

## Contrôle d'un réacteur industriel multi-étagé à lits fixes catalytiques

### [ Control of an industrial multi-staged catalyst fixed bed reactor ]

*Chaouki Bendjaouahdou<sup>1</sup> and Mohamed Hadi Bendjaouahdou<sup>2</sup>*

<sup>1</sup>Département de Chimie Industrielle, Université Med Khider-Biskra, Algeria

<sup>2</sup>Département de mathématique, Université Mentouri, Constantine, Algeria

Copyright © 2014 ISSR Journals. This is an open access article distributed under the *Creative Commons Attribution License*, which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

**ABSTRACT:** In this paper, we study the control of a fixed catalyst multi-staged reactor. This reactor is an industrial one, used for sulphur dioxide oxidation. The aim of this work is to determine the best control strategy between one whom consist to control the production capacity of the reactor and another, more usual, whom consist to control the maximal catalyst temperature in order to avoid the occurrence of hot spot inside the catalyst. Command algorithm used is the generalised predictive control (GPC) with on line process identification. The results obtained by numerical simulation show that the control of the production capacity is possible and also preferable, since the reactor is strongly influenced by inlet reagent concentrations and, on the other hand, it presents a notable thermal stability conferred by the thermal inertia due to the important catalyst mass.

**KEYWORDS:** Sulfur dioxide, reactor, catalyst, fixed bed, control, GPC algorithm.

**RESUME:** Dans cet article, on étudie le contrôle d'un réacteur multi-étagé à lits fixes catalytiques. Le réacteur étudié est de type industriel et constitue le siège de la réaction d'oxydation du dioxyde de soufre. Le but de ce travail est de déterminer la meilleure stratégie de contrôle entre celle qui consiste à contrôler la capacité de production du réacteur et celle, plus habituelle, qui consiste à contrôler la température maximale du catalyseur en vue d'éviter la formation de points chauds dans la masse catalytique. L'algorithme de contrôle utilisé est celui à commande prédictive généralisée (GPC) avec identification en ligne du procédé. Les résultats obtenus par simulation numérique montrent que le contrôle de la capacité de production est non seulement possible, mais aussi préférable, compte tenu du fait que le réacteur est fortement influencé par les perturbations des teneurs en réactifs et que, d'autre part, il présente une grande stabilité thermique conférée par l'inertie thermique de l'importante masse catalytique.

**MOTS-CLEFS:** Dioxyde de soufre, réacteur, catalyseur, lit fixe, contrôle, algorithme GPC.

## 1 INTRODUCTION

Les réacteurs à lit fixes catalytiques sont très utilisés dans l'industrie chimique pour la fabrication de produits chimiques très utiles et très variés [1-2]. Dans cette étude, on s'intéresse à un type de réacteur très utilisé dans l'industrie chimique, à savoir : le réacteur catalytique à lit fixe adiabatique. Le réacteur étudié est le siège d'une réaction chimique fortement exothermique. Cette réaction consiste en l'oxydation de l'anhydride sulfureux (SO<sub>2</sub>) en anhydride sulfurique (SO<sub>3</sub>). L'anhydride sulfurique ainsi produit va servir de matière première pour la fabrication de l'acide sulfurique.

Afin d'atteindre des taux de conversion élevé, l'utilisation d'une cascade de lit catalytique s'impose. En conséquence, le réacteur industriel sera constitué, en général, de trois à quatre lits catalytiques fixes disposés en série [3]. Habituellement le contrôle d'un tel réacteur a pour but surtout d'éviter l'apparition d'un point chaud dans la masse de catalyseur constitutive du lit catalytique et cela par l'utilisation d'une boucle de contrôle, spécifique à ce dernier, qui aura pour but de stabiliser la température maximale catalytique à une valeur préalablement connue et fixée [4].

Dans cette étude, on va exploiter une nouvelle approche, consistant non pas à contrôler la température maximale catalytique, mais à contrôler la capacité de production de chaque étage. Cette dernière approche serait acceptable si on parvient à démontrer que le lit catalytique est thermiquement très stable par rapport aux perturbations possibles. Dans ce

but, on va d'abord intégrer le modèle dynamique du réacteur, et cela en tenant compte de son point de fonctionnement nominal [3]. Par la suite, on appliquera l'algorithme GPC au modèle dynamique du procédé.

## 2 REACTEUR CATALYTIQUE MULTI-ÉTAGE

Globalement, le réacteur industriel est constitué de quatre étages catalytiques disposés en série. Ces quatre étages catalytiques sont contenus dans une enceinte cylindrique de 8,6 mètres de diamètre. Chaque étage catalytique est formé d'un empilement compact et immobile de grains catalytiques. Les quatre étages catalytiques sont agencés d'une façon verticale donnant ainsi au réacteur une allure d'une grande colonne cylindrique. Le mélange réactionnel gazeux traverse les quatre étages catalytiques du haut vers le bas tel que l'illustre la figure 1 [3]. Chaque étage catalytique possède son propre point de fonctionnement nominal, spécifié par des paramètres physiques relatifs au mélange réactionnel (température du gaz à l'entrée de chaque étage qui doit être bien déterminée) et au lit catalytique (granulométrie et la masse du catalyseur doivent être rigoureusement prédéfinies et calculées). Afin de suivre l'adiabatique de conversion et donc d'atteindre le taux de conversion escompté à la sortie du réacteur, il est indispensable de refroidir le mélange réactionnel à la sortie de chaque étage catalytique. Un tel refroidissement est assuré, tel que le montre la figure 1, par des échangeurs de chaleur disposés après chaque lit. L'adiabaticité de chaque étage est réalisée en recouvrant sa paroi externe par une couche d'un isolant thermique. La paroi interne étant, alors isolée par une couche de briques réfractaires [4].

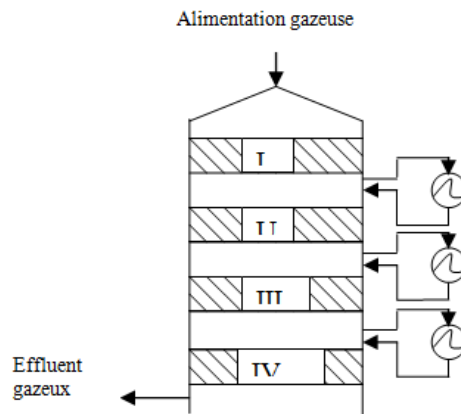


Fig. 1. réacteur catalytique étagé d'oxydation du SO2 avec refroidissements intermédiaires [3].

### 2.1 CARACTERISTIQUES DU CATALYSEUR

Pour réaliser l'oxydation de l'anhydride sulfureux (SO<sub>2</sub>), on utilise des catalyseurs à base de pentoxyde de vanadium (V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>). Le catalyseur se présente sous forme de granulés dont la teneur en pentoxyde de vanadium varie entre 6 et 8 % en moyenne [5]. Le catalyseur n'est actif que dans une certaine fourchette de température; celle-ci va de 400 à 650 °C [5]. A partir de 650 °C, le catalyseur employé commencera par perdre ses qualités catalytiques avant de se dégrader d'une façon irréversible [6].

### 2.2 EXPRESSION DE LA CINETIQUE REACTIONNELLE

La réaction d'oxydation de l'anhydride sulfureux est fortement exothermique. La variation d'enthalpie associée à cette réaction avoisine 8.8910<sup>4</sup> J/mole [3] ; elle varie très peu dans l'intervalle de température allant de 400 à 600 °C. La cinétique de l'oxydation du dioxyde de soufre a été largement étudiée [6]. Plusieurs expressions semi-empiriques de la vitesse de la réaction ont été établies. Pour notre étude on a utilisé l'expression de Calderbank basée sur le concept de Langmuir-Hinshelwood et sur l'observation que la réaction entre le SO<sub>2</sub> adsorbé et l'oxygène constitue l'étape limitante [7] :

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

avec

$$K_1 = e^{[12.16 - (5473/T)]}; K_2 = e^{[-9.953 + (8619/T)]}$$

$$K_3 = e^{[-71.745 + (525265/T)]};$$

$$K_p = e^{[(11300/T) - 10.68]}$$

Dans l'expression de la cinétique, T représente la température de la phase solide catalytique et r est exprimée en kmole de SO<sub>2</sub>/(kg de catalyseur.heure).

### 2.3 POINT DE FONCTIONNEMENT NOMINAL DU REACTEUR

La composition molaire moyenne du mélange réactionnel qu'on a considéré dans notre étude est comme suit [5] :

$N_2$  : 79 % ,  $O_2$  : 11 % ,  $SO_2$  : 10 % . La température d'alimentation du premier étage catalytique doit être impérativement supérieure à 430 °C. Les valeurs nominales des paramètres de fonctionnement du réacteur sont tels que [3] :

$$L = 0,48 \text{ m} ; D = 8,6 \text{ m} ; S = 568 \text{ m}^{-1} , \epsilon_c = 0,5 ; \rho_u = 620 \text{ kg/m}^3$$

$$n_g = 47.65 \text{ Kmole m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$$

$$\lambda_e = 0,465 \text{ W.m}^{-2} \text{ K}^{-1}; \alpha = 151 \text{ W.m}^{-1}\text{K}^{-1}$$

$$\Delta H = 8.89 \cdot 10^4 \text{ KJ/ Kmole}$$

$$C_{p\text{seff}} = 2.1 \text{ kJ. Kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}; d_p = 1.8 \text{ mm}$$

$$P_T = 1, 2 \text{ atm}$$

### 2.4 MODELE DYNAMIQUE DU REACTEUR

Un modèle uni-dimensionnel a été employé pour simuler le comportement dynamique du réacteur. Dans ce modèle dynamique, seul les gradients axiaux des grandeurs physiques (température et concentration) ont été pris en considération ; les gradients radiaux ont été négligés [3]. En outre, à l'échelle du grain catalytique, il a été supposé une température et une concentration uniforme. En tenant compte de toutes ces hypothèses, le modèle dynamique est comme suit [3] :

$$n_g \cdot C_{pg} \cdot \frac{\partial T_g}{\partial x} + \alpha \cdot S \cdot (T_g - T_k) = 0 \quad (1)$$

$$\lambda_e \cdot \frac{\partial^2 T_k}{\partial x^2} - \rho_u \cdot C_{ps} \cdot \frac{\partial T_k}{\partial t} + \alpha \cdot S \cdot (T_g - T_k) + \Delta H \cdot r \cdot \rho_u = 0 \quad (2)$$

$$n_g \frac{\partial C_i}{\partial x} + r_i \cdot \rho_u = 0 \quad (i = 1, 2, 3) \quad (3)$$

#### 2.4.1 CONDITIONS AUX LIMITES ET CONDITIONS INITIALES

- *Conditions initiales*

On a considéré dans notre étude que

$$T_k(x, t) = T_g(x, t) = T(x) \quad (0 \leq x \leq L).$$

$T(x)$  est une distribution initiale de la température à travers le lit catalytique. On a supposé que le réacteur démarrait à partir d'un état froid (démarrage à froid), car dans la pratique, un tel démarrage est très utilisé. Dans le démarrage à froid, la masse catalytique est à la température du milieu ambiant. Pour que le catalyseur devienne actif, il est impératif de préchauffer celui-ci, avec de l'air chaud, jusqu'à une température supérieure à 400 °C. La fonction  $T(x)$  s'identifiera alors à une fonction constante, et ceci à travers tout le lit catalytique. Dans cette présente étude on a posé que

$$T(x) = 460 \text{ °C} \quad (0 \leq x \leq L).$$

- *Conditions aux limites*

Les conditions aux limites concernent les deux extrémités du lit catalytique, spécifiés par leurs abscisses  $x = 0$  et  $x = L$ .

i) Pour  $x = 0$  on a

$$C_1(0, t) = C_{1in}(t) ; C_2(0, t) = C_{2in}(t)$$

$$C_3(0, t) = 0$$

$$\lambda_e \frac{\partial T_k}{\partial x} = (1 - \epsilon_c) \cdot \alpha \cdot [T_k(0, t) - T_{gin}(t)]$$

$$T_g(0, t) = T_{gin}(t)$$

ii) Pour  $x = L$  on a

$$n_g \cdot C_{pg} \cdot [T_g(L, t) - T_{gout}(t)] = (1 - \epsilon_c) \cdot \alpha \cdot [T_{gout} - T_k(L, t)]$$

$$\frac{\partial T_k}{\partial x} = 0$$

$$T_g(L, t) = T_{gout}(t)$$

## 2.5 RESOLUTION DU MODELE DYNAMIQUE

Les équations (1) et (3) sont des problèmes différentiels du type de CAUCHY, donc facilement intégrables par la méthode de RUNGE-KUTTA du quatrième ordre [8]. L'équation (2) étant un problème différentiel du type aux limites, en conséquence, cette équation a été résolue par la méthode implicite de CRANK- NICOLSON [9] avec un facteur d'implicité ('implicitness factor') égal à 1/2.

## 3 ALGORITHME DE CONTROLE GPC

L'objectif de la loi de commande GPC ('Generalised Predictive Control') est de calculer à chaque instant d'échantillonnage  $(t)$ , une grandeur de commande  $u(t)$  dont le but sera celui de rapprocher les signaux de sorties futures  $y(t+j)$  ( $j=1, N_2$ ) autant que possible des signaux de consigne  $w(t+j)$  ( $j=1, N_2$ ) [8]. La grandeur de commande est calculée de façon à minimiser le critère quadratique suivant [8] :

$$j=N_2, j=N_2$$

$$J = \sum_{j=N_2} [y(t+j)-w(t+j)]^2 + \sum \lambda(j) \cdot [\Delta u(t+j-1)]^2$$

$$j=N_1, j=N_1$$

$$\text{avec : } \Delta u(t) = u(t) - u(t-1)$$

A partir de l'expression du critère J, il apparaît clairement que l'objectif de la loi de commande GPC est double. D'une part, la loi de commande minimise, au sens des moindres carrés, la somme étendue à tout l'horizon de prédiction ( $j=1, N_2$ ) des erreurs futures ; et d'autre part, cet objectif sera réalisé de façon à minimiser la consommation d'énergie. Le vecteur de pondération  $\lambda(j)$  a pour but, justement, de pondérer tout excès d'activité du signal de commande, et ceci par un choix à priori et judicieux des valeurs de ces composantes. En général, pour simplifier, on pose que  $\lambda(j) = \lambda$  et  $\lambda$  sera appelé, en l'occurrence, coefficient de pondération de la commande [10]. Le coefficient  $\lambda$  constitue, en plus des paramètres  $N_1$  et  $N_2$ , un important paramètre de conception de la l'algorithme de contrôle GPC.

## 4 RESULTATS ET DISCUSSION

Dans cette présente étude, on s'est intéressé seulement au premier étage catalytique du réacteur. Mais, il est évident que les résultats trouvés sont transposables à tous les autres lits catalytiques. Le réacteur est soumis à des perturbations de natures diverses, se matérialisant par des fluctuations aléatoires des paramètres opératoires tels que les fractions molaires des réactifs. Le contrôle de l'étage catalytique aura pour but de prévenir tout emballement ou extinction de la réaction chimique et donc d'éviter l'apparition de zones chaudes catalytiques susceptibles de causer une baisse notable de l'activité catalytique ou de provoquer la détérioration du catalyseur. Une stratégie de contrôle très utilisée consiste à réguler la température maximale catalytique. Dans cette étude, on appliquera cette stratégie en utilisant comme grandeur de commande le débit volumique traversant le lit catalytique. De plus, nous étudierons une autre stratégie qui consiste à contrôler directement la capacité de production du réacteur, en utilisant, également, le débit volumique comme grandeur de commande. Les perturbations considérées dans cette étude sont principalement dues aux variations des concentrations (fractions molaires) des réactifs dans l'alimentation du réacteur.

### 4.1 LIT CATALYTIQUE EN BOUCLE OUVERTE

La figure 2 illustre le fait que malgré l'occurrence d'une intense perturbation relative à la teneur en dioxyde de soufre ( $C_{1in}$ ), la température maximale catalytique ne dépasse pas 650 °C. On constate, surtout que le lit catalytique ne présente aucun emballement dangereux de la température.

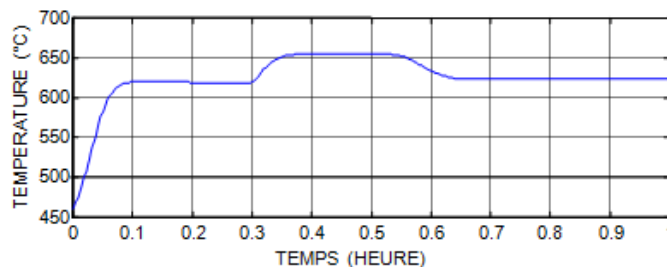


Fig. 2. Injection d'une perturbation impulsion sur  $C_{1in}$  ( $C_{1in} = 0.1$ ), A 0.3 heure, durant: 10 minutes valant +20 %

La figure 3 montre que malgré l'occurrence d'une perturbation d'une intensité importante relative à la teneur en dioxyde de soufre ; la température maximale catalytique subit une faible diminution. Par contre cette perturbation provoque une

importante diminution de la capacité de production. Celle-ci passe, alors, de 15 à 12,3 tonnes de SO<sub>3</sub> par heure. Cette baisse très importante du rendement du lit catalytique dure à peu près autant que dure la perturbation.

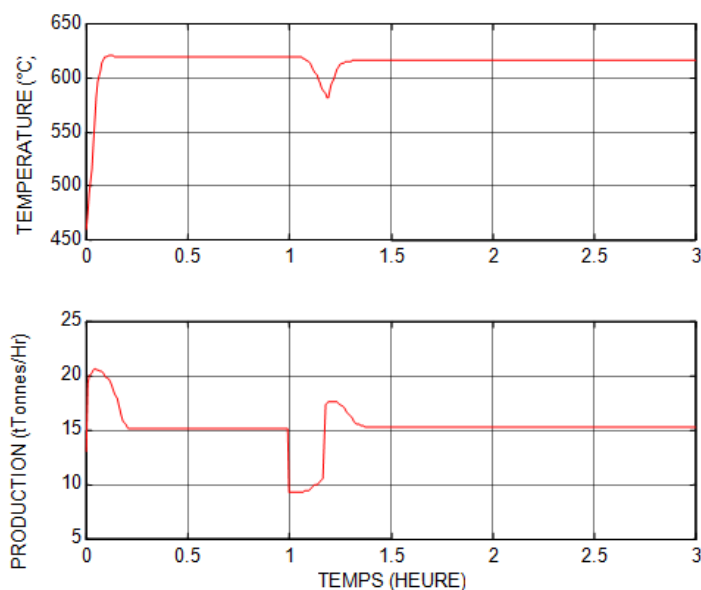


Fig. 3. Injection d'une perturbation impulsion sur C1in (C1in =0.1), à 1 heure, valant -20%, durant : 10 minutes

#### 4.2 LIT CATALYTIQUE EN BOUCLE FERMEE

Pour le contrôle de la température maximale de la phase solide on utilise des thermocouples, insérés dans le lit catalytique, le long du sens d'écoulement du mélange réactionnel. Dans le cas où on désire contrôler la capacité de production du lit catalytique, on utilisera un analyseur de la teneur d'oxygène (analyseur de composition) comme capteur, car la teneur ou taux de conversion en oxygène est liée directement à la capacité de production en SO<sub>3</sub>.

Le contrôle de l'étage catalytique a été effectué en utilisant l'algorithme de la commande prédictive généralisée (GPC) [10] et avec une période d'échantillonnage égale à vingt secondes. L'identification en ligne du procédé a été effectuée en utilisant l'algorithme des moindres carrés récursifs.

La figure 4 illustre le cas où le contrôle de la température est appliqué (pour une consigne valant 610 °C) avec occurrence d'une forte perturbation (-20 %) relative à la teneur en dioxyde de soufre. On constate alors, que l'algorithme GPC arrive à stabiliser la température à sa valeur de consigne. Malheureusement, comme le montre la figure 5, parallèlement à la régulation de la température, la capacité de production de l'étage catalytique diminue fortement, et ceci en conséquence de l'action du contrôle.

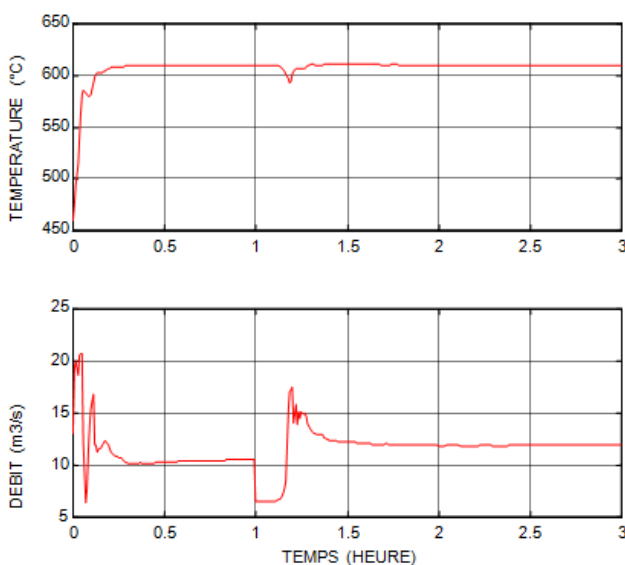
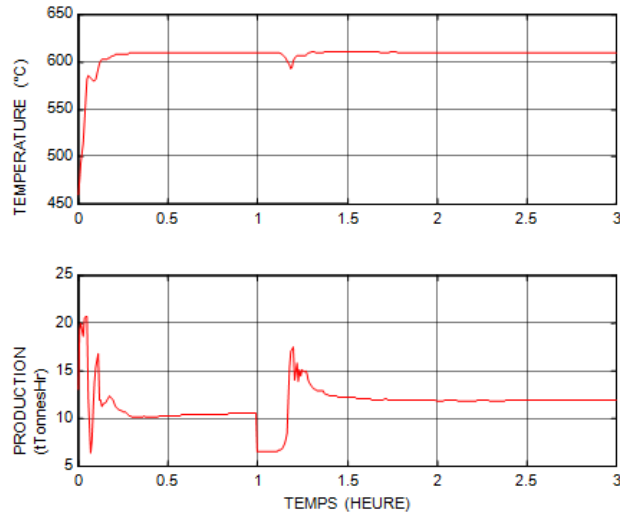
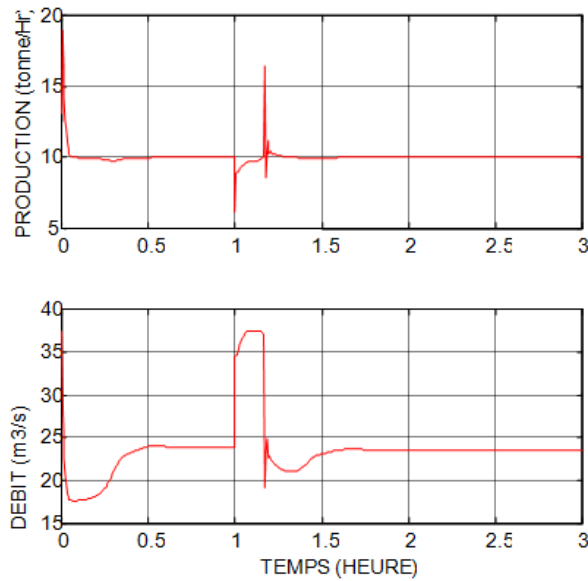


Fig. 4. Régulation de la température à 610 °C Injection d'une perturbation impulsion sur C1in (C1in =0.1) à 1 heure, valant -20 %, durant 10 minutes



**Fig. 5. Régulation de la température à 610 °C**  
*Injection d'une perturbation impulsion sur  $C_{1in}$  ( $C_{1in}=0.1$ ) à 1 heure, valant -20 %, durant 10 minutes*

La figure 6 montre que malgré l'occurrence d'une très forte perturbation (-20 % sur  $C_{1in}$ ), l'algorithme GPC réussit à contrer cette perturbation en faisant en sorte à ramener rapidement la production d'une valeur proche de 5 tonnes de  $SO_3$ /heure à presque 10 tonnes/heure, et ceci pendant toute la durée d'application de la perturbation. Donc l'action de contrôle GPC arrive à minimiser la perte de production.



**Fig. 6. Régulation de la température à 610 °C** *Injection d'une perturbation impulsion sur  $C_{1in}$  ( $C_{1in}=0.1$ ) à 1 heure, valant -20 %, durant 10 minutes*

## 5 CONCLUSION

Sous réserve que la température du mélange réactionnel entrant dans le premier lit catalytique soit très bien contrôlée et donc stabilisée (ce qui est généralement le cas dans la pratique industrielle) ; chaque étage catalytique, constitutif du réacteur, présente une stabilité thermique notable. Cette stabilité se traduit essentiellement par l'absence de tout emballement ou extinction de la réaction chimique sous l'effet des perturbations. Les deux stratégies de contrôle qu'on a analysées, en l'occurrence : contrôle de la température maximale catalytique et contrôle de la capacité de production, ont donné des résultats très acceptables. Etant donné que la capacité de production de l'étage fluctue considérablement sous l'effet des perturbations ; cette étude préconise fortement le recours au contrôle de la capacité de production de l'étage catalytique. En effet, cette stratégie de contrôle permet de stabiliser la production de chaque étage, et donc de l'ensemble du réacteur, en s'opposant efficacement aux perturbations.

**6 NOMENCLATURE**

- $C_i$  : fraction molaire d'un constituant  $i$   
 $C_{pg}$  : chaleur spécifique molaire du gaz ( $J/mole.K^{-1}$ )  
 $C_{ps}$  : chaleur spécifique massique du solide catalytique ( $(J/mole.K^{-1})$ )  
 $D$  : diamètre du lit catalytique.  
 $n_g$  : débit molaire superficiel total d'alimentation ( $mole/m^2.s^{-1}$ ).  
 $\alpha$  : coefficient de transfert thermique, par convection, entre le gaz et le solide catalytique ( $W/m^2.K$ ).  
 $K_1, K_2, K_3$  : constantes de vitesse de la réaction.  
 $K_p$  : constante d'équilibre chimique.  
 $L$  : épaisseur ou profondeur du lit catalytique (m).  
 $P_i$  : pression partielle d'un constituant  $i$  (atm).  
 $P_T$  : pression totale opératoire (atm).  
 $r$  : vitesse de la réaction chimique ( $mole/kg.s^{-1}$ ).  
 $S$  : surface spécifique du catalyseur ( $m^2/m^3$ ).  
 $T_g$  : température de la phase gazeuse (K).  
 $T_k$  : température de la phase solide catalytique (K).  
 $\lambda_e$  : conductivité thermique effective du solide catalytique ( $Watt.m^{-1}.K^{-1}$ ).  
 $\rho_u$  : masse volumique du lit catalytique ( $Kg/m^3$ ).  
 $\Delta H$  : variation d'enthalpie accompagnant la réaction chimique ( $J/mole$ ).  
 $\epsilon_c$  : porosité du lit catalytique (%).  
 $t$  : variable de temps (s).  
 $x$  : variable d'espace comptée à partir de l'entrée du lit catalytique (m).  
 $N_1$  : valeur minimale de l'intervalle de prédiction du signal de sortie.  
 $N_2$  : valeur maximale de l'intervalle de prédiction du signal de sortie.  
 $j$  : indice de prédiction.  
 $\Delta u(t)$  : incrément du signal de commande à l'instant courant  $t$ .

**7 INDICES**

- 1 : dioxyde de soufre ( $SO_2$ ).  
2 : oxygène moléculaire ( $O_2$ ).  
3 : trioxyde de soufre ( $SO_3$ ).  
4 : azote moléculaire ( $N_2$ ).  
in : entrée du lit catalytique.  
out : sortie du lit catalytique.

**REFERENCES**

- [1] G. Kolios, J. Frauhammer, G. Eigenberger, "Autothermal fixed bed reactor concepts", *Chemical Engineering Science*. 55, 5945-5967. 2000.  
[2] K. M. Vanden Bussche, S. N. Neophytides, I. A. Zolotarski, G. F. Froment, "Modelling and simulation of the reversed flow operation of a fixed bed reactor for methanol synthesis", *Chemical Engineering Science* 48, 3335-3345, 1993.  
[3] K. GOSIEWSKI, "Dynamic modeling of industrial  $SO_2$  oxidation reactors Part I. Model of 'hot' and 'cold' start-ups of the plant", *Chemical Engineering and Processing* 32, 111-129, 1993.  
[4] TRAMBOUZE P, VAN LANDEGHEM H, WAUQUIER J. P., *Les réacteurs chimiques conception /calcul / mise en œuvre, collection : science et technique du pétrole " N°26. Éditions technip, 1984.*  
[5] VIDON B, *Calcul des réacteurs catalytiques production d'anhydride sulfurique, encyclopédie : technique de l'ingénieur (J4030-1, J4030-8).*  
[6] VILLERMAUX J, *Génie de la réaction chimique, conception et fonctionnement des réacteurs. Technique et documentation, Éditions Lavoisier, 1995.*  
[7] FROMENT G. F., BISCHOFF K. B., *chemical reactor analysis and design, 2<sup>nd</sup> edition WILEY, New York, 2002.*  
[8] FINALYSON B. A, *Introduction to chemical engineering computing, Wiley Interscience, 2006.*  
[9] NECATI ÖZÜKS M, *Heat conduction, JOHN WILEY & SONS, 1979.*  
[10] D.W.CLARKE, C. MOHTADI and P. S.TUFFS. "Generalized predictive control-part I, the basic algorithm, *Automatica*",23(2),137-148,1987.