le système de surveillance de cette application on a déclenché volontairement la réaction secondaire à l'instant  $t = 10$  s pour illustrer l'impact de cette défaillance sur les résidus de chaque constituant (il faut noter que l'apparition des réactions secondaires dépend des conditions opératoires de température et de pression).

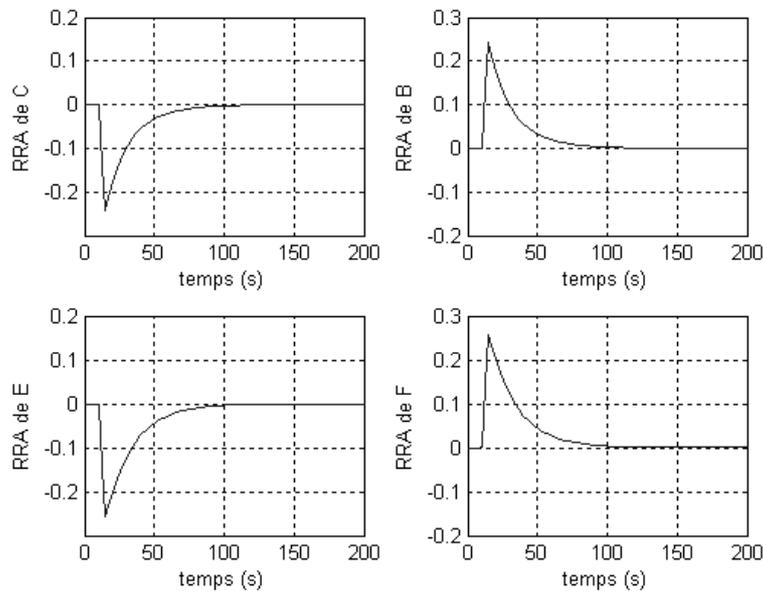


FIG. 4.31 – *Les résidus des constituants C,B,E,F impliqués dans la réaction secondaire.*

À partir des graphes obtenus, on constate que les résidus des constituants impliqués dans la réaction secondaire sont influencés par le déclenchement de cette défaillance. Ainsi en tenant

---

compte des réactions secondaires lors de la modélisation d'un procédé chimique, on peut employer les résidus chimiques générés du modèle pour détecter l'apparition des réactions secondaires et analyser surtout les conditions de son apparition. On peut aussi améliorer son Isolabilité en proposant une nouvelle architecture d'instrumentation pour enrichir le modèle mathématique.

## 4.7 Conclusion

Dans ce chapitre, on a présenté l'intérêt de choisir l'approche bond graph pour la conception d'un système de surveillance pour le cas des processus chimiques. L'utilisation des RRA et de la matrice de signature a permis d'analyser la surveillabilité des processus chimiques considérés comme systèmes complexes. Ainsi, les défaillances de nature hydraulique, thermique ou chimiques peuvent être détectées aisément à partir du cahier de charges établi.

Il faut noter toutefois que les résidus du domaine chimique ne sont pas utiles pour la détection des défaillances physiques liées aux composants (les résidus hydrauliques sont beaucoup plus appropriés), cependant ils peuvent être utilisés pour détecter des défaillances considérées de nature chimique (exemple: détection des réactions secondaires indésirables dans un procédé, contrôle de qualité, ... etc.). Toutefois cette thématique est abordée ici uniquement comme perspective de recherche dans le domaine de la protection de l'environnement et des risques d'exploitation dans les installations chimiques et pétrochimiques.



# Conclusions générales et perspectives

## 1 Conclusions

Un processus chimique est le siège de phénomènes de transformations chimiques et /ou biochimiques, thermodynamiques et hydrauliques. Leur modélisation nécessite alors une approche unifiée. Ce type de processus est généralement un procédé polluant et à risque. Ils nécessitent alors pour leur pilotage, l'analyse et la conception de système de surveillance des modèles précis et génériques. L'objectif du travail de thèse est une contribution au développement d'un outil de conception de système de supervision à base de modèle des réacteurs chimiques. L'outil bond graph par son caractère multidisciplinaire et comme langage graphique et unifié a été choisi pour cette tâche. D'autre part cet outil est utilisé pour la conception d'algorithmes de détection et localisation de défauts grâce à ses propriétés comportementales, causales et structurelles.

Afin d'assurer la genericité des modèles, on a établi ainsi une base de modèles génériques de réacteurs incluant les phénomènes thermofluides et chimiques. Les modèles développés des réactions chimiques et des réacteurs ont été classifiés en fonction du mode de fonctionnement, le nombre et le type de phases impliquées dans le réacteur. Cette base de modèles est utilisée pour la construction de modèles dynamiques d'installations chimiques et pour fournir les conditions de surveillabilité du processus.

Les algorithmes proposés ont été validés en complétant un outil logiciel (FDIPad) développé par le laboratoire et qui consiste à automatiser les procédures de génération de modèles dynamiques formels sous forme d'équations d'état non linéaires à partir uniquement des Plans des Instruments Détaillés de l'installation (PIDs). De plus ces modèles sont traités pour fournir les relations de redondances analytiques et les conditions de surveillabilité structurelle du procédé permettant ainsi de changer graphiquement l'architecture d'instrumentation pour améliorer la surveillabilité en fonction de cahiers des charges.

## **2 Perspectives**

L'objectif principal de la thèse étant la modélisation des réacteurs chimiques, la partie surveillance de ce mémoire a été timidement abordée. C'est pourquoi un travail de recherche plus approfondi sera traité en perspectives, il s'agit de développer des outils de surveillance dans le domaine de la sûreté et de la protection de l'environnement des processus chimiques (thème d'actualité). Sommairement, l'apparition de réactions secondaires dans des processus chimiques peut être considérée comme un modèle défaillant donc source d'apparition de la pollution ou de catastrophe technologique suite à la production de produits explosifs par exemple. Il serait complémentaire de traiter le cas des bio-réacteurs qui représentent une partie non négligeable en génie des procédés.

Enfin, à long terme des problèmes liés à la commande tolérante aux fautes (FTC) sur la base de l'architecture graphique du modèle bond graph seront développés pour déterminer les conditions structurelles de reconfigurabilité qui peuvent être associées à l'existence de chemin sur le graphe suite à une défaillance donnée.

# Annexe

## 1 Généralités sur les bond graphs

### 1.1 Définition

La méthodologie de la modélisation par bond graph est basée sur la caractérisation des phénomènes d'échange de puissance (par un lien) au sein d'un système. L'idée de la modélisation par bond graph est la représentation des puissances dissipées comme le produit flux-effort et de les lier par les différentes jonctions pour reproduire le système.

Il existe aussi quelques bond graphs, que nous verrons plus loin, où le produit effort par le flux n'est pas une puissance. Ils sont appelés pseudo bond graphs, et sont utilisés principalement pour la modélisation des phénomènes rencontrés en génie des procédés (thermiques, chimiques).

Les bond graphs permettent, à partir d'un système physique quelconque, d'obtenir une représentation graphique indépendante du domaine physique étudié.

La construction d'un modèle bond graph est réalisée en trois étapes :

La première étape consiste à décomposer le système à modéliser en sous-systèmes, soit le couplage des différents phénomènes retenus. L'interconnexion des composants est assurée par des variables de liaison. Cette représentation est appelée bond graph à mot ou word bond graph. On peut dire que c'est l'étape technologique de la modélisation.

La deuxième étape consiste à reproduire graphiquement tous les phénomènes physiques pris en compte dans les hypothèses de modélisation. A ce niveau l'outil bond graph à vocation pluridisciplinaire, permet par sa nature graphique à l'aide d'un langage unique de mettre en évidence la nature des échanges de puissance dans le système, tels que les phénomènes de stockage, de transformation et de dissipation d'énergie. L'ordre et le type de dynamique du système sont directement déduits du modèle bond graph. Enfin, grâce à son caractère évolutif, la structure du modèle graphique obtenu, peut être modifiée par simple ajout d'éléments (de frottement, d'inerte, compressibilité etc.). Ce niveau constitue une étape physique.

La troisième étape consiste à écrire les lois constitutives des composants ou des phénomènes, en tenant compte des causalités affectées, c'est la représentation mathématique.

Et enfin, il est possible de résoudre à un niveau algorithmique, les problèmes de solvabilité

du schéma de simulation par une affectation adéquate des causalités sur le bond graph.

## 1.2 Eléments Bond Graph à un port

### 1.2.1 Représentation

Dans chaque système fermé, il y a non seulement conservation de l'énergie, mais aussi une continuité de puissance. On représente le flux d'énergie entre deux systèmes  $A$  et  $B$  en liaison, par un lien de puissance, désigné par le symbole visible figure 1 qui caractérise le "bond" (ou lien) du bond graph. Le sens de la demi-flèche correspond à la direction de la puissance  $P$  échangée.

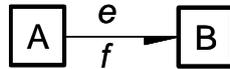


FIG. 1 – Représentation d'un élément bond graph 1 port

### 1.2.2 Utilisation des variables dans la modélisation bond graph

Les variables mises en jeu dans la modélisation par bond graph sont:

1. Variables de liaison : la puissance échangée  $P$  s'exprime par le produit de deux variables dites de puissance effort ( $e$ ) et flux ( $f$ ):

$$P = ef$$

- 2 Variables d'énergie : elles sont définies par les relations intégrales suivantes :

$p(t)$  l'impulsion ou la quantité de mouvement généralisé,

$$p(t) = \int_0^t e(\tau) d\tau, \quad p(0) = 0 \quad (1)$$

et  $q(t)$  le déplacement généralisé,

$$q(t) = \int_0^t f(\tau) d\tau, \quad q(0) = 0 \quad (2)$$

La signification des variables citées pour les principaux domaines est indiquée par le tableau suivant :

Domaine	Effort	Flux	Impulsion	Déplacement
	[Unités]	[Unités]	[Unités]	[Unités]
	$e(t)$	$f(t)$	$p(t)$	$q(t)$
<i>Electrique</i>	Tension	Courant	flux magnétique	charge électrique
	[ <i>Volt</i> ]	[ <i>Ampere</i> ]	[ <i>Weber</i> ]	[ <i>Coulomb</i> ]
<i>mecanique</i> de rotation	couple	Vitesse angulaire	Impulsion angulaire	Angle
	[ <i>N.m</i> ]	[ <i>Rad/s</i> ]	[ <i>N.s</i> ]	[ <i>Rad</i> ]
<i>mecanique</i> de translation	Force	vitesse linéaire	impulsion	distance
	[ <i>N</i> ]	[ <i>m/s</i> ]	[ <i>N.s</i> ]	[ <i>m</i> ]
<i>hydraulique</i>	Pression	débit volumique	impulsion de	Volume
	[ <i>Pa</i> ]	[ <i>m<sup>3</sup>/s</i> ]	pression [ <i>Pa.s</i> ]	[ <i>m<sup>3</sup></i> ]
<i>Thermique</i>	Tempé- -rature [ <i>K</i> ]	Flux de chaleur [ <i>J/s</i> ]	-	Energie calorifique [ <i>J</i> ]
<i>Thermody- namique</i>	Tempé- -rature [ <i>K</i> ]	Flux d'entropie [ <i>J/(K.s)</i> ]	-	Entropie [ <i>J/K</i> ]
<i>Chimique</i>	Potentiel chimique	Débit molaire	-	Nombre de moles
	[ <i>J/mole</i> ]	[ <i>mole/s</i> ]		[ <i>mole</i> ]
<i>Economique</i>	Prix unitaire des marchandises	Taux de flux des marchandises	Impulsion économique	Inventaire

On distingue les éléments bond graphs suivants : passifs, actifs, et de jonction.

### 1.2.3 Elements passifs

Ils dissipent de la puissance. La demi-flèche est normalement représentée entrant dans ces éléments. Ces éléments sont désignés par  $R$ ,  $C$  et  $I$ .

- *Résistance  $R$* : modélise tout phénomène physique liant l'effort et le flux. Citons à titre d'exemple résistance électrique, diode, restriction hydraulique, frottement, résistance thermique. La loi linéaire ou non linéaire est sous forme:

$$\Phi_R(e, f) = 0 \quad (3)$$

**Exemple 4.1.1** la loi d'ohm  $U = R_1 i$  en électricité, ou de Bernoulli  $P = K_D \dot{V}^2$  en hydraulique, ou de Fourier en thermique  $\Delta T = K_C \dot{Q}$ .

Les représentations graphiques respectives sont donnés par la figure 2.

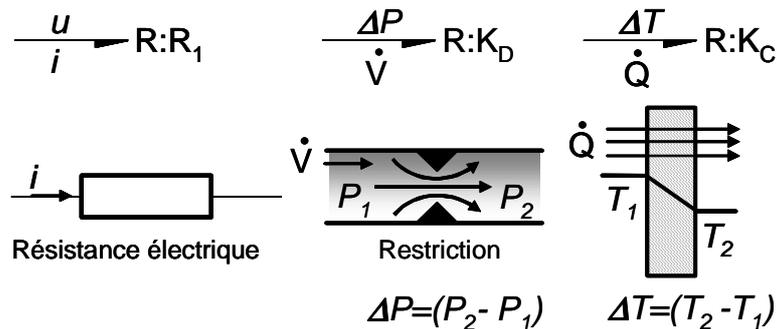


FIG. 2 – Représentation graphique d'un élément  $R$

- *Capacité  $C$* : modélise tout phénomène physique liant l'effort au déplacement; exemple: ressort, condensateur, accumulateur, réservoir de stockage, phénomène de compressibilité.  $C$  est un élément de stockage d'énergie.

$$\Phi_C(e, q) = 0 \quad \text{ou} \quad \Phi_C \left( e, \int f(\tau) d\tau \right) = 0 \quad (4)$$

**Exemple 4.1.2**  $u = \frac{1}{C_1} \int i dt$  ou  $u = \frac{q}{C}$  en électricité,  $P = \frac{V}{C_2}$  ou  $P = \frac{1}{C_2} \int \dot{V} dt$  en hydraulique et  $T = \frac{1}{C_3} \int \dot{Q} dt$  en thermique.

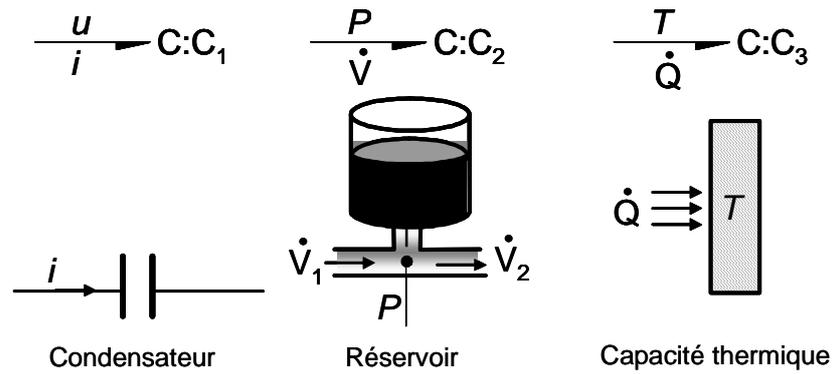


FIG. 3 – Représentation graphique d'un élément  $C$

- *Inertie  $I$* : modélise tout phénomène d'inertie liant le flux à l'impulsion.  $I$  est un élément de stockage d'énergie. Exemple : masse en translation, inductance, inertance d'un liquide. La relation est de la forme:

$$\Phi_I(p, f) = 0 \quad \text{ou} \quad \Phi_I\left(f, \int e(\tau) d\tau\right) = 0 \tag{5}$$

**Exemple 4.1.3**  $u = L \frac{di}{dt}$  ou  $\phi = Li$  en électricité et  $P = \frac{\rho l}{A} \dot{V}$  en hydraulique.

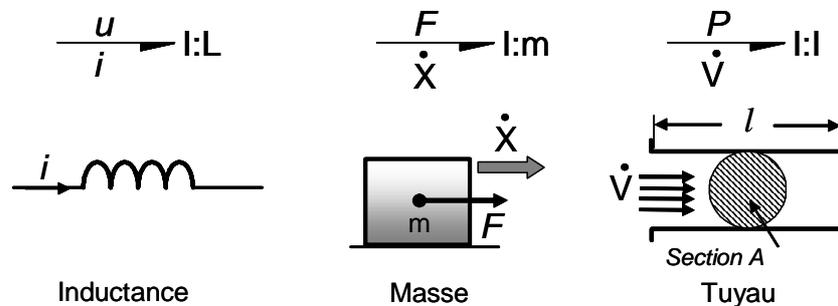


FIG. 4 – Représentation graphique d'un élément  $I$

Les éléments  $I$  et  $C$  sont tous les deux associés à un stockage d'énergie. Mais contrairement à  $C$ , dans l'élément  $I$ , l'énergie ne se conserve pas lorsque la variable du flux disparaît : l'énergie est stockée grâce à la dynamique du système.

### 1.2.4 Éléments actifs

Les éléments actifs sont des sources qui fournissent de la puissance au système. On distingue les sources d'effort  $Se$  (tel que générateur de tension) et les sources de flux  $Sf$  (générateur de courant, vitesse appliquée). On les désigne par la figure 5.

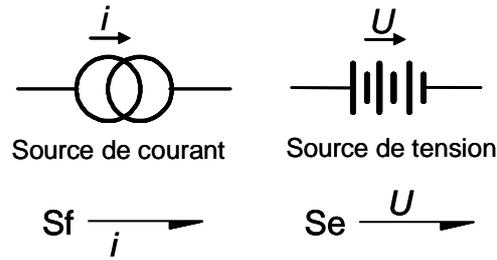


FIG. 5 – Représentation des sources d'effort  $Se$  et de flux  $Sf$ .

L'orientation de la demi-flèche est fixée et supposée toujours sortant de la source.

### 1.2.5 Éléments de jonction

Ils servent à coupler les éléments  $R$ ,  $C$  et  $I$  et composent la structure du modèle. Ils sont conservatifs de puissance.

- *Jonction 0*: associe les éléments soumis au même effort, ce qui correspond à des éléments en série en mécanique (même force) et en parallèle en hydraulique et électricité (même tension, même pression). La jonction et la loi constitutive est donnée par la figure 6.

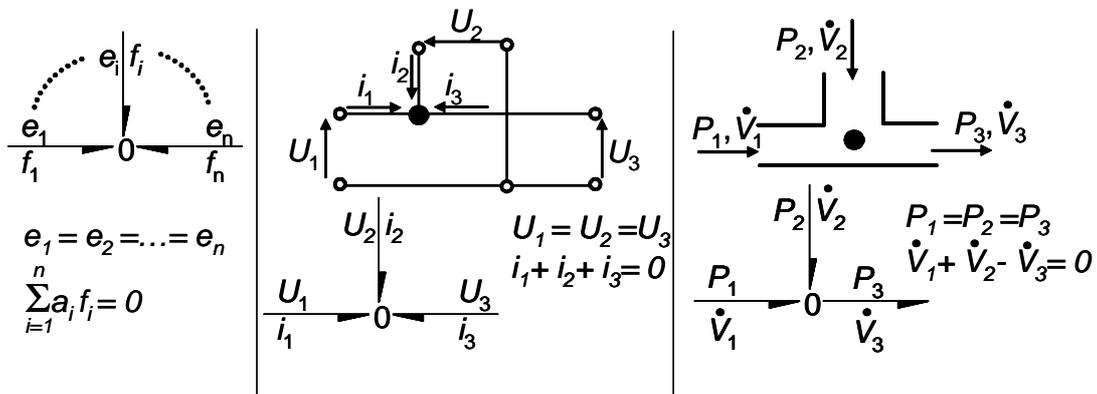


FIG. 6 – Jonction parallèle ou jonction 0 avec  $a_i = 1$  pour une puissance entrante et  $a_i = -1$  pour une puissance sortante.

- *Jonction 1*: elle associe les éléments soumis à un même flux et correspond à des éléments en parallèle (fig. 7). Elle représente des éléments en parallèle en mécanique (même vitesse) et en série en électricité et en hydraulique (même courant ou même débit volumique).

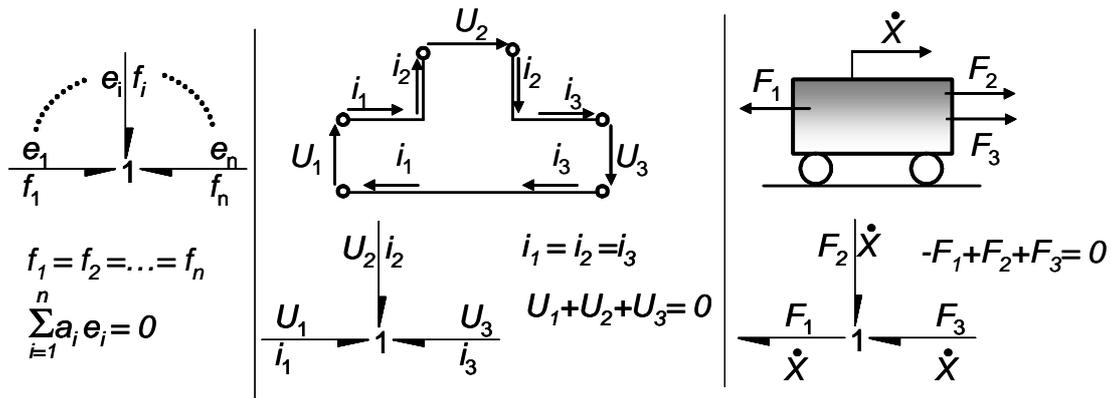


FIG. 7 – Jonction série ou jonction 1 avec  $a_i = 1$  pour une puissance entrante et  $a_i = -1$  pour une puissance sortante.

Dans les deux jonctions, nous avons une conservation de puissance qui est exprimée par le bilan des puissances:

$$\sum_{i=1}^n e_i f_i = 0 \quad (6)$$

### 1.3 Eléments bond graphs à 2 ports

#### 1.3.1 Transformateur TF

Élément à deux ports, modélise les éléments transformateurs d'énergie tel un transformateur électrique, un système d'engrenage ou bras de levier (fig. 8). Si le module  $m$  n'est pas constant, le transformateur est dit modulé et est noté par  $MTF$ , la variable  $m$  peut alors être continue ou booléenne (0,1).

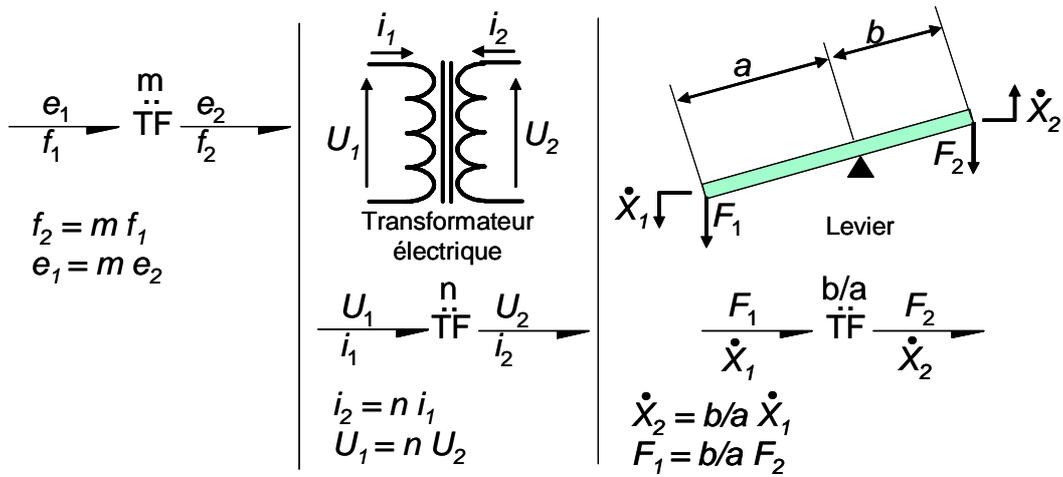


FIG. 8 – Transformateur TF et son équation constitutive

### 1.3.2 Gyrateur GY

Noté aussi TransDucteur TD, cet élément est un 2-ports représenté par la figure 9.

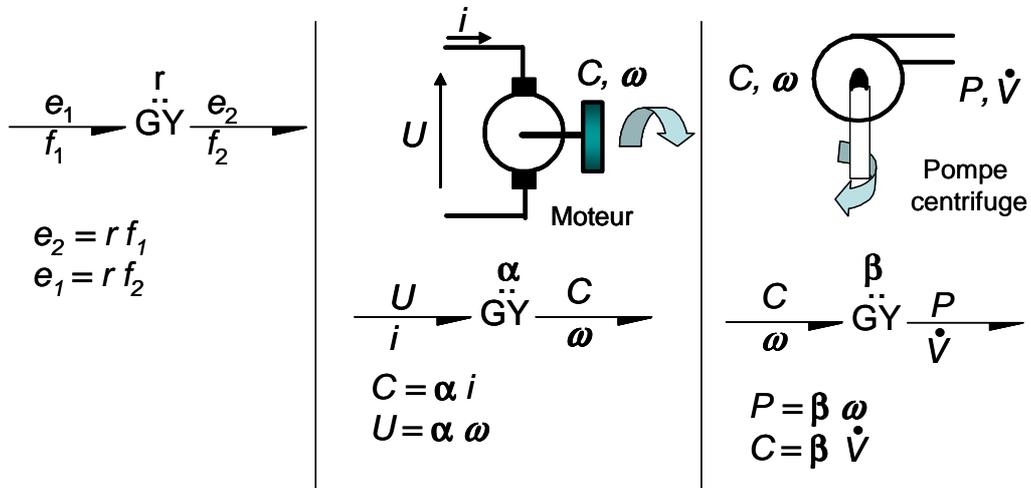


FIG. 9 – Gyrateur GY et son équation constitutive.

**Exemple 4.1.4** *gyroscope, transformateur de la puissance mécanique dans un moteur à courant continu, Un gyrateur modulé sera noté par MGY : C'est le moteur électrique à excitation variable. Notons que les deux éléments TF et GY peuvent aussi transformer la puissance inter-domaine.*

### 1.3.3 Carrousel de Thoma

les quatre variables, effort, flux, moment et déplacement peuvent être représentées par le carrousel de Thoma [68] mettant en évidence les relations entre elles. Le tétraèdre de Paynter donne la même information mais sous une forme différente (fig 10).

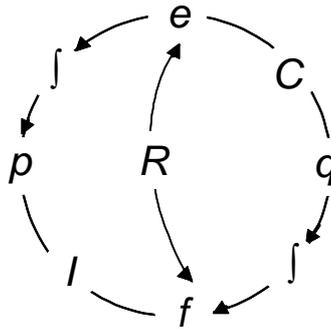


FIG. 10 – Carrousel de Thoma

### 1.3.4 Liens d'information

Lorsqu'une des variables effort ou flux est très faible, la puissance transmise est négligeable, on représente alors le signal transmis (par un capteur, un intégrateur, sommateur) par un lien d'information (fig. 11(a)). Les capteurs d'effort  $D : De$  et de flux  $D : Df$  sont représentés par la figure 11(b).

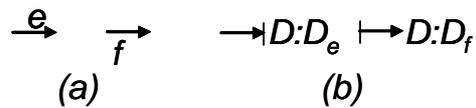


FIG. 11 – Lien d'information (a) et détecteur d'effort et de flux (b)

## 1.4 Eléments bond graph multiports ou champs C, I et R

Les éléments bond graph  $R, C$  et  $I$  présentés plus haut sont à un port, et les lois constitutives sont scalaires. Dans plusieurs cas, les lois mises en œuvre sont vectorielles, on utilise alors dans ce cas les éléments multiports ou champs. Leur représentation est donnée par le tableau 12.

Élément	Désignation	Relation
		$e_i^T f_i - e_k^T f_k = 0$
		$\begin{cases} e_1^T f_1 = e_2^T f_2 \\ e_1 = M e_2 \\ f_2 = M f_1 \end{cases}$
		$\begin{cases} e_1^T f_1 = e_2^T f_2 \\ e_1 = R f_2 \\ e_2 = R f_1 \end{cases}$

FIG. 12 – *Éléments multiport des jonctions, TF, GY.*

### 1.4.1 Multiport C

Le multiport  $C$ , appelé aussi champ  $C$  ( $C$ -field en anglais) est associé à un système de stockage d'énergie pour lequel l'expression de l'énergie stockée est une fonction de plusieurs variables de déplacement. Il est représenté comme sur la figure 13.

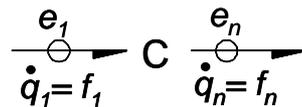


FIG. 13 – *Multiport C.*

L'énergie stockée par un multiport  $C$  sera:

$$E = \int_{t_0}^t \sum_{i=1}^n (e_i f_i) dt = \int_{t_0}^t \sum_{i=1}^n (e_i \dot{q}_i) dt \quad (7)$$

$$= \int_{q_0}^q \sum_{i=1}^n e_i(q) dq_i = \int_{q_0}^q \sum_{i=1}^n e(q) dq = E(q)$$

où:

$$q = \begin{pmatrix} q_1 & \dots & q_n \end{pmatrix}^T \quad (8)$$

$$e = \begin{pmatrix} e_1 & \dots & e_n \end{pmatrix}^T \quad (9)$$

A titre d'exemple, l'énergie stockée par un système thermodynamique chimique ayant  $n$  composants et traduite par l'équation de Gibbs est représentée par un multiport  $C$  (figure 14).

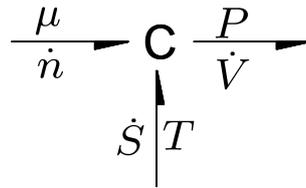


FIG. 14 – Exemple thermodynamique d'un multiport  $C$  qui représente le stockage de l'énergie interne  $U$ .

La loi constitutive du bond graph est l'équation de Gibbs:

$$dU = TdS - PdV + \sum_{i=1}^n \mu_i dn_i \quad (10)$$

Ici les variables de déplacement sont le volume  $V$ , la masse molaire  $n$ , et l'entropie  $S$ . Le signe  $(-)$  devant la pression est traduit par l'orientation de la puissance hydraulique.

#### 1.4.2 Multiport I

Le multiport  $I$  est analogue au multiport capacitif  $C$ . Il est représenté comme sur la figure 15.

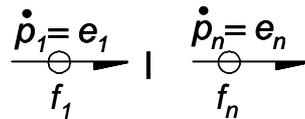


FIG. 15 – Multiport  $I$ .

La loi générique de ce multiport lie le flux  $f$  au moment  $p$ :

$$\begin{aligned} E &= \int_{t_0}^t \sum_{i=1}^n (e_i f_i) dt = \int_{t_0}^t \sum_{i=1}^n (f_i \dot{p}_i) dt = \int_{p_0}^p \sum_{i=1}^n f_i(p) dp_i \\ &= \int_{p_0}^p \sum_{i=1}^n f(p) dp = E(p) \end{aligned} \quad (11)$$

où:

$$p = \begin{pmatrix} p_1 & \dots & p_n \end{pmatrix}^T \quad (12)$$

$$f = \begin{pmatrix} f_1 & \dots & f_n \end{pmatrix}^T \quad (13)$$

### 1.4.3 Multiport mixte IC

Lorsque le système de stockage d'énergie ne peut être décrit comme un multiport  $C$  ou  $I$ , car il est composé de  $n$  ports formant un champ  $C$  et  $m$  ports formant un champ  $I$ , il est dit mixte (fig. 16).

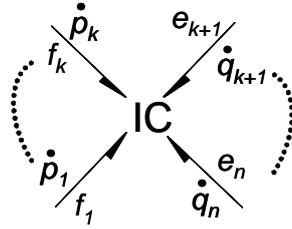


FIG. 16 – Multiport IC.

L'énergie stockée  $E$  est:

$$E = \int_{t_0}^t \sum_{i=1}^n (e_i f_i) dt = \int_{p_0}^p \sum_{i=1}^k (f_i) dp_i = \quad (14)$$

$$\int_{p_0}^p \sum_{i=1}^n f_i(p) dp_i + \int_{q_0}^q \sum_{j=k+1}^n e_j dq_j$$

$p$  est le vecteur du moment et  $q$  le vecteur de déplacement. Les  $k$  premiers ports représentent le champ  $I$ , et les ports de  $k+1$  à  $n$  désignent le champ  $C$ .

Le champ  $IC$  convient surtout à la modélisation des systèmes électromagnétiques caractérisés par les phénomènes magnétiques et mécaniques. La partie électrique est modélisée par le champ d'inertie  $I$  et la partie mécanique par le champ capacitif.

#### 1.4.4 Multiport R

Le champ résistif  $R$  (fig. 17) est un multiport dont la loi générique est une fonction statique (ou algébrique) liant  $n$  efforts et  $n$  flux sans stockage d'énergie. La loi constitutive peut être linéaire (loi d'ohm) ou non linéaire (restriction hydraulique) et est écrite sous forme résistance (fig. 17a),

$$e_i = \Phi_{Ri}(f_1, \dots, f_n), \quad i = 1, 2, \dots, n \quad (15)$$

ou conductance (fig. 17b),

$$f_i = \Phi_{Ri}^{-1}(e_1, \dots, e_n) \quad (16)$$

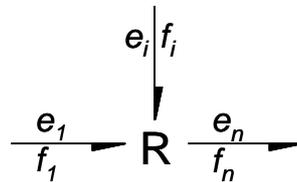


FIG. 17 – Multiport  $R$

#### 1.4.5 Multiport RS

L'élément  $RS$  (fig. 18) modélise tout type de résistance qui génère de la chaleur. Cette structure conserve la puissance et est irréversible.

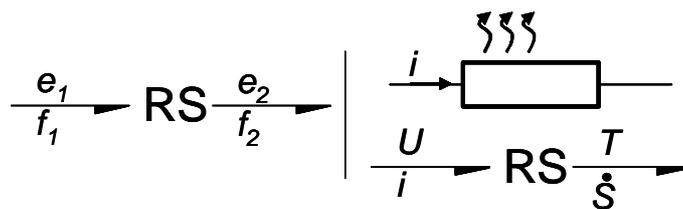


FIG. 18 – Élément Multiport  $RS$

### 1.5 Notion de causalité

Une propriété importante du bond graph par rapport aux représentations graphiques est la possibilité de mettre en évidence les relations de cause à effet au sein du système. Les relations de cause à effet au sein du système sont mises en évidence par le trait causal placé perpendiculairement au lien (fig. 19a). Le trait indique par convention le sens dans lequel

l'effort est connu, le flux étant toujours considéré comme connu dans le sens opposé au trait causal.

Dans notre cas (fig. 19b),  $A$  applique à  $B$  un "effort"  $e$ , qui réagit en envoyant à  $A$  un "flux"  $f$ . L'effort imposé par  $A$  est une donnée pour  $B$ . La notion de causalité en bond graph permet de résoudre le niveau algorithmique de la modélisation en choisissant par exemple des causalités intégrales (la résolution numérique d'une intégration étant plus simple que la dérivation).

Soulignons que la position du trait causal est indépendante du sens de la demi-flèche.

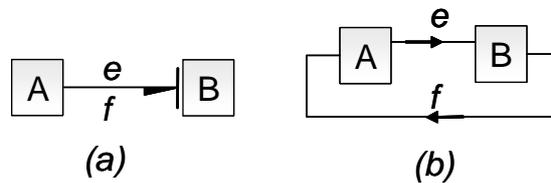


FIG. 19 – *Notion de causalité*

### 1.5.1 Règle d'affectation de la causalité

Les relations de cause à effet associées à leurs schémas bloc ainsi que les règles d'affectation des causalités pour les éléments de bond graph sont présentées par les tableaux 20 et 21. La procédure d'affectation des causalités est effectuée comme suit :

1. Affecter la causalité aux sources,
2. Mettre les éléments  $I$  et  $C$  en causalité intégrale et affecter la causalité obligatoire sur les  $R$  non linéaires et répercuter sur l'environnement. On essaiera toujours d'affecter aux éléments  $C$  et  $I$  une causalité associée à une loi de type intégrale car il est plus aisé et plus robuste d'intégrer que de dériver.
3. Affecter les causalités aux jonctions 0,1,  $TF, GY$ .
4. Affecter les causalités aux éléments  $R$  linéaires en fonction des possibilités restantes.
5. Rechercher les conflits de causalité. En cas de conflit, reprendre en 2 et modifier la causalité sur l'élément  $I$  ou  $C$  origine du conflit. Quelquefois, on est contraint d'ajouter des éléments  $C$  ou  $I$  (pouvant représenter un phénomène physique) pour obtenir une causalité intégrale.

Sur les tableaux 20 et 21 est présenté un résumé des règles de causalité en bond graph.

Élément	Relation	Bloc diagramme
$Sf \left  \frac{e}{f} \right.$	f donné	
$Se \left  \frac{e}{f} \right.$	e donné	
$\begin{array}{c} e_2 \uparrow f_2 \\ \hline e_1 \rightarrow \text{0} \leftarrow e_3 \\ \hline f_1 \leftarrow f_3 \end{array}$	$e_1 = e_2 = e_3$ $f_1 = -(f_2 + f_3)$	
$\begin{array}{c} e_2 \uparrow f_2 \\ \hline e_1 \rightarrow \text{1} \leftarrow e_3 \\ \hline f_1 \leftarrow f_3 \end{array}$	$f_1 = f_2 = f_3$ $e_1 = -(e_2 + e_3)$	
$\begin{array}{c} \frac{e_1}{f_1} \rightarrow \text{TF} \leftarrow \frac{e_2}{f_2} \\ \hline m \end{array}$	$e_1 = m e_2$ $f_2 = m f_1$	
$\begin{array}{c} \frac{e_1}{f_1} \rightarrow \text{TF} \leftarrow \frac{e_2}{f_2} \\ \hline 1/m \end{array}$	$e_2 = e_1 / m$ $f_1 = f_2 / m$	

FIG. 20 – Causalité des éléments bond graph (partie 1)

Élément	Relation	Bloc diagramme
	$e_2 = r f_1$ $e_1 = r f_2$	
	$e = \Phi_R(f)$ $f = \Phi_R^{-1}(e)$	
	$e = \Phi_C^{-1}(\int f dt)$ $f = \frac{d}{dt}(\Phi_C(e))$	
	$f = \Phi_C^{-1}(\int e dt)$ $e = \frac{d}{dt}(\Phi_C(f))$	

FIG. 21 – Causalité des éléments bond graph (partie 2)

1.5.2 Chemin causal

**Définition 1** Un *chemin causal* dans une structure de jonction  $(0,1,TF$  ou  $GY)$  est une alternance de liens et d'éléments de base  $(R, C$  ou  $I)$ , appelés nœuds telle que tous les nœuds ont une causalité complète et correcte, et deux liens du chemin causal ont en un même nœud des orientations causales opposées. Suivant la causalité, la variable traversée est l'effort ou le flux. Pour changer cette variable il faut passer par un élément de jonction  $GY$ , ou par un élément passif  $(I, C$  ou  $R)$ .

**Définition 2** Un *chemin causal* est dit *simple* s'il est parcouru en suivant toujours la même variable. Il existe donc pour une même séquence de liens et de noeuds, deux chemins en suivant soit l'effort soit le flux (fig.22)

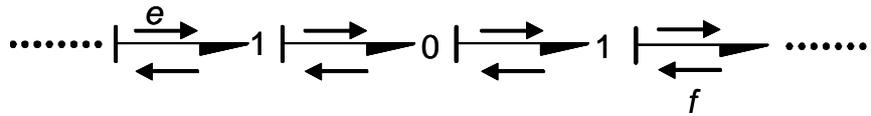


FIG. 22 – Chemin causal simple en suivant l'information "effort"  $\rightarrow$  ou l'information flux  $\leftarrow$

**Définition 3** Un **chemin causal** est **mixte** s'il faut changer de variable lors du parcours. C'est le cas en présence d'un GY, où le chemin est appelé **mixte direct** (fig.23 ) ou lorsqu'il faut traverser un élément R, C ou I, ce qui correspond à un **chemin mixte indirect** (fig.24).

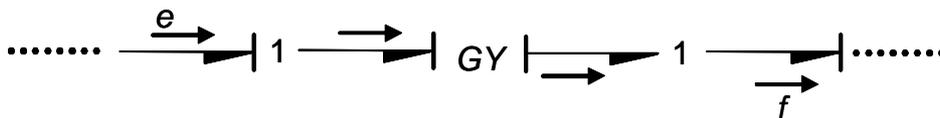


FIG. 23 – Chemin causal mixte direct

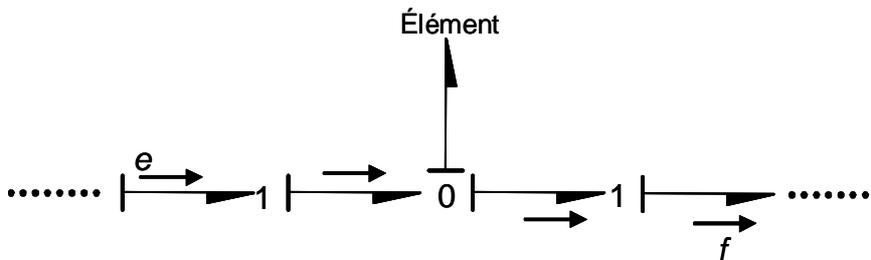


FIG. 24 – Chemin causal mixte indirect

**Définition 4** Une **chaîne d'action** est un chemin causal entre une source et une sortie (qui est représentée par un capteur, détecteur).

**Exemple 4.1.5** Sur la figure 25, à titre d'exemple, les chaînes d'action pour la source  $Sf:f_1$  sont :  $Sf:f_1-Df:f_6 : 1-2-C-2-4-6-R-6-5$ ,  $Sf:f_1-De:e_2 : 1-2-C-2-3$ .

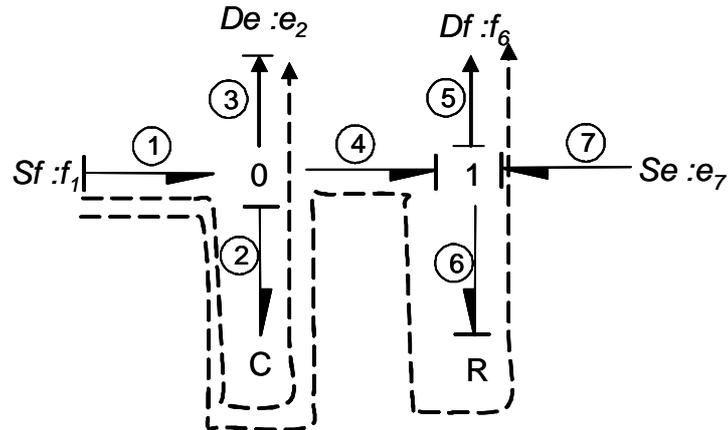


FIG. 25 – Chaîne d'action

**Définition 5** Une *boucle causale* est un chemin causal fermé entre deux éléments de type  $R$ ,  $C$  ou  $I$ , sans lien parcouru en suivant la même variable plus d'une fois (fig.26).

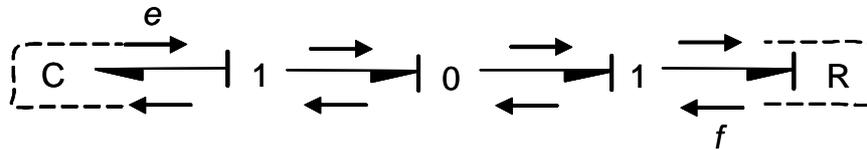


FIG. 26 – Boucle causale

## 1.6 Bond graph bicausal

Généralement, la causalité impose un certain nombre de règles de propagation du flux et de l'effort dans le modèle comme indiqué plus haut. Cette causalité implique que si l'effort est connu dans un sens, alors le flux est connu dans le sens opposé. Ceci n'est vrai que si nous connaissons les valeurs des composants constituant le bond graph. Dans le cas contraire, il est nécessaire de définir d'autres règles d'affectation de causalité. propose une généralisation de l'affectation de la causalité en divisant le trait causal en deux, la moitié supérieure indique le sens de propagation de l'effort et la moitié inférieure le sens de propagation du flux comme le montre la figure 27.

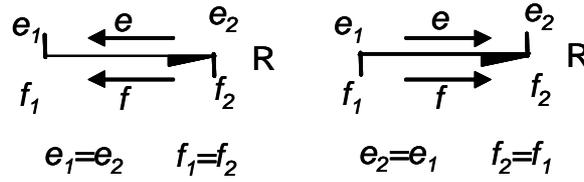


FIG. 27 – Bond graph bicausal

Dans le cas de la figure 27, la causalité de  $R$  indique que les flux et efforts sont entrants (donc connus), ce qui permet de calculer la valeur de la résistance  $R$ .

La causalité de la source d'effort indique que la source d'effort est imposée et que le flux est connu grâce à un capteur de flux par exemple. Il est aussi possible d'affecter une bicausalité pour un élément  $C$ , cependant il faudrait ajouter un capteur d'effort (au niveau de ce composant).

## 1.7 Equations d'état associées au modèle bond graph

Le vecteur d'état, noté  $x$ , est composé des variables d'énergie  $p$  et  $q$  associées aux éléments  $I$  et  $C$ .

$$x = \begin{bmatrix} p_I \\ q_C \end{bmatrix} \quad (17)$$

### 1.7.1 Propriétés des variables d'état

- Le vecteur d'état n'apparaît pas sur le bond graph, mais seulement sa dérivée:

$$\dot{x} = \begin{bmatrix} e_I \\ f_C \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \dot{p}_I \\ \dot{q}_C \end{bmatrix} \quad (18)$$

- La dimension du vecteur d'état  $x$  est égale au nombre d'éléments  $I$  et  $C$  en causalité intégrale,
- Si parmi les  $n$  éléments  $I$  et  $C$ ,  $n_1$  sont en causalité dérivée, alors l'ordre du modèle est égal à  $n - n_1$  et le vecteur  $x$  se décompose en  $x_i$  et  $x_d$  ( $i$  pour "intégrale" et  $d$  pour "dérivée").

### Procédure de génération de la représentation d'état

1. Écrire les lois de structure aux jonctions en tenant compte de la causalité;

2. Écrire les lois associées aux éléments en prenant en compte leur causalité;
3. Expliciter les dérivés des variables d'état en fonction des variables d'état et des entrées.

## 1.8 Éléments de pseudo bond graph

Les bond graphs examinés plus haut utilisent l'effort et le flux dont le produit est la puissance instantanée transférée le long du lien ou à travers le port (élément) du composant du système. Ils permettent de modéliser en principe tout type de phénomène physique. Ils sont appelés vrai bond graph, et ils modélisent parfaitement les systèmes mécaniques, électriques ou hydrauliques.

L'application de la technique du bond graph n'est plus limitée aux problèmes d'engineering mais se répand à d'autres systèmes plus complexes (physiologiques, chimiques..) mettant en jeu les processus de diffusion des solutions et de transformations chimiques. Ces systèmes ne sont pas décrits par des variables de puissance; leur modélisation consiste alors à construire un pseudo bond graph en introduisant des pseudo-liens pour lesquels le produit des variables d'effort et de flux associées à un lien n'a plus la dimension d'une puissance. Toutefois, il faut noter que les propriétés classiques d'un vrai bond graph (classification en éléments  $R$ ,  $C$  et  $I$ , affectation des causalités, convention de signe) restent valables pour un pseudo bond graph.

On trouve les pseudo bond graph dans les domaines suivants:

1. Dans le domaine thermique, on utilise le flux de chaleur et non d'entropie. La raison est que la chaleur est conservée dans les problèmes de conduction (éléments  $R$ ). Le flux d'entropie n'est pas conservé, il augmente avec la baisse de la température.

2. La variable d'effort dans la chimie est le potentiel chimique, qui forme avec le flux molaire un vrai bond graph. Cependant, en cinétique chimique, on utilise quelquefois la concentration au lieu du potentiel chimique.

3. Dans la mécanique des fluides compressibles, il y a des effets thermiques avec conduction. En conséquence, on utilise deux efforts, pression et température, et deux flux, flux de masse et flux d'enthalpie. La raison est de nouveau une plus simple conservation. Le flux de masse est toujours conservé, et le flux d'enthalpie se déduit par un bilan des puissances.

# Bibliographie

- [1] D. AUSLANDER, G. OSTER, AND A. PERLSON. On systems with coupled reaction and diffusion. *Journal of Dynamic Systems, Measurement and Control* pp. 239–248 (September 1972).
- [2] S. AZARBAIJANI AND D. KARNOPP. Bond graph structural models for heat exchangers. *ASME*. **17**, 80.
- [3] A. BAUZA, M. DELGADO, , AND J. THOMA. The use of bond graph in CSTR modelling. pp. 629–633. Proceeding of CISS'94 First Joint Conference of International Simulation Society. (1994).
- [4] M. BAYART, K. SAMANTARAY, B. OULD-BOUAMAMA, K. MEDJAHER, AND B. CONRARD. Fault detection and isolation of smart actuators using bond graphs and external models. *Control Engineering Practice* **13**(2), 159–175 (February 2005).
- [5] A. BELFIORE. “Transport Phenomena for Chemical Reactor Design”. John Wiley Sons (2003).
- [6] B. BIRD AND N. LIGHTFOOT. “Use of Neural Nets for Dynamic Modeling and Control of Chemical Processes”, vol. 14. Comp. chem. engng ed. (1990).
- [7] P. BORNE, G. DAUPHIN-TANGUY, J. RICHARD, F. ROTELLA, AND I. ZAMBETTAKIS. “Modélisation et Identification Des Processus”, vol. 1, 2. Technip, Paris (1992).
- [8] P. BORNE, G. DAUPHIN-TANGUY, J. P. RICHARD, AND F. ROTELLA. “Modélisation et Identification Des Processus”. *Edition Technip*, Paris (1992).
- [9] B. O. BOUAMAMA, K. MEDJAHER, A. SAMANTARAY, AND M. STAROSWIECKI. Supervision of an industrial steam generator. part i: Bond graph modelling. *Control Engineering Practice* **Volume 14**(Issue 1), 71–83 (January 2006).
- [10] P. BREEDVELD. “Physical System Theory in Terms of Bond Graph”. PhD thesis, University of Twente, Nederland. (1984).
- [11] P. BREEDVELD, F. COURENNE, C. JALLUT, B. MASCHKE, AND M. TAYAKOUT. Model of a continus stirred tank reactor using bond graphs formalism. *Procceding 4th Mathmod Vienna* (February 2003).
- [12] S. BRODKEY AND C. HERSHEY. “Transport Phenomena”. McGraw-Hill Book Company (1988).

- 
- [13] E. BRUCE-NAUMAN. “Optimisation and Scaleup Chemical Reactor Design”. McGraw-Hill (2002).
- [14] F. BUSSON. “Les Bond Graphs Multiénergies Pour la Modélisation et la Surveillance En Génie Des Procédés”. PhD thesis, Université des Sciences et Technologies de Lille (2002).
- [15] F. E. CELLIER. “Continuous System Modelling”. Springer Verlag, New York (1991).
- [16] C.HENY, D.SIMANCA, AND M.DELGADO. Pseudo-bond graph model and simulation of a continuous stirred reactor. *Journal Of The Franklin Institute* **Vol 337**(No.2000), 21–42 (December 1999).
- [17] J. CORRIOU. “Commandes Des Procédés”. Lavoisier (1996).
- [18] J. CORRIOU. “Automatique et Procédés Chimiques”. Hermes (2001).
- [19] J. CORRIOU. “Commande de Procédés Chimiques”. Hermes (2003).
- [20] F. COUENNE, C. JALLUT, B. MASCHKE, P. C. BREEDVELD, AND M. TAYAKOUT. Bond graph modelling for chemical reactors. vol. 12, p. 159. *Mathematical and Computer Modelling of Dynamical Systems*. (2006).
- [21] G. DAUPHIN-TANGUY. “Les Bond Graphs”. Hermès Science (2000).
- [22] D.KARNOPP AND S.AZARBAIJANI. Pseudo bond graphs for generalized compartmental models in engineering and physiology. *Journal of the Franklin Institute* **312**(2), 95–108 (August 1981).
- [23] W. EL-OSTA. “Surveillabilité Structurelle et Platitude Pour Le Diagnostic Des Modèles Bond Graph Couplés.” PhD thesis, Ecole Centrale de Lille, France. (2005).
- [24] C. FELIOT. “Modélisation de Systèmes Complexes : Intégration et Formalisation de Modèles”. PhD thesis, Université des Sciences et Technologies de Lille1, Villeneuve D’Ascq (France) (1997).
- [25] A. FOSSARD AND D. NORMAND-CYROT. “Systèmes Non Linéaires : Modélisation-Estimation”. Masson, Paris (1993).
- [26] P. GAWTHROP. Bicausal bond graphs. In “ICBGM’95”, pp. 83–88, Las Vegas, USA (1995).
- [27] P. J. GAWTHROP. Thermal modeling using mixed energy and pseudo bond graphs. *Journal of system and Control engineering* **Vol. 213**, 201–216 (1999).
- [28] G.CHARLES AND J.HILL. “An Introduction to Chemical Engineering Kinetics Reactor Design”. John Wiley Sons (1977).
- [29] D. KARNOPP. Pseudo bond graphs for compressible thermofluid systems. *Trans. ASME J. Dynamic Systems, Measurement and Control*. **101**, 201–204 (1979).
- [30] D. KARNOPP. State variables and pseudo-bond graphs for compressible thermo-fluid systems. *Transactions of ASME, Journal of Dynamic Systems, Measurement and Control* **101**(3), 201–204 (September 1979).

- 
- [31] D. KARNOPP. Bond graphs models for electrochemical energy storage-electrical chemical effects. *Journal of The Franklin Institute* **vol. 327**(No. 6), 983–992 (1990).
- [32] D. KARNOPP, D. MARGOLIS, AND R. ROSENBERG. “Systems Dynamics: A Unified approach”. John Wiley, New York, second ed. (1990).
- [33] D. KARNOPP AND R. ROSENBERG. “System Dynamics: A Unified Approach”. John Wiley, New York (1974).
- [34] A. KAYODE-COKER. “Modeling of Chemical Kinetics and Reactor Design”. Gulf Publishing Company (2001).
- [35] A. KHALED, A. NAKRACHI, AND B. OULD-BOUAMAMA. Generic bond graph procedure for chemical reactions modelling. pp. 73–77, Sofia, BULGARIE (Octobre 2007). International Conference Automatics and Informatics.
- [36] A. KHALED, B. OULD-BOUAMAMA, AND A. NAKRACHI. Generic bond graph procedure for chemical reactors modelling. Beijing, CHINE (Octobre 2006). Computational Engineering in Systems Applications CESA 2006.
- [37] A. KHALED, B. OULD-BOUAMAMA, AND A. NAKRACHI. Integrated model of chemical reactor. Bonn, ALLEMAGNE (Mai 2006). 20th European Conference on Modelling and Simulation, ECMS 2006.
- [38] I. LANDAU. “Identification et Commande Des Systèmes”. Hermès (1988).
- [39] O. LEVENSPIEL. “Chemical Reaction Engineering”. John Wiley Sons, 3ed edition ed. (1999).
- [40] L. JOHN AND J. WYATT. Network representation of reaction-diffusion systems far from equilibrium. *Computer Programs in Biomedicine* **Vol. 8**(Issues 3-4,), 180–195 (September 1978).
- [41] L. LJUNG AND T. SÖDERSTRÖM. “Theory and Practice of Recursive Identification.” MIT Press, Cambridge, Massachusetts (1986).
- [42] J. LOUIS-TYLEE. A bond graph description of u-tube steam generator dynamics. *Journal of the Franklin Institute* **315**(3), 165–178 (March 1983).
- [43] S. A. MACKENZIE, P. J. GAWTHROP, AND R. W. JONES. Modelling chemical processes with pseudo bond graphs. In “Proceedings of the International Conference on Bond Graph Modeling (ICBGM’93)”, pp. 327–332 (1993).
- [44] K. MEDJAHER. “Contribution de L’outil Bond Graph Pour la Conception de Systèmes de Supervision de Processus Industriels”. PhD thesis, Université des Sciences et Technologies de Lille, France. (2005).
- [45] K. MEDJAHER, A. SAMANTARAY, B. OULD-BOUAMAMA, AND M. STAROSWIECKI. Diagnostic bond graphs for online fault detection and isolation. *Simulation Modelling Practice and Theory* (January 2005).

- 
- [46] W. MISSEN, C. MIMS, AND B. SAVILLE. “Chemical Reaction Engineering and Kinetics”. John Wiley (1999).
- [47] A. MUKHERJEE AND A. K. SAMANTARAY. System modelling through bond graph objects on SYMBOLS 2000. In “International Conference on Bond Graph Modeling and Simulation (ICBGM’01)”, vol. 33, pp. 164–170, Phoenix, Arizona (2001). SCS Publishing, Simulation Series.
- [48] F. OSTER. Topological representations of thermodynamic systems II. some elemental subunits for irreversible thermodynamics. *Journal of the Franklin Institute*. **292**(2), 77–92 (August 1971).
- [49] F. OSTER AND M. AUSLANDER. Topological representations of thermodynamic systems II. basic concepts. *Journal of the Franklin Institute*. **292**(1), 1–17 (July 1971).
- [50] G. OSTER AND A. PERLSON. Chemical reaction networks. *IEEE Transaction On Circuits and Systems* **vol. Cas-21, No. 6** (November 1974).
- [51] G. OSTER, A. PERLSON, AND A. KATCHALSKY. Network thermodynamics: Dynamic modelling of biophysical systems. *Quarterly Reviews of Biophysics* **6**, 1–134 (1973).
- [52] B. OULD-BOUAMAMA. Bond graph approach as analysis tool in thermofluid model library conception. *Journal of Franklin Institute*. **340**, 1–23 (2003).
- [53] B. OULD-BOUAMAMA, A. NAKRACHI, AND J. CASSAR. Bond graph model of prevaporation process. *IEEE-SMC, IMACS Multiconference Symposium on Modelling Analysis and Control, CESA98* **vol. 1**, 547–55 (1998).
- [54] B. OULD-BOUAMAMA, A. SAMANTARY, K. MEDJAHER, M. STAROSWIECKI, AND G. DAUPHIN-TANGUY. Model builder using functional and bond graph tools for FDI design. *Control Engineering Practice* **13/7**, 875–89.
- [55] B. OULD BOUAMAMA, M. STAROSWIECKI, G. DAUPHIN-TANGUY, AND A. SAMANTARY. Model builder using functional and bond graph tools for FDI design. *submitted to Control Engineering Practice (CEP) journal* (2002).
- [56] B. OULD-BOUAMAMA, M. STAROSWIECKI, AND A. SAMANTARAY. Software for supervision system design in process engineering industry. *6th IFAC, SAFEPROCESS* pp. 691–695 (29-1 sept 2006).
- [57] B. OULD-BOUAMAMA, M. STAROSWIECKI, A. SAMANTARAY, K. MEDJAHER, AND G. DAUPHIN-TANGUY. Diagnostic bond graphs for online fault detection and isolation. *Simulation Modelling Practice and Theory* **14**, 237–262 (April 2006).
- [58] H. PAYNTER. “Analysis and Design of Engineering Systems”. M.I.T. Press, Cambridge, Mass. (1961).
- [59] A. PERELSON AND J. OSTER. Chemical reaction dynamic, part II: Reaction networks. *Archive for Rational Mechanics and Analysis* **57**, 31–98 (1975).

- 
- [60] V. RANADE. “Computational Flow Modeling for Chemical Reactor Engineering”. Academic Press (2002).
- [61] J. RAWLINGS AND G. EKERDT. “Chemical Reactor Analysis and Design Fundamentals”. Nob hill Publishing (2002).
- [62] T. SÖDERSTRÖM AND P. STOICA. “System Identification”. Prentice Hall, New York (1989).
- [63] M. STAROSWIECKI AND G. COMTET-VARGA. Fault detectability and isolability in algebraic dynamic systems. In “European Control Conference ECC’99”, Karlsruhe (1999). ECC’99.
- [64] M. STAROSWIECKI AND G. CONTET-VERGA. Analytical redundancy relations for fault detection and isolation in algebraic dynamic systems. *Automatica* **37**, 687–699 (2001).
- [65] M. TAGINA. “Application de la Modélisation Bond Graph À la Surveillance Des Systèmes Complexes.” PhD thesis, Université des Sciences et Technologies de Lille, France. (1995).
- [66] M. TAGINA, J. CASSAR, G. DAUPHIN-TANGUY, AND M. STAROSWIECKI. La surveillance d’un système électromécanique en utilisant une approche bond graph. *Congres JTEA* (Nov. 1994).
- [67] J. THOMA. Problèmes thermodynamiques des machines hydrauliques. *Energie Fluide* (1), 61–66 (1975).
- [68] J. THOMA. “Simulation by Bondgraphs. Introduction to a Graphical Method”. Springer-verlag, Berlin Heidelberg (1990).
- [69] J. THOMA. Thermofluid systems by multi-bondgraphs. *Journal of the Franklin Institute* **329**(6), 999–1009 (November 1992).
- [70] J. THOMA. Electric batteries and fuel cells modeled by bondgraphs. *Simulation Practice and Theory* **7**(5-6), 613–622 (15 December 1999).
- [71] J. THOMA AND H. ATLAN. Network thermodynamics with entropy stripping. *Journal of The Franklin Institute* **vol. 303, No. 4** (April 1977).
- [72] J. THOMA, M. DELGADO, R. LAMANNA, AND M. URIA. Simulation of chemical reactor by quasi-bond graph. vol. 25, pp. 321–326. Proceeding of the 1993 International Conference on Bond Graph Modelling and Simulation. (1993).
- [73] J. THOMA AND B. OULD-BOUAMAMA. “Modeling and Simulation in Thermal and Chemical Engineering”. Springer engineering edition (1999).
- [74] P. TRAMBOUZE. “Chemical Reactors from Design to Operation”. 2004 (Technip Editions).
- [75] J. VIDAL. “Thermodynamique : Les Principes de la Thermodynamique et Les Fonctions Représentatives.” Technip (1997).
- [76] J. VILLERMAUX. “Génie de la Réaction Chimique : Conception et Fonctionnement Des Réacteurs”. Tec Doc Lavoisier (1993).

- [77] Y.MAR, S.HUANG, AND K.TIONG. Modeling of the formation of RuO<sub>2</sub> thin from Ru(C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub> by metal-organic chemical vapor decomposition. *Thin Solid Films* **Vol 258**, 104–109 (1995).

# CONTRIBUTION DE L'OUTIL BOND GRAPH POUR LA MODÉLISATION DES RÉACTEURS CHIMIQUES EN VUE DE LEUR SUPERVISION

Un processus chimique est le siège de phénomènes de transformations chimiques et/ou biochimiques, thermodynamiques et hydrauliques. Ce type de processus est généralement un procédé polluant et à risque. Ils nécessitent alors pour leur pilotage, analyse et conception de système de surveillance, des modèles précis, à caractère multidisciplinaire et unifié.

L'objectif de cette thèse est le développement d'une approche générique à l'aide des bond graphs pour la modélisation des réacteurs chimiques afin d'améliorer la conception et la supervision des processus chimiques. Dans ce domaine, un certain nombre de travaux a été développé et validé par des applications réelles et par un outil logiciel pour l'informatisation des procédures de génération des modèles et algorithmes de détection et localisation de défaillances.

Les modèles bond graph concernés par les travaux existants mettent en œuvre une seule énergie (systèmes fluidiques) puis deux énergies (systèmes thermofluides). L'extension de ces résultats de recherche à des procédés chimiques représente un intérêt scientifique innovant. En effet, les phénomènes chimiques introduisent une complexité supplémentaire aux procédés énergétiques par l'adjonction des phénomènes de transformation de la matière.

Sur le plan théorique, il s'agit alors de développer des modèles bond graphs génériques de réacteurs et de phénomènes chimiques. Ces modèles sous forme d'une base de bibliothèque seront utilisés pour la construction des modèles formels dynamiques des procédés chimiques complexes. Une contribution à la génération automatique de relations de redondance analytique formelles pour l'analyse de la surveillabilité de ces systèmes est développée. La surveillance des procédés chimiques du point de vue de la protection de l'environnement et du personnel (contrôle de l'apparition de réactions secondaires qui mènent au risque d'explosion par exemple) constitue une thématique d'actualité.

**Mots-clés:** Réacteurs chimiques, bond graph, modélisation, surveillance, conception.

---

## CONTRIBUTION OF BOND GRAPH MODELLING FOR SUPERVISION DESIGN OF CHEMICAL REACTORS

A chemical process is characterized by transformation phenomena biochemical, thermodynamic and hydraulic. This kind of process is polluting and with risk. For their control, analysis and fault detection and isolation (FDI) system design, accurate and unified language models are needed.

The aim of the Ph.D thesis is to develop a generic approach using bond graph tool for modelling of chemical reactors to improve supervision design of chemical processes. In this area, several research works have been developed and validated by industrial applications and software tools for models and FDI algorithms generation. But, the bond graphs models developed concern only one or two energies (thermofluid systems) involved in such systems. Extension of obtained research results to chemical processes presents an innovative interest. Indeed, the chemical processes add a supplementary complexity to energetic systems by introducing matter transformation phenomena.

From a theoretical point of view, the presented research develops generic bond graph models of reactors and chemical phenomena. Obtained models under library data are used to construct formal dynamic models for chemical industry. Moreover, a contribution to automatic generation of formal Analytical Redundancy Relations for Structural monitorability analysis is developed. For the protection of the environment and the personnel (such as control of secondary chemical reaction appearance for instance leading to explosion) FDI of chemical processes represents an innovative and actual topic.

**Key Words:** Chemical reactor, process engineering, bond graph, supervision.