

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Discipline ou spécialité :

Génie des Procédés et de l'Environnement

Présentée et soutenue par :

M. ANTOINE AUBIN

le vendredi 27 juin 2014

Titre :

OPTIMISATION DES OPERATIONS DE SECHAGE DANS LA CHAINE DE FABRICATION DU PVC EN POUDRE. EXPERIMENTATION, SIMULATION, MODELISATION.

Ecole doctorale :

Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés (MEGeP)

Unité de recherche :

Laboratoire de Génie Chimique (L.G.C.)

Directeur(s) de Thèse :

M. MEHRDJI HEMATI

M. RENAUD ANSART

Rapporteurs :

M. KHASHAYAR SALEH, UNIVERSITE DE TECHNOLOGIE DE COMPIEGNE

M. YANN ROGAUME, UNIVERSITE NANCY 1

Membre(s) du jury :

M. OLIVIER SIMONIN, INP TOULOUSE, Président

M. MEHRDJI HEMATI, INP TOULOUSE, Membre

"L'homme n'est pas fait pour construire des murs
mais pour construire des ponts."

Lao Tseu

Remerciements

En premier lieu je tiens à remercier *Mehrdji Hemati*, mon directeur de thèse, pour son investissement constant au cours de ces quatre années. Outre les connaissances qu'il m'a transmises, travailler à ses côtés m'a permis d'évoluer tant sur le plan personnel que sur le plan professionnel. La qualité de ses conseils, de ses encouragement, et, quand il le fallait, de ses reproches, m'ont permis d'aller au bout de cette aventure.

Un énorme merci aussi à *Renaud Ansart*, qui est arrivé dans ce projet un peu en retard, mais qui m'a apporté une autre vision des choses, tout en me formant pour combler mes lacunes sur le plan hydrodynamique. Ses encouragements m'ont permis de garder la tête hors de l'eau pendant les moments les plus compliqués.

Je tiens aussi à remercier *Thierry Lasuye* et *Marc Branly* pour m'avoir fait confiance en me confiant ce projet, ainsi que pour leur patience et leur expertise. J'en profite pour remercier aussi tout le personnel d'INEOS ChlorVinyls, notamment *Annie Culo* et *Christophe Dievart* ainsi que tout le personnel du service Recherche et Analyse.

Un grand merci aux membres du Jury, mes rapporteurs *Kashayar Saleh* et *Yann Rogaume*, et le président du jury *Olivier Simonin*, pour le temps passer à décortiquer mon manuscrit, ainsi que pour la discussion pendant la soutenance. J'ai grandement apprécié leurs analyses ainsi que leurs encouragements pour la suite de ma carrière.

Comment ne pas remercier l'ensemble du personnel du LGC ? Que ce soit les techniciens, en particulier *Patrick Tyack*, *Michel Molinier*, *Etienne Prévot*, et *Ignace Coghe*, pour le temps passé pour faire fonctionner mes manips ou pour concevoir les différents éléments, ou encore le personnel administratif : *Danièle Bouscary*, *Claudine Lorenzo*, *Maria Escobar*, et *Christine Taurines*, qui m'ont grandement facilité la tache en me permettant de me concentrer exclusivement sur mon travail de recherche. Et un grand merci à *Alain Philippe* qui s'efforce de maintenir une très bonne ambiance au sein du laboratoire, et qui prend soin de tous les doctorant(e)s (même si j'attends toujours l'invitation à manger !).

Je remercie également l'ensemble des enseignants - chercheurs du LGC Rangueil et de l'Université Paul Sabatier, en particulier *Yannick Hallez*, *Clémence Coestier*, *Mathieu Gibilaro*, et *Isabelle Hallery* qui m'ont chaleureusement accueilli au sein de leurs équipes, et qui m'ont permis de faire mes premiers pas dans l'enseignement avec sérénité.

Bien entendu je tiens à remercier l'ensemble des doctorants, post doctorants, stagiaires, ... que j'ai croisé au cours de ces années, ils m'ont toujours soutenus et supportés dans les moments difficiles, mais ils m'ont aussi permis de venir travailler avec le sourire chaque matin. Donc, dans le désordre : *Fa Boulfie, Gaby, Rold, Benjamin le stagiaire, S'bastien, Imane, Pauline Barbie^{TM}, Rihab, Nico, Marc, Xavier, Binbin, Andres, Sylvia, Sarah, Séda, Nick, Marianne, Nini, Jéro, Alexis, Benoit*, et tous les autres !

Il serait aussi impossible d'écrire ces remerciements sans citer tous mes amis, qui m'ont permis de décompresser au cours de ces années, et qui m'ont régulièrement remotivé quand ça n'allait pas ! Je commence par ma tripoté de collocs : *Tomtom l'éternel, Mathieu, Aline, Lolo le caribou, Isma, et Cyril le voisin*, l'ensemble du TCMS : *Servat, Tondeuse, Sagne, Sonic, Roro, Titou, Cube, Lolo, Rémi, Jérôme, Victor, Roro, Bernard, Papy, JM, Boubou, Sacca, Cap'tain Yo*, et tous les autres joueurs. Je pense aussi à la team Bikini : *Van, Chris, Cyril, Kuby, Yaya, Pat, Jérôme, ...*, et aux amis de toujours : *S'bastien 1er du nom, Le Roux, Flo, Steph, Fred, Poutpout, Casa, Krijou, Arnaud, Cécile, Fred de Vred, Rémi Féder, Fix, Gino, Mag, Polo, Charlotte, Alicia, Flon, Pyv, Luma, Tibo, Aurélie, Caro Loulou et son pied, Hugo, Dodo, Toitoine, Pépite et Got'*. J'ai sûrement oublié beaucoup de monde, mais je saurais me faire pardonner.

Et enfin, je tiens à remercier mes parents et mes frères, pour leur soutien sans faille et ce depuis bien longtemps ! Il y aurait beaucoup de choses à rajouter, mais ce n'est pas forcément utile de le préciser ici.

Table des matières

Remerciements **7**

Table des matières **9**

Introduction **17**

Nomenclature **23**

I Introduction Générale. **29**

1 Problématiques et description du procédé industriel. **33**

1.1 Présentation générale du PolyChlorure de Vinyle (PVC). 34

1.2 Mécanismes de formation et morphologie des particules de PVC. 37

1.3 Description du procédé industriel. 40

1.3.1 Section réactionnelle. 40

1.3.2 Section de séparation. 44

1.4 Conclusion. 47

2 Caractérisation des particules de PVC. Propriétés physiques, physico-chimiques, et écoulement du PVC en poudre. **49**

2.1 Propriétés morphologiques et texturales des particules de PVC. 50

2.1.1 Propriétés granulométriques. 50

2.1.2 Propriétés texturales des grains de PVC : porosité et distribution de tailles de pores. 52

2.2 Propriété physico-chimiques et thermodynamiques du PVC. 56
2.2.1 Définition : Nature de l'eau dans un corps humide. 56
2.2.2 Equilibres thermodynamiques (adsorption) des différents grades de PVC en poudre. 57
2.2.3 L'eau capillaire 58
2.3 Propriétés d'écoulement du PVC en poudre. 61
2.3.1 Paramètres d'écoulement du PVC en poudre : cohésivité et coulabilité. 61
2.4 Vitesses caractéristiques. 63
2.4.1 Transport pneumatique du PVC en poudre : écoulement en phase diluée et vitesses caractéristiques. 66
2.5 Conclusion. 69

3 Le procédé de séchage thermique. 71
3.1 Opérations de séparation dans la chaine de fabrication du PVC en grain. . . 73
3.1.1 Humidité résiduelle d'un gâteau de filtration. 74
3.1.2 Séchage convectif du PVC. 75
3.2 La cinétique de séchage. 79
3.3 Le séchage de particules poreuses. 81
3.3.1 Transferts externes dans un séchoir convectif. 81
3.3.2 Transferts internes à la particule : description des mécanismes internes. 84
3.3.3 Modélisation du séchage thermique. 88
3.4 Conclusion. 89

II Etude de la cinétique de séchage à l'échelle du grain. 91

4 Matériel et méthodes. 93
4.1 La veine de séchage. 95
4.1.1 Description de l'installation. 95
4.1.2 Protocole expérimental et exemples de résultats. 96
4.2 Le lit fluidisé à immersion. 98
4.2.1 Description de l'installation. 98
4.2.2 Protocole expérimental et méthode d'exploitation. 101
4.2.3 Plages de mesures. 102
4.2.4 Exemple type de résultats. 103
4.2.5 Définitions des temps caractéristiques. 105
4.2.6 Temps de réponse des sondes hygrométriques. 106
4.3 Comparaison des dispositifs expérimentaux. 110
4.4 Conclusion. 112

5 Présentation des résultats expérimentaux. 113

5.1 Etude préliminaire. . . . 114

5.1.1 Influence de la masse de l'échantillon - isothermicité du lit. . . . 114

5.1.2 Détermination des coefficients de transferts associés au lit fluidisé à immersion. . . . 117

5.2 Étude expérimentale du séchage du PVC en poudre. . . . 131

5.2.1 Reproductibilité des expériences. . . . 132

5.2.2 Influence des paramètres opératoires. . . . 132

5.2.3 Influence des paramètres intrinsèques. . . . 138

5.3 Conclusion. . . . 145

6 Modèles cinétiques. 147

6.1 Modélisation des transferts couplés à l'échelle de la particule. . . . 148

6.1.1 Choix du modèle. . . . 148

6.1.2 Modélisation de la cinétique de séchage à l'échelle du grain. . . . 150

6.2 Modélisation du lit fluidisé à immersion. . . . 152

6.2.1 Exemples de résultats : . . . 155

6.2.2 Etude paramétrique du modèle. . . . 159

6.2.3 Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux : influence des paramètres opératoires. . . . 162

6.3 Simulation numérique 3D du lit fluidisé à immersion avec le code NEPTUNE_CFD. . . . 165

6.3.1 Equations de transport. . . . 165

6.3.2 Paramètres numériques du cas de calcul. . . . 168

6.3.3 Présentation des résultats. . . . 171

6.4 Conclusion. . . . 187

III Etude du procédé industriel 189

7 Description et modélisation du procédé de séchage thermique. 191

7.1 Présentation du procédé de séchage industriel. . . . 192

7.1.1 Fonctionnement du séchoir pneumatique : 192

7.1.2 Fonctionnement du séchoir à lit fluidisé : 194

7.2 Données opératoires et acquisition des données expérimentales sur le séchoir pneumatique industriel. 198

7.3 Modélisation du procédé. 201

7.3.1 Principe du modèle. 201

7.3.2 Influence des paramètres opératoires. 203

7.4 Optimisation du procédé. 207

7.4.1 Modification de la politique de contrôle du procédé. 207

7.4.2 Autres modifications du procédé. 208

7.5 Conclusion 209

8 Modélisation du séchoir pneumatique industriel. 211

8.1 Principe du modèle. 212

8.2 Présentation et discussion des résultats. 212

8.2.1 Paramètres de simulation. 212

8.2.2 Sensibilité du modèle vis à vis des coefficients de transferts gaz/particules. 213

8.2.3 Validation du modèle avec les mesures effectuées sur le procédé industriel. 217

8.3 Publication dans le journal Powder Technology. 219

8.4 Conclusion. 233

Conclusion générale 237

Bibliographie 241

Annexes 246

A Définitions des grandeurs utilisées dans ce travail de recherche. 249

B Méthode de calcul de la tortuosité. 253

C L'indice de coulabilité d'une poudre selon Carr (1965). 257

D Principes de fonctionnement de séchoirs classiques. 261

E Différentes corrélations pour déterminer le coefficient de transfert thermique. 265

F Modèle à l'échelle d'une particule isolée : Cas général. 267

F.1 Hypothèses et équations. 268

F.1.1 Détermination des profils d'humidité et de température dans la croûte sèche. 268

F.1.2 Bilans sur la particule. 271

F.2 Présentation des résultats du modèle à l'échelle du grain. 272

G Équations régissant le modèle entrée/sortie du procédé industriel de séchage thermique. 277

G.1 Bilans sur les séchoirs. 278

G.2 Méthode de calcul des débits d'utilité. 280

Introduction

Les travaux présentés dans ce mémoire ont été réalisés au sein du Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse (LGC) sous la direction du Professeur Mehrdji Hemati en collaboration avec la société INEOS ChlorVinyls (anciennement Société Artésienne de Vinyle filliale de Tessederlo), située à Mazingarbe.

Cette introduction a pour but de présenter le contexte dans lequel se place cette étude ainsi que les problématiques et les enjeux, tant sur le plan industriel que sur le plan technique. L'accent sera mis sur le contexte économique et environnemental ainsi que sur les phénomènes physiques associés au séchage de particules poreuses. Enfin, le plan général de cette étude sera détaillé.

Contexte et enjeux économiques.

Le PVC est un polymère utilisé dans un grand nombre de secteurs industriels. De ce fait il fait partie des polymères les plus produits mondialement. Il existe différents procédés de fabrication, cependant, le procédé le plus répandu est le procédé de polymérisation en suspension.

INEOS ChlorVinyls est le spécialiste européen de production de PVC en suspension et produit une palette de grades afin de couvrir toutes les applications de ce polymère (ces applications prennent place dans différents secteurs industriels tels que le bâtiment, l'automobile, l'emballage, le milieu hospitalier, ou encore la vie quotidienne). Ainsi une grande flexibilité du procédé est requise pour assurer les nombreux changements de grades. Cette flexibilité est rendue possible par l'utilisation d'un séchoir pneumatique combiné à un séchoir à lit fluidisé.

La consommation énergétique d'une usine de production de PVC en France et en Europe représente 30% du coût de transformation. Ce coût est en augmentation constante depuis 10 ans (il est passé de 20 à 30%). Cette transformation engendre approximativement 0,2 tonne de CO_2 par tonne de PVC produite. Des efforts conséquents ont été réalisés dans cette profession pour améliorer les consommations énergétiques.

Cependant, le séchage du PVC représente toujours un tiers de la consommation totale en énergie et 50% du rejet en CO2 : soit 0,1 tonne de CO_2 par tonne de PVC produite par l'étape de séchage. On peut aussi exprimer ces consommations énergétiques liées au séchage en termes de coûts de revient du PVC à différentes échelles, sachant que le coût énergétique de l'étape de séchage est de 10 à 15 €/ tonne de PVC à ce jour :

- Au niveau de la société INEOS ChlorVinyls, cela représente :
  - 25 000 tonnes de CO_2 émis par an,
  - soit 2,5 à 3,8 M€ de coût énergétique par an
- Au niveau européen (pour 5 000 000 tonnes de PVC produites par an) :
  - 500 000 tonnes de CO_2 émis par an,
  - soit 50 à 75 M€ de coût énergétique par an.

Dans le cadre de ce projet, nous proposons de nous focaliser sur l'étape de séchage de la poudre de PVC et de mettre en place une démarche de réduction de la consommation énergétique de cette étape.

Objectifs scientifiques et techniques du projet.

L'opération de séchage (ou démouillage) est conditionnée par la combinaison de phénomènes concernant différents domaines : la physico-chimie, les transferts thermiques et massiques, et les phénomènes hydrodynamiques spécifiques aux séchoirs employés (séchoir pneumatique et séchoir à lit fluidisé).

Ce travail doit aboutir à la création d'une base des données expérimentales et de modèles phénoménologiques et théoriques indispensables pour la conception des outils de simulation des unités actuelles de production. Ils seront destinés à appuyer l'amélioration, la conception et l'optimisation des unités existantes et permettront des expérimentations qui seraient impossibles à réaliser directement sur l'outil industriel (pour des raisons évidentes de sécurité et de productivité).

Ainsi, l'objectif de ce travail est donc d'atteindre une compréhension plus fine du comportement des séchoirs par le couplage d'une approche expérimentale et numérique sur deux échelles d'observation : la particule isolée et le séchoir industriel.

Les verrous scientifiques et techniques de ce projet sont directement liés aux interactions existantes entre :

- Les conditions opératoires de synthèse du PVC qui conditionnent les propriétés morphologiques, texturales et surfaciques du grain,
- Les phénomènes de démouillage et séchage qui affectent les propriétés d'usage et le coût de la production.

Ainsi, afin de prendre en compte cette double contrainte, il convient de :

- parvenir à une caractérisation fine de l'interface de la morphologie et de la texture du grain poreux sur l'activité de l'eau (approche thermodynamique),
- déterminer la cinétique de séchage au niveau du grain et parvenir à une modélisation des phénomènes en tenant compte des données d'équilibre thermodynamique,
- prendre en compte le comportement du gaz et des particules solides dans les séchoirs pilotes (étude hydrodynamique et thermique),
- parvenir à appréhender qualitativement et quantitativement le saut d'échelle entre le grain de PVC et le procédé industriel de séchage. La transposition des résultats obtenus à l'échelle du grain vers le procédé industriel passe nécessairement par l'intégration des modèles cinétiques intrinsèques (obtenus à l'échelle de grain) dans un modèle macroscopique qui tient compte de l'hydrodynamique et des transferts (thermique et matière) dans les séchoirs,
- parvenir à une validation du modèle sur installation pilote et sur installation industrielle.

Organisation du mémoire.

Pour répondre aux différents objectifs, présentés ci-dessus, ce travail de recherche est divisé en trois parties :

- Une introduction générale, divisée en trois chapitres :
  - L'objet du Chapitre 1 est de présenter la problématique de l'étude et de décrire le procédé industriel dans sa globalité (sections réactive et séparative).

  - Le Chapitre 2 consiste en l'acquisition des propriétés morphologiques, texturales, physico-chimiques, thermodynamiques, et d'écoulement des différents grades de PVC étudiés.
  - Tandis que le Chapitre 3 décrit le phénomène de séchage d'un point de vue technologique d'une part (description du fonctionnement des installations) et d'un point de vue théorique et phénoménologique d'autre part (description des phénomènes physiques élémentaires ayant lieu durant le séchage thermique de particules poreuses). Les études réalisées dans ce chapitre présentent le cas général et sont par la suite orientées vers les problématiques de ce travail de recherche.

- La seconde partie de ce travail est axée sur l'étude du séchage à l'échelle d'une particule de PVC. Cette partie est divisée en trois chapitres :
  - Le Chapitre 4 présente les différents dispositifs expérimentaux utilisés dans le but d'acquérir les données cinétiques du séchage du PVC à l'échelle d'une particule isolée. Le principe de la méthode expérimentale retenue repose sur l'immersion d'une faible quantité de particules de PVC dans un lit fluidisé de grosses particules inertes et chaudes.
  - Le Chapitre 5 résume les différentes études expérimentales menées concernant l'influence des paramètres opératoires (vitesses, température, et humidité du gaz) et de la morphologie des particules sur le cinétique de séchage.
  - L'objet du Chapitre 6 est d'établir une loi de cinétique intrinsèque de séchage (cinétique à l'échelle d'une particule isolée). Cette loi est intégrée dans le modèle du lit fluidisé à immersion. La modélisation du lit fluidisé à immersion fera l'objet de deux approches : une modélisation globale, en considérant le lit fluidisé comme un mélangeur parfait d'une part, et une simulation 3D effectuée à l'aide d'un code de calcul permettant d'étudier les transferts de matière, de chaleur et de quantité de mouvement couplés de systèmes polydisperses d'autre part.

- Enfin, la dernière partie de ce travail, axée sur l'étude du séchage à l'échelle des séchoirs industriels, est divisée en deux chapitres :
  - Le Chapitre 7 comprend deux parties :
    - ◇ La simulation globale du procédé de séchage thermique.Le modèle développé repose sur l'écriture des bilans globaux de matière et de chaleur sur l'ensemble des éléments du procédé.
    - ◇ L'acquisition des données industrielles sur le séchoir pneumatique. Pour ce faire, nous avons instrumenté un séchoir industriel dans le but d'établir les profils axiaux de température et d'humidité de la phase gazeuse.

    De plus ce chapitre présente les résultats des différentes simulations réalisées dans le but de réduire la consommation énergétique du procédé.
  - Le huitième et dernier Chapitre présente la modélisation du séchoir pneumatique. Ce modèle prend en compte le comportement hydrodynamique du gaz et des particules solides, ainsi que les bilans différentiels de matière et de chaleur sur les deux phases. Le phénomène de séchage est modélisé suivant la loi cinétique établie à l'échelle d'une particule isolée. La validité de ce modèle est réalisée grâce aux résultats expérimentaux récoltés sur le séchoir industriel. Cette étude a fait l'objet d'une publication présentée à la fin du chapitre.

De plus, l'Annexe A (page 250) résume la définition des différentes grandeurs classiques (humidités, chaleurs massiques humides, ...) utilisées pour étudier les problèmes de séchage.

Nomenclature

Nomenclature

Symboles latins :

A_c	Section du séchoir	m^2
A_p	Surface externe de la particule	m^2
a_w	Activité de l'eau	-
C_D	Coefficient de traînée	-
Cp_k^i	Capacité calorifique de l'espèce k dans l'état i (si l'état n'est pas précisé, il s'égit de l'état de référence)	$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$
$Cp_{h,k}$	Capacité calorifique humide de l'espèce k	$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$
D_{12}	Coefficient de diffusion binaire de l'espèce 1 dans l'espèce 2	$m^2 \cdot s^{-1}$
D_{app}	Coefficient de diffusion apparent de la vapeur d'eau dans les pores	$m^2 \cdot s^{-1}$
D_{eff}	Coefficient de diffusion effectif de la vapeur d'eau dans l'air	$m^2 \cdot s^{-1}$
D_M	Coefficient de diffusion moléculaire de la vapeur d'eau dans l'air	$m^2 \cdot s^{-1}$
D_c	Diamètre de la conduite	m
D_K	Coefficient de diffusion de Knudsen	$m^2 \cdot s^{-1}$
D_L	Coefficient de diffusion liquide	$m^2 \cdot s^{-1}$
d_{10}	Diamètre du premier décan	m
d_{50}	Diamètre médian	m
d_{90}	Diamètre du dernier décan	m
$d_{[3,2]}$	Diamètre de Sauter	m
$d_{[4,3]}$	Diamètre équivalent en volume	m
d_{BV}	Diamètre des billes de verre	m
d_h	Diamètre hydraulique	m
d_p	Diamètre de la particule	m
d_{pore}	Diamètre des pores	m
F_D	Force de traînée	$kg \cdot m \cdot s^{-2}$
F_g	Débit massique humide de gaz	$kg \cdot s^{-1}$
F_g^0	Débit massique sec de gaz	$kg \cdot s^{-1}$
F_m	Ratio entre les débits massiques de solide et de gaz	-
F_p	Débit massique humide de solide	$kg \cdot s^{-1}$
F_p^0	Débit massique sec de solide	$kg \cdot s^{-1}$
f_w	Fugacité de l'eau	bar
G	Accélération centrifuge	$m \cdot s^{-2}$
g	Accélération de la pesanteur	$m \cdot s^{-2}$
H_k	Enthalpie massique de la phase k	$J \cdot kg^{-1}$
H_{Lit}	Hauteur d'un lit de particules	m
H_σ	Enthalpie de la matière échangée entre les phases	$J \cdot kg^{-1}$
h	Coefficient d'échange de chaleur convectif	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$
I_G	Indice de mélange global d'un lit de particule	-
I_i	Indice de mélange de la couche "i" d'un lit	-
I_k	Terme source de transfert de quantité de mouvement de la phase k	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-2}$
I_u	Indice d'uniformité	-

K_y	Coefficient d'échange de matière global	$\mathrm{kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}}$
k_{ch}	Coefficient d'écart à l'engorgement	-
k_y	Coefficient d'échange de matière convectif	$\mathrm{kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}}$
l	Libre parcours moyen d'une molécule	m
M_k	Masse molaire de l'espèce k	$\mathrm{g \cdot mol^{-1}}$
m_0, m_{ech}^{sec}	Masse de l'échantillon sec	kg
m_{BV}	Masse d'une bille de verre	kg
m_{BV}^T	Masse totale d'un échantillon de billes de verre	kg
m_{cake}	Masse de l'échantillon de cake (humide)	kg
m_{ech}	Masse de l'échantillon humide	kg
$m_{eau}^{evap}(t)$	Masse d'eau évaporée à l'instant t	kg
$m_{eau}^{evap}(\infty)$	Masse totale d'eau évaporée pendant une expérience	kg
$m_{eau,g}$	Masse d'eau contenue dans l'air	kg
$m_{eau,p}$	Masse d'eau contenue dans la particule	kg
m_g^0	Masse d'air sec	kg
m_p^0	Masse de la particule sèche	kg
m_p^{Lit}	Masse totale des particules consituant le lit	kg
m_T	Masse totale de la particule humide	kg
m_w°	Flux de matière échangée par évaporation	$\mathrm{kg \cdot s^{-1}}$
N_K	Nombre de Knudsen	-
$\dot{N}_w$	Densité de flux d'évaporation	$\mathrm{kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}}$
n	Constante : nombre de RACs dans la fonction de transfert d'un hygromètre	-
P	Pression absolue du milieu	Pa
P_c	Pression capillaire	Pa
P_{ref}	Pression de référence	Pa
p_0	Constante égale à $0,98 \cdot 10^5$	Pa
$p^\circ(T)$	Pression de vapeur saturante à la température T	Pa
p_{vap}	Pression partielle de vapeur d'eau	Pa
$Q_{q \to k}$	Flux de chaleur échangée de la phase q vers la phase k	W
Q_{evap}	Flux de chaleur consommée par l'évaporation	W
Q_{LF}	Flux de chaleur consommé au préchauffeur du séchoir à lit fluidisé	W
$Q_{p_{LF}}$	Pertes thermiques du séchoir à lit fluidisé	W
Q_{p_F}	Pertes thermiques du séchoir pneumatique	W
Q_{pneum}	Flux de chaleur consommé au préchauffeur du séchoir pneumatique	W
q	Volume de matière sèche après l'étape de centrifugation	m^3
$\dot{q}$	Densité de flux de chaleur	$\mathrm{W \cdot m^{-2}}$
R	Constante des gaz parfaits	$\mathrm{J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}}$
R_p	Rayon de la particule	m
RH	Humidité relative de l'air	%
r_{pore}	Rayon des pores	m
S	Surface d'évaporation	$\mathrm{m^2}$
S^{at}	Degré de saturation d'un agglomérat	%
S_{BV}	Surface externe d'une bille de verre	$\mathrm{m^2}$
S_{BV}^T	Surface externe totale d'un échantillon de billes de verre	$\mathrm{m^2}$
s_p	Surface spécifique d'une particule	$\mathrm{m^2 \cdot m^{-3}}$
$span$	Étalement de la distribution de tailles des particules	-

T_0	Constante égale à 256	K
T_i	Température du solide pendant la phase de séchage à vitesse constante	K
T_k	Température de la phase k	K
T_{ref}	Température de référence	K
t_{sec}, t_{75}, t_{50}, t_{25}	Temps charactéristiques	s
U_{ch}	Vitesse superficielle d'engorgement	$m \cdot s^{-1}$
U_k	Vitesse de la phase k	$m \cdot s^{-1}$
U_{mb}	Vitesse minimale de bullage	$m \cdot s^{-1}$
U_{mf}	Vitesse minimale de fluidisation	$m \cdot s^{-1}$
U_p	Vitesse des particules	$m \cdot s^{-1}$
U_{salt}	Vitesse de saltation	$m \cdot s^{-1}$
U_{sl}	Vitesse de glissement entre les particules et le gaz	$m \cdot s^{-1}$
U_t	Vitesse terminale de chute libre	$m \cdot s^{-1}$
$U_{\sigma,i}$	i-ème composante de la vitesse de la matière traversant l'interface entre les phases	$m \cdot s^{-1}$
u_{ch}	Vitesse intersticielle d'engorgement	$m \cdot s^{-1}$
V_{BV}	Volume des billes de verre	m^3
V_{eau}	Volume du film d'eau entourant les billes de verre	m^3
V_{Lit}	Volume géomètrique du lit de particules	m^3
V_p	Volume géomètrique du grain	m^3
V_s	Volume effectif solide du grain	m^3
v_s	Vitesse de séchage	$kg \cdot s^{-1}$
Var	Variance d'une série de donnée	
W_{drying}	Débit de séchage	$kg \cdot s^{-1}$
X	Humidité des particules en base sèche	kg d'eau / kg de PVC sec
X_{surf}	Humidité surfacique	kg d'eau / kg de PVC sec
x_{eau}	Fraction massique en eau de la particule	kg d'eau / kg de PVC humide
x_G	Fraction massique du PVC dans l'ensemble du lit	-
x_i	Fraction massique du PVC dans la couche "i" du lit	-
Y	Humidité absolue de l'air	kg d'eau / kg d'air sec
Y^{sat},Y_i	Humidité à saturation de l'air	kg d'eau / kg d'air sec
Y^*	Humidité à saturation adiabatique de l'air	kg d'eau / kg d'air sec
Z_{lit}	Hauteur du lit de particules	m

Symboles grecs :

α_k	Taux de présence de la phase k	-
Γ_k	Terme source de transfert de matière	$kg \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$
γ_{LV}	Tension superficielle	$N \cdot m^{-1}$
γ	Facteur de compressibilité d'une poudre	-
ΔH_m	Enthalpie de mélange	$J \cdot kg^{-1}$
ΔH_V	Enthalpie de vaporisation	$J \cdot kg^{-1}$
Δm	Erreur de mesure expérimentale sur la masse	%

	d'eau évaporée	
ΔT	Chute de température du lit	°C
δ_{eau}	Epaisseur du film liquide	m
δ_c	Epaisseur critique du film liquide	m
ε	Porosité d'un lit fixe	-
ε_{ch}	Porosité d'un lit alimenté par un gaz à sa vitesse superficielle d'engorgement	-
ε_{mf}	Porosité d'un lit alimenté par un gaz à sa vitesse minimale de fluidisation	-
λ_k	Conductivité thermique de la phase k	$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
μ_k	Viscosité dynamique de la phase k	$Pa \cdot s$
$\Theta_{k,ij}$	Tenseur des contraintes visqueuses pour la phase gaz et des contraintes collisionnelles pour les phase particulaires	Pa
θ	Angle de contact	°
θ_s	Angle de spatule	°
θ_t	Angle de talus	°
ρ_k	Masse volumique de la phase k	$kg \cdot m^{-3}$
ρ_{ta}	Masse volumique tassée d'une couche de particules	$kg \cdot m^{-3}$
ρ_{vr}	Masse volumique en vrac d'une couche de particules	$kg \cdot m^{-3}$
$\Sigma_{k,ij}$	Tenseur effectif des contraintes	Pa
τ	Tortuosité des pores	-
τ_{gp}^F	Temps de relaxation des particules	s
τ_{RAC}	Constante de temps associée à la fonction de transfert d'un hygromètre	-
τ_{RP}	Constante de temps associée à la fonction de transfert d'un hygromètre	-
χ	Porosité des particules	%
ω_{BV}	Fraction de billes de verre	-

Indices, exposants :

0	Initial, sec
BV	Billes de verre
c	critique
e	Entrée
eau	Eau liquide
g	Gaz, Phase gazeuse
h	Humide
i	$i^{ème}$ composante
L	Liquide
max	Valeur maximale
p	Particules, Phase solide
s	Sortie, Séchoir
w	Eau liquide

Nombres adimensionnels :

Bi_M	Nombre de Biot matière	$Bi_M = \frac{k_y \cdot R_p}{D_{app} \cdot \rho_g}$
Bi_T	Nombre de Biot thermique	$Bi_T = \frac{h \cdot R}{\lambda_p}$
Fe	Nombre de Fedorov	$Fe = d_p \cdot \left[\frac{4 \cdot g \cdot \rho_g^2}{3 \cdot \mu_g^2} \cdot \left(\frac{\rho_p}{\rho_g} - 1 \right) \right]^{1/3}$
Ga	Nombre de Galilée	$Ga = \frac{d_p^3 \cdot \rho_g \cdot (\rho_p - \rho_g) \cdot g}{\mu_g^2}$
Le	Nombre de Lewis	$Le = \frac{Sc}{Pr}$
Nu	Nombre de Nusselt	$Nu = \frac{h \cdot d_p}{\lambda_g}$
Pr	Nombre de Prandt	$Pr = \frac{Cp^G \cdot \mu_g}{\lambda_g}$
Re_p	Nombre de Reynolds particulaire	$Re = \frac{\rho_g \cdot U_{sl} \cdot d_p}{\mu_g}$
Re_{mf}	Nombre de Reynolds au minimum de fluidisation	$Re_{mf} = \frac{d_p \cdot U_{mf} \cdot \rho_g}{\mu_g}$
Re_t	Nombre de Reynolds terminal de chute libre	$Re_t = \frac{d_p \cdot U_t \cdot \rho_g}{\mu_g}$
Sc	Nombre de Schmidt	$Sc = \frac{\mu_g}{\rho_g \cdot D_M}$
Sh	Nombre de Sherwood	$Sh = \frac{k_y \cdot d_p}{D_M}$

Première partie

Introduction Générale.

Le but de cette partie est de présenter le procédé industriel de fabrication du PolyChlorure de Vinyle (PVC), les propriétés physiques du PVC en poudre, ainsi que les mécanismes physico-chimiques élémentaires intervenant durant le séchage thermique, dans le but d'établir des bases théoriques pour aborder le reste de cette étude. Cette partie est divisée en trois chapitres :

– Problématiques et description du procédé industriel.
– Propriétés physiques du PVC en poudre.
– Le procédé de séchage thermique

Dans le premier chapitre, nous présenterons le PolyChlorure de Vinyle, et les différents procédés d'élaboration existants. Nous nous focaliserons sur le procédé de polymérisation en suspension, utilisé par INEOS-ChlorVinyls. L'ensemble du procédé sera décrit succinctement, en particulier l'influence des paramètres opératoires de l'étape de polymérisation sur la morphologie des particules.

Le second chapitre est consacré à la détermination des propriétés physico-chimiques des particules de PVC produites par INEOS-ChlorVinyls. Ces grandeurs ont été déterminées expérimentalement dans notre laboratoire ou fournies par INEOS. Dans cette partie, on s'intéressera aux données granulométriques et texturales (porosité, distribution de tailles de pores) des particules de PVC, à l'affinité du PVC avec l'eau, aux paramètres d'écoulement, ainsi qu'aux comportements du PVC en poudre vis à vis de la fluidisation et du transport pneumatique.

Finalement, le dernier chapitre de cette partie est consacré à une synthèse bibliographique sur le séchage thermique des particules poreuses, en ciblant les objectifs vers les produits ayant un comportement semblable à celui du PVC en poudre. On décrira en détail les propriétés des séchoirs pneumatiques et à lit fluidisé (utilisés dans le procédé industriel d'INEOS-ChlorVinyls), ainsi que les mécanismes physico-chimiques élémentaires intervenant lors du séchage thermique.

Chapitre 1

Problématiques et description du procédé industriel.

Sommaire

1.1 Présentation générale du PolyChlorure de Vinyle (PVC). . . . 34
1.2 Mécanismes de formation et morphologie des particules de PVC. 37
1.3 Description du procédé industriel. 40
1.3.1 Section réactionnelle. 40
1.3.2 Section de séparation. 44
Séparation du MVC de la suspension. 44
Séparation du PVC de la suspension. 44
1.4 Conclusion. 47

Le PVC est un polymère utilisé dans un grand nombre de secteurs industriels. De ce fait il fait partie des polymères les plus produits mondialement. Il existe différents procédé de fabrication, cependant, le procédé le plus répandu est le procédé de polymérisation en suspension.

Après avoir brièvement présenté le PVC, et son mécanisme de formation, on s'intéressera aux différentes étapes du procédé industriel. En effet, l'étape de polymérisation influe grandement sur la morphologie des particules générées, alors que l'étape de séchage mécanique (centrifugation) joue un rôle sur l'humidité du PVC en entrée du séchoir pneumatique. Il est donc important de bien comprendre le fonctionnement de ces étapes, afin d'optimiser le fonctionnement de l'étape de séchage thermique intervenant à la fin du procédé.

1.1 Présentation générale du PolyChlorure de Vinyle (PVC).

Le PolyChlorure de Vinyle (PVC) est un polymère produit par la polymérisation radicalaire du MonoChlorure de Vinyle (MVC), suivant la réaction suivante (Figure 1.1) :

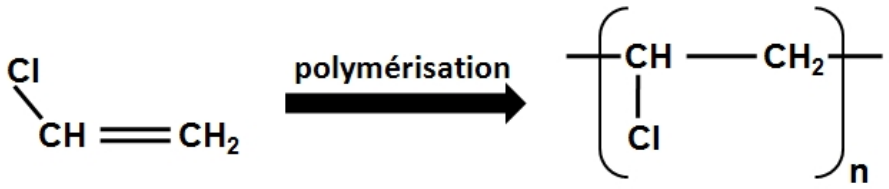


FIGURE 1.1 – Réaction de polymérisation du MVC.

Cette réaction est fortement exothermique : l'enthalpie de polymérisation est de -97,6 kJ/mol (Dorobantu, 2012). Le contrôle de la température de réaction est donc une des problématiques des procédés de fabrication du PVC.

La production du PVC a commencé pendant la première moitié du XXème siècle en Allemagne et aux États-unis, avant de se développer dans le reste de l'Europe et au Japon à partir des années 60. Du fait de ses bonnes propriétés physiques et mécaniques et de son faible coût de production, le PVC fait partie des trois polymères les plus utilisés dans le monde (avec les polyéthylènes et les polypropylènes). En 2002, la production annuelle mondiale de PVC a atteint les 32 400 kt (6 500 kt pour l'Union Européenne). Ce matériau est extrêmement polyvalent, il peut s'adapter à un grand nombre d'applications que ce soit dans le bâtiment (profilés de fenêtres, tuyaux et raccordements, câbles électriques, ...), l'automobile (tableaux de bords, ...), l'emballage (films, capsulages, ...), le milieu hospitalier (gants, ...) ou la vie quotidienne (carte de crédit, chaussures, ...). La Figure 1.2 montre la répartition des applications du PVC en Europe durant l'année 2006.

La réaction de polymérisation peut s'effectuer suivant quatre différents types de procédés (Saeki and Emura, 2002). Ces procédés diffèrent par les solutions choisies pour contrôler le dégagement de chaleur de la réaction, c'est à dire par la nature du milieu absorbant l'énergie.

– Le procédé de polymérisation en masse : simple à mettre en œuvre, il présente l'avantage de n'utiliser que du monomère et des initiateurs, ce qui permet d'obtenir un produit de grande pureté.

– Le procédé de polymérisation en émulsion : le monomère est dispersé dans un solvant (généralement de l'eau) contenant un émulsifiant. Ce procédé nécessite de séparer l'émulsifiant, piégé dans le polymère.
– Le procédé de polymérisation en solution : le monomère est dissous dans un solvant généralement organique. Cependant, ce procédé est peu utilisé dans l'industrie et réservé à des produits à haute valeur ajoutée car la séparation entre le solvant organique et le polymère est difficile à réaliser.
– Le procédé de polymérisation en suspension : le MVC est mis en suspension dans l'eau grâce à des agents de surface et à un système d'agitation mécanique. Les gouttelettes de MVC se comportent alors comme des réacteurs de polymérisation en masse. Ce procédé nécessite, par la suite, de séparer le monomère résiduel piégé dans la matrice solide et d'éliminer l'eau du mélange réactionnel. Ce procédé est le plus largement utilisé dans l'industrie car il permet de bien contrôler la taille des particules de PVC produites.

Le choix du procédé de polymérisation est donc primordial car il va définir la pureté maximale ainsi que les propriétés physiques (tailles des particules, porosité, ...) du PVC produit. Par exemple, pour obtenir un PVC transparent il est plus intéressant d'utiliser la polymérisation en masse ou en suspension car ces procédés permettent d'avoir une meilleure pureté que les polymérisations en émulsion et en solution.

Le Tableau 1.1 (Zimmermann, 1996) résume la répartition des différents types de procédés dans le monde, aux Etats-Unis, et au Japon. On voit que le procédé de polymérisation en suspension est le plus largement utilisé, car il permet de mieux contrôler la morphologies des particules et donc d'adapter les propriétés du PVC à son utilisation finale. Par exemple, un PVC poreux aura tendance à bien absorber les plastifiants, il sera donc utilisé pour des applications flexibles. Alors qu'un PVC plus dense et moins poreux sera plus adapté pour des applications rigides.

Tableau 1.1 – Répartition des procédés de polymérisation du PVC (%) (Zimmermann, 1996).

	Monde	USA	Japon
Polymérisation en masse	8	10	0
Polymérisation en émulsion	12	12	2
Polymérisation en solution	0	0	0
Polymérisation en suspension	80	78	98

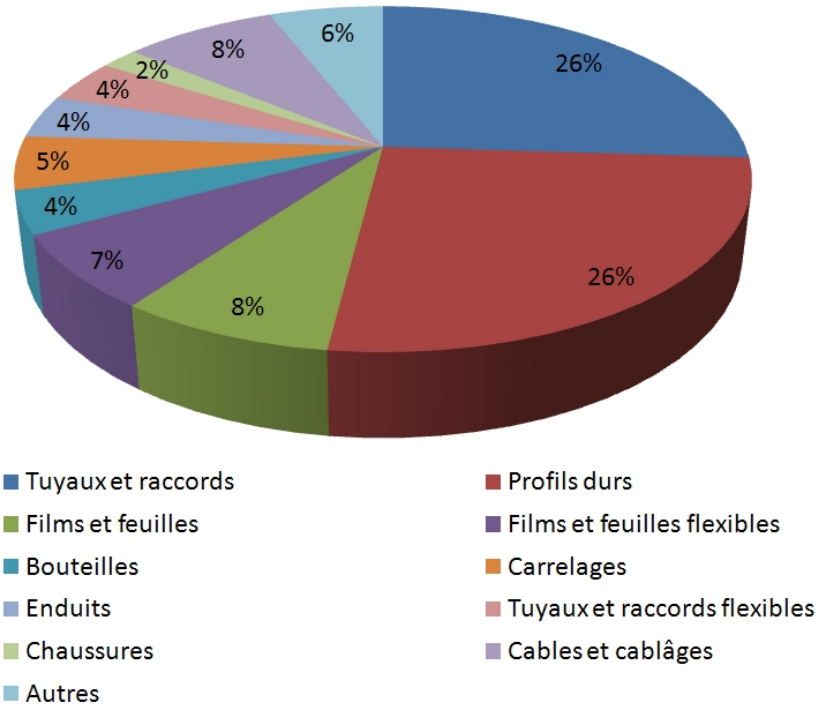


FIGURE 1.2 – Utilisation industrielle de la production de PVC en Europe (2006).

1.2 Mécanismes de formation et morphologie des particules de PVC.

Le PVC étant insoluble dans le MVC, il précipite dès le début de la polymérisation, ce qui donne aux particules une structure particulière, représentée sur la Figure 1.3. Jusqu'à la fin des années 70, la nomenclature pour décrire une particule de PVC était aussi variée que les études menées sur ce polymère. Pour harmoniser les études, Geil (1977) proposa une nomenclature standard qui fut complétée plus tard par Allsopp et al. (1981). Le nom et l'origine des différents éléments d'une particule, représentés sur la Figure 1.3, sont résumés dans le Tableau 1.2.

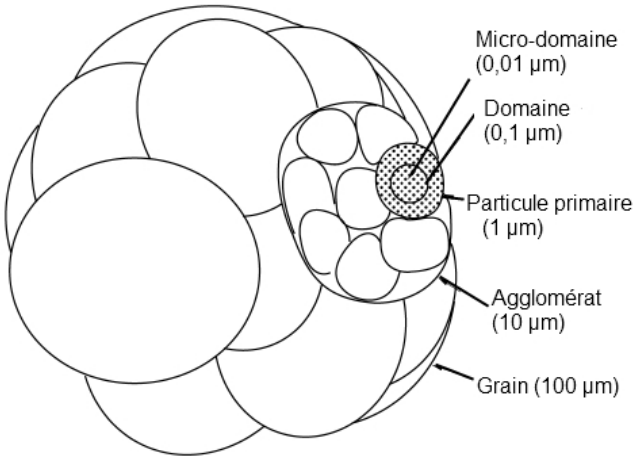


FIGURE 1.3 – Structure d'une particule de PVC (Saeki and Emura, 2002).

Cette structure s'explique par le mécanisme de formation des grains de PVC qui se déroule en trois étapes (Allsopp et al., 1981) :

- Nucléation :

  Les radicaux primaires formés par la décomposition de l'amorceur réagissent rapidement avec les molécules de monomère pour donner des macromolécules de PVC qui sont insolubles dans la phase de monomère. L'agrégation des chaînes de polymères conduit à la formation de micro-domaines instables ayant un diamètre compris entre 10 et 20 nm. Ces micro-domaines peuvent se trouver à l'interface monomère/eau et participer à la stabilisation des gouttelettes de monomère.

- Croissance :

  Les micro-domaines s'agrègent rapidement à cause de leur stabilité très limitée et forment des domaines, qui, à leur tour, forment des particules primaires. Les particules primaires forment une suspension colloïdale stable dans le monomère. Cette stabilité vient des charges électrostatiques négatives qu'elles portent et qui sont supposées venir des ions chlorures absorbés à l'interface MVC/PVC. Dans les premières étapes de la polymérisation, les particules primaires grossissent en englobant les micro-domaines instables.

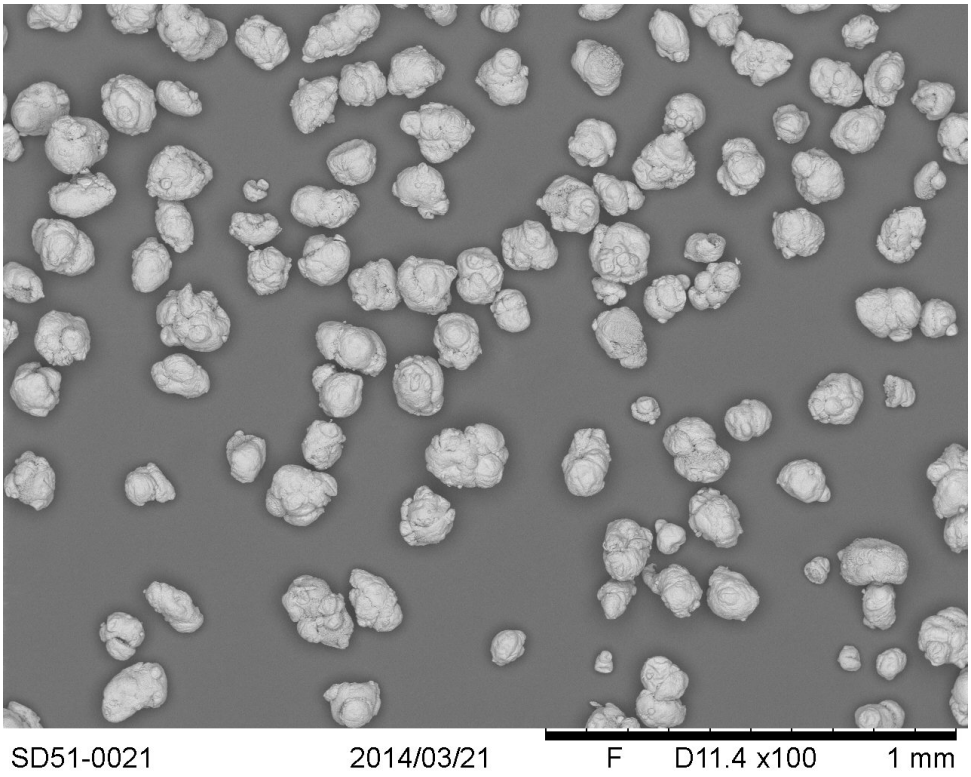
- Agrégation :

  Les particules primaires commencent à s'agréger et à former un réseau polymérique continu dans la goutte de monomère, appelé agrégat. Les particules primaires et les agrégats continuent à grossir dans la gouttelette de monomère jusqu'à la disparition complète du monomère. Les agrégats et les particules primaires fusionnent pour donner le sous grain de PVC qui correspond à la gouttelette de MVC polymérisée. Un grain de PVC, composé d'au moins un sous grain, a une taille comprise entre 50 et 250 μm.

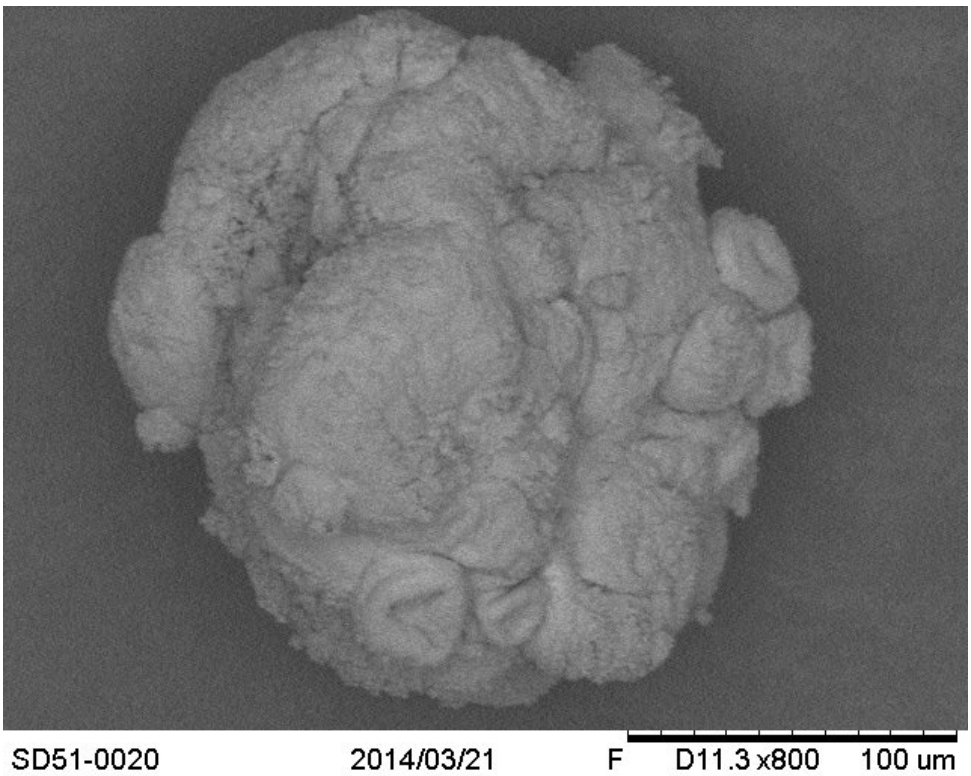
Tableau 1.2 – Nomenclature employée pour décrire une particule de PVC.

Nomenclature	Taille moyenne (μm)	Origine
Grain	100 - 130	Provient de plus d'une gouttelette de monomère.
Sous-grain	40	Gouttelette de monomère polymérisée.
Agglomérat	10	Formé au début de la polymérisation par coalescence de particules primaires.
Particule primaire	1	Formée à basse conversion par coalescence de domaines.
Domaine	0.1	Noyau des particules primaires. Plus observable en fin de polymérisation.
Micro-domaine	0.01	Agrégat de chaînes de polymère.

La Figure 1.4 présente des photos prises au microscope à balayage électronique du PVC produit par INEOS-ChlorVinyls. La structure décrite ci-dessus, notamment la présence d'agglomérats et de particules primaires, apparaît clairement sur ces photos.



(a) Vue d'ensemble.



(b) Vue d'une particule isolée.

FIGURE 1.4 – Photos de grains de PVC prises au microscope à balayage électronique.

1.3 Description du procédé industriel.

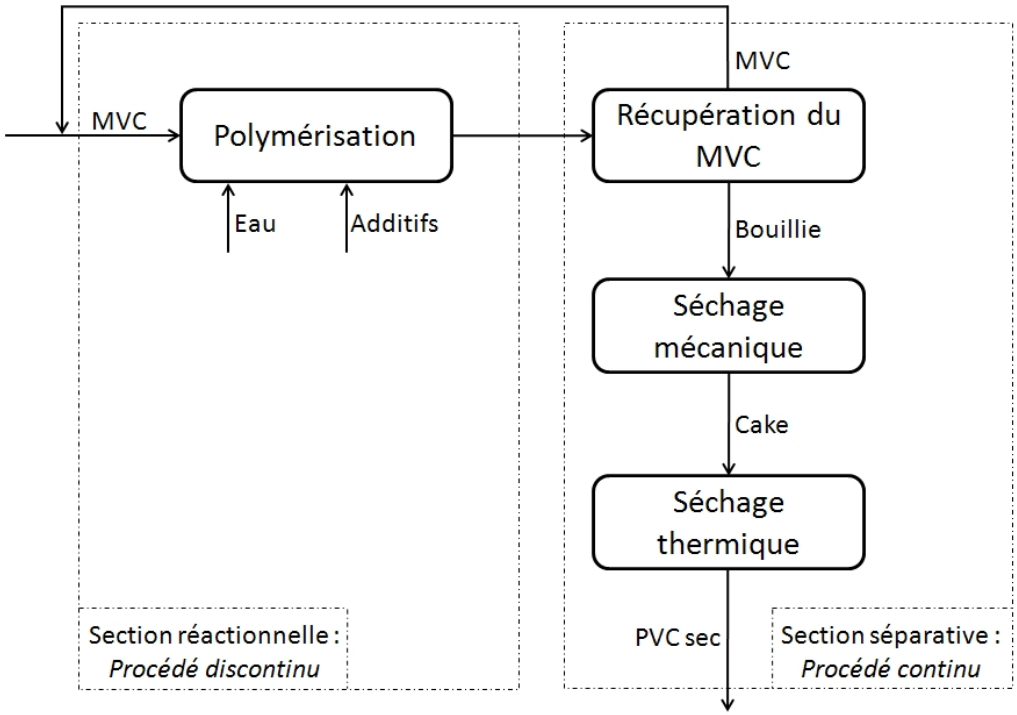


FIGURE 1.5 – Schéma général du procédé de production de PVC en poudre par polymérisation en suspension.

Le Groupe INEOS-ChlorVinyls France produit du PVC selon le procédé de polymérisation en suspension. Comme expliqué précédemment, ce procédé permet de contrôler avec une bonne précision la morphologie des particules de PVC (tailles des particules, porosité, ...). En adaptant la recette de polymérisation, il est donc possible de produire du PVC aux propriétés physiques variées, destiné à différentes applications (voir Figure 1.2). On parle alors de différents grades de PVC. INEOS-ChlorVinyls produit huit grades de PVC différents, et afin d'avoir plus de souplesse dans la production, l'usine comprend quatre lignes de productions, quasiment identiques, fonctionnant simultanément. La Figure 1.5 présente un schéma général du procédé industriel, chaque ligne de production peut être séparée en deux sections :

– La section réactionnelle, fonctionnant en discontinu.
– La section séparative, fonctionnant en continu.

1.3.1 Section réactionnelle.

Chaque ligne de production est équipée de cinq ou six réacteurs d'environ 50 m^3 équipés d'un système d'agitation mécanique (pales) et d'une double enveloppe fonctionnant en discontinu (Lamourette, 2000). A pression atmosphérique la température d'ébullition du MVC est de -13,4°C, les réacteurs de polymérisation sont donc sous pression afin qu'une partie du MVC soit à l'état liquide, le MVC en excès reste dans le ciel gazeux du réacteur.

Pour réaliser la réaction de polymérisation, différents additifs sont introduits dans le mélange réactionnel avant l'introduction du monomère :

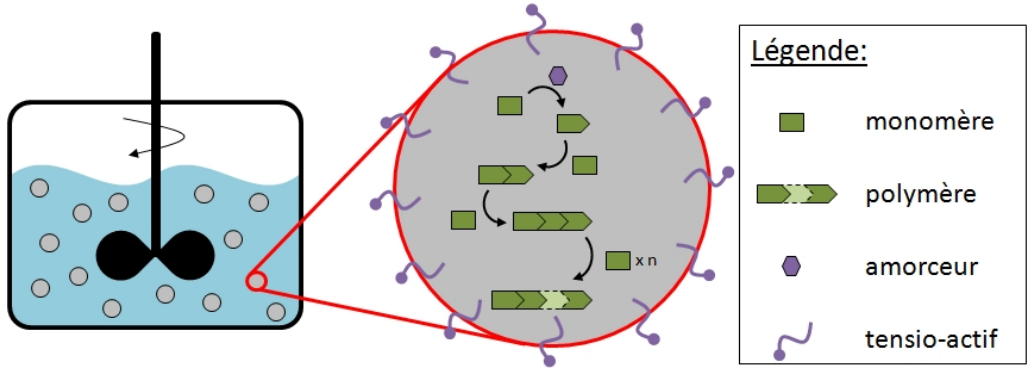


FIGURE 1.6 – Gouttelette de monomère formant un réacteur de polymérisation en masse.

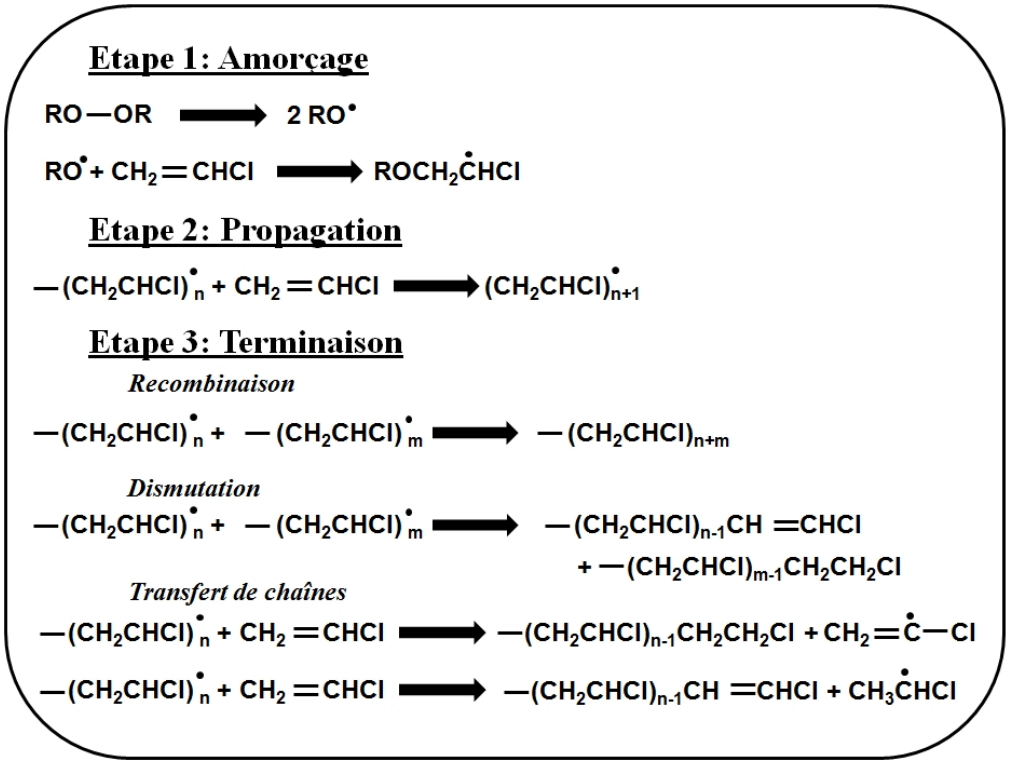


FIGURE 1.7 – Mécanisme radicalaire de la polymérisation du PVC.

– Des agents de suspension : généralement des tensio-actifs, possédant une tête hydrophile et une queue hydrophobe. Sous l'effet de l'agitation du réacteur, ces tensio-actifs vont permettre de former des gouttelettes de monomère. Les gouttelettes de monomère ainsi formées se comportent comme des micro-réacteurs de polymérisation en masse (Figure 1.6)
– Des amorceurs : comme la réaction de polymérisation du PVC suit un mécanisme radicalaire (Figure 1.7), un amorceur doit être introduit en début de réaction pour créer les radicaux.

Enfin, un agent de terminaison (généralement un antioxydant) est introduit dans le réacteur une fois le taux de conversion souhaité atteint, pour éliminer les radicaux et stopper la réaction. De plus, les réacteurs sont équipés de divers systèmes de sécurité classiques (disque de rupture, soupape, ...) et d'un réservoir de "tueur". Il s'agit d'un agent de terminaison fortement concentré permettant de stopper instantanément la réaction en cas

d'emballement.

Les réacteurs effectuent des cycles de huit heures, qui peuvent être décomposés en quatre étapes principales :

- Chargement du réacteur : introduction de l'eau, des agents de suspension, de l'amorceur, et du MVC dans le réacteur.
- Amorçage de la réaction : formation de la suspension eau/MVC par agitation (gouttelettes de MVC) et chauffe du mélange réactionnel jusqu'à la température de polymérisation.
- Polymérisation à température constante : contrôle de la température et de la pression du réacteur jusqu'à un taux de conversion d'environ 70%.
- Terminaison : arrêt de la réaction, vidange du réacteur et récupération du MVC non converti.

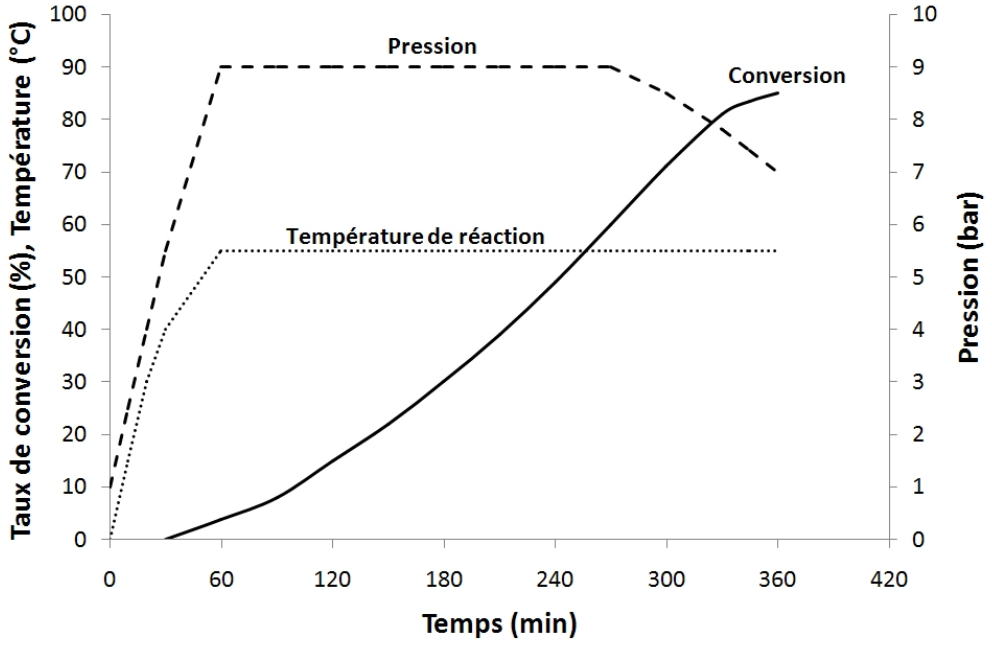


FIGURE 1.8 – Profils de température, pression et du taux de conversion d'un réacteur de polymérisation en suspension. (Saeki and Emura, 2002)

Le procédé est contrôlé par la mesure de la température et de la pression du réacteur. Les évolutions de la température, de la pression et du taux de conversion sont représentées sur la Figure 1.8. La température du milieu réactionnel doit rester constante et égale à la température de polymérisation. Pour ce faire, de l'eau chaude est introduite dans la double enveloppe pendant la phase d'amorçage pour chauffer le mélange réactionnel, alors que, une fois la polymérisation amorcée, de l'eau froide circule dans cette double enveloppe afin d'évacuer la chaleur de réaction et de maintenir constante la température du réacteur. La pression augmente avec la température et reste constante durant la polymérisation jusqu'à un taux de conversion de 60-70%. Lorsque tout le MVC présent dans la suspension est consommé, le MVC du ciel gazeux est alors transféré vers la phase liquide ce qui entraîne une baisse de pression du réacteur. Ce type de procédé peut alors atteindre des taux de conversion avoisinant les 90%.

Ce procédé de polymérisation exige une parfaite maîtrise de l'ensemble des paramètres

opératoires. En effet, les propriétés morphologiques des grains de PVC dépendent fortement des conditions de polymérisation :

- Température de polymérisation :

  Des observations au microscope électronique à balayage de particules de PVC obtenues à différentes températures ont montré que la température de polymérisation avait peu d'influence sur la taille des particules de PVC, alors qu'elle influence directement leur porosité (Bao and Brooks, 2002). En effet, une particule de PVC est composée d'un agglomérat de particules primaires, et une augmentation de la température de polymérisation va favoriser l'agglomération de ces particules primaires. De plus une haute température va favoriser la réaction de transfert de chaîne par rapport à la réaction de propagation (Figure 1.7), ce qui diminue la masse molaire moyenne des grains de PVC. Les particules de PVC sont d'autant plus denses que la température de polymérisation est élevée.

- Vitesse et temps d'agitation :

  L'agitation du réacteur de polymérisation a deux rôles : disperser les gouttelettes de monomère et améliorer l'évacuation de la chaleur de réaction. L'agitation seule ne permet pas de contrôler parfaitement la taille des particules, la présence d'agent de suspension est indispensable. Cependant, des études menées sur ce paramètre, (Zerfa and Brooks, 1996a) et (Zerfa and Brooks, 1996c), ont montré qu'une augmentation de la vitesse d'agitation diminue la taille des gouttelettes de MVC et donc des particules de PVC. De plus, une forte vitesse d'agitation a tendance à resserrer la distribution de taille des particules. Ces études ont montré que l'agitation devait être maintenue durant 30 minutes afin d'assurer un équilibre dynamique entre les phénomènes de rupture et de coalescence des gouttelettes de MVC. En effet, l'interface eau/MVC est rapidement saturée en PVA (environ 5 minutes) mais la stabilité des gouttelettes de MVC n'est atteinte qu'après 30 minutes (Zerfa and Brooks, 1998). Ceci est dû au fait que les agents de suspension diffusent rapidement dans le mélange eau/MVC, alors que leur réarrangement est plus long.

- Fraction volumique du monomère dans la suspension :

  La distribution de taille des particules de PVC et leur diamètre moyen sont fortement influencés par la fraction volumique de MVC. En effet, plus la quantité de MVC introduit est importante plus les gouttelettes de MVC auront tendance à coalescer, ce qui entraîne un élargissement de la distribution de tailles de particules (Zerfa and Brooks, 1996b).

- Fraction massique des agents de suspension :

  La taille des particules de PVC est fortement dépendante de la nature de l'agent de suspension utilisé. Les agents de suspension généralement utilisés sont des alcools polyvinyliques (PVA) hydrosolubles. Ces polymères possèdent une partie hydrophobe et une partie hydrophile, ce qui leur permet de s'adsorber à l'interface MVC/eau et d'améliorer la stabilisation des gouttelettes de MVC. Le rôle des ces agents est d'abaisser la tension interfaciale afin de réduire l'apport d'énergie nécessaire à la formation des gouttelettes de MVC. Plus la tension interfaciale est faible, plus la taille de ces gouttelettes sera faible.

- Méthode d'addition de l'ammorceur :

  La méthode d'addition de l'amorceur a un effet important sur l'uniformité des particules de PVC (Zerfa and Brooks, 1997). Si l'amorceur est préalablement dissous dans le monomère, la polymérisation aura lieu uniformément dans chaque goutte de monomère, et les particules obtenues auront une forme homogène. Au contraire, si l'amorceur est d'abord dispersé dans l'eau, les particules auront des formes hétérogènes. De plus, le taux de conversion est généralement plus important lorsque l'amorceur est dissous dans le monomère.

A ce stade du procédé les particules de PVC sont en état de suspension dans l'eau de réaction (eau distillée + agents de suspension) appelée bouillie.

1.3.2 Section de séparation.

Le but de cette partie du procédé est d'éliminer le MVC n'ayant pas réagi et de séparer les particules solides de PVC de la phase aqueuse.

Séparation du MVC de la suspension.

La majeure partie du MVC est éliminée par plusieurs séparateurs Flash gaz/liquide. Ces séparations sont effectuées directement dans le réacteur ou dans les bacs tampons nécessaires au passage du procédé discontinu au continu. Finalement, le MVC résiduel est éliminé dans une étape de stripping à la vapeur d'eau permettant de capter à la fois le MVC dissout dans l'eau et le MVC piégé dans la matrice solide. Le MVC, ainsi récupéré, est purifié et réutilisé dans une ligne de production dédiée au MVC recyclé.

Séparation du PVC de la suspension.

La séparation solide-liquide s'effectue en deux étapes distinctes :

- Le séchage mécanique, effectué par centrifugation, permet d'éliminer la majeure partie de l'eau. A la fin de cette étape, on obtient une poudre humide, très cohésive, appelée "cake" (gâteau).
- **Le séchage thermique élimine l'eau résiduelle présente en surface et contenue dans les grains. C'est sur cette étape que se concentre le travail de recherche que nous avons effectué.**

◇ *Séchage mécanique :*

Les centrifugeuses utilisées par INEOS-ChlorVinyls sont de type Humboldt-Bird (Figure 1.9). Elle sont alimentées par de la bouillie (suspension d'eau et de particules de PVC) contenant 30% de PVC solide. La centrifugeuse est constituée d'un bol et d'une vis sans fin en rotation. La vitesse de rotation du bol et de l'ordre de 2000 tr/min et la vitesse relative entre le bol et la vis est de l'ordre de 50 tr/min. La bouillie est introduite par l'axe de la vis et l'eau est évacuée par l'arrière de la centrifugeuse, tandis que la vitesse relative entre le bol et la vis permet d'entraîner les particules de PVC le long de la centrifugeuse.

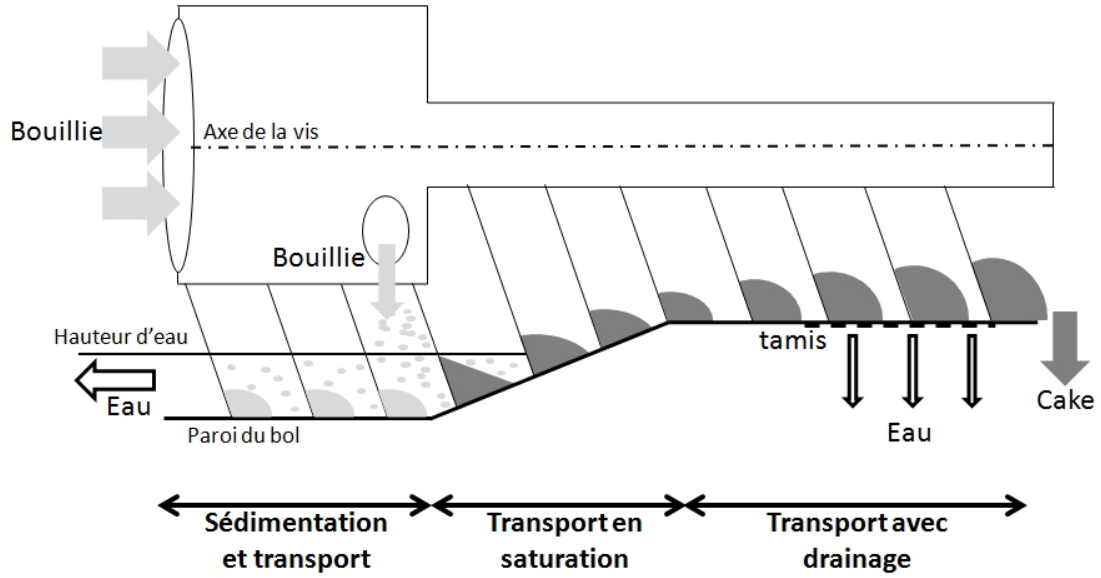


FIGURE 1.9 – Vue en coupe d'une centrifugeuse.

En sortie de centrifugeuse, le mélange passe à travers un tamis permettant d'éliminer une quantité d'eau supplémentaire. Le mélange passe donc d'un état de suspension à un état de particules humides, très cohésives, contenant entre 70 et 80% de PVC (Degenhardt, 1997). Le but du procédé de centrifugation est d'abaisser au maximum la teneur en eau du PVC avant le procédé de séchage thermique.

Selon Rabia (2008), la centrifugeuse peut être divisée en trois zones (Figure 1.9) :

– Sédimentation et transport : Au niveau de l'axe de la vis, la suspension est très diluée et transportée vers l'arrière par le flux d'eau entre l'axe de la vis et la paroi du bol. Par contre lorsqu'elle est proche des parois, la suspension est très concentrée (sédimentée), et entraînée vers l'avant de la centrifugeuse par la vis.
– Transport en saturation : dans cette zone conique il n'y a plus de particules en suspension, la concentration solide est maximale, et les sédiments sont transportés par la vis vers la dernière zone.
– Transport avec drainage : dans cette zone l'eau interstitielle est drainée par le tamis ; on parle alors de particules humides (cake) et non plus de suspension. La teneur en eau du cake varie de 20 à 30% suivant le grade produit.

Une étude interne réalisée sur une mini-centrifugeuse équivalente aux centrifugeuses installées sur le site industriel a permis d'optimiser les paramètres opératoires de l'étape de centrifugation (Kremers, 1980) :

- Vitesse de rotation du bol :

  Une augmentation de la vitesse de rotation du bol (de 1600 à 2000 tr/min) permet de réduire l'humidité du cake de 3%. Cependant, une trop forte augmentation de cette vitesse entraîne des vibrations de l'appareil nuisibles à la stabilité du procédé.
- Vitesse relative entre le bol et la vis :

  Une augmentation de la vitesse relative entre le bol et la vis entraîne deux effets : une diminution du temps de séjour réduisant l'efficacité de la centrifugation, et, à l'opposé, une augmentation de la force centrifuge subie par le solide améliorant

l'élimination de l'eau. Ces deux effets ont tendance à se compenser, ce qui rend l'influence de ce paramètre difficile à évaluer. En pratique, on observe qu'une augmentation de cette vitesse relative permet de réduire légèrement la teneur en eau du cake en sortie.

- Température de la bouillie :

  Une augmentation de la température de la bouillie permet de réduire l'humidité du cake en sortie. En effet, la viscosité de l'eau et la tension de surface de l'eau diminuent avec la température, ce qui permet une meilleure évacuation. De plus, la tension de vapeur saturante sera plus importante ce qui permet de favoriser l'évaporation de l'eau en surface et dans les pores (phénomène de séchage thermique, voir Chapitre 3 page 71). Cependant une augmentation de la température de bouillie entraîne des risques de corrosion plus importants.

- Débit de la bouillie :

  Une augmentation du débit de bouillie a tendance à augmenter l'humidité du cake en sortie. De plus, un débit de bouillie important entraîne une instabilité du procédé et des fluctuations de l'humidité du cake durant une même expérience. Il est donc conseillé d'utiliser plusieurs centrifugeuses en parallèle pour augmenter le débit de bouillie à traiter.

- Concentration en solide de la bouillie :

  Une modification de la concentration en solide de la bouillie entre 10 et 40% n'a pas d'effet sur l'humidité du cake en sortie.

Cette étude a montré que les sédiments non saturés en eau entraînent une augmentation anormale du couple et de l'endommagement des filets de la vis sans fin. Afin de réduire les coûts de maintenance des centrifugeuses, Rabia (2008) propose donc d'augmenter la teneur en eau du cake. Cependant, ceci entraîne une augmentation de la quantité d'énergie à apporter lors de l'étape de séchage thermique. Il est donc nécessaire de trouver un compromis dans les paramètres opératoires afin de minimiser à la fois les coûts de maintenance de la centrifugation et la consommation énergétique du procédé de séchage thermique.

◇ *Séchage thermique :*

Tableau 1.3 – Données géométriques et opératoires des séchoirs pneumatique et à lit fluidisé

	Séchoir pneumatique	Séchoir à lit fluidisé
Diamètre (m)	1,6	5,5
Diamètre d'alimentation (m)	0,7	∅
Hauteur (m)	22	1,9
Débit d'air chaud ($kg \cdot h^{-1}$)	54 000	8 000
Débit d'air ambiant ($kg \cdot h^{-1}$)	∅	500
Température de l'air chaud (°C)	180 - 200	60 - 70

Le séchage thermique est réalisé en deux étapes en série : l'élimination de la quasi-totalité de l'eau dans un séchoir pneumatique (ou Flash), et, l'élimination de l'eau résiduelle dans un séchoir à lit fluidisé.

En sortie de centrifugeuse, le cake est transporté dans le séchoir pneumatique par le biais d'un tapis vibrant et d'une vis sans fin. Le séchoir pneumatique est alimenté par un fort

débit d'air (environ 40 à 54 t/h) à des températures comprises entre 180 et 200°C. La section d'entrée est réduite afin d'augmenter la vitesse de l'air et de favoriser la dispersion du cake dans le séchoir. Le temps de séjour des particules dans ce séchoir, environ une seconde, et les conditions opératoires imposées permettent d'éliminer entre 80 et 95% de l'humidité du cake (essentiellement de l'eau libre) tout en maintenant la température des particules à des valeurs inférieures à 70°C, température à laquelle la décomposition du PVC s'amorce. En sortie, les particules de PVC sont séparées du flux d'air par deux cyclones installés en parallèle.

Le PVC est alors introduit au centre d'un séchoir à lit fluidisé en spirale, alimenté par un débit d'air d'environ 8 t/h chauffé entre 60 et 70°C. Le rôle de ce séchoir est d'éliminer l'humidité résiduelle des particules de PVC, et d'uniformiser leur traitement thermique. Les particules ainsi séchées sont envoyées à l'atelier de stockage par transport pneumatique. Les données géométriques et opératoires des deux séchoirs sont résumées dans le Tableau 1.3, et le fonctionnement précis de ces types de séchoirs sera décrit dans le Chapitre 3 page 71.

Au vu des paramètres opératoires, il est facile de comprendre que ce procédé de séchage est très énergivore, notamment le séchoir pneumatique, ainsi, les objectifs de ce travail sont :

- d'étudier la cinétique de séchage à l'échelle du grain,
- de proposer des lois cinétiques pour le séchage du PVC,
- d'élaborer des modèles de simulations pour séchoirs industriels,
- d'optimiser le fonctionnement de ces séchoirs pour réduire la consommation énergétique du procédé.

1.4 Conclusion.

La production de PVC en poudre par polymérisation en suspension est un procédé très répandu dans le monde. L'étape de réaction a fait l'objet de nombreuses études et est bien maîtrisée. Dans le but d'optimiser les coûts de production, il faut maintenant fournir un effort sur les différentes étapes de séparation, notamment le séchage thermique des particules.

Chapitre 2

Caractérisation des particules de PVC. Propriétés physiques, physico-chimiques, et écoulement du PVC en poudre.

Sommaire

2.1 Propriétés morphologiques et texturales des particules de PVC. 50
2.1.1 Propriétés granulométriques. 50
2.1.2 Propriétés texturales des grains de PVC : porosité et distribution de tailles de pores. 52
2.2 Propriété physico-chimiques et thermodynamiques du PVC. . 56
2.2.1 Définition : Nature de l'eau dans un corps humide. 56
2.2.2 Equilibres thermodynamiques (adsorption) des différents grades de PVC en poudre. 57
2.2.3 L'eau capillaire 58
2.3 Propriétés d'écoulement du PVC en poudre. 61
2.3.1 Paramètres d'écoulement du PVC en poudre : cohésivité et coulabilité. 61
2.4 Vitesses caractéristiques. 63
2.4.1 Transport pneumatique du PVC en poudre : écoulement en phase diluée et vitesses caractéristiques. 66
2.5 Conclusion. 69

Dans ce chapitre, nous avons rassemblé un ensemble de données portant sur la détermination :

- des propriétés morphologiques et texturales du PVC en poudre : distribution de taille de particule, porosité, distribution de tailles de pores, tortuosité, et masse volumique du grain,
- des propriétés physico-chimiques et thermodynamiques : l'affinité du PVC vis à vis de l'eau, les équilibres de sorptions de la vapeur d'eau sur les différents grades de PVC,
- des propriétés d'écoulement : la compressibilité, la fluidisabilité, et la coulabilité du PVC,
- des vitesses caractéristiques : vitesses minimale de fluidisation et minimale de bullage, la vitesse maximale de fluidisation, la vitesse d'engorgement et la vitesse de saltation.

Les trois premières vitesses caractéristiques ne dépendent que des propriétés des particules solides et de celles du gaz. Alors que les deux dernières, en dehors des propriétés intrinsèques solide-gaz, dépendent aussi du débit massique volumique de solide.

2.1 Propriétés morphologiques et texturales des particules de PVC.

2.1.1 Propriétés granulométriques.

L'étude est réalisée sur les différents grades de PVC fournis par INEOS-ChlorVinyls. Les mesures granulométriques sont effectuées au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse par granulométrie laser en voie sèche (MALVERN Mastersizer 2000 - Module Scirocco 2000). La Figure 2.1 représente les distributions granulométriques de quatre grades de PVC étudiés. Deux grandeurs sont utilisées pour caractériser la distribution de taille :

- la taille médiane ,d_{50}, définit comme l'ouverture théorique du tamis qui laisserait passer juste 50% de la taille totale du produit,
- le coefficient de variation, ou span, qui exprime l'écart par rapport à l'uniformité, ou le resserrement granulométrique autour du diamètre médian :

$$span = \frac{d_{90} - d_{10}}{d_{50}}. \tag{2.1}$$

  d_{90} et d_{10} sont les ouvertures théoriques des tamis qui laisseraient passer respectivement 90% et 10% de la masse totale.

Lorque l'on désire donner de l'importance à la surface des particules, on définit leur diamètre moyen par l'expression :

$$d_{[3,2]} = \frac{100}{\sum \frac{X_i}{d_{p_i}}}. \tag{2.2}$$

$d_{[3,2]}$, est le diamètre moyen surface/volume ou le diamètre de Sauter. Il permet d'assimiler un lot de particules hétérogènes en tailles, comme un lot homogène en taille en respectant leurs surfaces spécifiques.

Lorsque l'on désire donner de l'importance au volume des particules, on définit leur diamètre moyen par :

$$d_{[4,3]} = \sum X_i \cdot d_{p_i}. \tag{2.3}$$

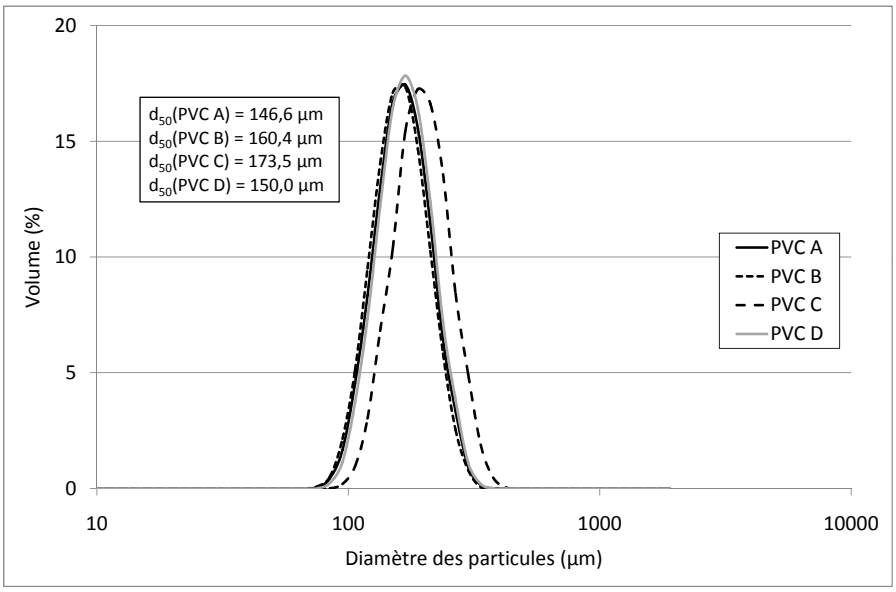


FIGURE 2.1 – Distribution granulométrique de quatre grades de PVC produit par INEOS-ChlorVinyls.

Tableau 2.1 – Tailles caractéristiques de quatre grades de PVC mesurées par le granulomètre MALVERN Mastersizer 2000 avec le module Scirocco 2000.

	PVC A	PVC B	PVC C	PVC D
d_{50} (μm)	146,6	160,4	173,5	150,0
d_{10} (μm)	105,6	116,1	124,5	108,9
d_{90} (μm)	202,5	221,9	240,9	206,3
Span (-)	0,661	0,660	0,671	0,649
$d_{[3,2]}$ (μm)	142,0	155,5	168,0	145,5
$d_{[4,3]}$ (μm)	151,2	165,6	179,2	154,6

$d_{[4,3]}$ correspond au diamètre moyen pondéré, il permet d'assimiler les particules à des sphères de volumes équivalents.

Les résultats de l'analyse granulométrique, présentés dans le Tableau 2.1, montrent que les différents grades de PVC étudiés ont le même étalement de distribution de tailles (d'environ 0,65). Par ailleurs, l'observation au MEB de différents grades de PVC confirme cette dernière constatation (Figure 2.2).

De plus l'observation de la Figure 2.1 et du Tableau 2.1 montre que les grades de PVC A, B, et D ont les mêmes propriétés granulométriques, avec un diamètre de Sauter compris entre 142 et 155 μm, alors que le grade C a un diamètre plus élevé.

A partir de ces résultats, on peut classer les différents grades par leur diamètre de Sauter croissant :

$$\text{PVC A} < \text{PVC D} < \text{PVC B} < \text{PVC C}.$$

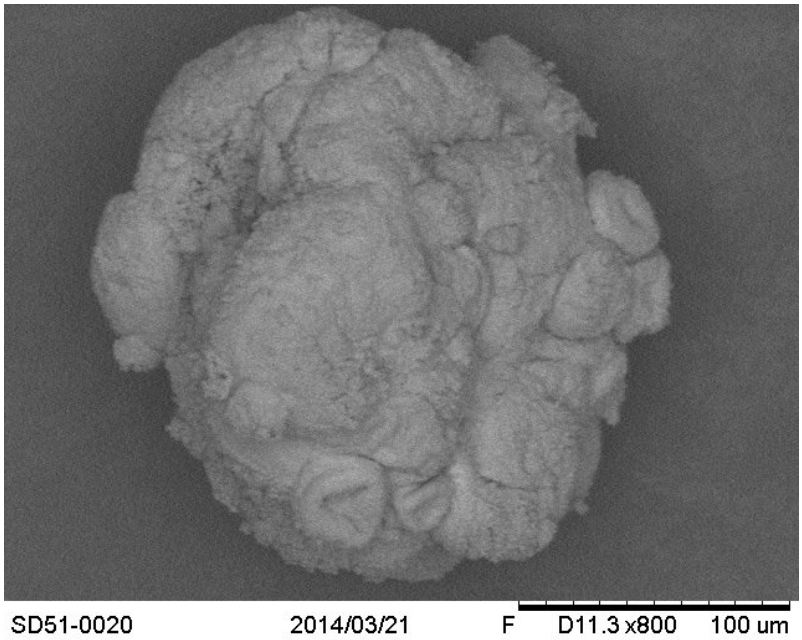


FIGURE 2.2 – Photos de grains de PVC prises au microscope à balayage électronique : vue d'une particule isolée.

2.1.2 Propriétés texturales des grains de PVC : porosité et distribution de tailles de pores.

Les propriétés texturales d'un grain (porosité interne, distribution de tailles de pores) ont été déterminées par porosimétie à mercure (Micrometrics Autopore IV). Précisons que la porosité interne d'un grain, χ, est le rapport entre le volume gazeux contenu dans les pores et son volume géométrique :

$$\chi = \frac{V_p - V_s}{V_p}. \tag{2.4}$$

Avec V_p et V_s, respectivement, le volume géométrique et le volume effectif de solide contenu dans le grain.

La porosité dépend de la nature de la particule et des traitements thermiques, mécaniques et chimiques auxquels elle a été soumise. Dans le cas du PVC produit par polymérisation en suspension, elle dépend des conditions opératoires de l'étape de réaction.

Connaissant la masse volumique réelle du PVC ($\rho_s = 1400$ kg.m^{-3}), on peut évaluer la porosité du grain par la relation suivante :

$$\rho_p = \rho_s \cdot (1 - \chi), \tag{2.5}$$

avec ρ_p la masse volumique apparente du grain.

Dans le Tableau 2.2 sont regroupées les valeurs de χ et ρ_p déterminées pour les différents grades de PVC. On constate que les grades A et B ont la même porosité interne et la même masse volumique ($\chi = 29$ % et $\rho_p = 992$ kg/m^3). Ces résultats nous permettent de réaliser une classification des grades suivant leur masse volumiques décroissantes :

$$\text{PVC A} = \text{PVC B} > \text{PVC D} > \text{PVC C}.$$

En ce qui concerne la distribution de tailles de pores, un exemple de résultats bruts est présenté sur la Figure 2.3 (PVC A).

Sur la Figure 2.3(a), on distingue deux régions :

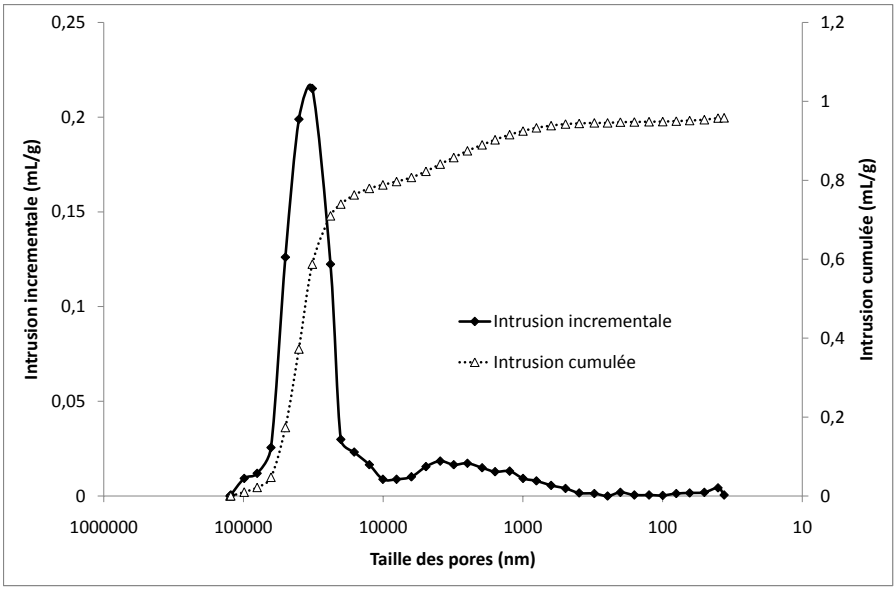
– La première, pour des tailles de pores supérieures à 10 000 nm, caractérise l'espace interstitiel entre les grains de PVC (Figure 2.3(b)). En effet le diamètre moyen des pores dans cette région (40 μm) correspond au diamètre hydraulique d'un lit fixe constitué de particules sphériques de 142 μm de diamètre ($d_{[3,2]}$ du PVC A) et ayant une porosité de 0,35 (porosité d'un lit fixe tassé, voir Tableau 2.5). Cette grandeur, estimée par la relation suivante, est de 48 μm :

$$d_h = \frac{4}{6} \cdot \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} \cdot d_{[3,2]}. \tag{2.6}$$

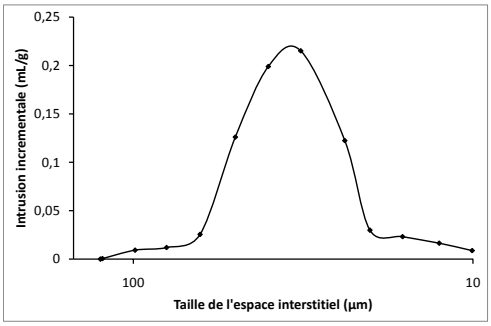
– La seconde région, pour des tailles de pores inférieures à 10 000 nm, représente l'espace entre les différents éléments constitutifs du grain de PVC : agglomérats et particules primaires (voir Chapitre 1). La porosité interne globale (χ) est de 29% (Tableau 2.2). La distribution de tailles de pores est bimodale :
  - La première, pour des tailles comprises entre 10 000 nm et 250 nm, caractérise l'espace entre les agglomérats. En effet, le diamètre moyen des pores, estimé pour cette population à 3300 nm, est comparable au diamètre hydraulique d'un milieu constitué de particules sphériques de 10 à 12 μm de diamètre et ayant une porosité de 0,27. Cette dernière, déterminée à partir du volume de mercure occupant cette population de pores, est appelée la porosité externe des agglomérats. Ce diamètre est très proche du diamètre moyen des agglomérats, comme le montre la Figure 2.4.
  - La deuxième, pour des tailles comprises entre 250 nm et 50 nm caractérise l'espace interstitiel entre les particules primaires, élément constitutif de l'agglomérat. Le diamètre moyen de pores de cette famille de pores est de 80 nm. En considérant cette valeur comme le diamètre hydraulique d'un agglomérat de particules primaire de 1 μm de diamètre, on peut en déduire la porosité interne des agglomérats. Le calcul donne un résultat compris entre 8 et 10%. Cette valeur est largement supérieure à celle déterminée par porosimétrie à mercure (2,1%). L'écart observé peut être attribué à la limite de la porosimétrie à mercure. En effet cet appareil ne nous permet pas de caractériser les méso et les microporosités (diamètre de pores inférieurs à 50 nm)

La valeur de la tortuosité des pores a été évaluée par le logiciel commercial du porosimètre. Cette valeur représente le rapport entre la distance réellement parcourue par le mercure et le rayon de la particule. La méthode de calcul de cette grandeur, tirée du manuel du porosimètre, est placée en Annexe B page 254. La principe de calcul repose sur la détermination de la diffusion effective du mercure dans le grain. Le Tableau 2.2 montre que la valeur de la tortuosité pour les différents grades étudiés est comprise entre 2,9 e 3,3.

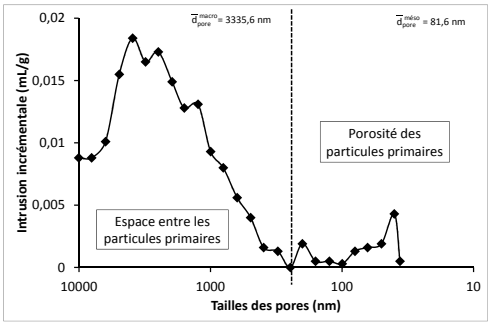
L'ensemble des résultats de porosimétrie à mercure (porosité, diamètre moyen des pores, tortuosité, et masse volumique de la particule) pour les quatre grades étudiés est résumé dans le Tableau 2.2.



(a) Résultats bruts du porosimètre à mercure



(b) Distribution de l'espace interstitiel de l'échantillon.



(c) Distribution de tailles de pores internes.

FIGURE 2.3 – Résultats de porosimètrie à mercure du PVC A.

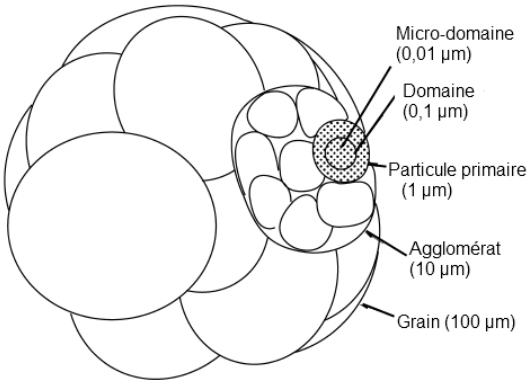


FIGURE 2.4 – Structure d'une particule de PVC (Saeki and Emura, 2002).

Tableau 2.2 – Porosité, mésoporosité, diamètres moyens des pores, tortuosité, et masse volumique des grains, pour les quatres grades de PVC.

	PVC A	PVC B	PVC C	PVC D
Masse volumique du grain ($kg \cdot m^{-3}$)	990,8	994,4	935,3	980,6
Tortuosité (-)	3,7	3,3	2,9	3,1
Porosité globale (%)	29,2	29,0	33,1	30,0
Porosité externe des agglomérats (%)	27,1	27,7	31,7	29,5
Porosité interne des agglomérats (%)	2,09	1,34	1,34	0,52
Diamètre moyen des pores externes aux agglomérats (nm)	3336	1597	1932	1900
Diamètre moyen des pores internes aux agglomérats (nm)	82	77	73	46

2.2 Propriété physico-chimiques et thermodynamiques du PVC.

L'affinité du PVC avec l'eau est une donnée importante dans le procédé de séchage. En effet, elle définit l'équilibre entre les particules de PVC et une atmosphère humide. On parle alors d'équilibre de sorption, qui présente la valeur de l'humidité à l'équilibre du solide en fonction de l'humidité de l'atmosphère gazeuse. Avant de présenter ces équilibres, il est nécessaire de définir la nature de l'eau présente dans un corps humide ainsi que la notion d'activité de l'eau.

2.2.1 Définition : Nature de l'eau dans un corps humide.

Abstraction faite des solides donnant lieu à une liaison dite chimique, les matériaux sont classés en corps hygroscopiques ou non. Les corps hygroscopiques sont caractérisés par le fait que la tension de vapeur du solvant en équilibre avec le solide est inférieure à celle du solvant pur ($P_w^\circ > p_w$) à la même température. L'hygroscopicité est due à des phénomènes tels que l'adsorption, la capillarité, la formation de solution (solubilité partielle du solide) dans le liquide.

Quant aux corps non hygroscopiques, ils sont caractérisés par l'égalité des pressions : $p_w = P_w^\circ$.

Aux basses pressions l'activité de l'eau dans un produit solide peut-être exprimée, en assimilant les fugacités aux pressions, par le rapport entre la pression de vapeur de l'eau et la tension de vapeur à la température donnée :

$$a_w = \frac{f_w}{f_w^\circ} = \frac{p_w}{P_w^\circ} \tag{2.7}$$

Au sein du matériau solide, la quantité d'eau rapportée à l'unité de masse de matière sèche, X est, à l'équilibre, une fonction de la pression partielle de vapeur d'eau, p_w, et de la température soit :

$$X = f\left(p_w, T\right) \tag{2.8}$$

Comme la tension de vapeur P_w° est elle-même une fonction de la température, on peut encore écrire :

$$X = f\left(p_w/P_w^\circ, T\right) = f\left(a_w, T\right) \tag{2.9}$$

L'intérêt essentiel de ce dernier mode d'écriture consiste dans le fait que, grâce à l'introduction d'une fonction exponentielle (loi de tension de vapeur) le graphe de la fonction $X = f\left(a_w, T\right)$ dépend relativement peu de la température.

Un produit est susceptible de contenir de l'eau sous 2 formes : l'eau libre et l'eau liée. Ces deux catégories correspondent à des énergies de liaison avec le produit très différentes. L'eau liée est fixée avec la matière sèche par des liaisons de divers types :

- par capillarité, lorsque l'eau est dans des pores très étroits (eau solvant),
- ou par des liaisons hydrogène sur des groupements polaires, comme par exemple sur les protéines ou les polysaccharides dans les produits agro-alimentaires, ou encore sur les groupes alcools ou amines (eau non solvant).

Compte tenu de ces interactions avec la matière sèche, l'activité de cette forme d'eau est inférieure à 1, ce qui traduit le fait que la pression de vapeur de cette forme d'eau est inférieure à la tension de vapeur sous la température correspondante. L'eau liée correspond à ce que l'on appelle encore l'eau adsorbée. La quantité d'eau liée contenue dans un solide est donnée par l'isotherme de sorption correspondant.

L'eau libre est par opposition celle qui, imprégnant la texture du produit est libre de migrer du cœur vers la périphérie. Les énergies de liaisons avec la matière étant faibles, l'activité de l'eau libre est strictement égale à l'unité.

L'énergie nécessaire pour arracher les molécules de solvant à un substrat solide lors du séchage dépend notamment de la nature de la liaison fluide-solide. L'énergie nécessaire au séchage comprend en effet :

– la mise en température du système : substrat-solvant,
– la rupture de la liaison,
– et la vaporisation de la molécule du solvant.

2.2.2 Equilibres thermodynamiques (adsorption) des différents grades de PVC en poudre.

Lors de la modélisation des phénomènes de séchage on considère qu'il existe un équilibre dynamique entre le solide et le gaz au voisinage de sa surface, équilibre qui ne pourra pas être dépassé durant l'opération. Cet équilibre est caractérisé par les isothermes de sorption, déterminés expérimentalement par méthode statique ou dynamique.

La méthode statique consiste à mettre en équilibre un échantillon avec une solution aqueuse dont on contrôle l'activité. Habituellement, on utilise des solutions saturées en sels, ou éventuellement des solutions d'acide sulfurique dilué dans l'eau. L'échantillon et la solution sont placés dans des bocaux hermétiques et mis en étuve régulée en température. On effectue régulièrement la pesée de l'échantillon jusqu'à ce que la masse mesurée ne varie plus. On est alors à l'équilibre hygroscopique. On détermine alors la masse de l'extrait sec de l'échantillon ce qui permet de calculer sa teneur en eau.

La méthode dynamique consiste à mesurer le poids d'un échantillon placé dans un courant d'air à température fixée et à mesurer la variation d'humidité du solide à l'équilibre en fonction de l'humidité de l'air. En règle générale la teneur en eau de l'air de balayage varie par échelon dès que la masse de l'échantillon est en équilibre. Il existe des appareils automatiques appelés DVS (Dynamic Vapor Sorption).

Les équilibres de sorption des différents grades produits par INEOS ont été déterminés par DVS. Les mesures ont été sous-traitées au centre RAPSODEE de l'école des mines d'ALBI. Ces essais ont été réalisés à 45°C (valeur maximale pouvant être atteinte par leur appareil), cette température est proche de celle du PVC en sortie de séchoir Flash.

Les équilibres de sorption ainsi obtenus sont présentés sur la Figure 2.5. Ces courbes montrent une faible affinité des différents grades de PVC vis à vis de l'eau. En effet, même pour des valeurs élevées d'humidité relative (80 à 85%), l'humidité du solide à l'équilibre n'excède jamais 1,7 g d'eau / kg de PVC sec. A partir de ces résultats on peut classer les grades suivant leur affinité vis à vis de l'eau :

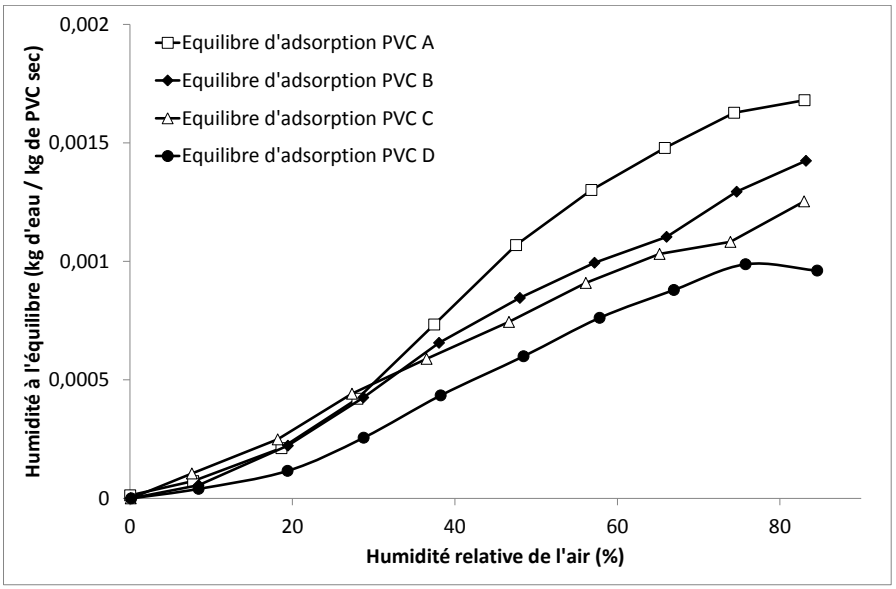


FIGURE 2.5 – Equilibres d'adsorption des différents grades de PVC.

$$\text{PVC D} < \text{PVC C} < \text{PVC B} < \text{PVC A}.$$

La forme des isothermes est semblable à l'isotherme de type III, la concavité des courbes est dirigée vers l'axe des ordonnées. Cette famille d'isothermes est caractérisée par :

- une adsorption en couche multiple,
- une très faible affinité du solide vis à vis de la vapeur d'eau, surtout à faible valeur de l'humidité relative,
- et une chaleur d'adsorption de la vapeur d'eau inférieure à la chaleur de liquéfaction.

Ce comportement est caractéristique de l'adsorption d'un soluté gazeux sur des adsorbants de faibles surfaces spécifiques.

2.2.3 L'eau capillaire

L'eau présente sous forme capillaire est une part importante de l'eau contenue dans le matériau, soit dans les pores eux mêmes, soit dans l'espace interstitiel entre les particules si il s'agit de sécher des produits obtenus par cristallisation, précipitation, ou polymérisation en suspension.

La mouillabilité caractérise l'intéraction entre une surface solide et un liquide. L'angle θ que forme la goutte avec la surface est appelé angle de contact (Figure 2.6 et Tableau 2.3).

La pression capillaire dans un solide poreux peut être estimée par la loi de Jurin :

$$P_c = \frac{2 \cdot \gamma_{LV} \cdot \cos\theta}{r} \tag{2.10}$$

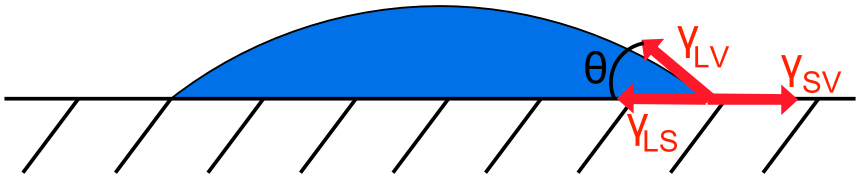


FIGURE 2.6 – Définition de θ, l'angle de contact solide - liquide - gaz.

r peut être la rayon des pores pour un solide poreux, ou la moitié du diamètre hydraulique. Cette grandeur, dépendant du diamètre des particules et de la porosité du milieu granulaire est estimée par la relation (2.6).

D'après la littérature, la valeur moyenne de l'angle de contact du PVC avec l'eau est de 85,6° (Etzler et al., 2000) (Triolo and Andrade, 1983) (Moshonov and Avny, 1980). Le PVC est donc un solide partiellement mouillant.

Tableau 2.3 – Mouillabilité d'un solide en fonction de son angle de contact.

$\theta = 0°$	$0<\theta < 90°$	$90<\theta < 180°$	$\theta = 180°$
Parfaitement mouillant	Mouillant	Non mouillant	Parfaitement non mouillant

Selon la loi de KELVIN la pression partielle de la vapeur d'eau au dessus du ménisque dans un solide poreux ayant un rayon moyen des pores r_{pore} est donnée par :

$$\log\left(\frac{p_w}{P_w^\circ}\right) = -\frac{2\cdot\gamma_{LV}\cdot\cos\theta}{r_pore}\cdot\frac{M_w}{\rho_w\cdot R\cdot T_p}, \tag{2.11}$$

avec M_w, la masse molaire du liquide, ρ_w, la masse volumique du liquide, R, la constante des gaz parfaits, et T_p, la température de la particule en K .

Par ailleurs, dans un solide ayant une distribution de taille de pores étalée, la différence de pression capillaire existante entre les pores connectés de diamètres différents provoque un phénomène de succion de l'eau des pores de grandes tailles vers les pores de tailles plus faibles (Figure 2.7).

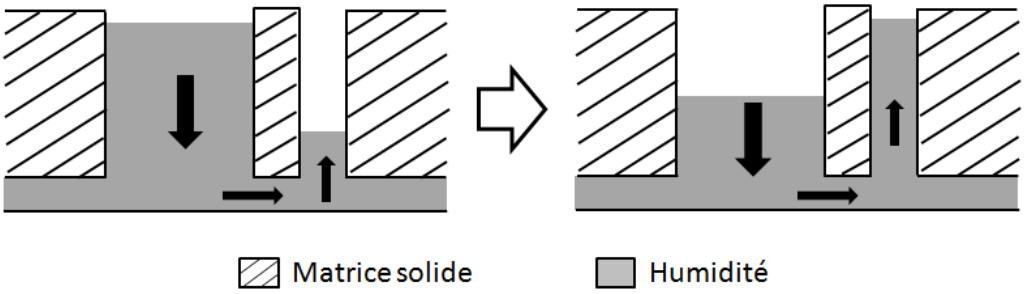


FIGURE 2.7 – Phénomène de transfert d'humidité par capillarité entre deux pores connectés de tailles différentes.

Dans le cas du PVC, le Tableau 2.4 présente l'effet du rayon moyen de pores sur la pression capillaire et sur l'activité de l'eau. On constate une forte influence du rayon de pore sur la pression capillaire, elle passe de 221 Pa à $2,21\cdot10^7$ Pa lorque le rayon de pore passe de

Tableau 2.4 – Activité d'un liquide dans un pore, ainsi que la pression capillaire (calculées par la loi de Kelvin) en fonction du rayon du pore ($\theta = 85,6°$ et $\gamma_{LV} = 72$ mN/m).

r_{pore} (m)	10^{-4}	10^{-6}	10^{-7}	10^{-9}
P_c (Pa)	221	$2,21 \cdot 10^4$	$2,21 \cdot 10^5$	$2,21 \cdot 10^7$
a_w (-)	1,0	1,0	1,0	0,83

100 μm à 1 nm. Cependant, son effet sur l'activité de l'eau ne se fait sentir que pour des rayons de pores inférieurs à 10 nm.

La grande valeur de l'angle de contact du PVC vis à vis de l'eau nous permet de conclure que le phénomène de capillarité a peu d'effet sur l'activité de l'eau (processus d'évaporation). Cependant il a un effet sur la distribution de l'eau dans la matrice solide, il favorise la migration de l'eau liquide des grosses cavités internes (porosité externes aux agglomérats) vers des pores de plus faible diamètre (espace entre les particules primaires).

2.3 Propriétés d'écoulement du PVC en poudre.

2.3.1 Paramètres d'écoulement du PVC en poudre : cohésivité et coulabilité.

Certains matériaux solides présentent une forte tendance à l'agglomération qui résulte de fortes attractions entre les particules causées par :

– des forces de Van der Walls,
– des froces électrostatiques,
– des ponts liquides dus à l'humidité de surface.

L'origine de ces forces interparticulaires dépend de la nature du solide et de la rugosité des particules. On parle alors de poudre cohésive.

La coulabilité d'une poudre représente l'aptitude d'une poudre à s'écouler librement, de manière régulière et constante sous la forme de particules individuelles. Cette propriété est très importante pour :

– la vidange d'une trémie,
– la fluidisation,
– et le transport pneumatique.

Différents tests empiriques permettent de caractériser ces phénomènes de manière quantitative. Carr (1965) a proposé une méthode empirique basée sur la détermination de différents paramètres permettant de caractériser la coulabilité d'une poudre.

Tableau 2.5 – Paramètres de Carr de différents grades de PVC.

Paramètre	PVC A		PVC D	
	Valeur	Indice	Valeur	Indice
Compressibilité	10,7%	22	10,2%	22,5
Angle de talus	34,7°	20	31,0°	22
Angle de spatule	31,4°	22,5	30,2°	24
Indice d'uniformité	1,502	24	1,477	24
Total	bon	88,5	très bon	92,5
Masse volumique en vrac ($kg \cdot m^{-3}$)	575		510	
Taux de vide en vrac	0,42		0,48	
Masse volumique tassée ($kg \cdot m^{-3}$)	644		568	
Taux de vide tassé	0,35		0,42	

Ces paramètres, évalués par le combiné de caractérisation de poudre HOSOKAWA Micron Corporation - Powder Tester Model PT-S, sont :

– la masse volumique en vrac, ρ_{vr},
– la masse volumique tassée, ρ_{ta},
– la compressibilité, γ
– l'angle de talus, θ_t

– l'angle de spatule, θ_s
– l'indice d'uniformité, I_u.

Le protocole expérimental ainsi que la méthode de détermination de l'indice de coulabilité d'une poudre sont résumés dans l'Annexe C page 258. Le Tableau 2.5 résume les paramètres d'écoulement pour deux grades de PVC sec. A partir des masses volumiques tassée et en vrac des poudres ainsi que de la masse volumique du grain (obtenue par porosimétrie à mercure), nous avons calculé le degré de vide des lits fixes en vrac et tassé. Ces résultats complètent le Tableau 2.5.

Selon Carr (1965), la faible valeur de compressibilité ($< 20\%$), et un angle de talus inférieur à $40°$ classe ces poudres parmi les poudres ayant une bonne coulabilité.

2.4 Vitesses caractéristiques.

Le comportement d'une poudre vis à vis de la fluidisation donne des indications importantes sur sa transportabilité. La technique de fluidisation consiste à mettre les particules en suspension dans un courant gazeux ascendant. Le milieu résultant est appelé lit fluidisé en raison de son comportement semblable à un liquide. Si on porte la variation de la perte de charge du lit de poudre en fonction de la vitesse superficielle du fluide (vitesse en fût vide), on obtient le diagramme de fluidisation (Figure 2.8). Pour des vitesses de gaz relativement faibles, les particules solides demeurent immobiles, et la perte de charge suit la loi d'Ergun (représentant la perte de charge à travers un lit fixe).

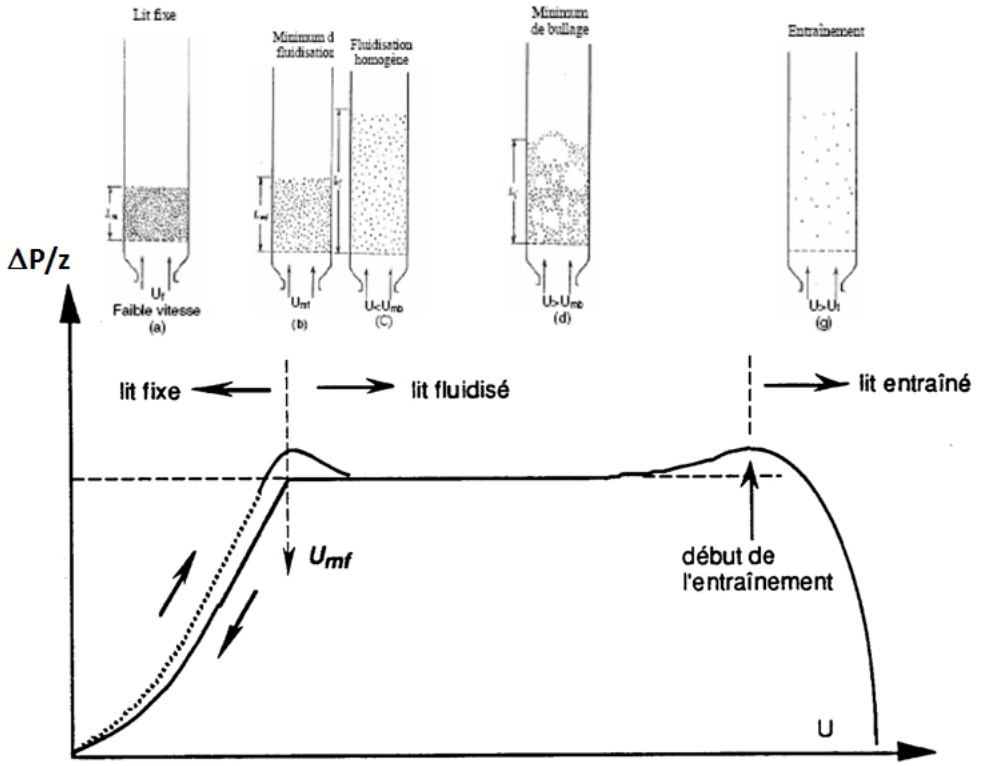


FIGURE 2.8 – Courbe de fluidisation et régimes d'écoulements simples.

Lorsque la vitesse de gaz devient supérieure à une valeur limite, il apparaît des vibrations des particules et un expansion de la couche. La perte de charge passe alors par un maximum puis décroît pour atteindre une valeur sensiblement égale au poids des particules par unité de section droite de la colonne. Au delà de cette vitesse, les particules deviennent indépendantes les unes des autres, la suspension devient alors analogue à un liquide. La vitesse correspondant entre l'état fixe et l'état fluidisé est appelée vitesse minimale de fluidisation (U_{mf}). Cette grandeur est propre au système gaz/solide étudié : elle est indépendante des paramètres géométriques du système. Précisons, qu'au delà de cette vitesse minimale de fluidisation, le comportement de la suspension dépend fortement des propriétés des particules solides. D'une manière générale, on distingue différents régimes de fluidisation.

Lorsque la vitesse devient supérieure à une valeur maximale, considérée comme la vitesse terminale de chute libre (U_t), les particules sont entraînées dans le courant gazeux. La

réduction de la masse de particules présentes dans la colonne se traduit par une chute de la perte de charge.

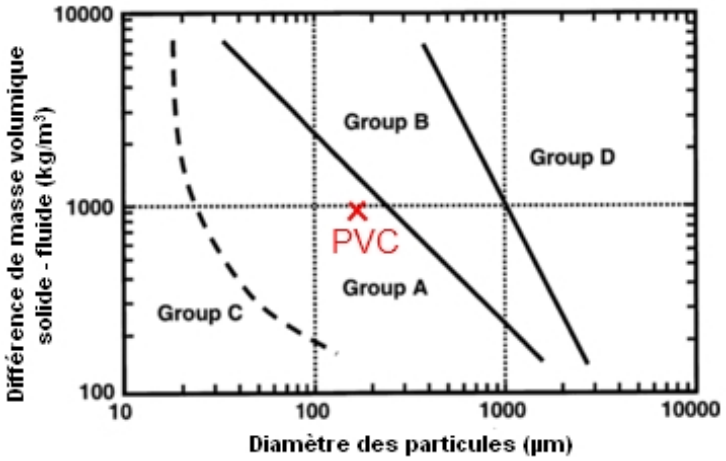


FIGURE 2.9 – Diagramme deGeldart (1973).

Notons que toutes les poudres ne sont pas fluidisables, et leur comportement vis à vis de la fluidisation dépend de leur nature et de leurs propriétés physiques. Ainsi, Geldart (1973) a classé les poudres en quatre groupes selon leur comportement vis à vis de la fluidisation (Figure 2.9). Nous avons représenté les propriétés physiques des différents grades de PVC sur ce diagramme (croix rouge). On constate que ces poudres appartiennent à la classe A de la classification de Geldart. Cette famille de poudres est caractérisée par :

- une excellente propriété d'écoulement lorsque le milieu est aéré à des vitesses supérieures à la vitesse minimale de fluidisation. Dans cette condition, la poudre présente une tendance au fusage lors de la vidange d'une trémie, c'est à dire un écoulement de type fluide à travers l'obturateur.
- une désaération lente quand la fluidisation est interrompue,
- une fluidisation particulaire ou homogène (forte expansion du lit) au delà de la vitesse minimale de fluidisation.

Le phénomène de bullage (présence de cavités pratiquement vides de solide dans la suspension) est observé au delà d'une vitesse caractéristique appelée vitesse minimale de bullage (U_{mb}).

Pour le grade de PVC A, la vitesse minimale de fluidisation et la vitesse minimale de bullage ont été déterminées expérimentalement dans une colonne de fluidisation à parois transparentes (diamètre : 19,2 cm). Les essais ont été réalisés avec une masse de particules de 8,7 kg et le gaz de fluidisation est de l'air sec (Figure 2.10). A partir de ce diagramme, nous avons estimé la vitesse minimale de fluidisation du PVC A (1,0 cm/s).

Par ailleurs, à partir de la mesure de la hauteur du lit expansé (H_{Lit}) en fonction de la vitesse du gaz, nous avons pu calculer l'effet de ce paramètre sur la porosité du lit (ε), ou taux de présence du gaz (α_g) :

$$\varepsilon = \alpha_g = 1 - \frac{m_p^{Lit}}{\rho_p \cdot A_c \cdot H_{Lit}}, \tag{2.12}$$

avec m_p^{Lit}, la masse de particules constituants le lit, et A_c, la section de la colonne de fluidisation.

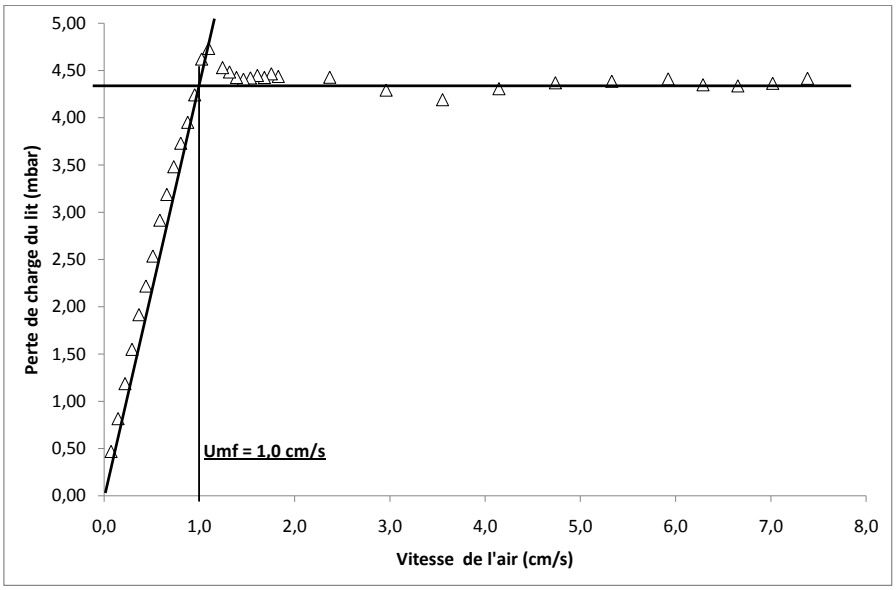


FIGURE 2.10 – Courbe de fluidisation du PVC A : Perte de charge en fonction de la vitesse en fût vide.

Ces résultats sont portés sur la Figure 2.11. On remarque une forte expansion du lit entre la vitesse minimale de fluidisation et une vitesse caractéristique appelée la vitesse minimale de bullage. Ce régime est appelé le régime de fluidisation homogène ou particulaire. La vitesse minimale de bullage est définie comme la vitesse à laquelle les bulles de gaz apparaissent ou disparaissent au sein de la suspension. Cette grandeur est déterminée visuellement. Elle est de l'ordre de 2,9 cm/s. Par ailleurs, nous avons remarqué qu'elle correspond à la valeur maximale de la porosité obtenue sur la Figure 2.11.

Ces données dont été confrontées avec les prédictions des corrélations de la bibliographie :

– la relation de Thonglimp et al. (1984) pour la vitesse minimale de fluidisation :

$$Re_{mf} = \left(31,6^2 + 0,0425 \cdot Ga\right)^{\frac{1}{2}} - 31,6. \tag{2.13}$$

Avec Re_{mf} le nombre de Reynolds minimal de fluidisation et Ga le nombre de Galilée :

$$Ga = \frac{d_p^3 \cdot \rho_g \cdot (\rho_p - \rho_g) \cdot g}{\mu_g^2}. \tag{2.14}$$

– la relation de Richardson, pour la vitesse minimale de bullage :

$$U_{mb} = 33 \cdot d_p \cdot \left(\frac{\mu_g}{\rho_g}\right)^{-0,1}. \tag{2.15}$$

Par ailleurs, la vitesse terminale de chute libre d'une particule isolée a été calculée par la méthode directe d'Haider et Levenspiel :

$$U_t = U_t^* \left(\frac{\rho_g^2}{\mu_g \cdot (\rho_p - \rho_g) \cdot g}\right)^{-1/3}, \tag{2.16}$$

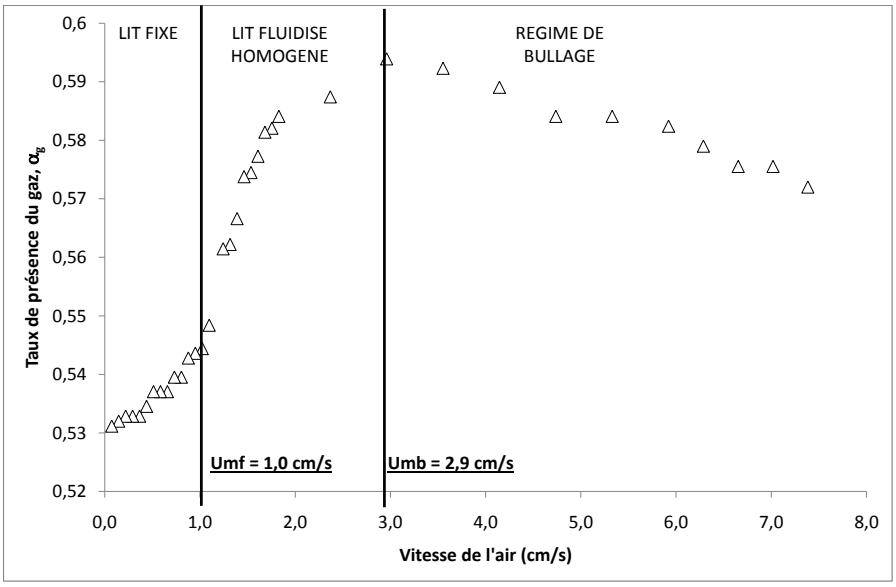


FIGURE 2.11 – Courbe de fluidisation du PVC A : Porosité du lit en fonction de la vitesse en fût vide.

avec :

$$U_t^* = \left(\frac{18}{d_p^{*2}} + \frac{2,335 - 1,744 \cdot \Phi}{d_p^{*0,5}} \right)^{-1}, \tag{2.17}$$

et :

$$d_p^* = Ga^{1/3}. \tag{2.18}$$

Les résultats ainsi obtenus sont regroupé dans le Tableau 2.6. La comparaison entre les vitesses caractéristiques du PVC A déterminées expérimentalement et celles données dans le Tableau 2.6 calculées par les corrélations de la bibliographie montre une sous estimation des vitesses caractéristiques par les corrélations. Ceci est probablement du à la présence de forces électrostatiques entre les particules de PVC, qui peuvent conduire à la formation d'agglomérats, qui à leur tour surévaluent les vitesses caractéristiques.

Tableau 2.6 – Vitesses minimale de fluidisation, minimale de bullage, et terminale de chute libre des grades de PVC (* Calculées par la méthode directe de Haider et Levenspiel).

	PVC A	PVC B	PVC C	PVC D
U_{mf} $(\mathrm{cm \cdot s^{-1}})$	0,824	0,756	0,860	0,570
U_{mb} $(\mathrm{cm \cdot s^{-1}})$	1,43	1,43	1,58	1,38
U_t $(\mathrm{cm \cdot s^{-1}})$*	51,1	47,4	52,4	31,4

2.4.1 Transport pneumatique du PVC en poudre : écoulement en phase diluée et vitesses caractéristiques.

Dans un séchoir pneumatique, la vitesse de l'air doit être suffisante pour assurer le transport des particules de PVC en phase diluée. Pour ce faire, la vitesse du gaz doit dépasser

des vitesses caractéristiques appelées vitesse d'engorgement lors du transport vertical, et vitesse de saltation lors du transport horizontal. Ces grandeurs dépendent d'une part des propriétés intrinsèques du système gaz-solide, et d'autre part du débit massique unitaire de solide.

Considérons une colonne verticale alimentée par un courant gazeux, et par l'intermédiaire d'une vanne rotative, on déverse des particules solides dans le système (Figure 2.12). Il faut préciser que le comportement hydrodynamique du système dépend des propriétés des particules et du gaz, des paramètres géométriques du système, et des débits de gaz et de solide. Les travaux expérimentaux ont montré que, pour un débit de solide donné, le transport de solide en phase diluée ne peut avoir lieu que pour des vitesses de gaz supérieures à une valeur limite appelée vitesse d'engorgement (ou choking velocity), U_{ch}.

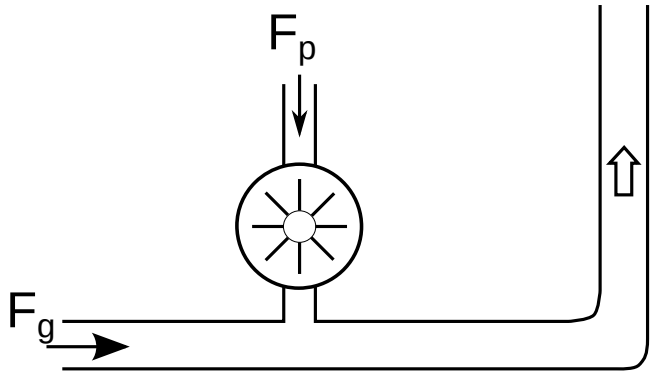


FIGURE 2.12 – Exemple de transport de poudre en phase diluée

Cette vitesse peut être évaluée en résolvant le système d'équation suivant (Yang and Keairns, 1982) :

$$\frac{2 \cdot g \cdot D_c \cdot (\varepsilon_{ch}^{-4,7} - 1)}{(\frac{U_{ch}}{\varepsilon_{ch}} - U_t)^2} = 6,811 \cdot 10^5 \cdot \left(\frac{\rho_g}{\rho_p}\right)^{2,2}, \tag{2.19}$$

$$\frac{F_p}{\pi/4 \cdot D_c^2 \cdot \rho_p} = (\frac{U_{ch}}{\varepsilon_{ch}} - U_t) \cdot (1 - \varepsilon_{ch}), \tag{2.20}$$

$$\frac{F_g}{\pi/4 \cdot D_c^2 \cdot \rho_g} = U_g = k_{ch} \cdot U_{ch}, \tag{2.21}$$

avec g l'accélération de la pesanteur, D_c le diamètre de la conduite, ε_{ch}, le taux de vide du lit à la vitesse U_{ch}, k_{ch} le coefficient d'écart à l'engorgement, U_t la vitesse terminale de chute libre des particules, ρ_g et ρ_p les masses volumiques respectives du gaz et des particules, et F_g et F_p les débits massiques respectifs de gaz et de solide.

Par ailleurs, dans le but d'éviter le dépôt de solide dans les conduites horizontales des séchoirs, il faut que la vitesse du gaz soit supérieure à une vitesse limite appelée vitesse de saltation, ou vitesse minimale de dépôt. Cette vitesse peut être évaluée par la relation suivante :

$$\frac{F_p}{\rho_g \cdot U_{salt} \cdot A_c} = \left(\frac{1}{10^{(1440 \cdot d_p + 1,96)}}\right) \cdot \left(\frac{U_{salt}}{(g \cdot D_c)^{0,5}}\right)^{(1100 \cdot d_p + 2,5)} \tag{2.22}$$

L'ensemble de ces vitesses caractéristiques pour les différents grades est calculé et porté dans le Tableau 2.7. Les vitesses d'engorgement et les taux de vide à l'engorgement ont été calculés pour une conduite de 1,7 m de diamètre, et un débit massique de solide de

8 000 kg/h. On note que la vitesse de saltation des différents grades est de l'ordre de 10 m/s, tandis que la vitesse de l'air dans les conduites horizontales du séchoir pneumatique industriel (diamètre = 1 m), qui forment la jonction entre le riser et les cyclones, est de l'ordre de 20 m/s, afin d'éviter les dépôts de PVC. Ceci explique, en partie, la forte valeur du débit massique d'air.

La vitesse retenue dans le séchoir pneumatique industriel est de 20 m/s, ce qui correspond au double de la vitesse de saltation. Cette forte vitesse de gaz a été choisie pour assurer la dispersion du gâteau humide dans le courant d'air chaud en entrée, et pour éviter le dépôt de particules solides dans les conduites horizontales.

Tableau 2.7 – Vitesses d'engorgement, taux de vide à l'engorgement, et vitesses de saltation des grades de PVC. T = 25°C ; P = 1 atm ; Gaz : Air ; Débit PVC = 8000 kg/h

	PVC A	PVC B	PVC C	PVC D
U_{ch} $(\mathrm{m \cdot s^{-1}})$	1,40	1,33	1,36	1,16
ε_{ch} $(-)$	0,9990	0,9989	0,9988	0,9985
U_{salt} $(\mathrm{m \cdot s^{-1}})$	10,300	10,290	10,386	10,258

2.5 Conclusion.

Dans ce chapitre nous avons présenté les différentes grandeurs physiques, physico-chimiques et thermodynamiques qui caractérisent les différents grades de PVC en poudre. Nos résultats ont montré que :

- Les différents grades de PVC ont des morphologies relativement proches à l'exception du PVC C, qui est constitué de particules de tailles plus importantes et ayant une porosité plus élevée.
- Les isothermes d'adsorption de la vapeur d'eau sur les particules de PVC ont montré une faible affinité de la vapeur d'eau vis à vis de ce produit solide. La valeur de l'humidité à l'équilibre ne dépasse jamais 1,7 g d'eau / kg de PVC sec.
- La forte valeur de l'angle de contact eau-PVC et les grandes valeurs du rayon moyen de pore montrent les faibles effets de capillarité sur l'activité de l'eau. Cependant, il affecte la migration de l'eau dans la matrice solide.
- Les différents grades de PVC appartiennent à la classe A de la classification de Geldart. Il s'agit de poudres fusantes qui présentent d'excellentes propriétés d'écoulement, à condition que le milieu soit aéré.
- L'aération du milieu nécessite des vitesses de gaz relativement faibles dues aux faibles valeurs des vitesses minimales de fluidisation, de l'ordre de 1 cm/s.
- L'estimation des vitesses d'engorgement et de saltation, caractérisant le transport pneumatique en phase diluée, a montré que, pour les conditions opératoires industrielles, la vitesse de l'air doit dépasser 10 m/s.

Chapitre 3

Le procédé de séchage thermique.

Sommaire

3.1 Opérations de séparation dans la chaine de fabrication du PVC en grain. 73
3.1.1 Humidité résiduelle d'un gâteau de filtration. 74
3.1.2 Séchage convectif du PVC. 75
Séchoirs à lit transporté, pneumatiques ou Flash. 75
Séchoirs à lit fluidisé. 77
3.2 La cinétique de séchage. 79
3.3 Le séchage de particules poreuses. 81
3.3.1 Transferts externes dans un séchoir convectif. 81
Transfert de quantité de mouvement. 82
Transfert de chaleur. 82
Transfert de matière. 83
3.3.2 Transferts internes à la particule : description des mécanismes internes. 84
Transfert de matière. 85
Transfert de chaleur. 88
3.3.3 Modélisation du séchage thermique. 88
3.4 Conclusion. 89

Le séchage est un processus thermophysique et physico-chimique complexe mettant en jeu des phénomènes de transferts de matière et de chaleur que ce soit avec le milieu environnant qu'à l'intérieur du solide. Cette opération, importante pour les opérations ultérieures de manutention de solides, est largement utilisée dans différents secteurs industriels tels que l'industrie pharmaceutique, alimentaire, chimique, etc. Le séchage permet l'élimination d'un liquide, souvent de l'eau, de la matière solide dans le but :

- de respecter les normes requises d'humidité pour la vente,
- de diminuer les coûts d'emballage et de transport,
- de faciliter le transport et le stockage du produit,
- et d'assurer une meilleure conservation du produit en particulier dans le cas des produits agro-alimentaires.

L'extraction d'eau d'un produit peut être conduite de différentes manières (Mujumdar, 2007) :

- le séchage par sublimation (lyophilisation),
- le séchage par ébullition,
- et, le séchage par évaporation.

Le principe de ce dernier, le plus utilisé dans l'industrie, est fondé sur le fait que la pression d'équilibre (pression partielle de vapeur d'eau à l'interface corps humide-atmosphère) est supérieure à la pression partielle de vapeur d'eau dans l'atmosphère environnante ou à la pression totale. L'existence d'une différence de potentiel d'échange engendre un transfert d'eau de l'intérieur du produit vers le gaz environnant. Pour maintenir constante la température du solide, de l'énergie thermique est bien sûr requise pour compenser l'absorption d'énergie consécutive à la vaporisation de cette quantité d'eau.

L'apport de chaleur au solide peut être réalisé de différentes manières (convection, conduction et rayonnement). La technique du séchage par convection est la plus utilisée dans l'industrie. Les calories nécessaires à l'extraction de l'eau ou du solvant sont apportées par un gaz qui circule au contact de la substance à sécher. Ce gaz joue en même temps le rôle de vecteur pour transporter la vapeur produite hors de l'enceinte de séchage. Les séchoirs à balayage peuvent fonctionner en continu ou en discontinu. Le mode de mise en contact de phases est essentiel au plan de l'efficacité des transferts, que l'on s'intéresse à la technique de mise en mouvement relative d'un fluide par rapport au solide ou encore au mode d'écoulement d'une phase par rapport à une autre (écoulement parallèle à co ou contre-courant, et écoulement croisé). Selon le mode de mise en contact de phases les séchoirs à balayage peuvent être classés en 4 rubriques :

- le séchage par léchage simple (séchoirs à plateaux, séchoir tunnel),
- le séchage par combinaison de léchage et de brassage (séchoir à tambour rotatif),
- le séchage par pulvérisation,
- et, le séchage par traversée de la matière (séchoirs à lit fixe, à lit fluidisé et à lit entraîné).

Ce dernier type de contact améliore sensiblement les transferts mais la perte de charge subie par le gaz est plus importante. Cette famille de séchoirs est utilisée pour le séchage des matériaux granulaires, de poudres et de gâteaux de filtration comme le PVC en poudre.

Le séchage convectif met en jeu des transferts de matière et de chaleur qui sont toujours étroitement imbriqués en phase gazeuse, liquide et solide. A quoi s'ajoutent, aux fins d'accroître les flux et de réaliser des transferts convectifs ou des opérations continues de

traitement, des écoulements de fluides et de solides. C'est dire que cette opération unitaire implique en général une combinaison plus ou moins complexe de transferts de matière, de chaleur et de quantité de mouvement en présence de milieux dispersés.

L'air ou le produit de combustion (fumées) sont les gaz vecteurs les plus répandus dans les procédés de séchage convectif, cependant utiliser de la vapeur d'eau surchauffée (de la vapeur à une température supérieure à sa température d'ébullition) peut être une alternative intéressante. En effet, la vapeur peut céder de l'énergie au produit à sécher sans pour autant condenser. L'augmentation de la température du produit va permettre l'évaporation de son humidité qui va diffuser à travers les pores des particules vers la phase gazeuse. Avec cette méthode de séchage, on peut tout de même observer de la condensation pendant la première phase de séchage lors du contact entre la vapeur et la particule "froide", on observe alors la formation d'un film liquide autour de la particule (Chen et al., 2000). L'intérêt de cette technique est de minimiser les résistances aux transferts externes en supprimant la résistance à la diffusion de la vapeur dans la phase gazeuse entourant le produit, et donc d'obtenir des vitesses de séchage plus importantes qu'avec de l'air chaud. Le transfert de la vapeur d'eau de la particule vers la phase gazeuse peut alors être représenté par la loi de Darcy (Chen et al., 2001).

Cette technique présente plusieurs autres avantages par rapport au séchage avec de l'air chaud (Meunier and Munz, 1986) (Cui et al., 1986) (Salin, 1986) :

- Une meilleure efficacité thermique (valeur élevée de la conductivité thermique de la vapeur d'eau par rapport à celle de l'air).
- Une réduction des risques d'explosion ou de combustion (absence d'oxygène dans le séchoir).
- L'énergie dépensée pour la vaporisation de l'humidité présente dans le solide n'est pas perdue, du fait que la vapeur en sortie de séchoir peut être utilisée pour chauffer une autre partie du procédé, ou aisément recyclée.

Cependant, la haute température de la vapeur rend cette technique mal adaptée pour les produits thermosensibles. Faber et coll. (Faber et al., 1986) présentent un algorithme permettant de rapidement comparer les coûts d'un procédé de séchage à la vapeur surchauffée et à l'air chaud.

En dépit des nombreuses études réalisées sur le séchage de produits solides, cette opération reste encore bien souvent mal maîtrisée dans l'industrie.

3.1 Opérations de séparation dans la chaine de fabrication du PVC en grain.

La chaine de fabrication du PVC est schématisée sur la Figure 3.1. Après polymérisation en suspension du PVC on obtient une bouillie constituée d'un mélange de grains macroporeux de tailles comprises entre 100 et 250 μm et d'eau. L'étape de la centrifugation (séchage mécanique) permet la séparation de la phase liquide exprimable et la production d'un milieu poreux humide appelé « gâteau ». L'humidité ou la teneur en eau du gâteau ainsi formé est comprise entre 20 à 30 % de la masse du produit anhydre.

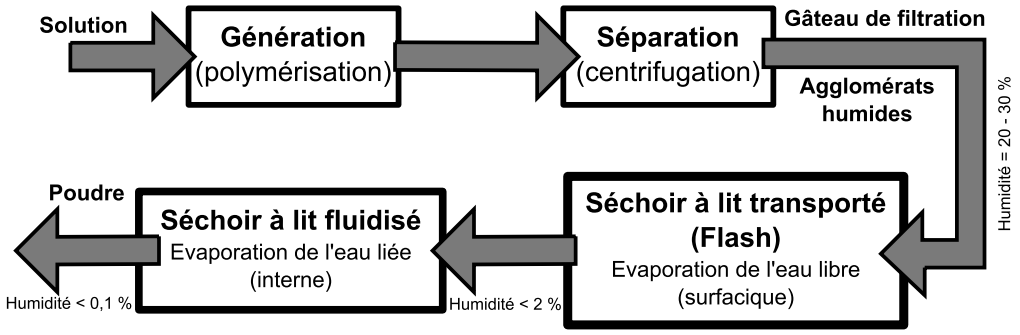


FIGURE 3.1 – Schéma global du procédé de fabrication du PVC en poudre.

3.1.1 Humidité résiduelle d'un gâteau de filtration.

Le solvant retenu dans le gâteau est présent sous quatre formes classées suivant leur facilité d'élimination :

- le liquide capillaire qui remplit les pores du gâteau (espace interstitiel),
- le liquide de contact retenu entre les joints de grains, dont l'importance dépend des phénomènes de tension superficielle (état pendulaire ou funiculaire),
- le liquide d'adhésion, qui mouille la surface des particules et qui dépend de la mouillabilité de celle-ci par le liquide,
- et, le liquide interne qui est retenu par les pores des grains.

Dans le cas d'amas de particules humides, l'eau surfacique forme des ponts liquides mobiles entre les particules. On peut distinguer quatre états (Figure 3.2) selon le degré de saturation en eau, S^{at} :

- l'état pendulaire, pour $S^{at} < 25\%$,
- l'état funiculaire, pour $25 < S^{at} < 80\%$,
- l'état capillaire, pour $80 < S^{at} < 90\%$,
- l'agglomérat liquide, au delà.

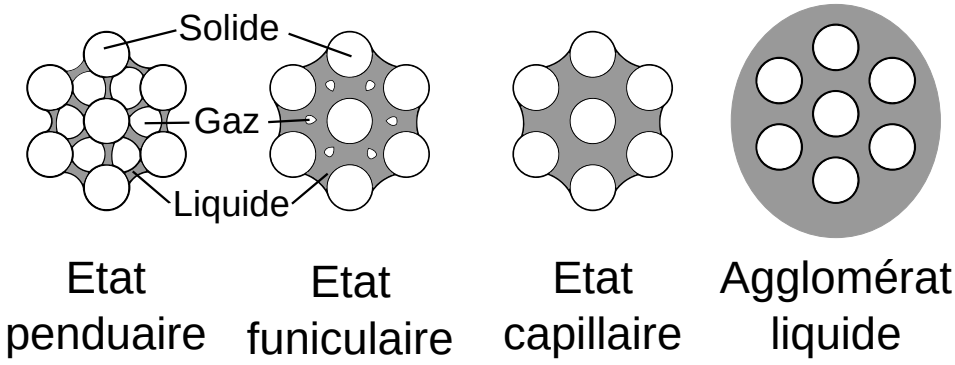


FIGURE 3.2 – Les différents états d'un amas de particules humides.

Le liquide capillaire remplit la couche poreuse jusqu'à une hauteur h_c, qui dépend de la taille de particules, d_p, de l'angle de contact θ, et de la tension superficielle γ_{LV}, comme le montre l'expression de la pression capillaire P_c :

$$P_c = \rho_{eau} \cdot g \cdot h_c = 2 \cdot \alpha \cdot \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \cdot \frac{\gamma_{LV} \cdot \cos\theta}{d_p}. \tag{3.1}$$

avec α, un facteur adimensionnel dépendant du type d'arrangement des grains (pour un arrangement en vrac, $\alpha = 0,4$), et ε la porosité du lit.

Les paramètres qui permettent de réduire l'humidité finale du gâteau de filtration sont :

- la tension superficielle : un abaissement de celle-ci réduit d'autant l'humidité résiduelle que les grains sont gros,
- la pression d'essorage : son augmentation favorise sensiblement la déshydratation,
- la viscosité : son augmentation accroit l'humidité résiduelle,
- la granulométrie : l'humidité résiduelle est très sensible à la taille moyenne des grains au dessous de 100 μm, alors qu'au dessus, elle est sensiblement constante.

En ce qui concerne la séparation par centrifugation, il est souvent difficile d'estimer la porosité du gâteau, car elle dépend de l'accélération et donc de la distance à l'axe de la centrifugeuse. Après une centrifugation de durée infinie et en absence de séchage par l'air, on peut retenir que le rapport entre le volume de solvant et le volume de matière sèche, noté q, dépend de l'accélération centrifuge G, du diamètre moyen des particules d_p et de la masse volumique du liquide ρ_l :

$$q = \frac{1}{d_p^{0,5} \cdot G^{0,5} \cdot \rho_{eau}^{0,5}}. \tag{3.2}$$

Le séchage de gâteau de filtration se fait dans deux séchoirs convectifs :

- L'un à lit transporté, appelé aussi le séchoir Flash, qui permet d'éliminer une grande partie de l'eau libre (eau solvant). Dans cette étape l'humidité de solide passe de sa valeur initiale (20-30%) à des valeurs inférieures à 2%.
- L'autre à lit fluidisé destiné à éliminer de l'eau liée. Cette dernière est fixée à la matrice solide par différents types de liaisons (capillarité, hydrogène sur des groupements polaires, Van der Waals, ...) ou encore est présente sous la forme d'eau fermée (eau piégée à l'intérieur du réseau cristallin). L'humidité résiduelle en sortie de séchoir est fixée à des valeurs inférieures à 0,1%.

3.1.2 Séchage convectif du PVC.

Dans cette section, seul le fonctionnement des séchoirs utilisés dans le procédé de fabrication du PVC d'INEOS-ChlorVinyls sera développé. Cependant, un ensemble de critères permettant de choisir la technologie de séchoir la mieux adaptée à un produit, ainsi que le fonctionnement de quelques séchoirs classiques sont présentés en Annexe D page 262.

Séchoirs à lit transporté, pneumatiques ou Flash.

Le principe de cette technique, représentée sur la Figure 3.3, repose sur l'entrainement d'un produit solide humide en vrac dans un courant gazeux chaud. Le transport de solide se fait en phase diluée avec des vitesses supérieures à des vitesses critiques (vitesse d'engorgement et de saltation). Ces grandeurs dépendent des propriétés physiques du gaz et des particules solides ainsi que du débit de solide à traiter. L'écoulement est particulièrement turbulent et le produit est entrainé alternativement au centre et à la paroi.

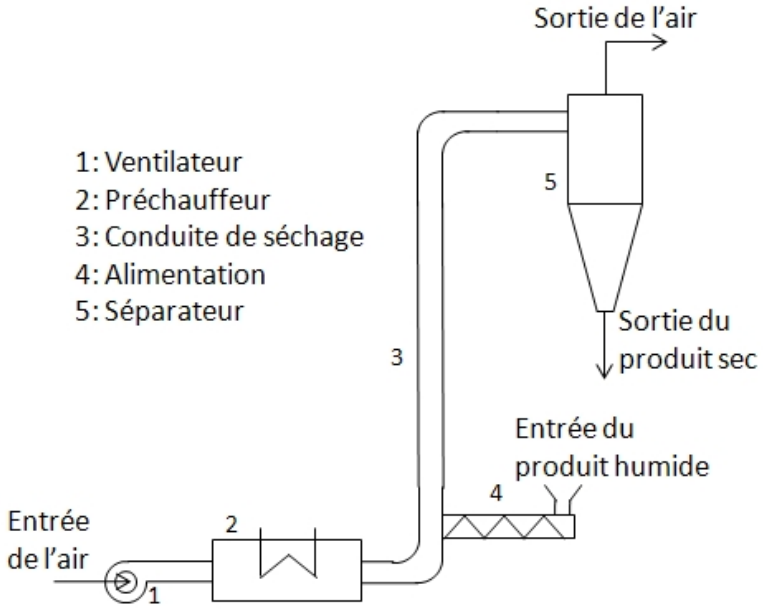


FIGURE 3.3 – Séchoir pneumatique simple.

Les séchoirs pneumatiques sont bien adaptés au séchage des produits pulvérulents, granuleux, et pâteux provenant par exemple de centrifugeuses ou filtres rotatifs ou presses. Toutefois, les temps de séjour du gaz et du solide sont très courts. Ils n'excèdent pas quelques secondes de sorte que l'intérêt de cette technique est limité à des opérations qui ne sont pas contrôlées par les étapes de diffusion à l'intérieur de solide. Le séchage, par exemple, doit être essentiellement un phénomène de surface et les particules solides doivent être de taille suffisamment faible pour que les transferts internes de matière et de chaleur soient rapides. De plus, les gaz et les particules solides circulant à co-courant, le solide ne se trouve en contact avec le gaz chaud qu'au début du séchage. Ces séchoirs sont donc recommandés pour le traitement des matières sensibles à la température.

Le fonctionnement s'effectue de la manière suivante : la matière humide est introduite dans le tube sécheur disposé verticalement, appelé le riser. Elle est alors entrainée et séchée jusqu'au séparateur (cyclones). Dans certains dispositifs on peut prévoir un recyclage partiel de produit sec.

La problématique majeure du lit transporté est l'estimation et le contrôle précis des temps de séjour du solide dans l'installation (Borde et al., 2006). En effet, le gaz et les particules introduits en même temps dans un lit transporté sont susceptibles de suivre des chemins très différents selon les phénomènes auxquels ils seront soumis. Ainsi, certaines particules sont par exemple amenées à sortir presque immédiatement de la colonne alors que d'autres connaissent des recirculations et restent ainsi plus longtemps au sein du lit. Par conséquent, il en résulte une distribution des temps de séjour du gaz et du solide qui caractérise le degré de mélange au sein du séchoir. Dans les séchoirs flashs l'évaporation est contrôlée essentiellement par les transferts externes dépendant de la dispersion des particules de PVC dans le courant gazeux.

Le comportement hydrodynamique des séchoirs pneumatiques, ou plus généralement du transport pneumatique, a été largement étudié dans la littérature (Rautiainen et al., 1999) (Ouyang et al., 2003). L'alimentation en solide étant généralement réalisée par une vis sans fin ou un tapis vibrant, elle n'est pas parfaitement continue, et le solide se déverse dans le

séchoir par paquets. On observe alors, dans le séchoir, le passage alterné de flux concentrés en solide et de flux plus dilués. On parle alors d'état "quasi-permanent". Les différentes propriétés physiques du flux gaz-solide (perte de charge, vitesses, taux de présence) sont donc difficile à mesurer et on se contente des valeurs moyennes sur une section.

Séchoirs à lit fluidisé

Le produit granulaire est mis en suspension dans l'air chaud qui a alors un triple rôle : porteur du solide, vecteur de l'humidité extraite et vecteur de chaleur (Figure 3.4).

Ces appareils présentent des caractéristiques intéressantes, telles que :

- l'isothermicité du lit,
- le mélange quasi parfait de solide,
- la faible perte de charge,
- la souplesse, car ils peuvent fonctionner en continu ou en discontinu. Les lits fluidisés peuvent être étagés, ce qui permet de réaliser une récupération optimale de l'énergie des solides et des gaz.

Notons que le mélange intensif du solide au sein du lit fluidisé, lors d'une opération de traitement continu de solide, peut conduire à une distribution très large des temps de séjour des particules, défavorable à une bonne qualité de traitement. Différents artifices ont étés mis au point pour améliorer la distribution de temps de séjour et notamment, il est possible de contrôler l'écoulement du solide par la mise en place d'un système de guides en spirales dans les lits circulaires, ou bien d'utiliser des lits fluidisés multi-étagés (Figure 3.5(a)), fonctionnant à contre-courant, ou des lits fluidisés à compartiments (Figure 3.5(b)), fonctionnant à courants croisés.

Ce type d'appareil est plus approprié pour des particules ayant une distribution de taille resserrée. En effet, de grosses particules dont la vitesse minimale de fluidisation est élevée peuvent s'accumuler au bas du lit et créer un dysfonctionnement dans l'opération.

Au cours de ces dernières années, certains chercheurs ont essayé d'adapter le principe de séchoir par atomisation (spray drying) à la polymérisation du PVC (Säckel and Nieken, 2013). Notons que cette technique est souvent utilisée pour le séchage de solutions, de suspensions, et d'émulsions (Mezhericher et al., 2010a). Elle permet de réaliser les étapes de génération de la phase solide et de séparation solvant/solide dans un même appareil (Strumillo and Kudra, 1986) (Masters, 1980). En comparaison à une réaction de polymérisation en réacteur discontinu classique, cette technique ne nécessite pas de système d'agitation mécanique et utilise une quantité de solvant réduite. De plus, la grande surface de contact des gouttelettes pulvérisées permet un contrôle efficace de la température de polymérisation. Par contre, comme un grand nombre de phénomènes physiques ont lieu simultanément, la maîtrise des conditions opératoires devient extrêmement difficile, ce qui peut entraîner un mauvais contrôle des propriétés des particules produites.

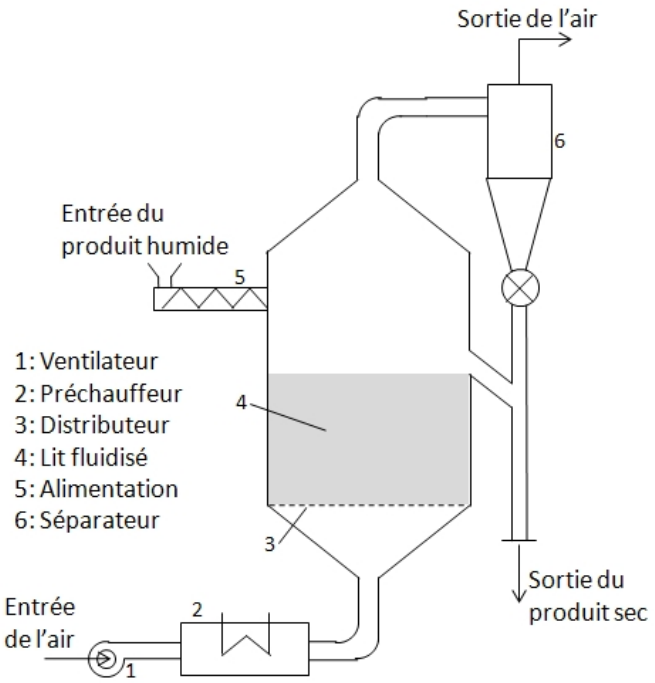
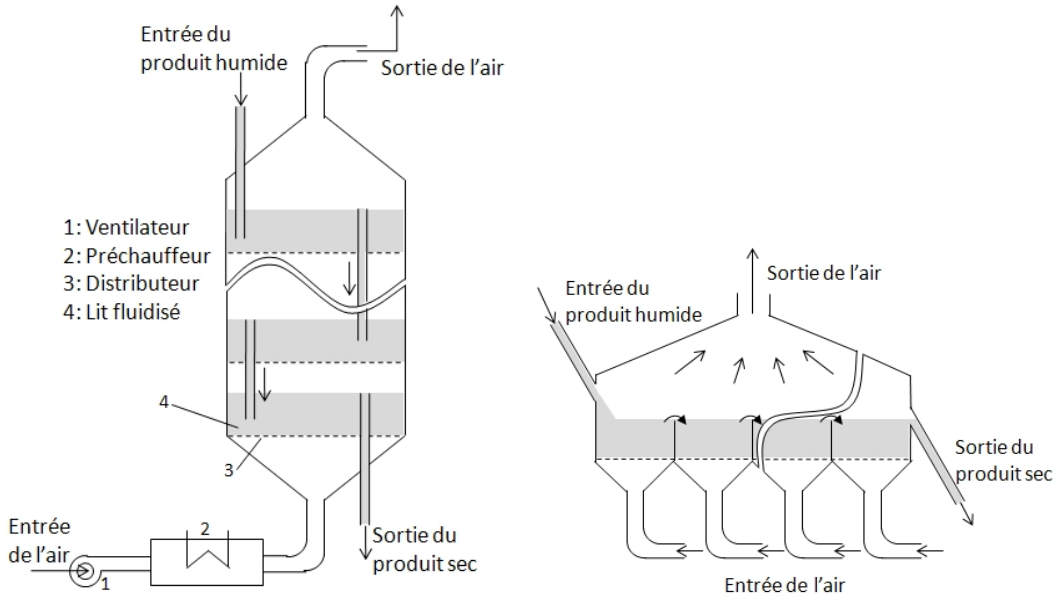


FIGURE 3.4 – Séchoir à lit fluidisé simple.



(a) Séchoir à lit fluidisé multi-étagé.

(b) Séchoir à lit fluidisé à compartiments.

FIGURE 3.5 – Exemples de séchoirs, dérivés des séchoirs à lit fluidisé, fonctionnant à contre-courant ou à courants croisés.

3.2 La cinétique de séchage.

La cinétique de séchage présente un grand intérêt, notamment pour la construction de séchoirs industriels et le calcul du temps de séchage. La cinétique de séchage est obtenue à l'échelle du laboratoire dans des conditions qui simulent le plus fidèlement possible les séchoirs industriels.

La Figure 3.6 représente un exemple type de résultats obtenus lors du séchage d'un solide humide : les évolutions au cours du temps de l'humidité et de la température du solide. On distingue alors les trois phases classiques de séchage (Strumillo and Kudra, 1986) :

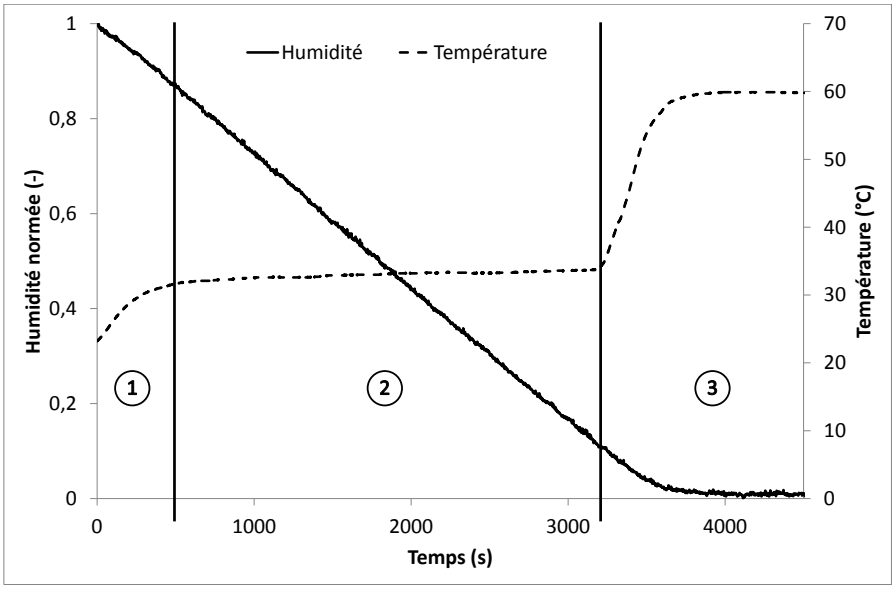


FIGURE 3.6 – Séchage d'un produit humide en veine de séchage : évolution de l'humidité et de la température du solide en fonction du temps.

➢ *Mise en température du produit (1) :*

Dans cette période, le flux d'énergie fournie au produit sert essentiellement à l'échauffement du solide humide. Cette phase est caractérisée par une augmentation rapide de la température du produit jusqu'à un palier (T_i) et une faible diminution de l'humidité du solide. La durée de cette période est difficile à évaluer, mais elle est, en général, très courte devant les deux autres.

➢ *Séchage à vitesse constante (2) :*

Pendant cette période, la surface du solide est recouverte et/ou alimentée en eau non liée, et l'évaporation est conditionnée par les transferts externes. Le flux d'énergie apportée au solide compense essentiellement la quantité d'énergie nécessaire à l'évaporation de l'eau. La température du solide et la vitesse de séchage restent donc constantes. Les équations des bilans sur le produit se résument ainsi :

– Flux d'énergie cédée par l'air

$$Q_{g\to p} = \alpha_p \cdot s_p \cdot A_c \cdot h \cdot (T_g - T_i), \tag{3.3}$$

avec, α_p, le taux de présence des particules, s_p, leur surface spécifique, A_c, la section du séchoir, T_g, la température du gaz, T_i, la température du solide pendant la phase de séchage à vitesse constante, et h, le coefficient de transfert de chaleur.

– Flux d'énergie nécessaire à l'évaporation

$$Q_{evap} = m_w^{\circ} \cdot \Delta H_V = \alpha_p \cdot s_p \cdot A_c \cdot k_y \cdot (Y_i - Y) \cdot \Delta H_V, \tag{3.4}$$

avec, ΔH_V, l'enthalpie de vaporisation de l'eau, Y, l'humidité de l'air ambiant, Y_i, l'humidité de l'air en surface du solide (humidité à saturation), et k_y le coefficient de transfert de matière.

En combinant ces équations, on obtient la relation suivante :

$$\frac{Y_i - Y}{T_i - T_g} = -\frac{h}{k_y} \cdot \frac{1}{\Delta H_V}. \tag{3.5}$$

La vitesse de séchage pendant la période de séchage à vitesse constante dépend donc des coefficients de transferts convectifs, de la surface d'échange, et de la grandeur des potentiels de séchage.

➢ *Séchage à vitesse décroissante (3) :*

Dans cette période, l'apport d'eau à la surface du solide ne compense plus l'évaporation, celle-ci intervient donc à l'intérieur du solide. De ce fait l'activité de l'eau en surface est inférieure à l'unité, ce qui conduit à une diminution de la vitesse de séchage. Les transferts deviennent plus complexes et mettent en jeu non seulement la convection dans le gaz entourant le produit mais également les différents mécanismes de transfert de l'eau de l'intérieur du solide vers sa surface :

– le transfert par capillarité,
– le transfert par diffusion en phase gazeuse dans les pores,
– le transfert par diffusion en phase liquide.

Le flux de chaleur apportée au solide devient supérieure à celle nécessaire à l'évaporation, ce qui entraine une augmentation de la température du solide, jusqu'à un état d'équilibre lorsque le séchage est terminé.

3.3 Le séchage de particules poreuses.

Le séchage de matériel poreux est un phénomène complexe, qui, en dépit des nombreuses études présentes dans la littérature, n'est toujours pas bien compris. Cette complexité provient des échanges couplés (transferts de matière, chaleur, et quantité de mouvement) entre le gaz et les particules, dépendant à la fois des propriétés morphologiques des particules et de l'affinité de l'eau vis à vis de la surface solide (Kowalski, 2007), (Crapiste, 2000).

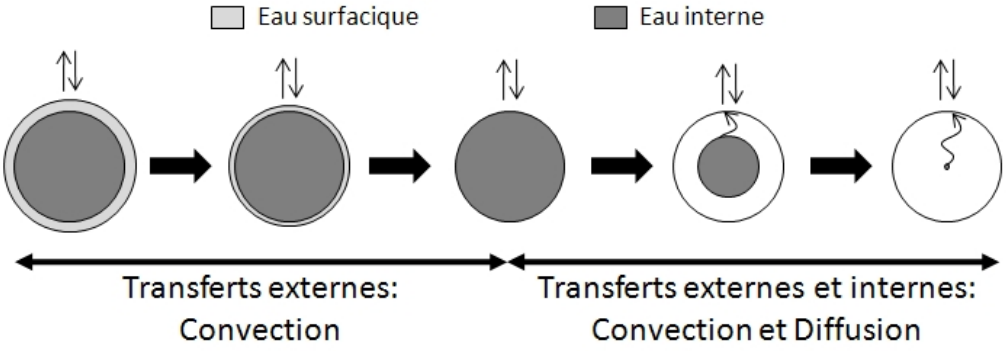


FIGURE 3.7 – Types de transferts pendant le séchage d'une particule poreuse.

Comme indiqué sur la Figure 3.7, on peut distinguer deux périodes lors du séchage d'une particule poreuse.

La première période consiste en l'élimination de l'eau libre présente en surface de la particule. Durant cette période, l'évaporation est contrôlée par les transferts externes. Ces transferts peuvent être, en fonction de la technologie utilisée, conductifs, convectifs, ou radiatifs (voir Section 3.1), dans notre cas, il s'agira de transferts convectifs (séchoirs pneumatique et à lit fluidisé).

Durant la seconde période, l'eau située dans les pores est éliminée. Le séchage est alors contrôlé par une combinaison entre les transferts internes et externes. La nature et l'intensité des transferts internes dépendent des propriétés et de la structure des particules solides, notamment de leur mouillabilité.

3.3.1 Transferts externes dans un séchoir convectif.

Dans les séchoirs à lit fluidisé ou pneumatiques, les transferts entre la surface du produit à sécher et le milieu environnant sont essentiellement dirigés par l'hydrodynamique du système, et plus précisément par la vitesse relative du gaz par rapport à celle des particules solides, encore appelée la vitesse de glissement U_{sl} (Figure 3.8) :

$$U_{sl} = U_g - U_p. \tag{3.6}$$

Cette vitesse influe directement sur l'épaisseur de couche limite entourant la particule, et donc sur l'intensité des transferts externes.

Les échanges de chaleur et de matière sont représentés par le produit d'un coefficient d'échange convectif et d'un potentiel d'échange. Ce potentiel d'échange sera une différence de température pour les échanges de chaleur et une différence de concentration (ou d'humidité dans notre cas) pour les transferts de matière.

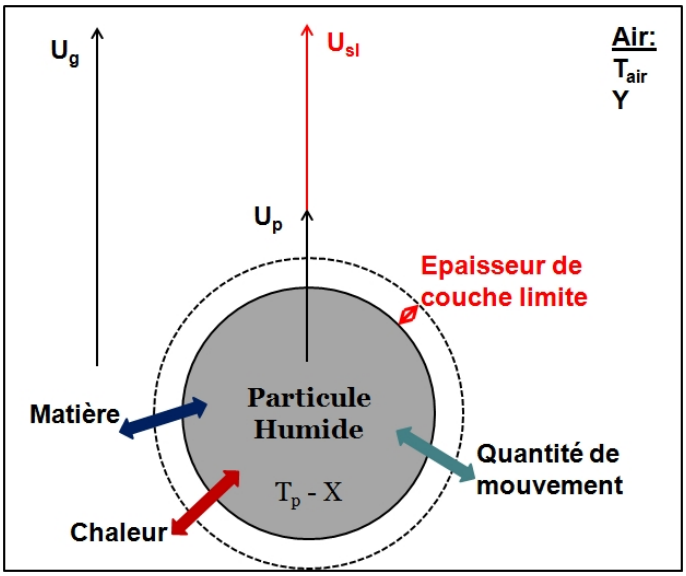


FIGURE 3.8 – Transferts convectif d'une particule dans un flux d'air.

La littérature procure un grand nombre de corrélations pour déterminer le coefficient de traînée et les coefficients de transferts. Pour le coefficient de traînée on trouve différentes corrélations (Schiller and Naumann, 1935) (Haider and Levenspiel, 1989), dont les plus communes sont résumées dans le Tableau 3.1. En ce qui concerne les coefficients de transferts, ils sont généralement exprimés comme des fonctions d'un ou plusieurs nombres adimensionnels (Reynlods, Re ; Nusselt, Nu ; Schmidt, Sc, et Prandt, Pr).

Transfert de quantité de mouvement.

Les transferts de quantité de mouvement représentent les forces appliquées aux différentes phases dues à leurs mouvements relatifs. Elles peuvent être de plusieurs types :

- La force de traînée, qui est l'ensemble des actions (Poussée d'Archimède exclue) exercées par le fluide sur la particule.
- La force d'histoire, qui représente les effets de la viscosité en régime instationnaire.
- La force de masse ajoutée, qui représente les effets de l'inertie en régime instationnaire.

Dans notre cas, le rapport entre la masse volumique du gaz et celle du solide est négligeable devant 1 ($\rho_g/\rho_p \simeq 10^{-3}$), nous tiendrons compte donc seulement de la force de traînée qui s'exprime ainsi :

$$F_D = \frac{1}{2} \cdot \rho_g \cdot U_{sl}^2 \cdot \frac{\pi d_p^2}{4} \cdot C_d, \tag{3.7}$$

avec, C_d le coefficient de traînée.

Transfert de chaleur.

Pour le coefficient de transfert thermique, on trouve un grand nombre de corrélations en fonction du mode de transport (fluidisation ou transport pneumatique) (Baeyens et al., 1995) . La plupart de ces corrélations se trouvent sous la forme :

$$Nu = a \cdot Re^b \cdot Pr^c, \tag{3.8}$$

Tableau 3.1 – Différentes corrélations pour estimer le coefficient de traînée.

Corrélation	Expression
Schiller & Nauman (pour une particule isolée)	$C_d = \frac{24}{Re} \cdot \left(1 + 0,15 \cdot Re_p^{0,15}\right)$
Wen & Yu (pour un ensemble de particules)	$C_d = \frac{24}{Re_p} \cdot \left(1 + 0,15 \cdot Re_p^{0,15}\right) \cdot \alpha_g^{-1,7}$
Haider & Levenspiel (prise en compte du facteur de forme)	$C_d = \frac{24}{Re_t}\left(1 + 8,17 \cdot e^{-4,0655 \cdot \Phi} \cdot Re_t^{0,0964+0,5565 \cdot \Phi}\right) + \frac{73,69 \cdot e^{-5,0748 \cdot \Phi} \cdot Re_p}{Re_t + 5,378 \cdot e^{6,2122 \cdot \Phi}}$

avec a, b, et c, des constantes empiriques.

Une liste (non exhaustive) de corrélations, avec leurs domaines d'application, est présentée en Annexe E. On trouve cependant des corrélations dans lesquelles interviennent le taux de présence de la phase solide comme la corrélation de Bandrowski and Kaczmarzyk (1978) :

$$Nu = 0,00114 \cdot \alpha_p^{-0,5984} \cdot Re_p^{0,8159}, \tag{3.9}$$

$$\text{pour} \qquad 0,00025 < \alpha_p < 0,05 \qquad \text{et} \qquad 180 < Re_p < 1800.$$

L'intérêt d'une telle corrélation est qu'elle prenne en compte le taux de présence des particules, α_p, c'est à dire, la dispersion des particules dans le flux gazeux. En effet, les échanges entre les particules et la phase gazeuse seront plus importants dans le cas d'un flux dilué que dans le cas d'un flux dense en particules.

Transfert de matière.

Le coefficient de transfert de matière est déterminé en utilisant l'analogie de Chilton et Colburn, classique dans les problèmes de séchage, mais valable seulement en régime turbulent (Chilton and Colburn, 1934) (Tsilingiris, 2010) (Jaturonglumlert and Kiatsiriroat, 2010) :

$$\frac{h}{k_y} = Cp_h^G \cdot \left(\frac{Sc}{Pr}\right)^{2/3}, \tag{3.10}$$

$$\text{pour} \qquad 0,6 < Pr < 60 \qquad \text{et} \qquad 0,6 < Sc < 3000.$$

Avec k_y, le coefficient de transfert convectif de matière.

Les transferts convectifs gaz-solide ont été largement étudiés dans la littérature, cependant, le grand nombre de corrélations existantes implique une grande disparité des valeurs des coefficients de transferts. Un des enjeux de cette étude est donc de déterminer la ou les corrélations permettant de simuler avec le plus de précision les transferts externes aux particules de PVC.

3.3.2 Transferts internes à la particule : description des mécanismes internes.

La particularité du phénomène de séchage convectif provient du couplage des différents transferts avec les transferts internes à la particule. Lors de l'évaporation de l'eau contenue dans les pores, de nombreux auteurs (Segura and Toledo, 2005a) (Segura and Toledo, 2005b) (SanMartin et al., 2011) (Peishi and Pei, 1989) suggèrent l'existence de trois zones à l'intérieur de la particule :

- une zone appelée noyau humide, remplie de liquide, dont l'humidité est égale à l'humidité initiale de la particule,
- une zone d'évaporation ou d'adsorption, où l'humidité du solide diminue rapidement jusqu'à atteindre une valeur quasi-constante, l'épaisseur de cette zone dépend directement de l'affinité du solide avec l'eau,
- et, une zone périphérique appelée "croûte sèche", où l'humidité est quasi-constante, égale à l'humidité à l'équilibre.

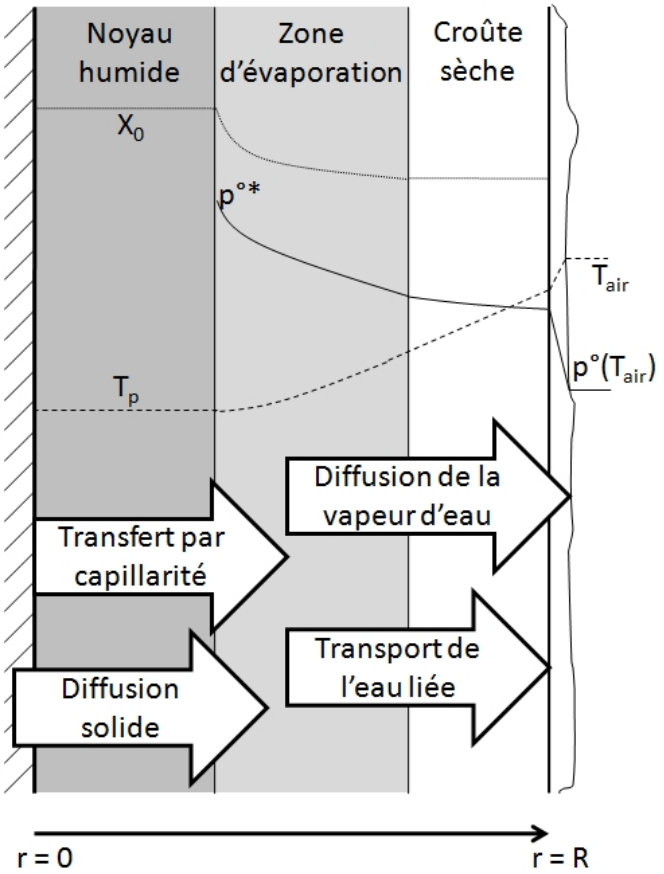


FIGURE 3.9 – Transferts internes pendant le séchage d'une particule poreuse.

Ces trois zones sont représentées sur la Figure 3.9 où sont portées, en fonction du rayon de la particule, l'évolution de l'humidité et de la température de la particule ainsi que l'évolution de la pression de vapeur d'eau du gaz contenu dans les pores. On observe un gradient de température à l'intérieur du solide comme le gaz transmet de la chaleur à la particule par diffusion de la surface vers le cœur. Ce gradient de température, associé à l'évaporation de l'eau en surface du noyau humide et à la diffusion de l'humidité contenue dans le gaz traversant les pores, entraîne un gradient de la pression partielle de vapeur

d'eau (c'est à dire de l'humidité du gaz). Or, dans la zone d'adsorption et dans la croûte sèche, le solide est à l'équilibre thermodynamique en tous points avec le gaz traversant le milieu. Ceci implique l'existence d'un gradient de l'humidité du solide dans ces zones.

Les deux premières zones sont limitées par un front d'évaporation mobile, progressant de la surface de la particule vers son cœur. La position de ce front d'évaporation est directement liée aux propriété texturales des particules, ou plus précisément à l'affinité du solide avec l'eau et au phénomène de transfert de matière par capillarité, c'est à dire à la redistribution de l'humidité dans le réseau de pores.

Transfert de matière.

La littérature montre que plusieurs phénomènes élémentaires peuvent intervenir durant le séchage de particules poreuses. Ces phénomènes sont complexes et dépendent de la nature et de la structure des particules solides, de la force des liaisons eau-solide, et de la composition de l'eau. Ces différents mécanismes, représentés sur la Figure 3.9 (Peishi and Pei, 1989) (Fortes and Okos, 1978) (Parry, 1985) (Bruin and Luyben, 1980), peuvent être de différentes natures :

◇ *Transfert par capillarité :*

La distribution de tailles de pores existant au sein d'un solide conduit à une distribution de sa pression capillaire, qui, à son tour, provoque une redistribution de l'humidité dans le réseau de pores : l'eau va se déplacer des pores de grande dimension vers les pores de faible dimension.

La différence de pression capillaire entre deux pores de rayons r_1 et r_2 est donnée par la loi de Jurin :

$$\Delta P_c = 2 \cdot \gamma_{LV} \cdot \cos\theta \left(\frac{1}{r_1} - \frac{1}{r_2} \right). \tag{3.11}$$

Avec P_c la pression capillaire, γ_{LV} la tension superficielle du liquide (en N/m), et θ l'angle de mouillage du liquide sur le solide.

D'après la loi de Kelvin, la présence d'un ménisque concave dans un capillaire abaisse la pression d'équilibre de l'eau. L'activité de l'eau est donc donnée par l'équation suivante :

$$\ln(a_{eau}) = -\frac{M_{eau}}{\rho_{eau} \cdot R \cdot T_p} \cdot \frac{2 \cdot \gamma_{LV} \cdot \cos\theta}{r_{pore}}. \tag{3.12}$$

Le mécanisme de transfert par capillarité dépend donc des propriétés de mouillage de l'eau sur la surface solide ($\gamma_{LV}, \cos\theta$), de la température, et de la distribution de tailles de pores de la particule. Comme présenté dans le Chapitre 2, le PVC est un solide poreux faiblement mouillant ($\theta = 85{,}6°$) et est constitué de macroporosité. Ainsi, on peut raisonnablement négliger la contribution du transfert d'humidité par capillarité.

◇ *Diffusion de la vapeur d'eau à travers les pores :*

Le phénomène de diffusion en phase vapeur, c'est à dire le transfert de la vapeur d'eau contenue dans le gaz présent dans les pores de la particule, est représenté par la loi de Fick reliant le gradient spatial de concentration d'une espèce (ici on prendra l'humidité)

à son évolution temporelle par le biais d'un coefficient de diffusion apparent D_{app} (Weisz, 1995). On peut alors exprimer la densité de flux d'évaporation par :

$$\dot{N}_W = -D_{app} \cdot grad\ Y. \tag{3.13}$$

Pour prendre en compte la structure de la particule, le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau à travers les pores, ou coefficient de diffusion apparent (D_{app}), est calculé à partir du coefficient effectif de diffusion de la vapeur d'eau dans l'air (D_{eff}), corrigé par les paramètres structurels de la particule (Akanni et al., 1987). La porosité de la particule, χ, permet de corriger la surface de la particule, et la tortuosité, τ, la longueur de diffusion.

$$D_{app} = D_{eff} \cdot \frac{\chi}{\tau}. \tag{3.14}$$

La diffusion de la vapeur d'eau dans des pores remplis d'air peut se faire suivant deux mécanismes : la diffusion moléculaire et la diffusion de Knudsen. La diffusion dans un solide poreux est affectée par la taille et la forme des pores. Quand la dimension des pores est importante (par rapport au libre parcours des molécules), et quand la concentration moléculaire est élevée, le nombre de chocs entre molécules est plus important que le nombre de chocs molécule-paroi. Dans ces conditions, on parle de diffusion moléculaire, et dans le cas opposé de diffusion de Knudsen. On introduit alors le nombre de Knudsen, N_K, qui compare le libre parcours moyen des molécules, l, au diamètre moyen des pores, d_{pore} :

$$N_K = \frac{l}{d_{pore}}. \tag{3.15}$$

Comme indiqué sur la Figure 3.10, si le nombre de Knudsen est inférieur à 10^{-2}, la diffusion est contrôlée par la diffusion moléculaire, alors que si il est supérieur à 10, la diffusion est contrôlée par la diffusion de Knudsen. Pour les valeurs intermédiaires, on parle de régime de transition.

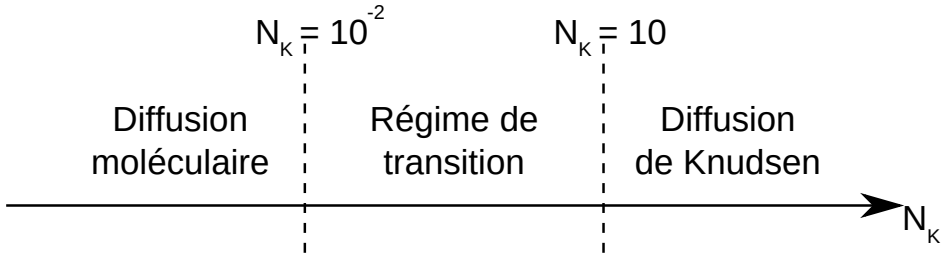


FIGURE 3.10 – Les différents régimes de diffusion dans un solide poreux.

On définit alors le coefficient de diffusion effectif D_{eff} pour les différents régimes :

$$D_{eff} = \begin{cases} D_M & \text{si } N_K < 10^{-2} \\ \dfrac{1}{1/D_M + 1/D_K} & \text{si } 10^{-2} \leq N_K \leq 10 \\ D_K & \text{si } N_K > 10 \end{cases}$$

Dans le régime de Knudsen, le coefficient de diffusion s'exprime de la façon suivante :

$$D_K = \frac{1}{3} \cdot d_{pore} \cdot \left(\frac{8 \cdot R \cdot T_g}{\pi \cdot M_{eau}} \right)^{0,5}. \tag{3.16}$$

Dans le cas de la diffusion moléculaire, de nombreuses corrélations empiriques ont été développées pour déterminer le coefficient de diffusion d'un mélange binaire. Wilke and Lee (1955) examinent différentes corrélations, comme la méthode de Gilliland, d'Arnold ou de Hirschfelder et coll. Cette dernière prend en compte les collisions entre molécules :

$$D_{12} = \frac{B \cdot T_g^{3/2} \cdot \left(\frac{M_1+M_2}{M_1 \cdot M_2}\right)^{1/2}}{P \cdot r_{12}^2 W_{(1)}^{(1)} \cdot (1-\Delta)}. \tag{3.17}$$

Avec D_{12} le coefficient de diffusion de l'espèce 1 dans l'espèce 2, B une constante numérique (égale à $9,2916 \cdot 10^{-4}$), Δ un coefficient correctif, et, $W_{(1)}^{(1)}$ le terme de collision. Wilke et Lee examinent l'effet de ces corrélations dans le cas de molécules polaires et non-polaires, en les comparant avec des valeurs expérimentales.

Eckert et Drake (Mezhericher et al., 2008) proposent une corrélation pour les mélanges air-vapeur d'eau dépendant de la température et de la pression du milieu :

$$D_M = 2,302 \cdot 10^{-5} \cdot \frac{0,98 \cdot 10^5}{P} \cdot \left(\frac{T_g}{256}\right)^{1,81}, \tag{3.18}$$

avec, P la pression en Pa, et, T la température en K.

Dans le cas d'un mélange air-vapeur d'eau à 1 bar Fuller, Schettler, et Giddings (Perry and Green, 2008) proposent une corrélation simplifiée pour le coefficient de diffusion moléculaire ne prenant en compte que la température du milieu :

$$D_M = 1,1757 \cdot 10^{-9} \cdot T_g^{1,75}, \tag{3.19}$$

avec T la température en K.

◇ *Transport de l'eau liée ou diffusion en surface :*

Dans le cas de fortes interactions entre le gaz et le solide (adsorption en paroi), les molécules fixées sur l'interface sont susceptibles d'être mobiles et peuvent vibrer autour de centres d'équilibre. Selon un processus activé, elles peuvent migrer sans quitter la surface, par un mécanisme dit de "sauts".

Ce flux de surface (Figure 3.11), caractérisé par un gradient de concentration de surface, intervient en parallèle du flux dans la phase gazeuse.

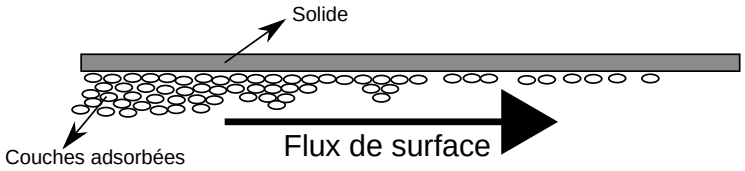


FIGURE 3.11 – Représentation du flux de molécules adsorbées en surface d'un solide.

La diffusion en surface des pores peut avoir plusieurs origines (Segura, 2007) (Waananen and Okos, 1996) telles que des différences de concentration, de pression totale, ou le rétrécissement de la matrice solide. Ce dernier phénomène est souvent observable lors du séchage de produits agro-alimentaires (Lozano et al., 1983).

Cette migration en surface est généralement assimilé à un phénomène de diffusion (régi par la loi de Fick), le flux d'eau liée est donc naturellement exprimé comme le produit :

– d'un coefficient de diffusion (entre 10^{-10} et $10^{-12}\mathrm{m}^2 \cdot \mathrm{s}^{-1}$), dont la valeur change considérablement d'un système à un autre. Il dépend non seulement de la température, mais aussi de l'humidité de la particule (Andrieu and Stamatopoulos, 1986).
– et d'un potentiel de transfert.

Cependant l'identification du potentiel de transfert associé à ce phénomène a suscité de nombreuses études. De nombreux auteurs (Biggerstaff, 1965) (McNamara and Hart, 1971) ont considéré le gradient de concentration en eau dans le solide comme potentiel de transfert. Cette approche a permis d'obtenir des résultats convenables pour de faibles taux d'humidité, mais les différentes modélisations dérivaient des résultats expérimentaux lors de fortes intensités de transferts. Afin de pallier à ces limitations, Bramhall (1976) a proposé de considérer le gradient de pression de vapeur d'eau comme potentiel de transfert, tandis que Kawai et al. (1978) ont utilisé le gradient de potentiel chimique. Par la suite, Skaar and Siau (1981) ont développé une expression théorique du flux d'eau liée basée sur le fait que les molécules d'eau liée doivent atteindre un niveau minimum d'énergie pour pouvoir migrer entre différents sites de sorption. On parle alors de mécanisme activé.

Afin de modéliser la migration de l'humidité avec précision, Stanish (1986) a considéré, dans une loi unique, la diffusion de la vapeur d'eau à travers les pores, et le transport de l'eau liée (basée sur le gradient de potentiel chimique). Cette loi a permis de prédire convenablement le comportement de différents systèmes expérimentaux de la littérature.

Le transport de l'eau liée est donc un phénomène complexe, qui génère encore de vives controverses.

Le PVC produit par INEOS contient très peu d'eau liée (comme montré par les équilibres d'adsorption présentés dans la section 2.2.2 page 57), le phénomène de migration de l'eau liée sera donc négligé dans la suite de cette étude.

Transfert de chaleur.

Le transfert de chaleur à l'intérieur d'une particule s'effectue par conduction à travers la couche solide, ou à travers les pores (couche de gaz et de liquide). L'hétérogénéité de la particule (notamment le fait que le réseau de pores soit tortueux) rend ce phénomène difficile à quantifier. En première approximation, de nombreuses études considèrent que la particule et l'ensemble des fluides contenus dans ses pores sont à l'équilibre thermique (égalité des températures) et que le transfert thermique interne se fait seulement par conduction dans le solide.

3.3.3 Modélisation du séchage thermique.

La modélisation du séchage de particules poreuses, et en particulier du PVC, a fait l'objet d'un certain nombre d'études (Mezhericher et al., 2010b). La plupart de ces études ont choisi de modéliser le séchage à l'échelle d'une particule à l'aide d'un modèle dit du "noyau rétrécissant" (Agarwal et al., 1986) (Abuaf and Staub, 1986) (Cheong et al., 1986) et (Levi-Hevroni et al., 1995). Ils considèrent que l'évaporation a lieu à la surface d'un noyau humide, appelé front d'évaporation, séparant la particule en deux zones distinctes :

– un noyau humide, contenant l'ensemble de l'humidité de la particule,
– et, une croute sèche, à travers laquelle la chaleur ainsi que la vapeur d'eau se propagent.

Le principe et l'étude de ce type de modèle sera détaillé dans le chapitre 6 page 147.

3.4 Conclusion.

A partir de cette analyse bibliographique, nous pouvons tirer les constatations suivantes :

- Le séchage est un phénomène largement étudié dans la bibliographie, cependant peu d'études ont été portées sur la cinétique du séchage du PVC à l'échelle de la particule. Il est donc intéressant de mettre en place un dispositif expérimental permettant d'accéder à ces données, afin d'évaluer l'influence des différents paramètres opératoires.
- Les transferts (de matière, de chaleur, et de quantité de mouvement) convectifs externes à la particule sont connus, et on dispose d'un grand nombre de corrélations pour les modéliser.
- Les mécanismes de transfert interne de l'humidité sont complexes et généralement dirigés par plusieurs phénomènes physiques couplés. La plupart peuvent être décrits par une loi de Fick. Mais la détermination des coefficients de diffusion associés à chaque phénomène peut nécessiter des études complémentaires en fonction du grand nombre de paramètres agissant sur ces mécanismes.
- Le procédé de séchage est une étape présente dans la majorité des secteurs d'activité de l'industrie chimique. Il existe donc un grand nombre de technologies de séchoir adaptées aux spécificités des produits à sécher. Encore aujourd'hui, de nouveaux appareils et/ou techniques sont mis au point avec des performances énergétiques toujours plus importantes.

En conclusion, pour atteindre l'objectif de ce travail de recherche, c'est à dire réduire la consommation énergétique du procédé de séchage thermique, et donc optimiser le procédé de séchage thermique, il est nécessaire de connaître l'influence des différents paramètres opératoires (débit, température et humidité de l'air) sur les performances des séchoirs. Pour cela, il faut maîtriser les effets de ces paramètres sur les différents phénomènes physiques ayant lieu durant le séchage. Comme vu précédemment, lors du séchage de particules poreuses, il faut considérer à la fois les transferts externes aux particules et les transferts internes aux particules. Les transferts externes dépendent de l'hydrodynamique du système et peuvent donc être étudiés d'un point de vue macroscopique. Cependant, nous avons vu que les transferts internes aux particules peuvent être nombreux et de natures différentes et dépendent de la morphologie et des propriétés physico-chimiques des particules. Pour caractériser ces transferts internes, il est donc primordial d'étudier le phénomène de séchage à l'échelle d'une particule de PVC, avant d'étudier le procédé de séchage d'un point de vue macroscopique.

La seconde partie de ces travaux de recherche est donc consacrée à l'obtention des données cinétiques du séchage à l'échelle d'une particule de PVC (échelle microscopique). Pour ce faire, nous avons mis en place un montage expérimental à l'échelle du laboratoire (échelle mésoscopique), dont l'hydrodynamique est maîtrisée. Ce montage nous permet de simplifier le problème et de déterminer la vitesse de séchage d'une particule de PVC en fonction des paramètres opératoires. A partir des résultats expérimentaux obtenus et de la modélisation de ce dispositif expérimental, nous établissons une loi cinétique du séchage d'un grain de PVC.

L'étude et la modélisation du procédé industriel font l'objet de la dernière partie de ce travail. La loi cinétique obtenue à l'échelle d'une particule est extrapolée à un ensemble de particules et injectée dans différents modèles simulant le séchoir pneumatique. Les résultats de ces modèles à l'échelle macroscopique sont comparés à des mesures effectuées

directement sur le séchoir industriel. Finalement, ces modèles nous permettent d'évaluer l'effet des différents paramètres opératoires sur les performances du séchoir pneumatique, et d'optimiser son mode de fonctionnement. En pratique, pour réduire la consommation énergétique, nous proposons une nouvelle méthode de conduite du procédé.

Deuxième partie

Etude de la cinétique de séchage à l'échelle du grain.

Chapitre 4

Matériel et méthodes.

Sommaire

4.1 La veine de séchage. 95
4.1.1 Description de l'installation. 95
Métrologie. 95
4.1.2 Protocole expérimental et exemples de résultats. 96
4.2 Le lit fluidisé à immersion. 98
4.2.1 Description de l'installation. 98
Production de vapeur d'eau. 99
Métrologie. 99
4.2.2 Protocole expérimental et méthode d'exploitation. 101
Propriétés physiques des billes de verre. 102
4.2.3 Plages de mesures. 102
4.2.4 Exemple type de résultats. 103
4.2.5 Définitions des temps caractéristiques. 105
4.2.6 Temps de réponse des sondes hygrométriques. 106
Fonction de transfert associée à la sonde hygrométrique. 108
4.3 Comparaison des dispositifs expérimentaux. 110
4.4 Conclusion. 112

L'objectif de ce travail réside dans la mise au point de modèles aptes à simuler le fonctionnement des séchoirs industriels. Il nécessite l'intégration des données concernant :

– les isothermes de sorption (équilibre),
– les propriétés thermophysiques et texturales des produits,
– les cinétiques de transfert de masse et de chaleur à l'échelle du grain (cinétique intrinsèque de séchage),
– les comportements hydrodynamiques du gaz et des particules solides dans les séchoirs.

Concernant la cinétique intrinsèque de séchage, il s'agit de réaliser des expériences de laboratoire destinées à l'acquisition des données tout en simulant au mieux les conditions auxquelles sont soumis les produits dans les procédés industriels.

Parmi les différentes techniques, l'utilisation de la fluidisation gazeuse offre de nombreux avantages :
– les vitesses de transferts de matière et de chaleur sont élevées, grâce aux bons contacts entre les particules et le gaz,
– le mélange du solide est intense et permet une homogénéité de température du lit, et donc un bon contrôle de celle-ci.
Parmi les inconvénients, on peut toutefois citer les phénomènes d'attrition.

Même si la fluidisation n'est pas retenue comme le procédé optimal pour le séchage de certains produits, elle reste un outil de laboratoire performant pour obtenir les cinétiques intrinsèques de séchage. En effet, compte tenu de la bonne qualité du mélange des particules , les échantillons prélevés seront représentatifs de l'ensemble du lit et seront constitués de particules ayant toutes subi un traitement thermique homogène. Comme les vitesses de transferts externes de chaleur et de matière sont intenses et connues, il est donc possible d'accéder au mécanisme de transfert interne de l'humidité dans les particules.

Afin d'étendre l'utilisation de la fluidisation, les travaux de notre équipe de recherche ont permis le développement d'une méthode dont le principe consiste à immerger les particules à traiter, fines ou grosses et difficilement fluidisables, dans un lit fluidisé constitué de particules inertes et chaudes. Les fines particules cohésives et humides seront ainsi facilement manipulables. En fonction de la vitesse du gaz, en fin de séchage, la couche sera bien mélangée ou présentera une ségrégation qui pourra être utilisée pour soutirer les fines de la couche.

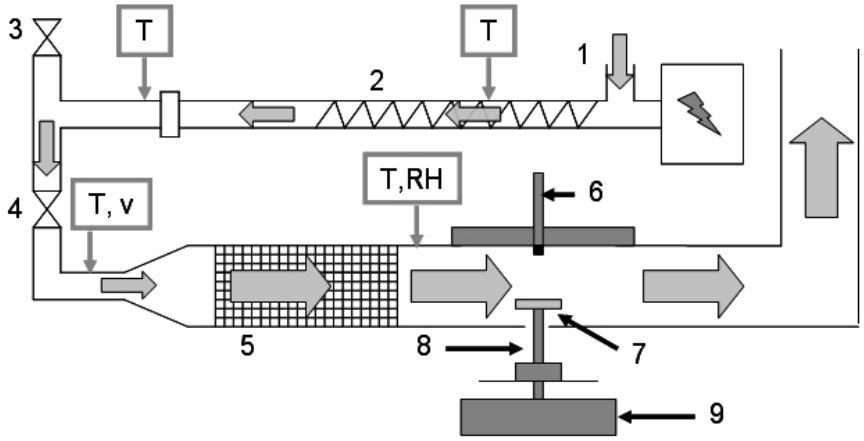
La cinétique de séchage est étudiée en immergeant dans un lit fluidisé de billes de verre chaud de 320 μm de diamètre moyen, une faible quantité de gâteau de centrifugation. La présence de grosses particules permet de supprimer les phénomènes d'agglomération dus à la présence de ponts liquides entre les particules mouillées de PVC.

Dans le but de démontrer la performance de cette technique une étude préalable a été menée dans une veine de séchage convectif.

Dans ce chapitre, nous allons présenter le principe de fonctionnement et la métrologie des dispositifs expérimentaux employés pour l'acquisition des données cinétiques. La comparaison entre les résultats obtenus dans les deux dispositifs testés (lit fluidisé à immersion et veine de séchage) a permis de justifier le choix du lit fluidisé à immersion.

4.1 La veine de séchage.

4.1.1 Description de l'installation.



1.	Entrée air sec	7.	Support des échantillons
2.	Préchauffeur d'air VULCANIC	8.	Porte échantillon
3.	Vanne de by-pass	9.	Balance de précision
4.	Vanne d'alimentation	T.	Mesure de température
5.	Section d'homogénéisation	v.	Mesure de la vitesse de l'air
6.	Pyromètre infrarouge	HR.	Mesure de l'humidité de l'air

FIGURE 4.1 – La veine de séchage convectif.

La veine de séchage, représentée sur la Figure 4.1, permet de simuler le fonctionnement d'un séchoir convectif à léchage simple. Dans ce type de séchoir, le gaz chaud circule essentiellement à la surface du produit disposé en couche mince sur des plateaux. La veine de séchage est divisée en trois sections :

- une section de préchauffage, où l'air est amené à la température voulue par le biais d'un préchauffeur d'air VULCANIC de 2 mètres de longueur et d'une puissance nominale de 2000 W (modèle 10706-76), équipé d'un régulateur PID,
- une section remplie de garnissage (anneaux de Rashig en verre), servant à homogénéiser la vitesse et la température de l'air à l'entrée de la section de mesure (chambre de séchage),
- une chambre de séchage, où l'échantillon à sécher est placé sur un support en PVC rigide. La face supérieure de la chambre de séchage est constituée d'une fenêtre transparente en polyméthacrylate de méthyle (PMMA) permettant de visualiser l'échantillon pendant l'essai.

La veine est équipée de deux vannes (éléments 3 et 4 sur la Figure 4.1) permettant de réguler le débit d'air, et de court-circuiter le courant d'air vers l'atmosphère notamment pour pouvoir disposer l'échantillon dans la chambre de séchage. L'ensemble de la veine de séchage est calorifugé pour éviter les pertes thermiques.

Métrologie.

La veine de séchage est équipée de plusieurs capteurs pour mesurer les propriétés (température, humidité et vitesse) de l'air dans la chambre de séchage.

La température de l'air est mesurée en différents points de la veine par des thermocouples, et la vitesse de l'air est mesurée à l'aide d'un tube de Pitot (Kimo type L avec TCK) placé au centre de la gaine en amont de la section d'homogénéisation. Connaissant la température et la section de la veine au point de mesure et dans la chambre de séchage, et sachant que le débit massique se conserve, on peut déterminer la vitesse de l'air dans la chambre de séchage. La validité de la mesure du tube de Pitot a été vérifiée en modifiant sa position radiale.

Un pyromètre laser (Keller, Cellatemp CA PQ-14), installé au dessus de la chambre de séchage permet de mesurer la température de surface de l'échantillon. Un logiciel fourni par la société Keller permet d'enregistrer en temps réel cette température.

L'évolution de la masse de l'échantillon au cours du séchage est suivie grâce à une balance de précision (Metler Toledo, AT261 +/- 0,1 mg, France) reliée à un système d'acquisition. Ces enregistrements nous permettent de déterminer l'évolution de l'humidité du produit, X, au cours du temps.

$$X(t) = \frac{m_p(t) - m_p^0}{m_p^0}, \tag{4.1}$$

avec, m_p^0, la masse de l'échantillon anhydre, et $m_p(t)$, la masse de l'échantillon à l'instant t.

L'air utilisé provient du réseau du laboratoire, il est préalablement séché en sortie de compresseur. Toutefois, l'humidité de l'air est mesurée à titre indicatif par un hygromètre capacitif en entrée de la chambre de séchage.

Ce système expérimental nous permet donc de mesurer l'évolution au cours du temps de la teneur en eau et de la température de surface d'un échantillon placé dans un flux d'air de vitesse et de température imposées.

4.1.2 Protocole expérimental et exemples de résultats.

La mise en service de la veine de séchage se fait en respectant scrupuleusement les étapes suivantes :

- Tarage de la balance.
- Démarrage du pyromètre.
- Ouverture de l'alimentation en air.
- Mise sous tension du préchauffeur d'air.
- Etablissement du régime permanent (cette étape peut durer plusieurs heures).
- Préparation de l'échantillon sur le support.
- By-pass de l'air de séchage.
- Installation de l'échantillon dans la chambre de séchage.
- Démarrage du système d'acquisition des données.
- Remise en circulation de l'air de séchage.

La Figure 4.2 présente les résultats du séchage d'un échantillon de 2,6 grammes de PVC D (humidité initiale 0,37 kg d'eau / kg de PVC sec) dans un flux d'air, dont la vitesse et la température sont respectivement de 0,27 $\mathrm{m \cdot s^{-1}}$ et de 50°C.

Dans un premier temps, on remarque que la durée de l'opération est très longue (environ 1700 secondes) en comparaison avec celle rencontrée dans le procédé industriel (environ une seconde).

Sur cette Figure, on peut distinguer :

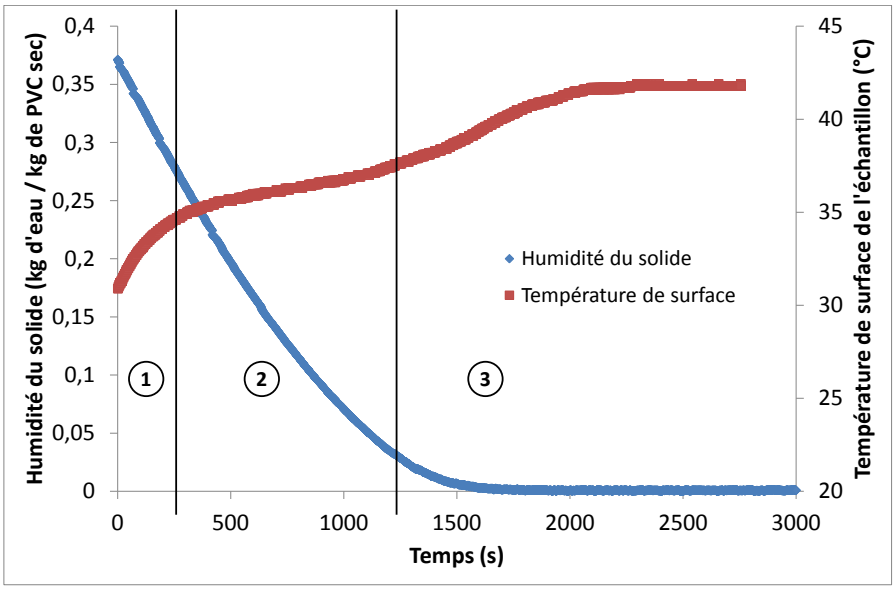


FIGURE 4.2 – Exemple de résultats expérimentaux obtenus avec la veine de séchage : Evolution de l'humidité et de la température d'un échantillon de PVC D en fonction du temps de séchage (Masse de l'échantillon : 2,6 g. Vitesse de l'air : 0,27 m $\cdot$ s^{-1}. Température de l'air : 50°C).

– Une période d'initiation (1), caractérisée par une montée rapide de la température.
– Une période de séchage à vitesse constante (2), caractérisée par une diminution quasi-linéaire de l'humidité du produit et par la présence d'un pseudo-palier de température. L'augmentation de la température observée pendant cette période peut être attribuée à la formation d'une couche de particules solides sèches à la surface de l'échantillon.
– Une période de séchage à vitesse décroissante (3), caractérisée par un ralentissement de la vitesse de séchage qui se traduit par une montée de température de l'échantillon, jusqu'à établissement de l'équilibre thermique lorsque l'échantillon est complètement sec.

4.2 Le lit fluidisé à immersion.

Le principe de ce dispositif expérimental repose sur l'injection d'une faible masse de produit humide (environ 3 g de cake) dans un lit fluidisé constitué de grosses particules inertes et chaudes : ici nous avons utilisé des billes de verres. La masse de billes de verres constituant le lit est d'environ 1,3 kg. Les bonnes propriétés d'agitation et de mélange d'un lit fluidisé permettent d'assurer une dispersion quasi-parfaite du cake dans le lit.

4.2.1 Description de l'installation.

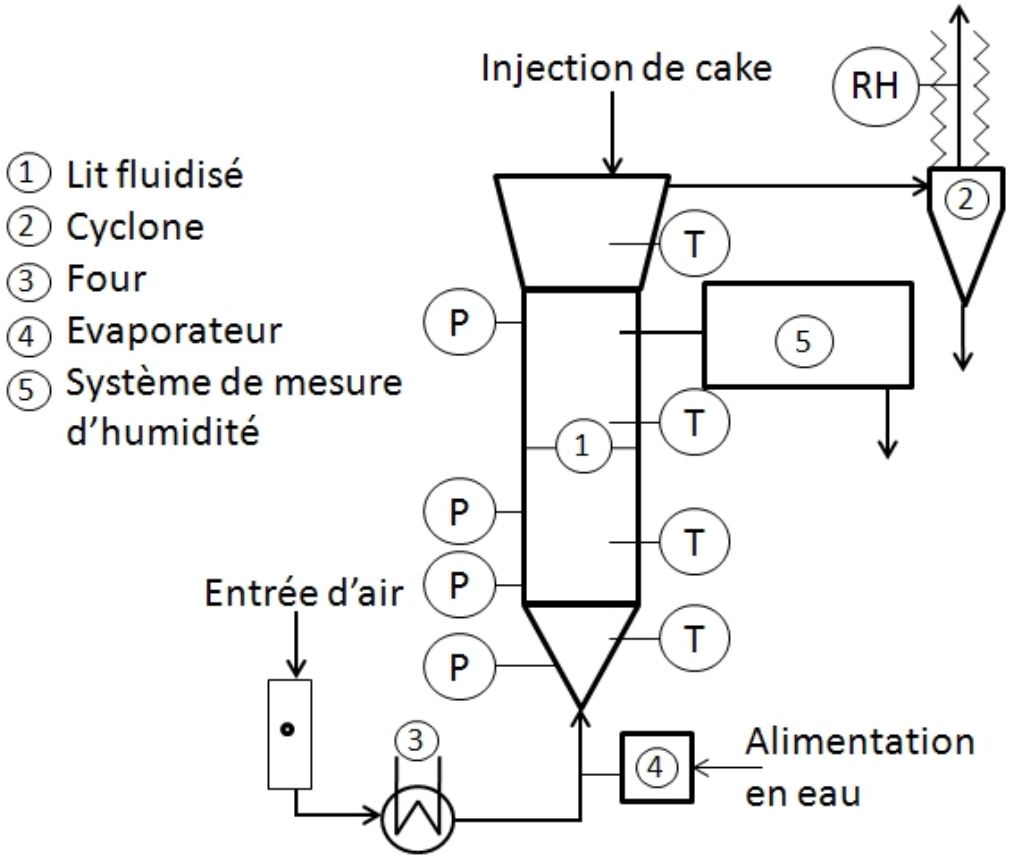


FIGURE 4.3 – Le lit fluidisé à immersion.

Le lit fluidisé à immersion, représenté sur la Figure 4.3, est constitué d'une section cylindrique en pyrex de 10 cm de diamètre et de 40 cm de haut. La nature transparente des parois permet de visualiser les phénomènes ayant lieu à l'intérieur du lit. Au dessus de la colonne on trouve une section tronconique en acier inoxydable de 20 cm de haut, appelée zone de désengagement permettant d'éviter l'envol de particules en réduisant la vitesse de l'air. Cette partie est fermée par un couvercle, et équipée d'une vanne, permettant l'injection des échantillons de cake. En sortie de séchoir, l'air passe par un cyclone (de 5 cm de diamètre et de 20 cm de haut) permettant de récupérer les fines particules éventuellement entraînées. La base du séchoir est équipée d'une section conique en acier inoxydable, appelée la boîte à vent, dont le rôle est d'homogénéiser le flux gazeux avant son introduction dans le lit. La distribution du gaz au sein du lit est assurée grâce à une plaque perforée de 96 trous de 1 mm de diamètre, organisés selon une maille triangulaire

de 10 mm de pas. La porosité du distributeur est de 1%. Afin d'éviter le pleurage de fines particules à travers le distributeur, une toile métallique de grande porosité et de faible ouverture est placée sur la face inférieure du distributeur. L'air sec provient du réseau du laboratoire, son débit est mesuré, après détente, à l'aide d'un rotamètre à flotteur (8-RS-8). En sortie du rotamètre, l'air traverse un échangeur de chaleur de 4 kW de puissance électrique. Dans le but de faire varier l'humidité de l'air en entrée du séchoir, un courant de vapeur d'eau de débit variable est introduit en sortie de l'échangeur et avant la boite à vent. Notons que la température du séchoir est régulée grâce à un régulateur PID qui commande la puissance de l'échangeur.

Production de vapeur d'eau.

La production de vapeur d'eau est assurée par le dispositif représenté sur la Figure 4.4. Il est constitué d'une résistance électrique de 100 Watts insérée dans un fourreau.Elle est équipée d'un variateur de puissance qui permet d'imposer la température de la surface de l'élément chauffant. L'alimentation en eau distillée est assurée par une pompe de type microdoseur (Liquid Metronics - Modèle : CEA973-353SM). L'entrainement de la vapeur d'eau formée vers l'alimentation du séchoir est facilité par l'injection d'un faible courant d'air sec, dont le débit est mesuré par un débitmètre à billes (Carboloy).

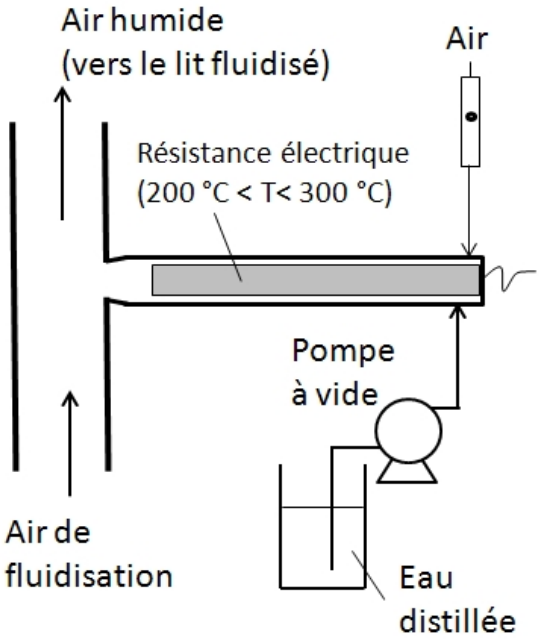


FIGURE 4.4 – Dispositif d'humidification de l'air (évaporateur).

Métrologie.

Comme indiqué sur la Figure 4.3, le lit fluidisé est équipé de divers capteurs de pression et de température installés dans la boite à vent, dans le lit, et au dessus du lit fluidisé. Les capteurs de pression (Keller - Modèle PR33X - Gamme 0 - 0,5 bar) permettent de vérifier l'état de fluidisation du lit. Les thermocouples (PR Electronics - Modèle DEMKO99 - précision : 0,1°C) permettent, bien entendu, de connaitre la température de séchage, mais

aussi de vérifier l'isothermicité du lit. Les prises de pression sont situées en paroi du lit fluidisé, alors que les thermocouples sont placés au centre du lit.

Afin de suivre le processus de séchage, le lit est équipé de deux hygromètres de type capacitif :

– Le premier, de type VAISALA - DMT345, mesure l'humidité de l'air juste en sortie du lit. Afin de réaliser les mesures dans les conditions opératoires données, la sonde est installée dans une chambre de mesure (décrite ci-dessous). Notons que le principe de mesure repose sur la détermination de la température de rosée de l'air.
– Le second, de type KIMO - TH200-BO/STHID150, mesure l'humidité relative de l'air et est installé en sortie gaz du cyclone. Afin d'éviter les phénomènes de condensation, la conduite de sortie de cyclone est chauffée par des cordons chauffants.

Les différents capteurs sont reliés à un enregistreur Honeywell eZtrend QXe, permettant d'enregistrer l'évolution des grandeurs opératoires au cours du temps avec une fréquence d'aquisition de 10 Hz.

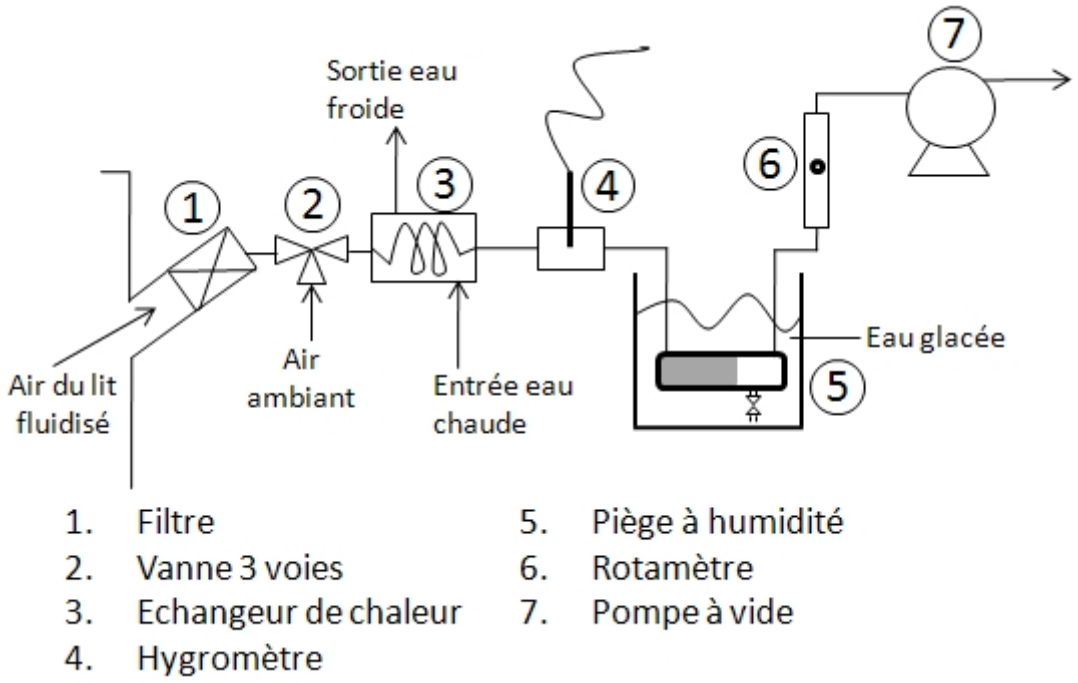


FIGURE 4.5 – Dispositif de prélèvement et de condionnement de l'air humide.

Dans le but d'effectuer les mesures d'humidités dans des conditions de température et de vitesse d'air données, et ce, quelles que soient les conditions opératoires du séchoir, nous avons conçu et mis au point un dispositif de prélèvement et de conditionnement de l'air humide. Ce dispositif, présenté sur la Figure 4.5, est composé :

– d'une pompe à vide (7), permettant d'aspirer l'air humide sortant du lit fluidisé, le débit étant fixé par le rotamètre (6),
– d'un filtre (1), pour éviter la présence de particules solides dans la chambre de mesure,
– d'une vanne trois voies (2), permettant d'isoler ce système du reste du pilote expérimental,
– d'un échangeur de chaleur (3), permettant de fixer la température de l'air à l'entrée de la chambre de mesure,

– d'une chambre de mesure calorifugée (4), à l'intérieur de laquelle est placé l'hygromètre,
– d'un piège à humidité, qui permet d'éviter la condensation dans le rotamètre et dans la pompe à vide. Il est constitué d'une colonne cylindrique partiellement remplie de garnissage (copeaux de métal), et placé dans un bain d'eau glacée. Ce piège est équipé d'une vanne de purge.

4.2.2 Protocole expérimental et méthode d'exploitation.

La mise en marche du lit fluidisé se fait en respectant les étapes suivantes :

– Ouverture des alimentations d'air (air de fluidisaftion et air de l'évaporateur).
– Mise en route des éléments chauffants (échangeurs de chaleur, résistance, cordons chauffants).
– Purge du piège à humidité.
– Mise en route de la pompe microdoseur.
– Positionnement de la vanne trois voies sur l'aspiration d'air ambiant.
– Mise en route de la pompe à vide.
– Mise en route de l'enregistreur.
– Etablissement du régime permanent (entre une et deux heures).
– Positionnement de la vanne trois voies sur l'aspiration d'air sortant du lit fluidisé.
– Injection de l'échantillon de cake dans le séchoir.

Notons que la cinétique de séchage n'a pas pu être réalisée par le prélèvement d'échantillons solides du lit et ce à cause de la rapidité de l'opération de séchage. La durée d'une expérience est de l'ordre d'une minute.

On évalue donc l'évolution de l'humidité du solide à partir de l'évolution de l'humidité de l'air sortant du lit. Suivant l'hygromètre utilisé on obtient soit l'évolution temporelle de l'humidité absolue de l'air, soit l'évolution temporelle de l'humidité relative de l'air. Connaissant la température de l'air (mesurée également par les hygromètres), on peut facilement convertir l'humidité relative en humidité absolue (équation A.10 page 251).

A partir de l'évolution temporelle de l'humidité absolue, on peut déterminer l'évolution temporelle du débit de séchage, W_{drying}, en $\mathrm{kg \cdot s^{-1}}$:

$$W_{drying}(t) = F_g^0 \cdot (Y(t) - Y_e), \tag{4.2}$$

avec, Y_e, l'humidité absolue de l'air en entrée de séchoir, mesurée avant l'introduction de l'échantillon, $Y(t)$, l'humidité absolue de l'air au temps t, et, F_g^0, le débit massique d'air sec.

Par intégration, on peut en déduire la quantité d'eau évaporée pendant le temps t, $m_{eau}^{evap}(t)$,et la quantité totale d'eau évaporée pendant l'essai, $m_{eau}^{evap}(\infty)$:

$$m_{eau}^{evap}(t) = \int_0^t W_{drying} \cdot dt, \tag{4.3}$$

$$m_{eau}^{evap}(\infty) = \int_0^{t_{fin}} W_{drying} \cdot dt, \tag{4.4}$$

avec t_{fin}, le temps de fin de l'expérience, c'est à dire le temps où $Y(t_{fin}) = Y_e$.

On déduit donc l'humidité moyenne instantanée de l'échantillon solide, $X(t)$, par la relation suivante :

$$X(t) = \frac{\text{masse d'eau présente dans l'échantillon}}{\text{masse de l'échantillon anhydre}} = \frac{m_{eau}^{evap}(\infty) - m_{eau}^{evap}(t)}{m_{ech} - m_{eau}^{evap}(\infty)}, \tag{4.5}$$

avec, m_{ech}, la masse de l'échantillon humide injecté.

La comparaison entre l'humidité de l'échantillon calculée par cette méthode et celle obtenue par la mesure directe (la perte de masse des échantillons placés dans une étuve ventilée à 50°C pendant 24 heures) a montré une erreur inférieure à 5%.

Propriétés des billes de verre (média fluidisé) et des particules de PVC sec.

Tableau 4.1 – Tailles caractéristiques des billes de verre utilisées et des différents grades de PVC (granulomètre MALVERN Mastersizer 2000 avec le module Scirocco 2000).

	Billes de Verre	PVC A	PVC B	PVC C	PVC D
d_{50} (μm)	323,9	146,6	160,4	173,5	150,0
d_{10} (μm)	233,1	105,6	116,1	124,5	108,9
d_{90} (μm)	450,5	202,5	221,9	240,9	206,3
Span (-)	0,671	0,661	0,660	0,671	0,649
$d_{[3,2]}$ (μm)	313,9	142,0	155,5	168,0	145,5
$d_{[4,3]}$ (μm)	334,5	151,2	165,6	179,2	154,6
ϕ (-)	0,938	0,939	0,939	0,938	0,941
ρ_p ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	2440	990,8	994,4	935,3	980,6
U_{mf} ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$)	9,1	0,824	0,756	0,860	0,570
U_{mb} ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$)	9,1	1,43	1,43	1,58	1,38
U_t ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$)	242,5	51,1	47,4	52,4	31,4

La distribution granulométrique et les diamètres caractéristiques des billes de verre sont présentés sur la Figure 4.6 et dans le Tableau 4.1. Dans ce tableau sont aussi regroupées la masse volumique et les vitesses caractéristiques de ce lot de solide. La vitesse minimale de fluidisation a été déterminée expérimentalement à température ambiante, alors que la vitesse terminale de chute libre a été calculée par la relation d'Haider et Levenspiel. Dans ce Tableau, on rappelle aussi les propriétés des différents grades de PVC présentés dans le Chapitre 2 Section 2.4 page 63.

4.2.3 Plages de mesures.

Les plages de mesures des différents paramètres opératoires sont choisies en fonction des caractéristiques des particules de PVC et des billes de verre.

La plage de température choisie est de 30 à 60 °C. Pour une température supérieure à 70°C, la surface des grains de PVC devient collante, ce qui peut conduire à l'agglomération du lit.

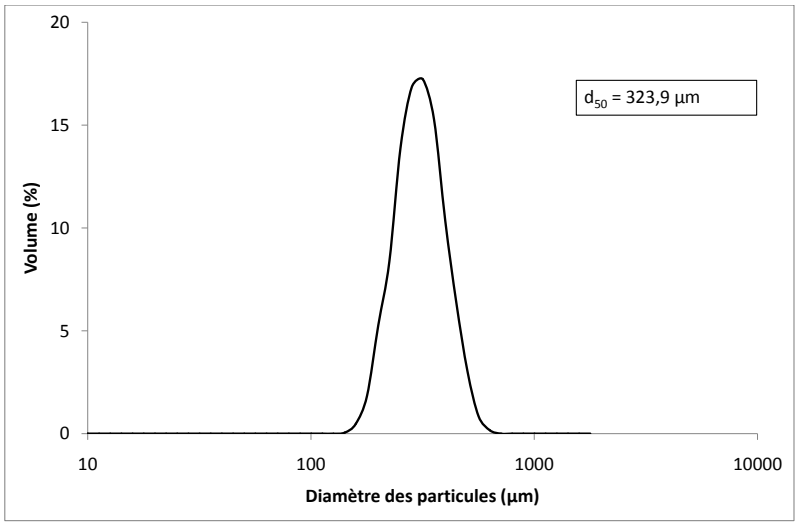


FIGURE 4.6 – Distribution granulométrique des particules de billes de verre (média fluidisé).

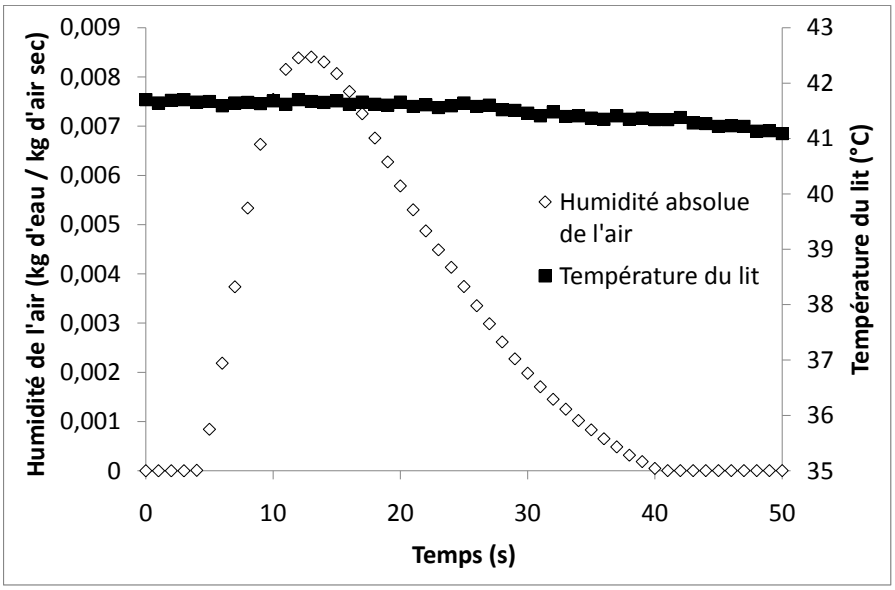
La plage de vitesse de l'air est choisie en se basant sur les vitesses caractéristiques des particules de PVC et des billes de verre. En effet, on doit imposer une vitesse d'air supérieure à la vitesse minimale de fluidisation des billes de verre (9,1 $cm \cdot s^{-1}$) et inférieure à la vitesse terminale de chute libre des particules de PVC (51,4 $cm \cdot s^{-1}$ pour le PVC A). La plage de vitesse retenue est donc de 25 à 40 $cm \cdot s^{-1}$, ce qui correspond à 3 et 4,5 fois la vitesse minimale de fluidisation des billes de verre ou encore à un débit massique d'air de 7,7 à 12,5 $kg \cdot h^{-1}$.

L'influence de l'humidité relative de l'air est étudiée entre 0 et 50%. Pour des valeurs plus élevées, nous avons remarqué un fonctionnement instable du système de production de la vapeur d'eau, ainsi qu'une condensation partielle de l'humidité dans l'installation.

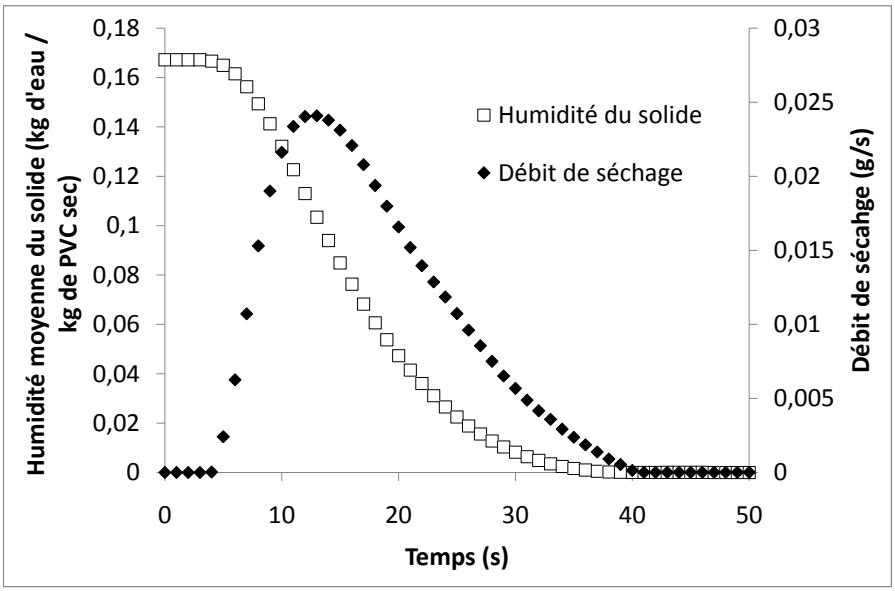
4.2.4 Exemple type de résultats.

La Figure 4.7 montre un exemple type de résultats de séchage du PVC A dans le lit fluidisé à immersion, dont les conditions opératoires sont données dans le Tabeau 4.2. La Figure 4.7(a) représente les données brutes : l'évolution de l'humidité absolue de l'air et de la température du lit, alors que la Figure 4.7(b) représente les grandeurs calculées : l'évolution de l'humidité moyenne de l'échantillon solide et du débit de séchage. Le début de l'expérience correspond au temps où l'échantillon est injecté dans le séchoir.

On constate que la durée d'une expérience est très courte (environ 40 secondes) par rapport aux expériences réalisées dans la veine de séchage, alors que la masse de l'échantillon de cake injecté est plus importante. Ceci est dû à l'augmentation de la surface d'échange résultant de la meilleure dispersion de l'échantillon d'une part et à une plus grande intensité des transferts externes en lit fluidisé d'autre part.



(a) Evolution de l'humidité absolue de l'air et de la température du lit au cours de l'expérience (données brutes).



(b) Evolution de l'humidité moyenne de l'échantillon solide et du débit de séchage au cours de l'expérience.

FIGURE 4.7 – Exemple de résultats obtenus (Masse de cake : 2,9 g de PVC A - Débit d'air : 10,8 kg/h - Température du lit 40°C - Humidité de l'air : 0,2 g d'eau / kg d'air sec).

Tableau 4.2 – Paramètres opératoires de l'exemple type de résultats (Figure 4.7).

Propriétés de l'échantillon.		
Grade utilisé	PVC A	
Masse de l'échantillon humide	2,9	g
Masse de billes de verre	3,4	g
Humidité initiale	0,165	kg d'eau / kg de PVC sec
Conditions opératoires.		
Débit d'air sec	10,8	kg/h
Humidité initiale	0,2	g d'eau / kg d'air sec
Température du lit	41,5	°C

La Figure 4.7 montre :

– que la forme de l'évolution de l'humidité absolue de l'air est "en cloche" (Figure 4.7(a)). On observe une montée rapide de l'humidité et une descente plus lente,
– qu'il y a un retard de quelques secondes (environ 3 secondes) en début d'expérience, dont l'origine est attribuée au temps de chute de l'échantillon dans le lit et au temps nécessaire pour que l'air humide parcoure la distance entre la surface du lit fluidisé et la cellule de mesure.

Le séchage de l'échantillon a été effectué dans des conditions isothermes. En effet, la variation de la température du lit reste inférieure à 1°C au cours de l'essai.

En ce qui concerne l'évolution de l'humidité moyenne de l'échantillon, la Figure 4.7(b) montre :

– un retard en début d'opération (similaire à celui observé sur l'évolution de l'humidité absolue de l'air),
– une diminution rapide et quasi-linéaire de l'humidité moyenne des particules de PVC entre 3 et 20 secondes,
– et, une diminution de la vitesse de séchage au delà de 20 secondes, jusqu'à ce que l'échantillon soit complètement sec.

Le débit de séchage a une évolution similaire à l'humidité absolue de l'air, comme attendu d'après l'Equation 4.2 (page 101).

4.2.5 Définitions des temps caractéristiques.

Afin de comparer les différentes expériences entre elles, nous avons défini les temps caractéristiques suivants, représentés sur la Figure 4.8 :

– t_{75}, correspondant au temps nécessaire pour que $\frac{X}{X_0} = 0,75$,
– t_{50}, correspondant au temps nécessaire pour que $\frac{X}{X_0} = 0,5$,
– t_{25}, correspondant au temps nécessaire pour que $\frac{X}{X_0} = 0,25$,
– t_{sec}, correspondant au temps nécessaire pour que $\frac{X}{X_0} = 0,05$,

avec X l'humidité moyenne du solide au temps t, et X_0 l'humidité initiale du solide.

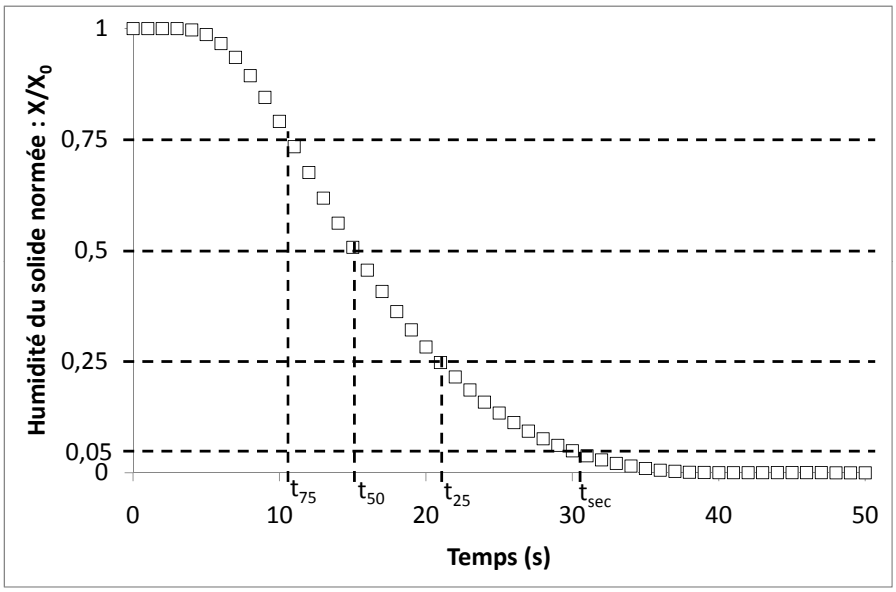


FIGURE 4.8 – Définitions des temps caractéristiques du séchage.

4.2.6 Temps de réponse des sondes hygrométriques.

Une étude préliminaire réalisée sur les hygromètres a montré que leurs temps de réponse n'étaient pas négligeable en regard du temps expérimental. Cette étude a été réalisée en soumettant les deux hygromètres à un échelon d'humidité, c'est à dire en passant d'une atmosphère sèche à une atmosphère humide :

– en tournant la vanne trois voies (voir Figure 4.5) pour l'hygromètre placé dans le système de mesure (hygromètre 1),
– et en retirant subitement la sonde du montage expérimental pour la sonde placée en sortie de cyclone (hygromètre 2).

La Figure 4.9 représente la réponse normée des deux hygromètres soumis à un échelon d'humidité absolue de 0,5 à 10,8 g d'eau / kg d'air sec pour un débit d'air de 13,6 $kg \cdot h^{-1}$.

On constate que les hygromètres ont des temps de réponse comparables à la durée moyenne de nos expériences. Ce retard modifie de façon conséquente nos résultats expérimentaux, il est donc primordial de prendre en compte l'effet de ce paramètre dans l'exploitation de nos résultats cinétiques.

Dans la suite, on distinguera donc :

– la cinétique apparente, donnée par les résultats bruts des hygromètres,
– et la cinétique intrinsèque, la cinétique de séchage réelle dans le lit fluidisé, en éliminant l'effet du retard de la sonde.

La Figure 4.10 montre aussi que le débit d'air de fluidisation a peu d'influence sur le temps de réponse de l'hygromètre 2. En effet, ce long temps de réponse est essentiellement dû au passage de l'air à travers la protection de la sonde, et à l'accumulation d'humidité à

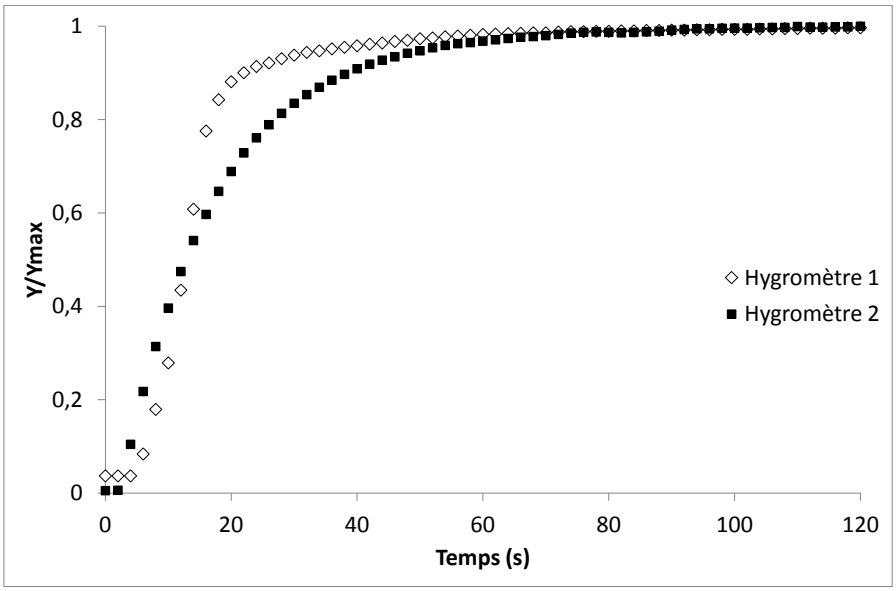


FIGURE 4.9 – Réponse des hygromètres soumis à un échelon d'humidité de 0,5 à 10,8 g d'eau / kg d'air sec avec un débit d'air sec de 13,6 $kg \cdot h^{-1}$.

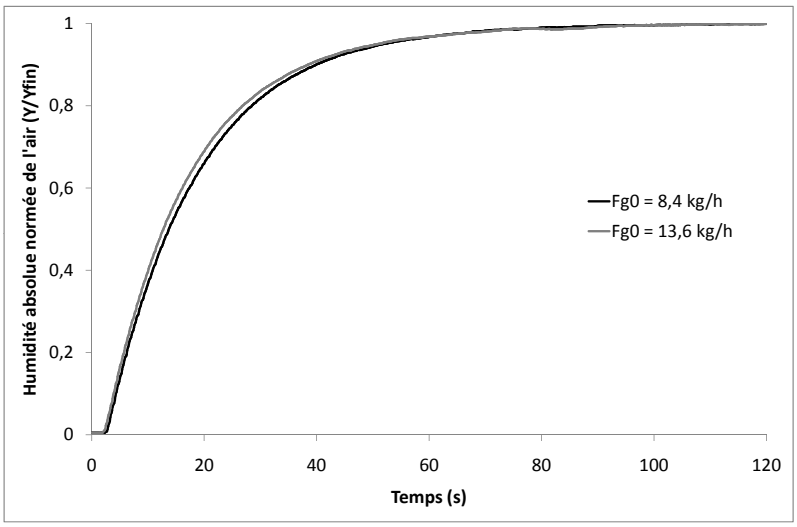


FIGURE 4.10 – Réponses de l'hygromètre 2 soumis à un échelon d'humidité de 0,5 à 10,8 g d'eau / kg d'air sec pour deux débits d'air sec de 8,4 $kg \cdot h^{-1}$ et 13,6 $kg \cdot h^{-1}$.

l'intérieur de cette protection, ce qui est peu affecté par la vitesse de l'air. De plus le dispositif de prélèvement mis en place, permet d'effectuer les mesures d'humidité dans des conditions de température et de vitesses indépendantes des conditions opératoires du lit fluidisé à immersion.

Fonction de transfert associée à la sonde hygrométrique.

On remarque que les réponses des hygromètres à un échelon d'humidité se composent de deux parties bien distinctes :

– un retard pur dans les premières secondes, semblable au temps de réponse d'un réacteur piston,
– et ensuite, une évolution semblable au comportement d'un réacteur parfaitement agité.

On décide donc de modéliser le temps de réponse de la sonde comme le temps de réponse d'un réacteur piston couplé en série à un réacteur parfaitement agité.

La fonction de transfert d'un réacteur parfaitement agité (RAC) se présente sous la forme suivante :

$$\frac{dY_s}{dt} = \frac{1}{\tau_{RAC}} \cdot (Y_e - Y_s), \tag{4.6}$$

avec Y_e et Y_s, les humidités respectives en entrée et en sortie du réacteur, et τ_{RAC} la constante de temps associée au réacteur.

La fonction de transfert du réacteur piston est représentée par l'association d'un ensemble de n réacteurs RAC en cascade ayant une constante de temps τ_{RP}.

Les fonctions de transferts associées aux hygromètres seront donc équivalentes à une série de fonctions de transferts de n RAC de constantes de temps τ_{RP} et d'un RAC de constante de temps τ_{RAC} (Figure 4.11). Il y a donc trois paramètres à identifier pour représenter la fonction de transfert des sondes : n, τ_{RP}, et τ_{RAC}. Les valeurs de ces paramètres ont été déterminées par identification paramètriques et sont résumées dans le tableau 4.3.

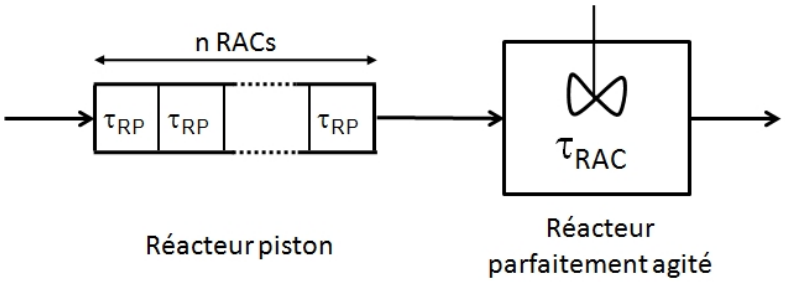


FIGURE 4.11 – Représentation de la fonction de transfert associée aux hygromètres.

Tableau 4.3 – Paramètres des fonctions de transfert associées aux deux hygromètres.

	Hygromètre 1	Hygromètre 2
n	4	6
τ_{RP}	0,5	0,5
τ_{RAC}	8	16

La Figure 4.12 compare les résultats obtenus en appliquant un échelon d'humidité à ceux déterminés expérimentalement. On constate une bonne concordance entre les résultats expérimentaux et théoriques. On se servira donc des fonctions de transferts ainsi déterminées pour comparer nos résultats expérimentaux aux résultats obtenus par modélisation.

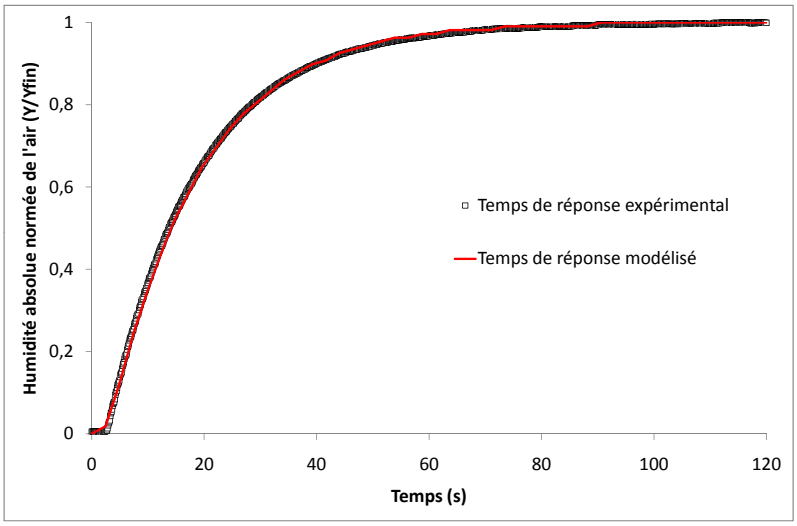


FIGURE 4.12 – Comparaison du temps de réponse de l'hygromètre 2 déterminé expérimentalement et par fonction de transfert.

4.3 Comparaison des dispositifs expérimentaux.

La Figure 4.13 présente les résultats de séchage du PVC A obtenus avec les deux dispositifs expérimentaux employés. Les conditions opératoires des expériences réalisées sont résumées dans le Tableau 4.4. La différence entre les essais réalisés dans la veine provient de la disposition de l'échantillon de PVC sur le support. En effet, dans le premier cas l'échantillon est placé sur le support sous la forme d'un échantillon tassé, alors que dans le second, l'échantillon a été dispersé le plus possible sur le support.

Tableau 4.4 – Conditions opératoires des expériences réalisées (comparaison entre les deux dispositifs expérimentaux employés : veine de séchage et lit fluidisé).

Conditions opératoires	Veine de séchage Echantillon tassé	Veine de séchage Echantillon dispersé	Lit fluidisé à immersion
m_{ech} (g)	0,22	0,21	2,9
X_0 (kg d'eau/kg de PVC sec)	0,253	0,260	0,238
T_{air} / T_{lit} (°C)	55	55	41,6
U_g (cm/s)	25,0	25,0	32,3

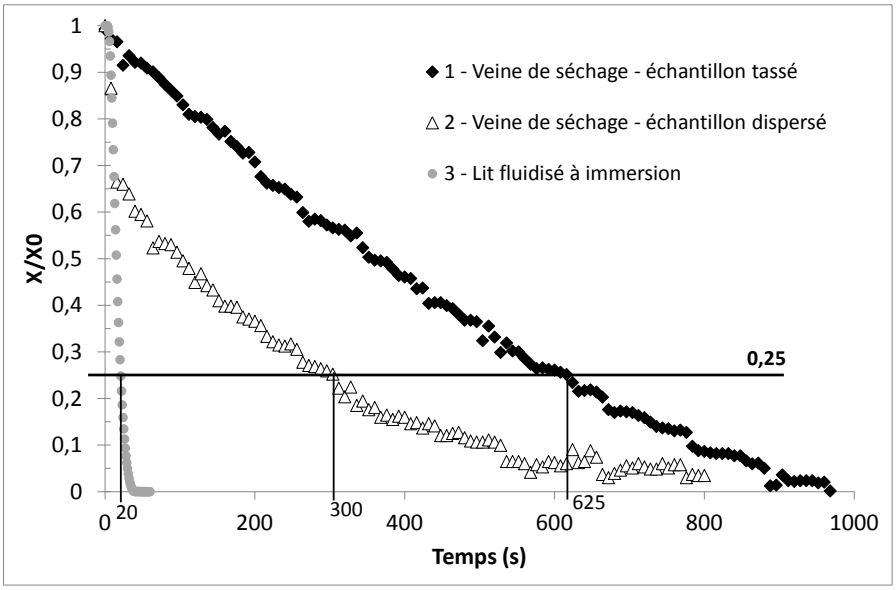


FIGURE 4.13 – Comparaison des dispositifs expérimentaux : Evolution de l'humidité normée du PVC en fonction du temps de séchage.

La veine de séchage fonctionne sur le principe du séchage par léchage, donc, dans un premier temps, seule la surface de l'échantillon est soumise au séchage. Une croute sèche se forme donc en surface, à travers laquelle la vapeur d'eau provenant du reste de l'échantillon doit diffuser. Lorsque l'échantillon est tassé, la longueur de diffusion est plus importante que dans le cas d'un échantillon dispersé, ce qui ralentit le processus de séchage. On constate donc que la disposition de l'échantillon a un effet non négligeable sur la vitesse

de séchage (t_{25} passe de 625 à 300 secondes). Ces résultats nous amènent à conclure que ce dispositif expérimental n'est donc pas adapté à notre problématique : la détermination de la cinétique de séchage à l'échelle du grain.

En ce qui concerne le temps de séchage de l'expérience réalisée en lit fluidisé à immersion, on note une valeur beaucoup plus faible (environ 20 secondes) malgré une masse d'échantillon dix fois plus importante qu'en veine de séchage. Ceci est dû à deux phénomènes :

– une meilleure dispersion de l'échantillon,
– une grande intensité des transferts externes.

Le lit fluidisé à immersion est donc un dispositif expérimental mieux adapté à notre problématique, car, à l'inverse des dispositifs classiques, il nous permet d'évaluer la cinétique de séchage du PVC à l'échelle du grain.

4.4 Conclusion.

On dispose de deux montages expérimentaux permettant d'établir la cinétique de séchage convectif du PVC en poudre :

- La veine de séchage, fonctionnant sur le principe du séchage par léchage. Les résultats ont montré que la cinétique de séchage est très lente et dépend fortement de la masse et de la dispersion de l'échantillon sur le plateau.
- Le lit fluidisé dense à immersion, par contre, permet d'accéder à la cinétique de séchage à l'échelle d'un grain de PVC. Cependant, le temps de réponse des hygromètres est comparable à la durée moyenne des expériences. Ainsi l'exploitation des résultats nécessite une détermination au préalable des fonctions de transfert des sondes.

On utilisera donc le lit fluidisé dense pour déterminer la cinétique de séchage à l'échelle d'une particule de PVC.

Chapitre 5

Présentation des résultats expérimentaux.

Sommaire

5.1 Etude préliminaire. 114
5.1.1 Influence de la masse de l'échantillon - isothermicité du lit. . . . 114
5.1.2 Détermination des coefficients de transferts associés au lit fluidisé à immersion. 117
Exemple de résultat expérimental. 117
Modélisation des expériences. 118
Détermination des coefficients de transferts associés au lit fluidisé à immersion. 125
Comparaison des résultats de simulation avec les résultats expérimentaux. 127
5.2 Étude expérimentale du séchage du PVC en poudre. 131
5.2.1 Reproductibilité des expériences. 132
5.2.2 Influence des paramètres opératoires. 132
Étude de la dispersion de l'échantillon : mélange de cake et de billes de verre. 132
Effet du débit d'air sec. 136
5.2.3 Influence des paramètres intrinsèques. 138
Effet de la température du lit. 138
Effet de l'humidité initiale de l'air. 139
Effet de la morpholgie des particules : comparaison des différents grades de PVC. 141
5.3 Conclusion. 145

Comme vu précédemment, le séchage des particules de PVC est influencé par de nombreux paramètres, qui peuvent agir sur les transferts externes ou internes à la particule. Les transferts externes, de types convectifs, sont principalement contrôlés par les paramètres opératoires (vitesse, température, et humidité de l'air de séchage), alors que les transferts internes sont influencés par la morphologie des particules et plus particulièrement par leur porosité et leur distribution de tailles des pores.

Ce chapitre est divisé en deux sections. Dans la première, nous présenterons une série d'expériences permettant d'optimiser le protocole expérimental retenu, d'une part, et d'évaluer les coefficients de transferts de matière et de chaleur propres à notre pilote expérimental, d'autre part.

Dans la deuxième section est regroupé l'influence, sur la cinétique de séchage de PVC, des différents paramètres opératoires tels que :

- le débit d'air,
- la température du lit,
- l'humidité initiale de l'air,
- et, la morphologie des grains, en utilisant les différents grades de PVC en poudre fournis par INEOS-ChlorVinyls.

5.1 Etude préliminaire.

Dans ce paragraphe, nous allons présenter un ensemble de résultats expérimentaux et théoriques permettant d'évaluer les coefficients de transfert de matière dans un lit fluidisé à immersion. Ces résultats seront confrontés avec les différentes corrélations bibliographiques.

L'étude expérimentale est effectuée en introduisant des masses bien connues de billes de verre, préalablement humidifiées, dans notre pilote. Notons que ces billes de verre ont les mêmes propriétés que celles retenues comme média fluidisé. Dans le but d'effectuer des essais dans les conditions isothermes, nous avons réalisé, au préalable, une série d'essais dont l'objectif est d'optimiser la masse de billes de verre humides.

5.1.1 Influence de la masse de l'échantillon - isothermicité du lit.

L'humidification des billes de verre est réalisée en ajoutant une masse bien connue d'eau à une quantité donnée de billes de verre en mouvement (sous agitation). Après l'étape de mélange, l'humidité des billes de verre a été déterminée par l'étuvage à 100°C.

Les essais ont été réalisés dans les conditions opératoires suivantes :

- débit d'air de fluidisation : 10,8 kg/h,
- température du lit : 41,6°C,
- et humidité de l'air de fluidisation : 0,2 g d'eau / kg d'air sec.

Nous avons gardé l'humidité des billes de verre constante à 0,14 kg d'eau / kg de billes sèches, et avons fait varier la masse de l'échantillon (de 10 à 35 g). Une autre expérience a été réalisée pour une faible masse de billes humides (7,1 g) avec une humidité de 0,07 kg d'eau / kg de billes sèches. Dans le Tableau 5.1 sont regroupés :

– les conditions opératoires,
– l'écart relatif entre la masse d'eau introduite et celle mesurée par l'hygromètre (Δm),
– la chute maximale de température du lit, observée suite à l'introduction de l'échantillon (ΔT_{max}),
– et, l'épaisseur initiale du film d'eau entourant les billes de verre (δ_{eau}).

Cette dernière grandeur est calculée en supposant que le liquide est uniformément réparti sur l'ensemble des billes :

$$\delta_{eau} = \frac{V_{eau}}{S_{BV}^T}, \tag{5.1}$$

$$\text{avec : } S_{BV}^T = \frac{m_{BV}}{\rho_{BV}} \cdot \frac{6}{d_{BV}}. \tag{5.2}$$

où, V_{eau} et S_{BV}^T représentent respectivement le volume de l'eau, et la surface externe de l'ensemble des billes de verre présentes dans l'échantillon.

Il faut préciser que l'injection d'une quantité d'humidité de plus de 5 grammes d'eau a conduit à une saturation temporaire de la sonde d'humidité. C'est pour cette raison que sa valeur maximale est fixée à 4,2 grammes.

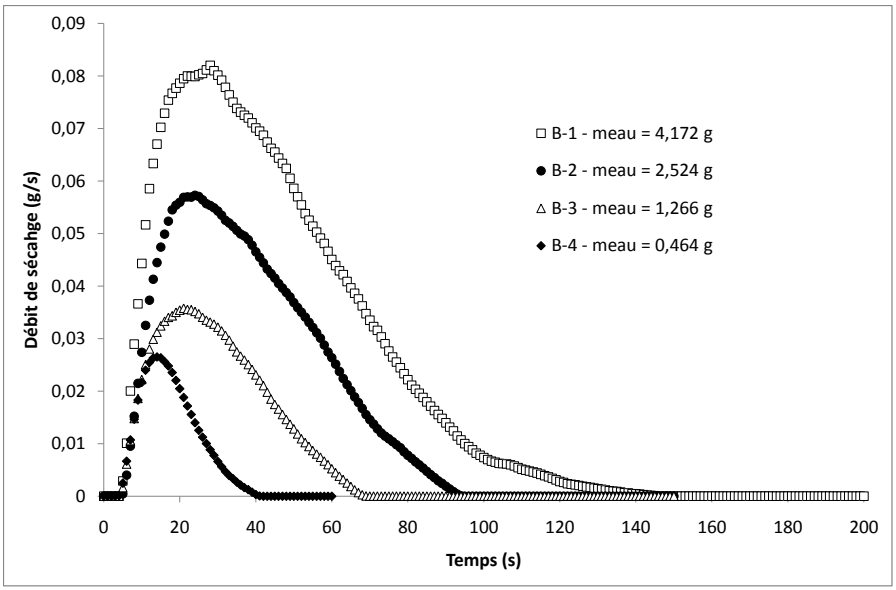
Tableau 5.1 – Effet de la masse de l'échantillon humide : conditions opératoires et résultats expérimentaux.

Exp.	m_{BV} (g)	$m_{eau}^{introduite}$ (g)	m_{totale} (g)	X_0 (kg/kg)	$m_{eau}^{mesurée}$ (g)	Δm (%) (%)	ΔT_{max} (°C)	δ_{eau} (μm)
B-1	30,5	4,18	34,7	0,14	4,61	10,4	4,5	18,5
B-2	18,1	2,52	20,6	0,14	2,69	6,5	3	18,8
B-3	8,8	1,27	10,1	0,14	1,28	1,4	1,5	19,5
B-4	6,6	0,46	7,1	0,07	0,47	1	0,5	9,5
Débit d'air : 10,8 kg/h					Température du lit : 41,6°C.			
Humidité initiale de l'air : 0,2 g d'eau / kg d'air sec.								

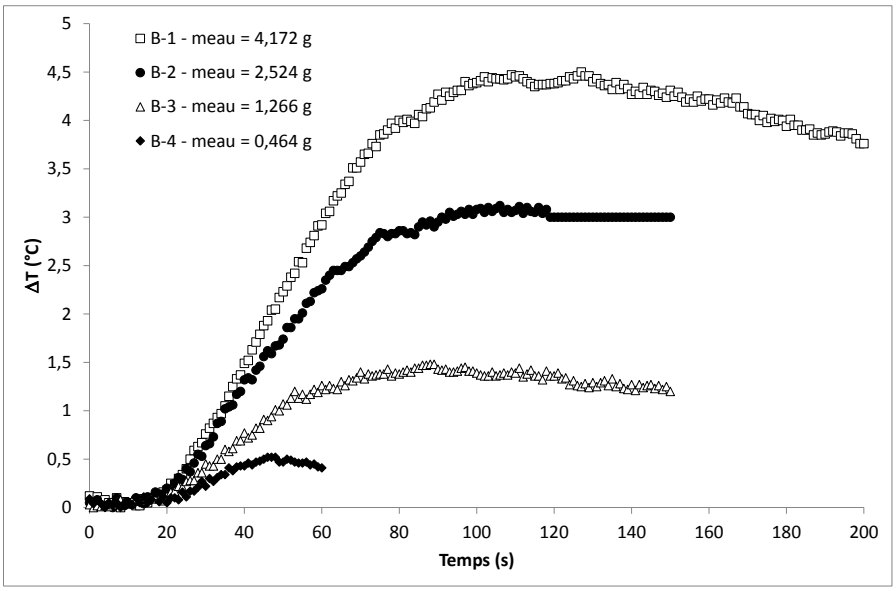
La Figure 5.1 représente les évolutions temporelles du débit de séchage et de la différence entre la température initiale du lit et celle du lit mesurée à l'instant t (ΔT) pour ces différentes expériences. L'observation du Tableau 5.1 et de la Figure 5.1 montre que :

– l'écart maximal de température augmente avec la masse de l'échantillon humide. Il devient inférieur à 1,5°C lorsque la quantité d'eau injectée est inférieure à 1,3 gramme.
– l'écart relatif entre la masse d'eau introduite et celle mesurée par l'hygromètre diminue de 10,4% à 1,4% lorsque la masse de l'échantillon humide passe de 35 à 10 grammes.

De plus, nous avons remarqué que les essais ne sont pas reproductibles lorsque la masse d'eau introduite dépasse 3 grammes (c'est à dire une masse d'échantillon totale supérieure à 20 g). Ce phénomène peut être expliqué par la présence de forces capillaires entre les particules mouillées, conduisant à leur agglomération. En effet, pour les conditions opératoires choisies, si les contraintes exercées par le milieu fluidisé sur ces agglomérats humides ne permettent pas leur dispersion, ils peuvent s'établir au fond du lit et perturber son fonctionnement habituel, en créant des chemins préférentiels, ou une mauvaise qualité de mélange.



(a) Évolution du débit de séchage



(b) Évolution de la température du lit

FIGURE 5.1 – Influence de la masse d'échantillon humide sur le comportement du séchoir à lit fluidisé en immersion.

Ainsi, pour assurer une isothermicité de l'opération et une grande précision sur les bilans de matière, nous avons retenu une quantité maximale d'eau introduite dans le système par le produit humide de 1,5 grammes.

Toutefois, réaliser des expériences avec des échantillons contenant de très faibles quantités d'eau peut engendrer des imprécisions dont l'origine est attribuée à :

– la précision des hygromètres,
– et, un temps expérimental trop court et donc très inférieur au temps de réponse des hygromètres.

5.1.2 Détermination des coefficients de transferts associés au lit fluidisé à immersion.

Les essais ont été réalisés avec 8,5 à 8,7 g de billes de verre humidifiées de 0,13 à 0,14 kg d'eau / kg de billes sèches. En ce qui concerne les paramètres opératoires, nous avons fait varier la température initiale du lit fluidisé entre 31,5 et 66°C, et la vitesse de l'air de fluidisation entre 24,7 et 40 cm/s (Tableau 5.2).

Les billes de verre utilisées étant non-poreuses, seuls les transferts convectifs externes interviennent lors de l'évaporation de l'eau. Ces expériences doivent nous permettre d'évaluer le coefficient de transfert de matière associé à notre pilote expérimental dans différentes conditions opératoires.

Tableau 5.2 – Détermination des coefficients de transfert : conditions opératoires.

Exp.	m_{billes} (g)	m_{eau} (g)	m_{totale} (g)	X_0 (kg/kg)	T_{Lit} (°C)	F_g^0 (kg/h)	U_g (cm/s)
B-5	7,6	1,05	8,7	0,14	32,5	11,0	33,7
B-6	7,6	1,02	8,6	0,13	44,0	11,0	34,9
B-7	7,6	1,03	8,6	0,14	55,5	11,0	36,2
B-8	7,7	1,01	8,7	0,13	66,0	11,0	37,4
B-9	7,6	1,05	8,7	0,14	31,5	8,4	25,7
B-10	7,5	1,02	8,5	0,14	31,5	11,0	33,6
B-11	7,5	1,05	8,6	0,14	31,5	13,6	41,6
Humidité initiale de l'air : 0,2 g d'eau / kg d'air sec.							

Exemple de résultat expérimental.

La Figure 5.2 représente un exemple de résultat obtenu correspondant à l'expérience B-5 du Tableau 5.2.

Cette Figure montre que l'évolution temporelle du débit de séchage présente une forme de cloche : après un retard le débit de séchage augmente très rapidement pour atteindre un maximum, puis diminue progressivement pour atteindre une valeur quasi-nulle après 100 secondes. L'absence de la période de séchage à vitesse constante peut être expliquée par l'effet du temps de réponse de la sonde sur le processus physique (évaporation).

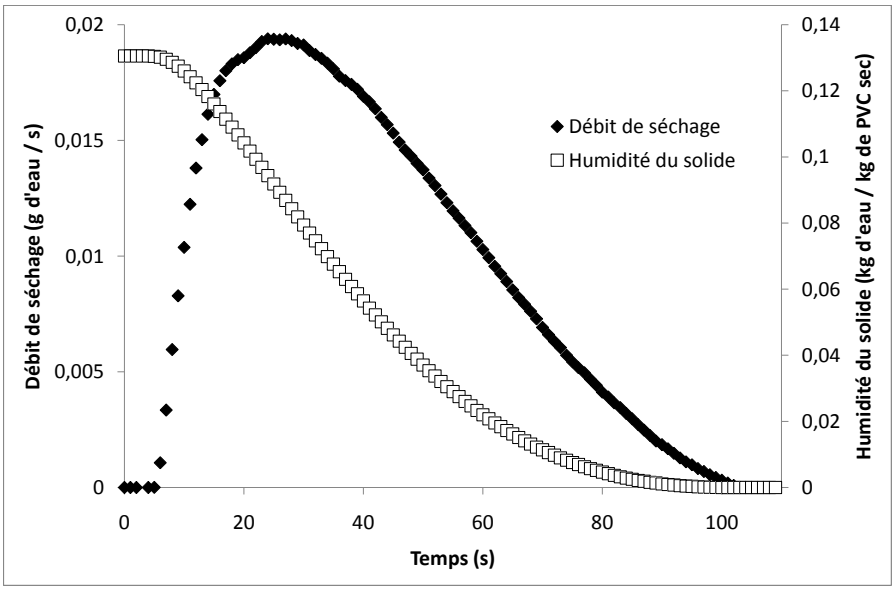


FIGURE 5.2 – Évolution temporelle du débit de séchage et de l'humidité du solide (Expérience B-5).

Afin de dissocier les phénomènes physiques du retard induit par la sonde, un modèle de simulation a été développé en tenant compte des phénomène d'évaporation à l'échelle d'une bille et de la fonction de transfert de la sonde.

Modélisation des expériences.

Ce modèle dérive de celui décrit dans le Chapitre 6 page 147, à la différence que seule l'évaporation de l'eau surfacique est prise en compte. Ce modèle repose sur les hypothèses suivantes :

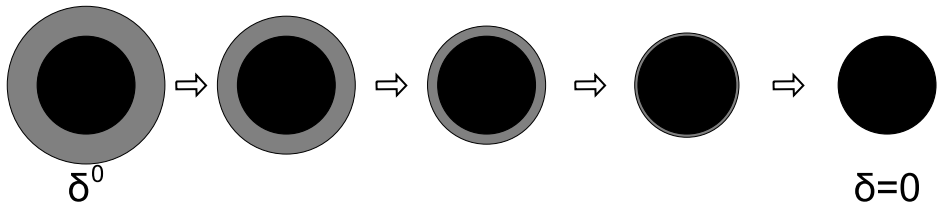
- les billes de verre sont parfaitement sphériques et homogènes,
- l'évaporation a lieu à la surface du film d'eau entourant les billes,
- le lit fluidisé est considéré comme un réacteur parfaitement agité,
- la température moyenne du séchoir reste constante au cours de l'opération,
- et, la température des billes de verre humides est considérée comme uniforme. Cependant, elle varie dans le temps.

En ce qui concerne la cinétique d'évaporation, deux processus d'évaporation sont considérés (Figure 5.3) :

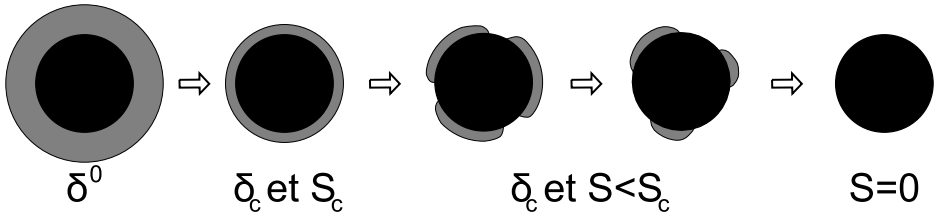
- Le séchage conduit à une réduction de l'épaisseur de film de sa valeur initiale à une valeur nulle : il n'y a pas de phénomène de démouillage. Dans ce cas, on considère que l'évaporation s'effectue sur toute la surface des billes et le phénomène d'évaporation en réduisant l'épaisseur du film conduit à une diminution de la surface d'échange (Figure 5.3(a)). Ainsi, le séchage des billes de verre humides est réalisé en deux phases principales : la phase d'initiation et la phase de séchage à vitesse constante.

– L'évaporation conduit à une réduction de l'épaisseur de film jusqu'à une valeur limite (δ_c), à partir de laquelle le phénomène de démouillage va conduire à une réduction de la surface séchante (Figure 5.3(b)). Dans cette phase, la surface d'évaporation est estimée en considérant que l'épaisseur du film de liquide reste constante ($\delta_{eau} = \delta_c$). Ainsi la courbe de séchage doit présenter trois phases : une phase d'initiation, une phase de séchage à vitesse constante, et une phase de séchage à vitesse décroissante. La réduction de la vitesse d'évaporation dans cette dernière phase est attribuée à la réduction de la suface séchante.

Il faut préciser que la réalité est un cas intermédiaire. En effet, au début du séchage, l'évaporation conduit à une réduction de l'épaisseur du film, et à la fin de l'opération, on peut rencontrer les phénomènes simultanés de démouillage et de réduction de l'épaisseur du film.



(a) Réduction de l'épaisseur du film sans démouillage.



(b) Réduction de la surface du film avec démouillage à partir de $\delta_{eau} = \delta_c$.

FIGURE 5.3 – Modélisation du séchage des billes de verre suivant deux processus.

Ce modèle consiste en la résolution des bilans massique et enthalpique sur les billes et du bilan massique sur l'ensemble du séchoir. Les résultats de simulation sont couplés à la fonction de transfert de la sonde présentée dans le Chapitre 4 Section 4.2.6 page 106.

◇ *Bilan massique sur une bille de verre humide :*

Le bilan de matière sur une bille humide est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{dm_{eau,BV}}{dt} = S_{BV,h} \cdot \dot{N}_w = -k_y \cdot S_{BV,h} \cdot (Y^* - Y_s), \tag{5.3}$$

où,

– $S_{BV,h}$ représente la surface externe de la bille de verre humide,
– $\dot{N}_w$, la densité de flux d'évaporation. Elle s'exprime comme le produit du coefficient de transfert de matière convectif, k_y et du potentiel d'échange, $(Y^* - Y_s)$. Le potentiel d'échange est la différence entre l'humidité à saturation de l'air à la température de la bille (voir Annexe A page 250), Y^*, et l'humidité absolue moyenne de l'air dans le séchoir, Y_s.

– $m_{eau,BV}$ la masse d'eau entourant une bille. Elle s'exprime par :

$$m_{eau,BV} = \frac{\pi}{6} \cdot \rho_{BV} \cdot d_{BV}^3 \cdot X, \tag{5.4}$$

Dans le cas où la surface de bille est entièrement mouillée ($\delta_{eau} > \delta_c$) :

$$m_{eau,BV} = \frac{\pi}{6} \cdot \rho_{eau} \cdot [(d_{BV} + 2 \cdot \delta_{eau})^3 - d_{BV}^3], \tag{5.5}$$

En combinant les équations (5.3), (5.4), et (5.5), on obtient l'expression suivante, caractérisant la cinétique de séchage lors de la réduction de l'épaisseur du film d'eau :

$$\begin{aligned} \frac{dX}{dt} &= \frac{\rho_{eau}}{\rho_{BV}} \cdot \frac{6}{d_{BV}^3} \cdot (d_{BV} + 2 \cdot \delta_{eau})^2 \cdot \frac{d\delta_{eau}}{dt}. \\ &= -k_y \cdot \frac{6}{\rho_{BV} \cdot d_{BV}^3} \cdot (d_{BV} + 2 \cdot \delta_{eau})^2 \cdot (Y^* - Y_s). \end{aligned} \tag{5.6}$$

Dans ces équations, X représente l'humidité de la bille de verre, et δ_{eau}, l'épaisseur du film liquide autour de la bille de verre.

Dans le cas de démouillage ($\delta_{eau} = \delta_c$ et $S < S_c$) :

$$m_{eau} = \rho_{eau} \cdot \frac{V_c}{S_c} \cdot S_{BV,h}. \tag{5.7}$$

où, $S_{BV,h}$ représente la surface du film d'eau mouillant la bille, et V_c et S_c, le volume et la surface du film d'eau à l'épaisseur critique δ_c définis par :

$$V_c = \frac{\pi}{6} \cdot \left((d_{BV} + 2 \cdot \delta_c)^3 - d_{BV}^3 \right), \tag{5.8}$$

et

$$S_c = \pi \cdot (d_{BV} + 2 \cdot \delta_c)^2. \tag{5.9}$$

La cinétique de séchage, lors du démouillage de la bille de verre est obtenue en combinant les équations 5.3, 5.4 et 5.7 :

$$\begin{aligned} \frac{dX}{dt} &= \frac{\rho_{eau}}{\rho_{BV}} \cdot \left(d_{BV} + 2 \cdot \delta_c - \frac{d_{BV}^3}{(d_{BV} + 2 \cdot \delta_c)^2} \right) \cdot \frac{1}{\pi \cdot d_{BV}^3} \cdot \frac{dS_{BV,h}}{dt}. \\ &= -k_y \cdot \frac{6 \cdot S_{BV,h}}{\rho_{BV} \cdot \pi \cdot d_{BV}^3} \cdot (Y^* - Y_s). \end{aligned} \tag{5.10}$$

◇ *Bilan massique sur le séchoir (phase gazeuse) :*

En considérant le séchoir comme un milieu parfaitement agité, le bilan massique s'exprime de la façon suivante :

$$\Big(Entrée\Big) + \Big(Production\Big) = \Big(Sortie\Big) + \Big(Accumulation\Big). \tag{5.11}$$

On obtient alors :

$$F_g^0 \cdot Y_e - m_{BV}^T \cdot \frac{dX}{dt} = F_g^0 \cdot Y_s + V_{Lit} \cdot \alpha_g \cdot \rho_g \frac{dY_s}{dt}, \tag{5.12}$$

avec, F_g^0 , le débit massique d'air sec, m_{BV}^T, la masse totale de billes de verre anhydres, V_{Lit} le volume effectif du lit de particules, et α_g, le taux de présence de gaz dans le lit.

◇ *Bilan enthalpique sur une bille de verre humide :*

En supposant, qu'à chaque instant, la température dans les billes de verre humides est uniforme, le bilan enthalpique sur une particule humide s'exprime par

$$V_{BV} \cdot \rho_{BV} \cdot \frac{dH_{BV}}{dt} = V_{BV} \cdot \rho_{BV} \cdot \Delta H_V(T_{BV}) \cdot \frac{dX}{dt} + h \cdot S_{th} \cdot (T_g - T_{BV}), \tag{5.13}$$

avec, V_{BV}, le volume d'une bille de verre, H_{BV}, l'entalpie de la bille de verre humide, et ΔH_V, l'enthalpie d'évaporation de l'eau (toutes deux définies dans l'Annexe A page 250), h le coefficient de transfert convectif de chaleur, T_g et T_{BV}, les températures respectives de l'air et des billes de verre, et S_{th} la surface d'évaporation.

Dans le premier cas, la surface d'évaporation s'exprime comme :

$$S_{th} = \pi \cdot (d_{BV} + 2 \cdot \delta_{eau})^2, \tag{5.14}$$

alors que dans le second, afin de prendre en compte le transfert de chaleur, à la fois, à travers la surface mouillée de la bille, et à travers sa surface sèche, elle s'exprime comme :

$$S_{th} = \frac{(S_0 - S) \cdot d_{BV}^2}{(d_{BV} + 2 \cdot \delta_{eau})^2} + S. \tag{5.15}$$

Après développement, l'équation (5.13) se simplifie sous la forme :

$$\begin{aligned}(Cp_{BV} + X \cdot Cp_{eau}^L) \cdot \frac{dT_{BV}}{dt} = \frac{dX}{dt} \cdot \Big[\Delta H_V(T_{BV}) - Cp_{eau}^L \cdot (T_{BV} - T_{ref})\Big] \\ + \frac{6 \cdot h}{\rho_{BV} \cdot \pi \cdot d_{BV}^3} \cdot S_{th} \cdot (T_{lit} - T_{BV}),\end{aligned} \tag{5.16}$$

avec, Cp_{BV} la chaleur massique des billes de verre sèches, Cp_{eau}^L, la chaleur massique de l'eau liquide, h, le coefficient de transfert convectif de chaleur, et $\Delta H_V(T_{lit})$, l'enthalpie de vaporisation de l'eau à la température de la bille humide (T_{BV}).

◇ *Paramètres du modèle :*

Le coefficient de transfert convectif de matière, k_y, est un paramètre ajustable du modèle. Dans le cas de milieu fortement agité (comme le lit fluidisé), le coefficient de transfert convectif de chaleur peut être lié au coefficient de transfert de matière par l'analogie de Chilton and Colburn (1934) :

$$\frac{h}{k_y} = Cp_{h,g} \cdot Le^{2/3}, \tag{5.17}$$

avec Le, le nombre de Lewis, qui, dans le cas d'un mélange air - vapeur d'eau, est environ égal à 1.

La résolution des équations présentées ci dessus, associées aux équations régissant la fonction de transfert de la sonde (présentées dans le Chapitre 4 Section 4.2.6 page 106), est effectuée par la méthode Runge-Kutta à pas variable.

◇ *Résultats du modèle :*

La Figure 5.4 représente un exemple type de résultats de simulation obtenus dans le cas de la réduction d'épaisseur du film d'eau sans démouillage ($\delta_c = 0$). Les conditions de simulation correspondent à celles de l'expérience B-5. La valeur du coefficient de transfert est fixée à 0,053 $\mathrm{kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}}$.

La Figure 5.4(a) représente l'évolution en fonction du temps :

- du débit de séchage pour un temps de retard nul (cinétique intrinsèque, W_i),
- du débit de séchage en intégrant la fonction de transfert de la sonde (cinétique corrigée, W_c),
- et, de l'évolution de la température des billes humides.

Sur la même Figure est aussi représentée la valeur de la température de bulbe humide ou température à saturation adiabatique T^* (voir Annexe A page 250).

Sur cette Figure on distingue nettement les deux première périodes de séchage :

- de 0 à 9 secondes, la période de mise en température du produit, caractérisée par une montée rapide du débit de séchage intrinsèque et de la températures des billes de verre humides,
- et de 13 à 50 secondes, la période de séchage à vitesse constante, caractérisée par une température du produit humide et une vitesse d'évaporation ($\dot{N}_w$) quasi indépendantes du temps (Figure 5.4(b)). La légère diminution observée sur la courbe de l'évolution du débit de séchage (Figure 5.4(a)) est due à la réduction de l'épaisseur du film d'eau, ce qui engendre une réduction de la surface d'évaporation, et donc une diminution du débit de séchage. On note aussi que la température des billes de verre est très proche de celle de bulbe humide.

Après l'élimination totale du film d'eau ($\delta = 0$), l'apport d'énergie thermique aux particules conduit à une élévation rapide de leur température jusqu'à atteindre l'équilibre thermique avec le milieu fluidisé.

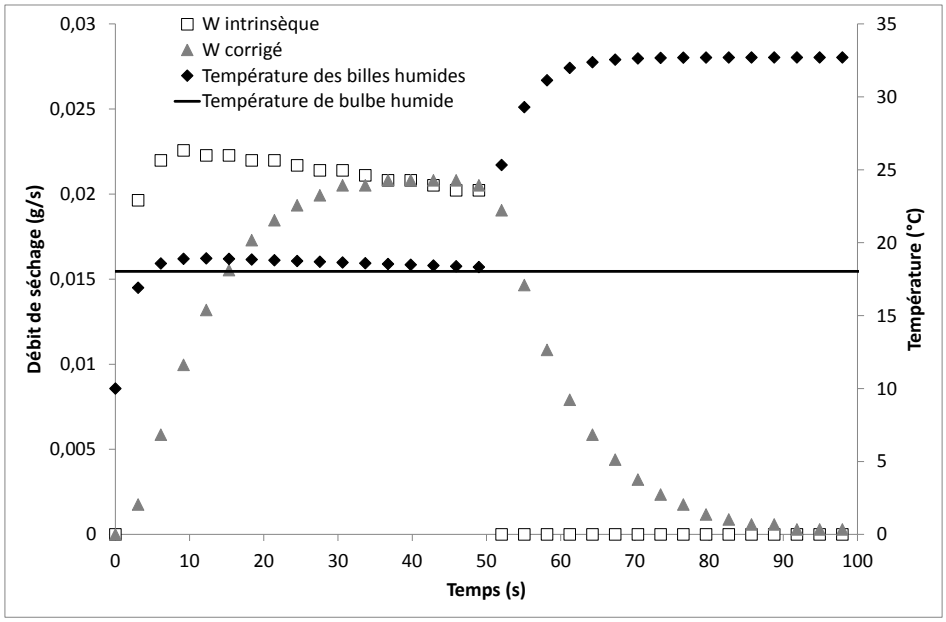
L'évolution du débit de séchage corrigé par la fonction de transfert de la sonde montre une modification de l'allure de la courbe de séchage vers une forme de cloche dont le maximum correspond au palier du débit de séchage intrinsèque (vitesse d'évaporation pendant la période de séchage à vitesse constante).

La Figure 5.4(b) présente les mêmes résultats mais sous la forme de la densité de flux d'évaporation, c'est à dire le débit de séchage corrigé par la surface d'échange. A nouveau, cette Figure confirme l'effet des retards induits par la sonde hygrométrique sur l'allure de la courbe de la vitesse de séchage et montre une valeur maximale identique à celle de la vitesse de séchage pendant la période de séchage à vitesse constante. On rappelle que pendant cette période :

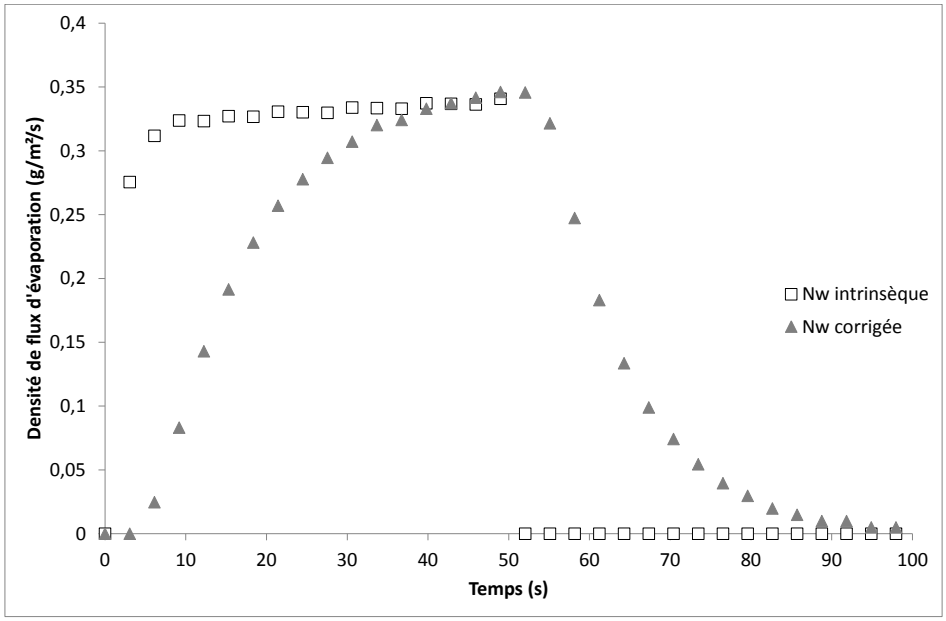
$$\dot{N}_w = -k_y \cdot (Y^* - Y_s)\,. \tag{5.18}$$

avec Y^* l'humidité à saturation adiabatique.

Différentes simulations (Figures 5.5, 5.6, et 5.7) ont été effectuées en faisant varier l'épaisseur critique du film ,δ_c. Ces Figures montrent que plus l'épaisseur critique est grande, plus le pic de la densité de flux d'évaporation corrigée par la fonction de transfert de la sonde apparaît tôt. On remarque aussi, que malgré un léger décalage, la valeur de ce pic



(a) Evolution du débit de séchage intrinsèque et corrigé, et de la température des billes humides.



(b) Evolution de la denisté de flux d'évaporation intrinsèque et corrigée.

FIGURE 5.4 – Modélisation du séchage de billes de verre humides (Expérience B-5). Réduction de l'épaisseur sans démouillage.

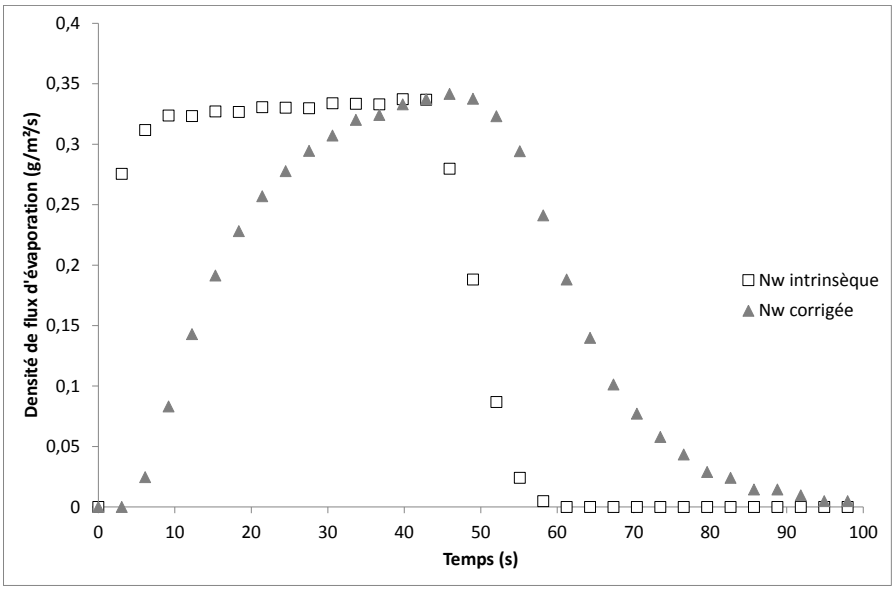


FIGURE 5.5 – Évolution de la densité de flux d'évaporation en fonction du temps. Comparaison entre la cinétique intrinsèque et la cinétique corrigée (épaisseur critique : $\delta_c = 2\ \mu$m).

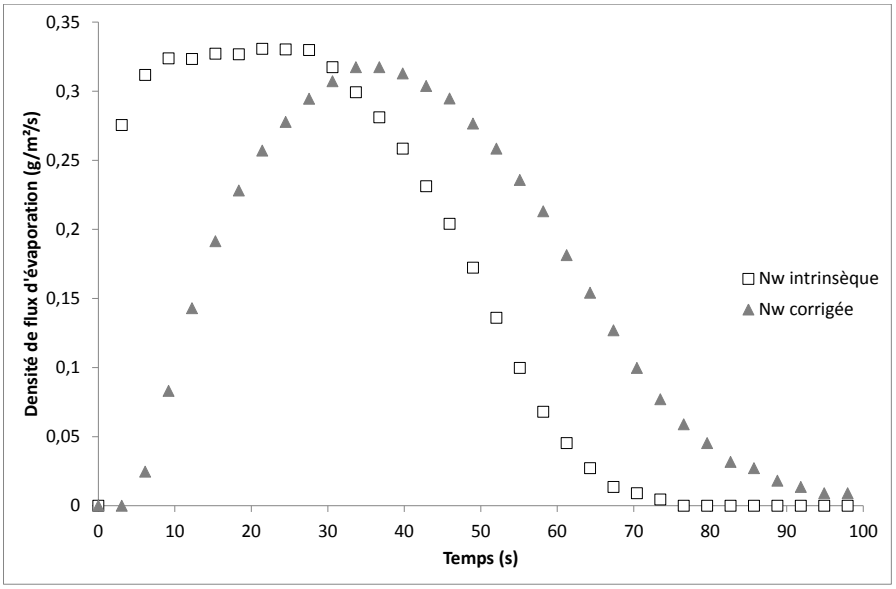


FIGURE 5.6 – Évolution de la densité de flux d'évaporation en fonction du temps. Comparaison entre la cinétique intrinsèque et la cinétique corrigée (épaisseur critique : $\delta_c = 7\ \mu$m).

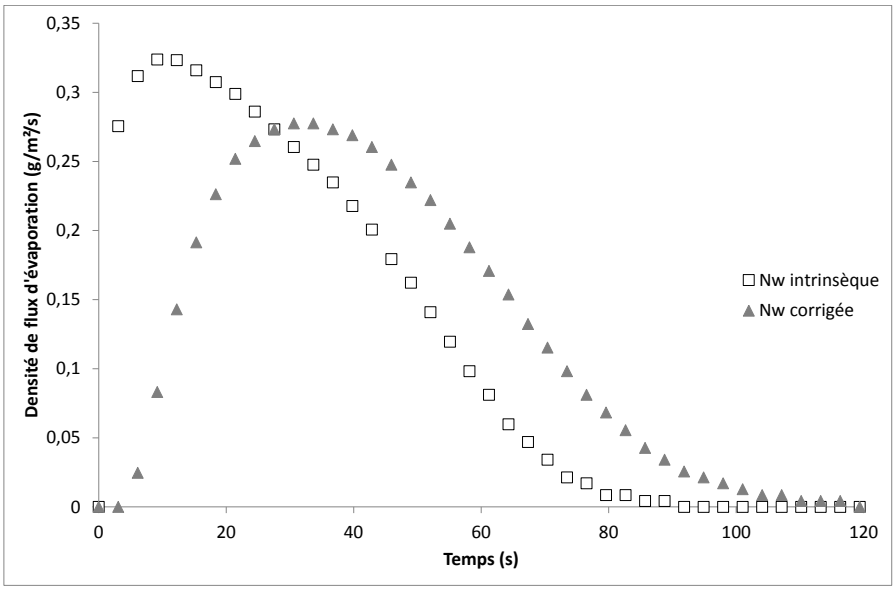


FIGURE 5.7 – Évolution de la densité de flux d'évaporation en fonction du temps. Comparaison entre la cinétique intrinsèque et la cinétique corrigée (épaisseur critique : $\delta_c = 12$ μm).

correspond bien à la valeur de la densité de flux intrinsèque pendant la période de séchage à vitesse constante (l'erreur reste inférieure à 10%).

A partir de l'ensemble de ces résultats, on peut conclure que les valeurs maximales du débit de séchage ou de la densité de flux d'évaporation mesurés expérimentalement sont de bonnes indications de la vitesse d'évaporation pendant la période de séchage à vitesse constante. De plus, pendant cette période, la température du produit humide est proche de la température de bulbe humide ou température de saturation adiabatique.

Détermination des coefficients de transferts associés au lit fluidisé à immersion.

Comme indiqué par l'équation (5.18), pendant la période de séchage à vitesse constante, le coefficient de transfert de matière est le rapport entre la densité de flux d'évaporation et le potentiel d'échange. Forts de nos résultats de simulation, nous évaluons le coefficient de transfert de matière à partir de la densité de flux d'évaporation maximale mesurée expérimentalement, $\dot{N}_W^{max}$, et de la différence de potentiel d'échange de matière correspondante, $Y^* - Y^{max}$:

$$\dot{N}_W^{max} = k_y \cdot (Y^* - Y^{max}) \,. \tag{5.19}$$

La densité de flux d'évaporation est le rapport du débit maximal de séchage, W_{drying}^{max} et de la surface externe de billes de verre humides, S_{BV}^T :

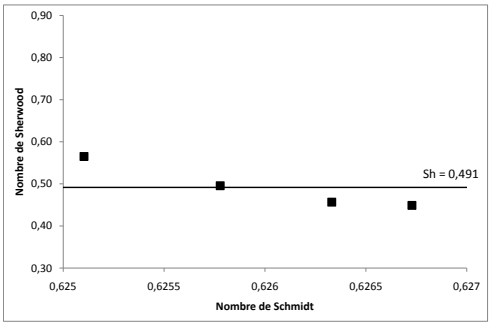
$$\dot{N}_W^{max} = \frac{W_{drying}^{max}}{S_{BV}^T}. \tag{5.20}$$

Tableau 5.3 – Détermination des coefficients de transfert : conditions opératoires et résultats obtenus.

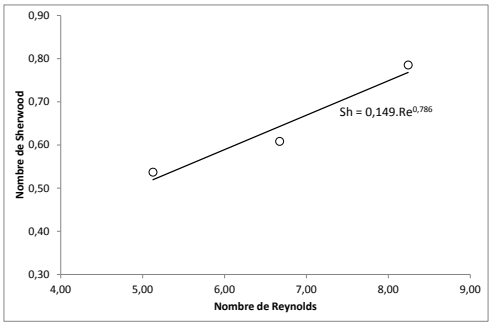
Exp.	m_{billes} (g)	X_0 (g/g)	T_{Lit} (°C)	F_g^0 (kg/h)	U_g (cm/s)	k_y (kg/m^2/s)	Sc (-)	Re (-)	Sh (-)
B-5	7,6	0,14	32,5	11,0	33,7	0,053	0,625	6,37	0,57
B-6	7,6	0,13	44,0	11,0	34,9	0,048	0,626	5,97	0,50
B-7	7,6	0,14	55,5	11,0	36,2	0,045	0,626	5,60	0,46
B-8	7,7	0,13	66,0	11,0	37,4	0,046	0,627	5,30	0,45
B-9	7,6	0,14	31,5	8,4	25,7	0,050	0,625	5,13	0,54
B-10	7,5	0,14	31,5	11,0	33,6	0,057	0,625	6,67	0,61
B-11	7,5	0,14	31,5	13,6	41,6	0,073	0,625	8,24	0,79
Humidité initiale de l'air : 0,2 g d'eau / kg d'air sec.									

La différence de potentiel d'échange de matière est la différence entre l'humidité à saturation adiabatique de l'air Y^* (voir expression dans l'Annexe A) et l'humidité maximale de l'air durant l'expérience Y^{max}.

Le Tableau 5.3 résume les coefficients de transfert de matière déterminés pour les expériences B-5 à B-11. Dans ce Tableau, on trouve ausi les conditions opératoires ainsi que les nombres adimensionnels de Sherwood (Sh), Schmidt (Sc), et Reynolds (Re) correspondants. Les Figures 5.8(a) et 5.8(b) représentent l'effet des nombres de Schmidt (Sc) et de Reynolds (Re) sur le nombre de Sherwood (Sh).



(a) Sh = f(Sc) (Expériences B-5 à B-8).



(b) Sh = f(Re) (Expériences B-9 à B-11).

FIGURE 5.8 – Influence des conditions opératoires (température du lit et vitesse de l'air) sur le coefficient de transfert de matière. Évolution du nombre de Sherwood en fonction des nombres de Schmidt et Reynolds.

Ces Figures montrent que malgré une augmentation conséquente de la température (de 32,5 à 66°C) le coefficient de transfert de matière reste constant, alors qu'il augmente avec la vitesse de l'air. En effet, comme vu dans le Chapitre 3, les transferts externes convectifs sont dirigés par la vitesse de glissement entre l'air et les particules, et donc par la vitesse du gaz.

Cette étude montre que dans les conditions opératoires utilisées, le coefficient de transfert de matière associé à notre pilote expérimental est compris entre $0,045$ et $0,073$ kg $\cdot$ m^{-2} $\cdot$ s^{-1},

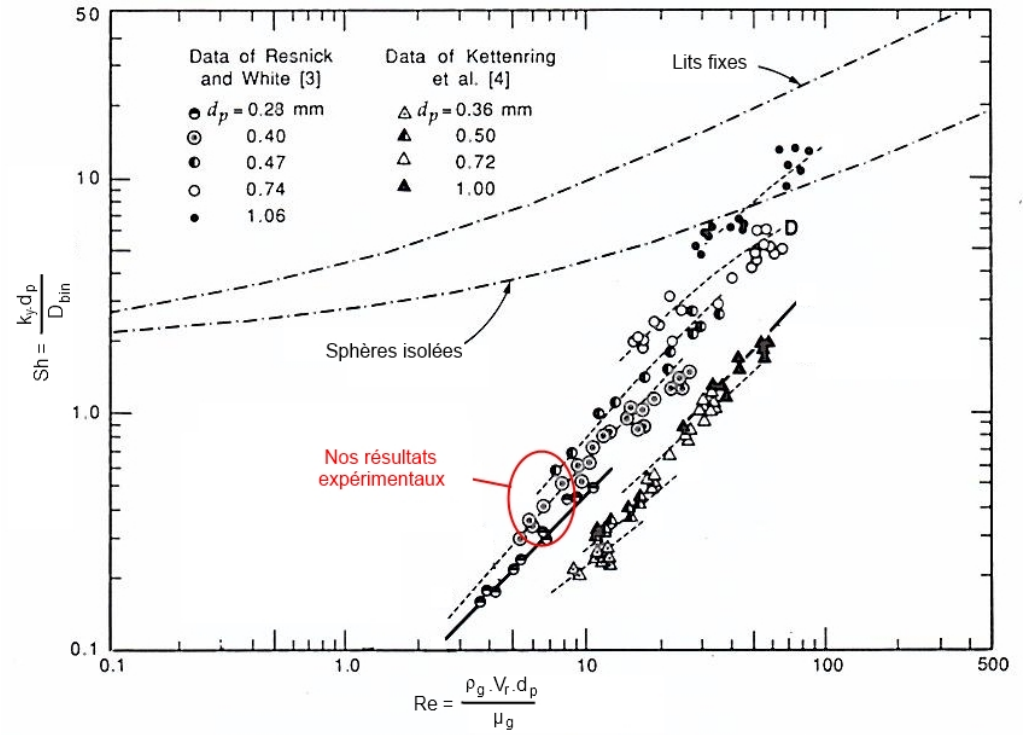


FIGURE 5.9 – Comparaison des coefficients de transfert de matière obtenus expérimentalement avec les résultats de littérature (Kunii and Levenspiel, 1991).

et qu'il peut être modélisé par la relation suivante :

$$Sh = 0,149 \cdot Re^{0,786}. \tag{5.21}$$

La Figure 5.9, représente le nombre de Sherwood en fonction du nombre de Reynolds pour différents résultats de la littérature obtenus en lit fluidisé (Kunii and Levenspiel, 1991). Les résultats obtenus lors de cette étude sont indiqués par un cercle rouge sur ce diagramme. Cette Figure montre que l'ordre de grandeur du nombre de Sherwood obtenu à partir des résultats expérimentaux est cohérent avec ceux de la littérature.

De la même manière le coefficient de transfert de chaleur pourrait être calculé à partir de la densité de flux de chaleur $\dot{q}$ et de la différence de potentiel d'échange de chaleur, $T_{Lit} - T_p$:

$$\dot{q} = h \cdot (T_{Lit} - T_p). \tag{5.22}$$

Cependant, notre dispositif expérimental ne nous permet pas d'accéder à la température des particules. La détermination expérimentale du coefficient de transfert de chaleur n'est donc pas possible dans notre cas. On évalue donc ce coefficient grâce à l'analogie de Chilton and Colburn (1934).

Comparaison des résultats de simulation avec les résultats expérimentaux.

La Figure 5.10 représente les courbes de séchage corrigées par la fonction de transfert de la sonde pour différentes valeurs de δ_c = 0, 2, 7, ou 12 μm. Les simulations ont été effectuées avec la valeur de k_y déterminée expérimentalement (Expérience B-5). Cette

Figure montre que les résultats de simulation les plus proches des résultats expérimentaux sont ceux obtenus avec un diamètre critique de 12 μm.

Afin d'évaluer l'effet de l'erreur de mesure lors de la détermination du coefficient de transfert, différentes simulations ont été réalisées en faisant varier le coefficient de transfert de matière de plus ou moins 10%. La Figure 5.11 compare l'évolution du débit de séchage expérimental avec les évolutions du débit de séchage obtenues par des simulations effectuées avec différents coefficients de transfert de matière :

- $k_y = k_{y_{expé}}$
- $k_y = 0,9 \cdot k_{y_{expé}}$
- $k_y = 1,1 \cdot k_{y_{expé}}$

Elle montre qu'une erreur de $\pm 10\%$ lors de la détermination expérimentale n'affecte pas significativement les résultats de modélisation.

Afin de confirmer la validité de la méthode de détermination des coefficients de transfert de matière, on compare les résultats de modélisation à des résultats expérimentaux obtenus dans d'autres conditions. La Figure 5.12 présente l'évolution de l'humidité du solide normée pour deux autres expériences (B-6 et B-11), dont les conditions opératoires sont résumées dans le Tableau 5.3. Ces résultats sont comparés aux résultats de simulation correspondant, en prenant une épaisseur critique du film d'eau de 12 μm.

Cette Figure montre, que même dans des conditions opératoires différentes, les résultats expérimentaux sont proches des résultats de modélisation. La méthode expérimentale de détermination des coefficients de transfert de matière permet donc d'obtenir des résultats cohérents avec les expériences.

En conclusion, malgré la modification des résultats expérimentaux par le temps de réponse de la sonde, ces derniers permettent d'évaluer le coefficient de transfert de matière avec une bonne précision.

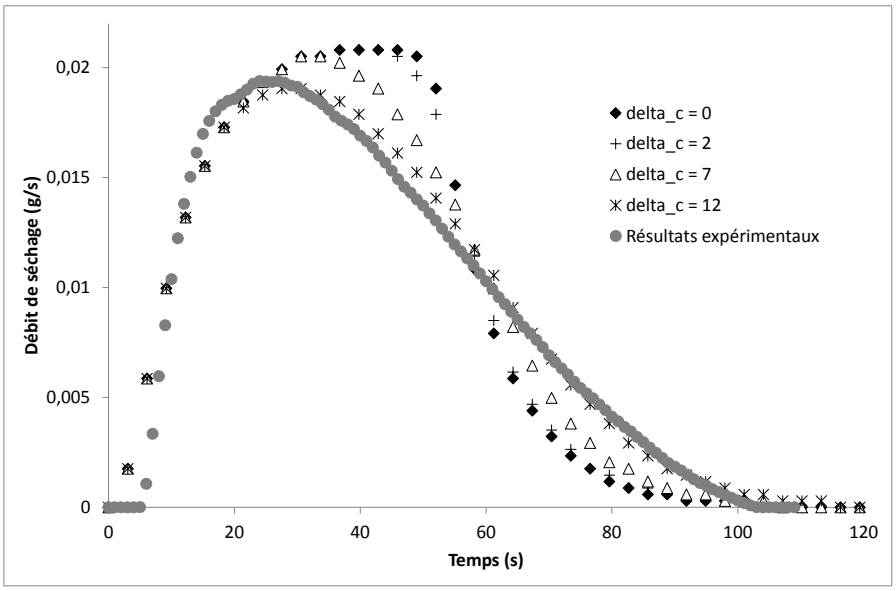


FIGURE 5.10 – Comparaison du débit de séchage obtenu expérimentalement et des débits de séchage corrigés obtenus par simulation (δ_c = 0, 2, 7, ou 12 μm).

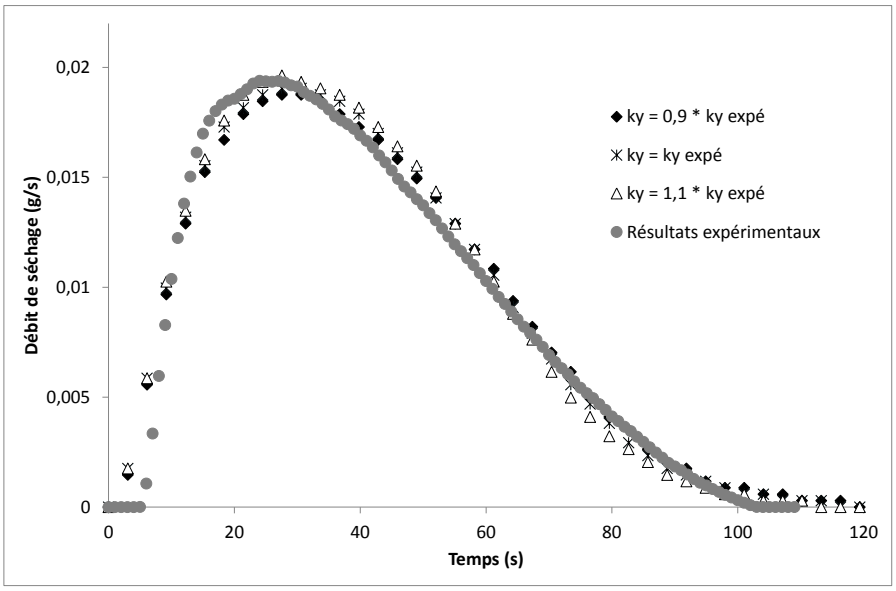
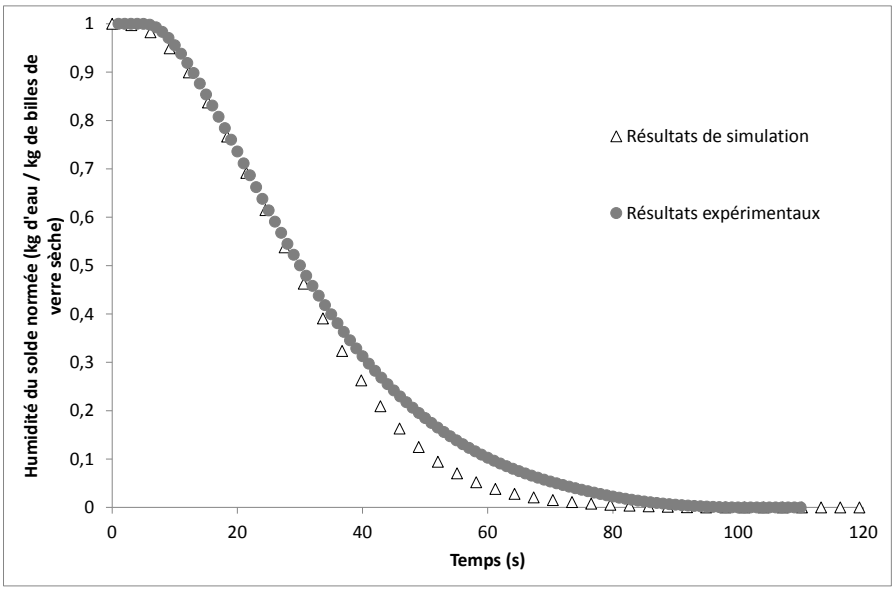
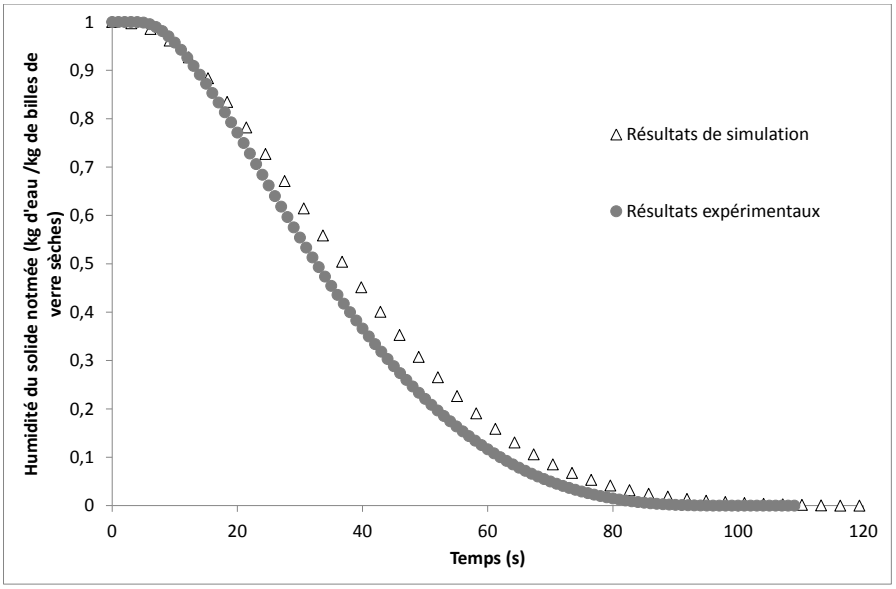


FIGURE 5.11 – Comparaison des résultats expérimentaux et des résultats de modélisation pour différents coefficients de transfert de matière (Expérience B-5).



(a) Expérience B-6 ($T_{Lit} = 44°\mathrm{C}$).



(b) Expérience B-11 ($U_g = 41,6$ cm/s).

FIGURE 5.12 – Comparaison des résultats expérimentaux et des résultats de modélisation ($\delta_c = 12$ μm) pour les expériences B-6 et B-11. Evolution de l'humidité du solide.

5.2 Étude expérimentale du séchage du PVC en poudre.

Dans cette section l'influence des différents paramètres sur la cinétique de séchage du PVC en poudre est étudiée. On distinguera les paramètres intrinsèques des paramètres opératoires. Les paramètres intrinsèques sont de deux types : les grandeurs d'état, telles que la température et la concentration de la vapeur d'eau en phase gazeuse (l'humidité de l'air), et les paramètres morphologiques des particules (taille, porosité, hygroscopicité, ...). Les paramètres intrinsèques, en modifiant les grandeurs thermodynamiques (tension de vapeur, équilibre gaz-solide) et les potentiels d'échanges thermique et matière, affectent directement la cinétique d'évaporation. Les paramètres opératoires dépendent fortement du procédé employé et de ses conditions opératoires (dispersion de l'échantillon, débit d'air de séchage,...).

Tableau 5.4 – Liste des expériences réalisées avec le cake.

Exp.	Cake	X_0^{calc} (kg/kg)	T_{Lit} (°C)	F_g^0 (kg/h)	Y_0 (g/kg)	Y^{sat} (g/kg)	t_{sec} (s)	t_{25} (s)	t_{50} (s)	t_{75} (s)
C-1	PVC A	0,17	41,6	10,8	0,2	53,9	30,0	21,0	15,2	10,7
C-2	PVC A	0,16	41,2	10,8	0,2	52,7	31,1	22,0	16,3	11,8
C-3	PVC A	0,16	41,9	10,8	0,2	54,9	30,1	20,4	14,3	9,9
C-4	PVC A	0,18	42,5	7,5	0,1	56,8	56,3	32,5	19,2	12,2
C-5	PVC A	0,19	42,6	9,2	0,1	57,1	48,6	27,9	17,5	11,4
C-6	PVC A	0,21	42,5	10,8	0,1	56,8	42,4	23,8	15,8	10,6
C-7	PVC A	0,19	42,5	12,4	0,1	56,8	34,7	18,2	12,0	7,8
C-8	PVC A	0,19	34,2	10,8	0,2	35,1	41,8	28,3	20,0	13,6
C-9	PVC A	0,17	41,6	10,8	0,2	53,9	29,0	18,5	14,2	10,0
C-10	PVC A	0,21	54,9	10,8	0,2	114,6	23,8	15,9	10,9	7,4
C-11	PVC A	0,14	36,6	9,8	0,2	40,4	36,5	23,9	17,0	11,6
C-12	PVC A	0,16	36,5	9,8	5,8	40,2	43,8	21,9	15,7	11,4
C-13	PVC A	0,13	36,5	9,8	9,3	40,2	41,2	25,6	19,1	14,1
C-14	PVC A	0,14	36,7	9,8	16,2	40,6	54,7	32,5	23,4	16,8
C-15	PVC A	0,14	36,6	9,8	19,7	40,4	72,4	45,3	28,5	18,7
C-16	PVC A	0,25	42,0	10,8	0,2	55,2	32,9	22,7	15,9	10,9
C-17	PVC B	0,34	42,3	10,8	0,2	56,1	40,4	27,1	19,0	12,9
C-18	PVC C	0,37	41,9	10,8	0,2	54,9	37,8	25,1	16,7	10,8
C-19	PVC D	0,47	41,9	10,8	0,2	54,9	36,8	24,0	16,8	11,8

Le Tableau 5.4 résume les conditions opératoires et la valeur des temps caractéristiques de séchage des expériences réalisées, ainsi que, à titre indicatif, l'humidité à saturation de l'air à la température du lit. Les essais ont été réalisés avec des échantillons constitués de 2,9 g de cake et de 2,9 g de billes de verre. Ce choix est justifié par une étude présentée dans la section 5.2.2.

L'étude de reproductibilité de notre pilote expérimental est effectuée à travers les expériences C-1 à C-3.

L'étude paramétrique de la cinétique de séchage à l'échelle d'un grain de PVC a été réalisée avec le PVC A, en faisant varier les paramètres suivants :

- le débit massique d'air sec, F_g^0, de 7,5 à 12,4 kg/h (expériences C-4 à C-7),
- la température du lit, T_{Lit}, de 34 à 55°C (expériences C-8 à C-10),
- l'humidité de l'air en entrée du séchoir, Y_0, de 0,2 à 25 g d'eau / kg d'air sec (expériences C-11 à C-15),
- et l'influence de la morphologie des grains de PVC grâce aux différents grades de PVC (expériences C-16 à C-19).

5.2.1 Reproductibilité des expériences.

Afin de montrer la reproductibilité de notre système expérimental, les expériences C-1, C-2, et C-3, sont réalisées dans les mêmes conditions opératoires (Tableau 5.5). L'observation de la Figure 5.13 montre que notre système expérimental est reproductible et que la variance des temps caractéristiques de séchage, Var, calculée par l'équation suivante, est inférieure à l'unité (voir Tableau 5.6).

$$Var = \frac{\sum_{i=1}^{n} \left(t_i - \bar{t}\right)^2}{n-1}, \tag{5.23}$$

avec $\bar{t}$ la valeur moyenne de la série de données.

Tableau 5.5 – Liste des essais de reproductibilité.

Exp.	Cake	X_0 (kg/kg)	T_{Lit} (°C)	F_g^0 (kg/h)	Y_0 (g/kg)	Y^* (g/kg)	t_{sec} (s)	t_{25} (s)	t_{50} (s)	t_{75} (s)
C-1	PVC A	0,17	41,6	10,8	0,2	53,9	30,0	21,0	15,2	10,7
C-2	PVC A	0,16	41,2	10,8	0,2	52,7	31,1	22,0	16,3	11,8
C-3	PVC A	0,16	41,9	10,8	0,2	54,9	30,1	20,4	14,3	9,9

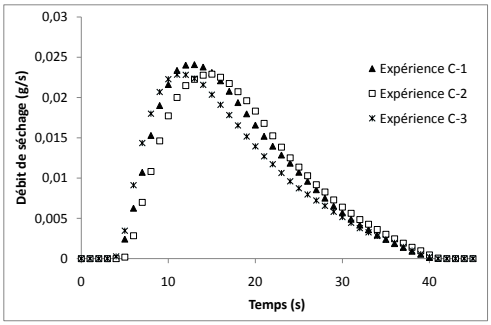
Tableau 5.6 – Variances des temps caractéristiques de séchage obtenus lors des essais de reproductibilité.

	t_{sec}	t_{25}	t_{50}	t_{75}
Var (s)	0,39	0,65	1,00	0,91

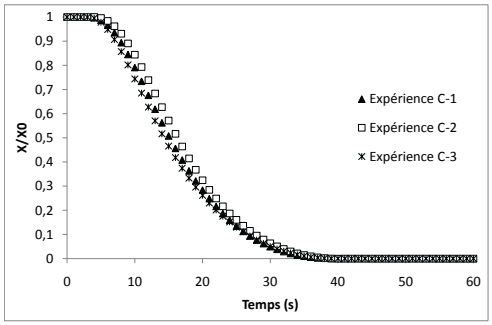
5.2.2 Influence des paramètres opératoires.

Étude de la dispersion de l'échantillon : mélange de cake et de billes de verre.

Le cake est constitué de particules de PVC humide liées entre elles par des ponts liquides. Ces agglomérats ont des difficultés à se disperser correctement dans le lit. Par ailleurs, l'étude réalisée sur le séchage des billes de verre humides a montré que la dispersion de l'échantillon dans le lit fluidisé avait une grande influence sur la cinétique de séchage.



(a) Évolution temporelle du débit de séchage.



(b) Évolution temporelle de l'humidité normée du solide.

FIGURE 5.13 – Essais de reproductibilité (Exp. C-1 à C-3). Débit massique d'air : 10,8 kg/h ; Température de l'air : 41,6°C ; Humidité de l'air : 0,2 g d'eau / kg d'air sec ; Masse de cake : 2,9 g.

Afin de favoriser ce phénomène de dispersion, les échantillons de cake sont mélangés avec des billes de verre sèches à température ambiante avant l'introduction dans le lit pilote. Cette procédure casse les liaisons entre les particules humides, et donc améliore leur dispersion dans le lit.

On définit alors la fraction massique de billes de verre, ω_{BV}, de la façon suivante :

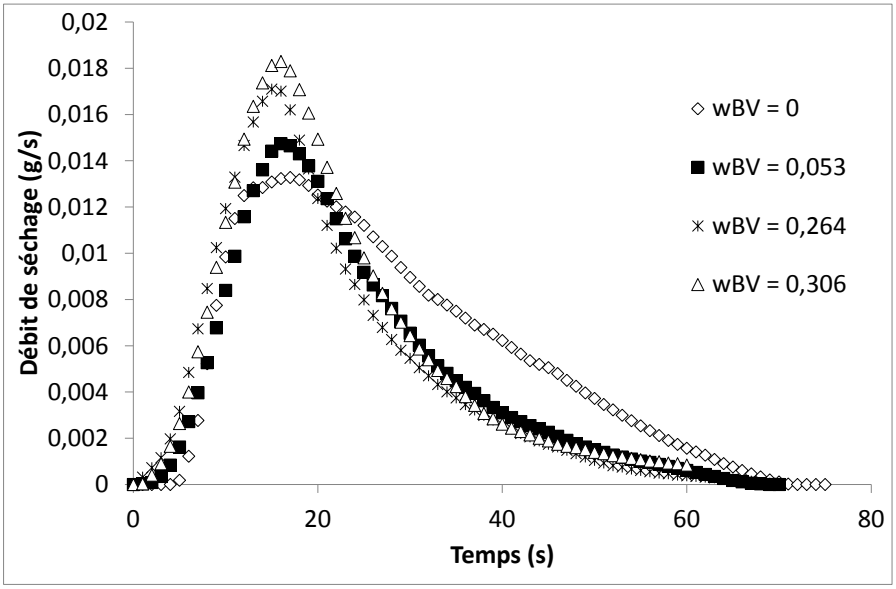
$$\omega_{BV} = \frac{m_{BV}}{m_{cake} + m_{BV}}. \tag{5.24}$$

Tableau 5.7 – Les expériences réalisées avec différentes fractions massiques de billes de verre.

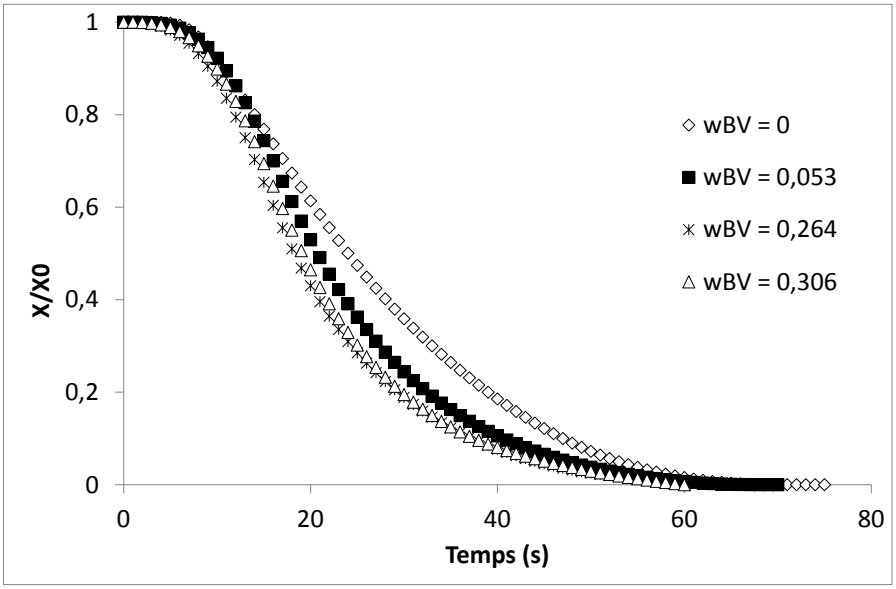
Exp.	m_{cake} (g)	X_0 (kg/kg)	m_{BV} (g)	ω_{BV} (-)	t_{sec} (s)	t_{25} (s)	t_{50} (s)	t_{75} (s)
C-20	2,94	0,17	0	0	15,6	24,0	35,8	53,0
C-21	2,91	0,14	0,16	0,053	14,9	20,5	28,8	46,9
C-22	2,91	0,13	1,05	0,264	13,0	17,3	24,5	41,3
C-23	2,91	0,15	1,28	0,306	13,8	18,6	25,1	44,3
Débit d'air : 10,8 kg/h					Température du lit : 34,2°C.			
Humidité initiale de l'air : 0,2 g d'eau / kg d'air sec.								

Le Tableau 5.7 et la Figure 5.14 présentent les conditions opératoires et l'effet de la fraction massique de billes de verre sur la cinétique de séchage des échantillons de PVC A.

La Figure 5.14 montre que ce paramètre a une forte influence sur la cinétique de séchage pour des valeurs inférieures à 0,25. Au delà de cette fraction massique, son influence est négligeable. Ainsi, pour la suite des essais, nous avons utilisé des échantillons de 2,9 g de cake et 2,9 g de billes de verre, ce qui correspond à une fraction massique de billes de verre de 0,5.

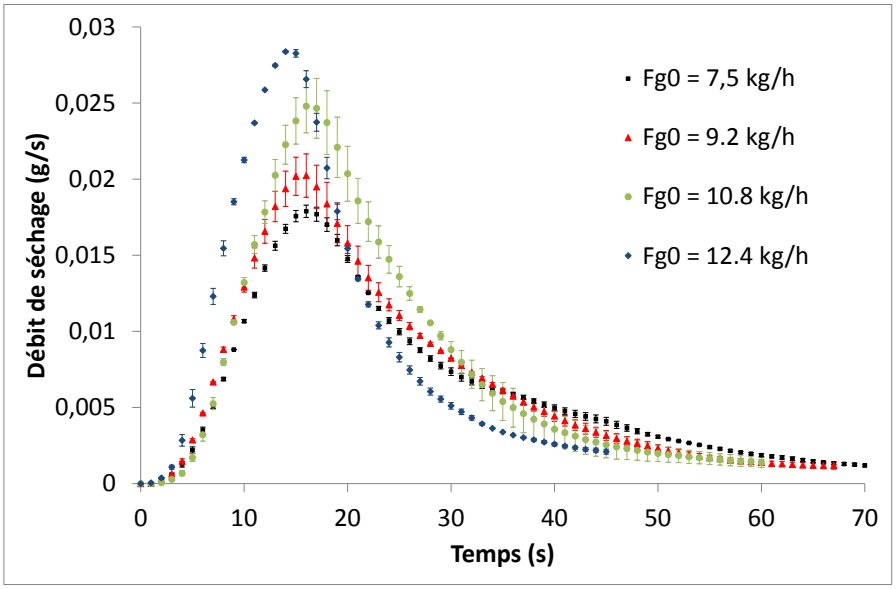


(a) Évolution du débit de séchage.

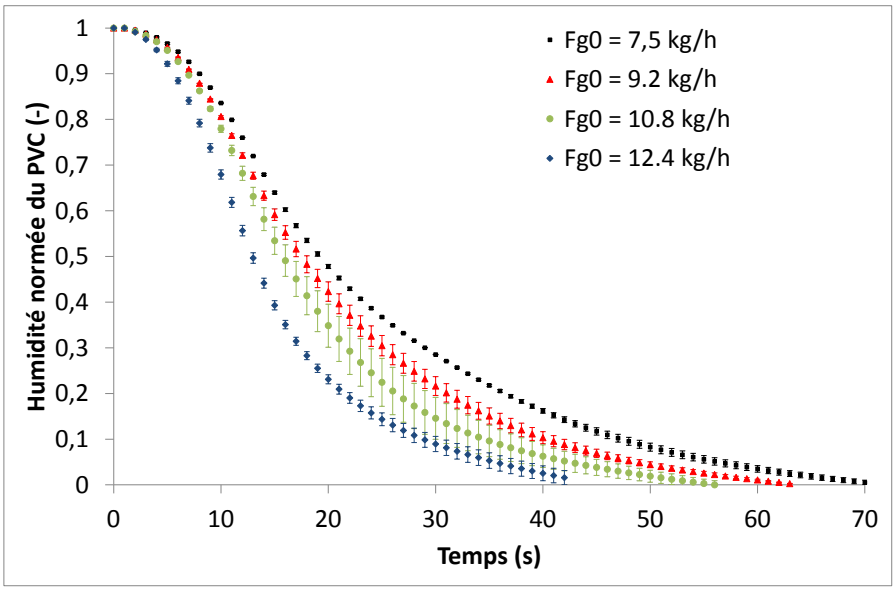


(b) Évolution de l'humidité normée du solide.

FIGURE 5.14 – Évolution du débit de séchage, et de l'humidité normée du solide pour différentes fractions massiques de billes de verre (Expériences C-20 à C-23).



(a) Évolution du débit de séchage.



(b) Évolution de l'humidité normée du solide.

FIGURE 5.15 – Évolution du débit de séchage et de l'humidité normée du solide pour différents débits d'air sec (Expériences C-4 à C-7).

Effet du débit d'air de fluidisation.

Le débit d'air de fluidisation influence la cinétique de séchage à travers plusieurs phénomènes physiques :

- L'intensification des transferts convectifs : plus la vitesse de l'air est importante, plus la vitesse relative entre l'air et les particules (U_{sl}) l'est. Et, comme vu dans le Chapitre 3, une augmentation de ce paramètre, en intensifiant les transferts externes de matière et de chaleur, va réduire le temps de séchage.
- D'autre part, une augmentation du débit d'air, entraîne une fluidisation plus intense, et donc un meilleur mélange des particules au sein du lit. Ce phénomène va donc favoriser la dispersion de l'échantillon de cake dans le lit. Or, comme vu précédemment, ce phénomène de dispersion a une influence non négligeable sur la cinétique de séchage.
- Et finalement, une augmentation du débit massique d'air réduit l'humidité moyenne de l'air dans le lit, ce qui permet d'augmenter le potentiel de séchage $Y^* - Y_s$.

L'effet du débit d'air a été étudié entre 7,5 et 12,4 kg/h correspondant respectivement à des vitesses de 22,2 et 37,4 cm/s. Cette plage de vitesse est comprise entre 2,5 et 4,3 fois la vitesse minimale de fluidisation des billes de verre (Tableau 5.8).

Tableau 5.8 – Liste des expériences réalisées à différents débits d'air sec.

Exp.	Cake	X_0^{calc} (kg/kg)	F_g^0 (kg/h)	U_g (cm/s)	U_g/U_{mf}^{BV} (-)	t_{sec} (s)	t_{25} (s)	t_{50} (s)	t_{75} (s)
C-4	PVC A	0,18	7,5	22,2	2,5	56,3	32,5	19,2	12,2
C-5	PVC A	0,19	9,2	27,2	3,1	48,6	27,9	17,5	11,4
C-6	PVC A	0,21	10,8	32,3	3,7	42,4	23,8	15,8	10,6
C-7	PVC A	0,19	12,4	37,4	4,3	34,7,0	28,2	12,0	7,8

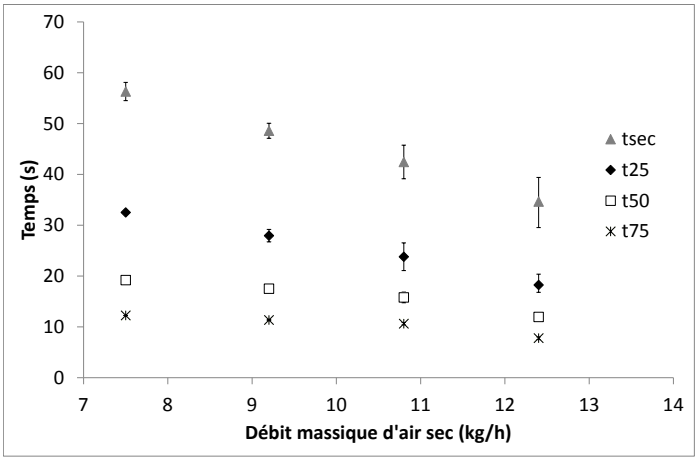
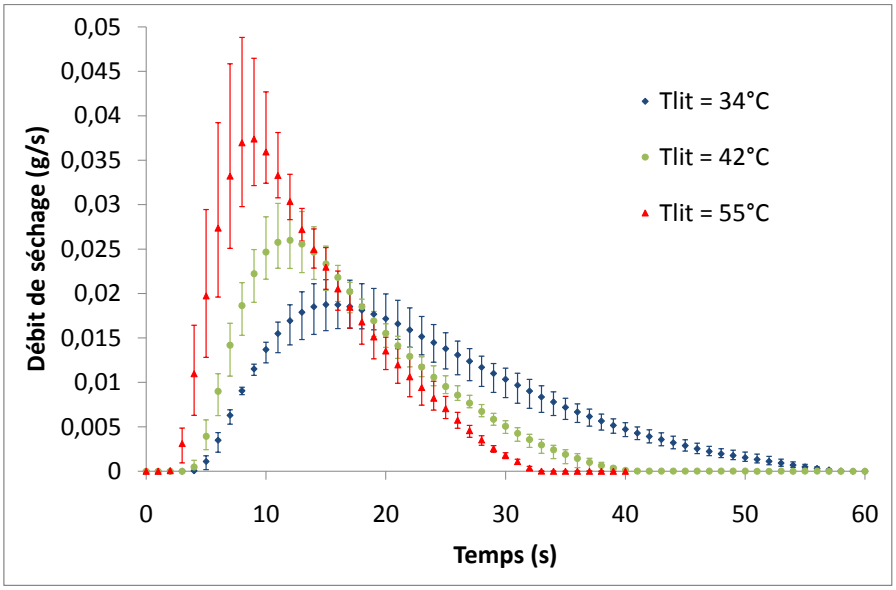
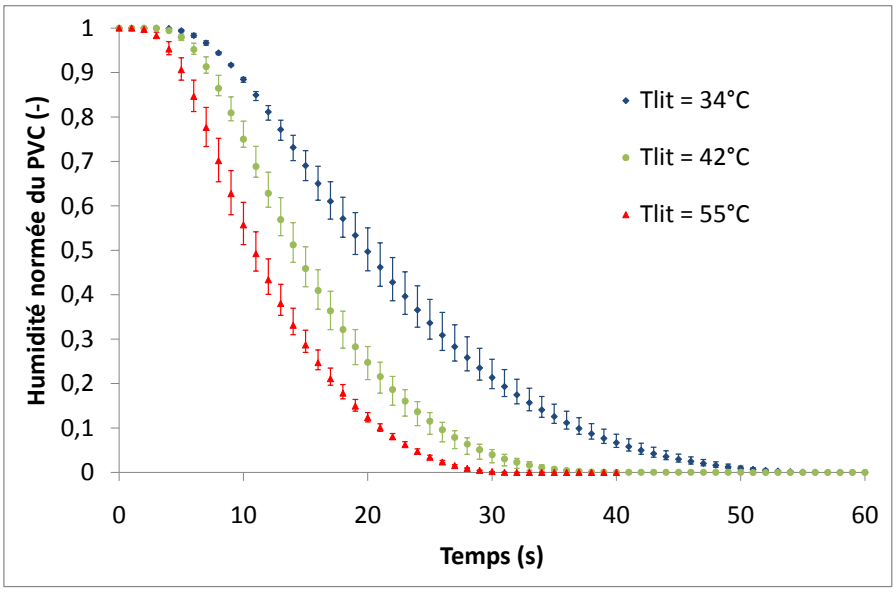


FIGURE 5.16 – Évolution des temps caractéristiques de séchage pour différents débits d'air sec (Expériences C-4 à C-7).

Les résultats expérimentaux portés sur les Figures 5.15 et 5.16 montrent qu'une augmentation du débit d'air sec de 7,5 à 12,4 kg/h réduit le temps de séchage, t_{sec}, de 59 à 41



(a) Évolution du débit de séchage.



(b) Évolution de l'humidité normée du solide.

FIGURE 5.17 – Évolution du débit de séchage et de l'humidité normée du solide pour différentes température du lit (Expériences C-8, C-9, et C-10).

secondes. Ces résultats montrent que la cinétique de séchage du PVC est partiellement contrôlée par les transferts externes. Par ailleurs, la Figure 5.16 montre un effet prépondérant de ce facteur pour des valeurs inférieures à 9 kg/h.

5.2.3 Influence des paramètres intrinsèques.

Effet de la température du lit.

L'augmentation de la température du lit favorise l'opération de séchage par son effet conjugué sur l'équilibre thermodynamique entre phases et sur la cinétique de séchage. En effet, une élévation de la température du lit augmente directement le potentiel d'échange thermique, $T_{Lit} - T_p$ d'une part, et le potentiel d'échange de matière $(Y^{sat} - Y)$ d'autre part, en augmentant l'humidité à saturation.

Les Figures 5.17 et 5.18 représentent l'effet de la température du lit sur la cinétique de séchage à travers les résultats des expériences C-8, C-9, et C-10. Les conditions opératoires et les temps caractéristiques de ces expériences sont résumés dans le Tableau 5.9.

Tableau 5.9 – Liste des expériences réalisées à différentes températures du lit.

Exp.	Cake	X_0^{calc} (kg/kg)	T_{Lit} (°C)	F_g^0 (kg/h)	U_g (cm/s)	Y^{sat} (g/kg)	t_{sec} (s)	t_{25} (s)	t_{50} (s)	t_{75} (s)
C-8	PVC A	0,19	34	10,8	33,2	35,1	41,8	28,3	20,0	13,6
C-9	PVC A	0,17	42	10,8	34,1	53,9	29,0	18,5	14,2	10,0
C-10	PVC A	0,21	55	10,8	35,5	114,6	23,8	15,9	10,9	7,4
Humidité initiale de l'air : 0,2 g d'eau / kg d'air sec.										

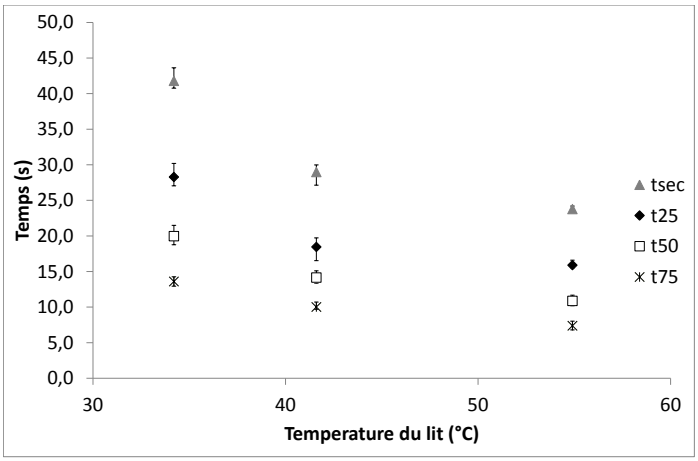


FIGURE 5.18 – Évolution des temps caractéristiques de séchage pour différentes températures du lit (Expériences C-8, C-9, et C-10).

Ces résultats montrent qu'une augmentation de la température du lit de 34 à 55°C diminue fortement le temps de séchage de 42 à 24 secondes. La température du lit a donc une

grande influence sur la cinétique de séchage. En effet, même si les températures utilisées sont relativement proches (entre 35 et 55°C), l'augmentation de l'humidité à saturation de l'air est conséquente (de 35 à 115 g d'eau / kg d'air sec). De plus, l'augmentation de la température du lit, à débit massique d'air constant, entraîne une légère augmentation de la vitesse de l'air, ce qui accentue l'effet de la température.

Ceci confirme qu'une augmentation de la température du lit accélère la cinétique de séchage du PVC en poudre, en agissant sur les potentiels d'échanges de chaleur et de matière.

Effet de l'humidité initiale de l'air.

Comme la température, l'humidité de l'air varie grandement le long du séchoir industriel, il est donc intéressant d'examiner son influence sur la cinétique du séchage du PVC.

L'humidité initiale de l'air influence la cinétique de séchage à travers le transfert de matière. En effet, une augmentation de l'humidité initiale de l'air, entraîne une réduction du potentiel d'échange de matière, et donc un ralentissement de la cinétique de séchage. De plus, une humidité initiale de l'air suffisamment proche de la saturation peut provoquer des phénomènes de condensation pendant le procédé de séchage. Il est donc nécessaire de bien maîtriser ce paramètre en respectant une marge de sécurité pour éviter le phénomène de condensation.

En lit fluidisé, l'humidité de l'air influence aussi l'électricité statique générée par les particules de PVC (Diguet, 1996). En effet plusieurs études (Guardiola et al., 1996) (Boland and Geldart, 1972) (Ciborowski and Wlodarski, 1962) montrent que sous un seuil critique d'humidité relative de l'air de fluidisation, le lit fluidisé se charge et se décharge spontanément, en électricité statique. Ce phénomène a tendance à former des zones semi-stagnantes dans le lit qui, à leur tour, défavorisent la dispersion de l'échantillon de cake dans le lit de billes de verre. Expérimentalement, ce phénomène est mis en évidence par l'observation de particules de PVC sèches collées en paroi du lit fluidisé.

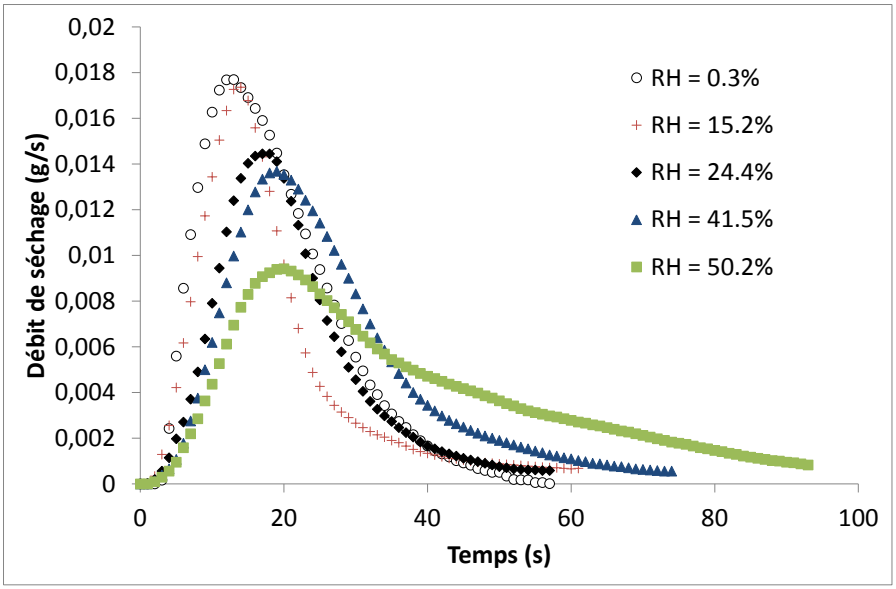
Les Figures 5.19 et 5.20 présentent l'effet de la variation de l'humidité initiale de l'air sur la cinétique de séchage à travers les expériences C-11 à C-15. Les conditions opératoires et les temps caractéristiques de ces expériences sont résumés dans le Tableau 5.10.

Tableau 5.10 – Liste des expériences réalisées avec différentes humidités initiales de l'air.

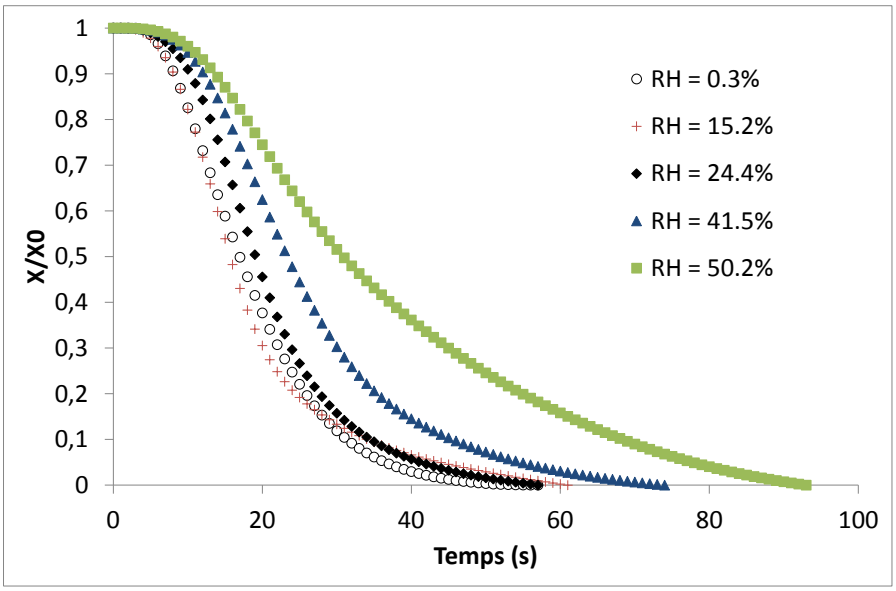
Exp.	Cake	X_0^{calc} (kg/kg)	T_{Lit} (°C)	RH (%)	Y_0 (g/kg)	Y^{sat} (g/kg)	t_{sec} (s)	t_{25} (s)	t_{50} (s)	t_{75} (s)
C-11	PVC A	0,14	36,6	0	0,2	40,4	36,5	23,9	17,0	11,6
C-12	PVC A	0,16	36,5	15,2	5,8	40,2	43,8	21,9	15,7	11,4
C-13	PVC A	0,13	36,5	24,4	9,3	40,2	41,2	25,6	19,1	14,1
C-14	PVC A	0,14	36,7	41,5	16,2	40,6	54,7	32,5	23,4	16,8
C-15	PVC A	0,14	36,6	50,2	19,7	40,4	72,4	45,3	28,5	18,7

Ces résultats montrent deux tendances :

– A forte humidité initiale ($Y_0 > 16$ g d'eau / kg d'air sec), une augmentation de l'humidité initiale de l'air de 16 à 20 g d'eau / kg d'air sec augmente le temps de séchage de 55



(a) Évolution du débit de séchage.



(b) Évolution de l'humidité du solide normée.

FIGURE 5.19 – Évolution du débit de séchage et de l'humidité normée du solide pour différentes humidités initiales de l'air (Expériences C-11 à C-15).

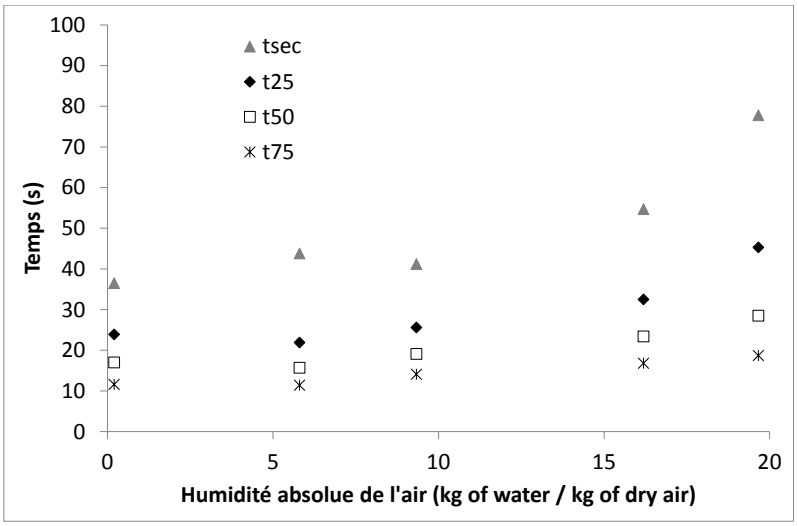


FIGURE 5.20 – Évolution des temps caractéristiques pour différentes humidités initiales de l'air (Expériences C-11 à C-15).

à 72 secondes. Ceci confirme qu'une augmentation de l'humidité initiale à température constante résulte en une diminution du potentiel de séchage et un ralentissement de la cinétique de séchage.
– A faible humidité initiale ($Y_0 < 10$ g d'eau / kg d'air sec), l'humidité initiale de l'air a peu d'influence sur la cinétique de séchage. Ceci peut être expliqué par une mauvaise dispersion du cake dans le séchoir provoquée par les phénomènes électrostatiques. Au delà de 15 g d'eau / kg d'air sec, la réduction de l'effet de l'électricité statique conduit à un mélange plus intense des particules solides et à une accélération de la cinétique de séchage.

Effet de la morpholgie des particules : comparaison des différents grades de PVC.

Les grades de PVC produit par INEOS diffèrent principalement par leur diamètre, leur humidité initiale, leur porosité interne aux agglomérats, et leur affinité vis à vis de l'eau. Par contre leur porosité globale est relativement proche. Les différences d'humidité initiale proviennent de l'étape de centrifugation, dont l'efficacité varie selon la recette de polymérisation, et plus particulièrement de la tension de surface de l'eau de la bouillie (suspension eau-PVC). Chacun de ces paramètres a un effet sur la cinétique de séchage :

– Plus l'humidité initiale d'un grade est grande, plus la quantité d'eau à évaporer l'est, et donc le temps de séchage long.
– Plus le diamètre des particules est grand, plus la surface d'évaporation par unité de volume est faible, ce qui implique une cinétique de séchage plus lente.
– La diffusion de la vapeur d'eau en phase solide dépend de la taille moyenne et de la distribution de taille des pores. Lorsque la taille des pores devient inférieure à 80 nm, le transfert est contrôlé à la fois par la diffusion moléculaire, mais aussi la diffusion

de Knudsen. Ainsi, le séchage d'une particule ayant une part importante de porosité interne aux agglomérats sera donc plus lent.
– Plus l'affinité d'un grade de PVC vis à vis de l'eau est importante, plus le séchage de ce grade sera difficile. En effet, l'énergie nécessaire pour désorber les molécules d'eau de la surface sera plus importante.

Dans le Tableau 5.11 sont rappelé les caractéristiques physiques des différents grades de PVC, ainsi que leurs humidité initiale (X_0) et surfacique (X_{surf}). Notons que l'humidité surfacique représente l'écart entre l'humidité initiale et celle nécessaire pour combler le volume poreux du PVC. La Figure 5.21 rappelle les équilibres d'adsorption de la vapeur d'eau sur les quatres grades de PVC étudiés.

Tableau 5.11 – Rappel des caractéristiques physiques et morphologiques des différents grades.

Exp.	Grade	X_0^{calc} (kg/kg)	X_{surf} (kg/kg)	$d_{[3,2]}$ (μm)	$\chi_{globale}$ (%)	$\bar{d}_{pore}^{macro}$ (nm)	χ_{meso} (%)	$\bar{d}_{pore}^{méso}$ (nm)
C-16	PVC A	0,25	0	142,0	29,2	3335,6	2,09	81,6
C-17	PVC B	0,34	0,05	155,5	29,0	1597,3	1,34	77,2
C-18	PVC C	0,37	0,02	168,0	33,1	1931,7	1,34	73,4
C-19	PVC D	0,47	0,16	154,6	30,0	1899,5	0,52	45,6

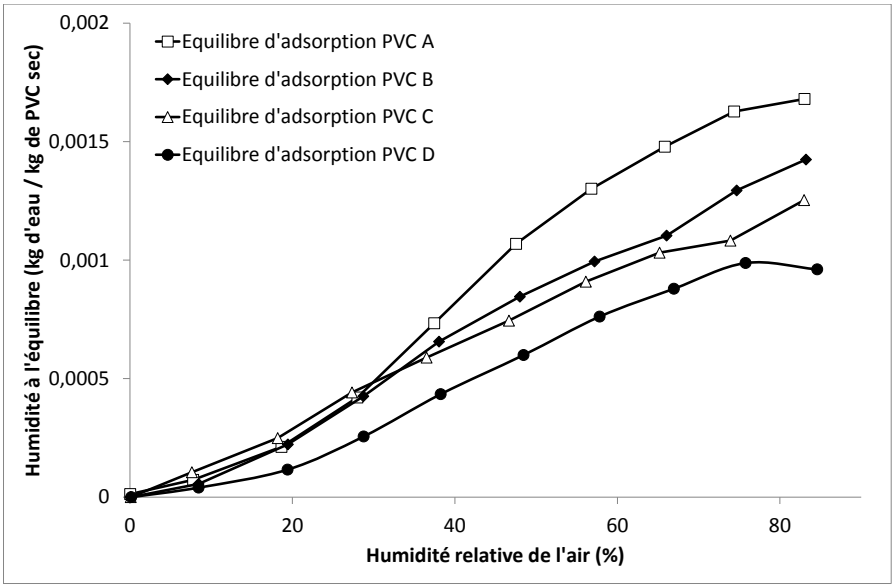


FIGURE 5.21 – Equilibres d'adsorption des différents grades de PVC.

Par comparaison, les grades de PVC peuvent être classés suivant leurs différentes propriétés :

➢ *classement selon l'humidité initiale croissante :*

$$\text{PVC A} < \text{PVC B} < \text{PVC C} < \text{PVC D},$$

➢ *classement selon le diamètre croissant :*

$$\text{PVC A} < \text{PVC D} \leq \text{PVC B} < \text{PVC C},$$

➢ *classement selon le pourcentage croissant de porosité interne aux agglomérats :*

$$\text{PVC D} < \text{PVC B} = \text{PVC C} < \text{PVC A}.$$

➢ *classement selon l'affinité croissante vis à vis de l'eau :*

$$\text{PVC D} < \text{PVC C} < \text{PVC B} < \text{PVC A}.$$

La Figure 5.22 présente l'effet de la morphologie des particules de PVC sur la cinétique de séchage(expériences C-16 à C-19) réalisées avec les différents grades de PVC fournis par INEOS-ChlorVinyls. Les valeurs des temps caractéristiques de séchage de ces expériences sont résumées dans le Tableau 5.12.

Cette Figure montre que la cinétique de séchage des différents grades est relativement proche. L'effet de la morphologie des particules est moins prépondérant que l'effet de la majorité des paramètres externes. En tenant compte de la durée du séchage, on peut classer les grades dans l'ordre suivant :

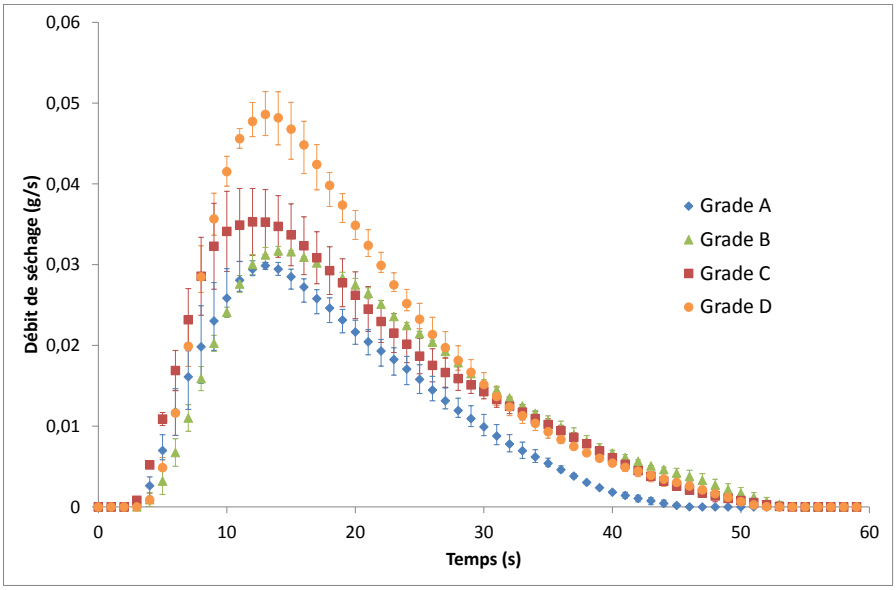
$$\text{PVC A} < \text{PVC D} < \text{PVC C} < \text{PVC B}.$$

Le grade A ayant une humidité initiale bien plus faible que les trois autres, et donc une quantité d'eau à évaporer moindre, son temps de séchage est le plus court (32,9 secondes).

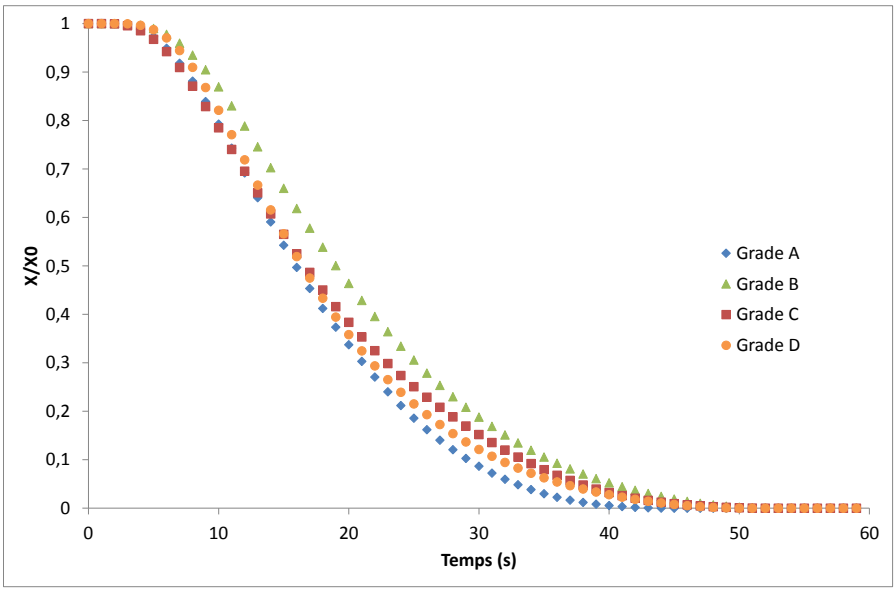
Cependant on note que malgré une humidité initiale plus importante, le grade D est plus rapide à sécher que le grade B (temps de séchage respectifs : 36,8 et 40,4 secondes). Ce phénomène s'explique par la différence de porosité interne aux agglomérats. En effet, le grade D a le plus faible taux de pores de faibles tailles, ce qui explique que malgré une importante humidité initiale, il soit plus rapide à sécher.

De la même façon, le grade C, qui a une humidité initiale intermédiaire entre les grades B et D et un taux de porosité interne aux agglomérats similaire au grade B, a un temps de séchage intermédiaire (37,8 secondes).

Ces résultats montrent donc que, pour les conditions opératoires testées, le grade de PVC a un faible effet sur la cinétique de séchage. Cependant, la morphologie des particules de PVC, et plus particulièrement la présence de pores de faibles tailles, a une influence non négligeable sur la cinétique de séchage. Il faudra donc prendre en compte la structure interne des particules et les phénomènes physiques associés afin de modéliser avec précision la séchage d'une particule de PVC.



(a) Évolution du débit de séchage.



(b) Évolution de l'humidité normée du solide.

FIGURE 5.22 – Évolution du débit de séchage et de l'humidité normée du solide pour les différents grades de PVC étudiés (Expériences C-16 à C-19).

Tableau 5.12 – Cinétique de séchage des différents grades de PVC : Temps caractéristiques.

Exp.	Grade	t_{sec} (s)	t_{25} (s)	t_{50} (s)	t_{75} (s)
C-16	PVC A	32,9	22,7	15,9	10,9
C-17	PVC B	40,4	27,1	19,0	12,9
C-18	PVC C	37,8	25,1	16,7	10,8
C-19	PVC D	36,8	24,0	16,8	11,8
Débit massique d'air sec : 10,8 kg/h. Température du lit : 42°C.					
Humidité initiale de l'air : 0,2 g d'eau / kg d'air sec.					

5.3 Conclusion.

Dans ce chapitre, nous avons présenté les différentes études permettant :

– de caractériser notre pilote expérimental (lit fluidisé à immersion),
– et d'obtenir les données cinétiques à l'échelle d'un grain de PVC.

Une étude préalable, réalisée avec des billes de verre humides, a permis :

– de définir les conditions optimales d'introduction du produit humide,
– et d'évaluer le coefficient de transfert de matière associé à notre pilote expérimental. L'exploitation des données est réalisée à l'aide d'un modèle qui simule les phénomènes de transferts couplés de chaleur et de matière à l'échelle d'une particule humide.

Cette étude a montré que le coefficient de transfert de matière dépend de la vitesse du gaz, alors qu'il est peu dépendant de la température du lit. L'effet des paramètres opératoires sur le coefficient de transfert est représenté par la relation suivante :

$$Sh = 0,149 \cdot Re^{0,786}. \tag{5.25}$$

L'étude de la cinétique de séchage du cake a été réalisée en discontinu en injectant des échantillons contenant 2,9 g de cake et 2,9 g de billes de verre dans le lit fluidisé à immersion.

L'influence des différents paramètres expérimentaux sur la cinétique de séchage du PVC a été examinée. Les résultats ont montré que :

– La vitesse de l'air de fluidisation a un effet non négligeable sur la cinétique de séchage. Ces résultats montrent que le séchage du PVC est contrôlé par une combinaison des transferts externes et des transferts internes. Les premiers dépendent de l'hydrodynamique du séchoir, alors que les seconds dépendent des phénomènes de transfert qui se produisent à l'échelle moléculaire dans les différentes phases présentes dans le solide, et plus particulièrement de la diffusion de la vapeur d'eau dans les pores.
– La température du lit a un effet prépondérant sur la cinétique de séchage. En effet, ce paramètre clef affecte non seulement le transfert de chaleur mais aussi le transfert de matière.
– L'augmentation de l'humidité de l'air de fluidisation défavorise la cinétique de séchage. Cependant, à basse humidité, la présence des phénomènes électrostatiques dans le lit, en modifiant son comportement hydrodynamique, peuvent affecter la cinétique de séchage.

– La morphologie (taille, porosité, hygroscopicité, ...) des particules étudiées (quatre grades fournis par INEOS) a un effet moindre sur la cinétique de séchage que les autres paramètres étudiés. Parmi les paramètres morphologiques, le taux de porosité interne aux agglomérats peut être considéré comme le plus influent.

En conclusion, les résultats expérimentaux de ce chapitre ont montré que, malgré les bonnes propriétés de mélange du lit fluidisé, la cinétique de séchage du PVC en poudre est fortement dépendante des conditions opératoires, notamment de la température de séchage. De plus, la diffusion de la vapeur d'eau à travers les mésopores, phénomène limitant du séchage de telles particules, est un paramètre non négligeable. Ceci montre donc que la cinétique de séchage à l'échelle d'un grain de PVC est contrôlée à la fois par les transfert externes et par les transferts internes à la particule. La modélisation du séchage d'une particule de PVC devra donc prendre en compte tous les phénomènes physiques associés à ces transferts.

Chapitre 6

Modèles cinétiques.

Sommaire

6.1 Modélisation des transferts couplés à l'échelle de la particule. 148
6.1.1 Choix du modèle. 148
6.1.2 Modélisation de la cinétique de séchage à l'échelle du grain. . . . 150
6.2 Modélisation du lit fluidisé à immersion. 152
6.2.1 Exemples de résultats : 155
Influence relative des résistances internes et externes au transfert de matière. 157
Comparaison avec les résultats expérimentaux. 158
6.2.2 Etude paramétrique du modèle. 159
Influence de la distribution de tailles de particules. 159
Influence des propriétés texturales des particules de PVC. 159
Influence de l'humidité initiale du cake. 161
6.2.3 Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux : influence des paramètres opératoires. 162
6.3 Simulation numérique 3D du lit fluidisé à immersion avec le code NEPTUNE_CFD. 165
6.3.1 Equations de transport. 165
6.3.2 Paramètres numériques du cas de calcul. 168
Maillage du lit fluidisé à immersion. 168
Propriétés des phases. 169
Conditions aux limites. 170
Conditions initiales. 171
6.3.3 Présentation des résultats. 171
Etude hydrodynamique. 173
Champs de température et évolution au cours du temps. 176
Evolution de l'humidité en sortie du lit. 180
Influence de la nature du média fluidisé. 182
6.4 Conclusion. 187

L'objet de ce chapitre consiste à mettre au point un outil mathématique permettant de simuler la cinétique de séchage des particules de PVC à l'échelle du grain. Ce modèle cinétique repose sur l'écriture des équations bilans de matière et de chaleur sur la particule. Les transferts de matière sont modélisés en tenant compte de l'évaporation et de la diffusion de la vapeur d'eau à l'intérieur du solide, ainsi que de l'échange convectif entre la surface des particules et le milieu externe. Le transfert thermique tient compte de la conduction de chaleur à l'intérieur de la particule (dans la zone sèche) et du transfert convectif à la surface de la particule.

Dans le but de tenir compte de l'effet de l'atmosphère du séchoir (température et humidité), ces équations sont couplées aux bilans de matière et de chaleur sur le séchoir. La modélisation du séchoir est réalisée par deux approches différentes :

– La première, dite 0D, repose sur l'exploitation des propriétés de base du lit fluidisé qui sont : son isothermicité et le mélange parfait du solide. Par ailleurs, cette dernière propriété couplée à la faible quantité de cake (2,9 g) introduite dans 1,5 kg de média fluidisé nous permet de considérer que l'humidité de l'air dans le séchoir est uniforme et sa valeur identique à celle mesurée en sortie.
– La seconde repose sur une représentation 3D du séchoir en tenant compte des transferts couplés de quantité de mouvement, de matière et de chaleur, dans des systèmes polydisperses.

Les résultats de la simulation du séchage du PVC à l'échelle du grain ont montré que, dans les conditions opératoires retenues (faibles tailles de particules), la résistance à la conduction de chaleur à l'intérieur du grain est négligeable devant l'échange convectif. Dans ce cas, la température à l'intérieur du grain peut être considérée comme uniforme.

La comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus par la simulation a montré que la cinétique de séchage est contrôlée par une combinaison entre les transferts internes et externes aux particules. Ce phénomène est expliqué par le fait que la porosité interne du grain est constitué essentiellement de macroporosité et que l'affinité du PVC vis à vis de l'eau est très faible. La simulation 3D des phénomènes hydrodynamiques et thermiques a confirmé les hypothèses du modèle 0D

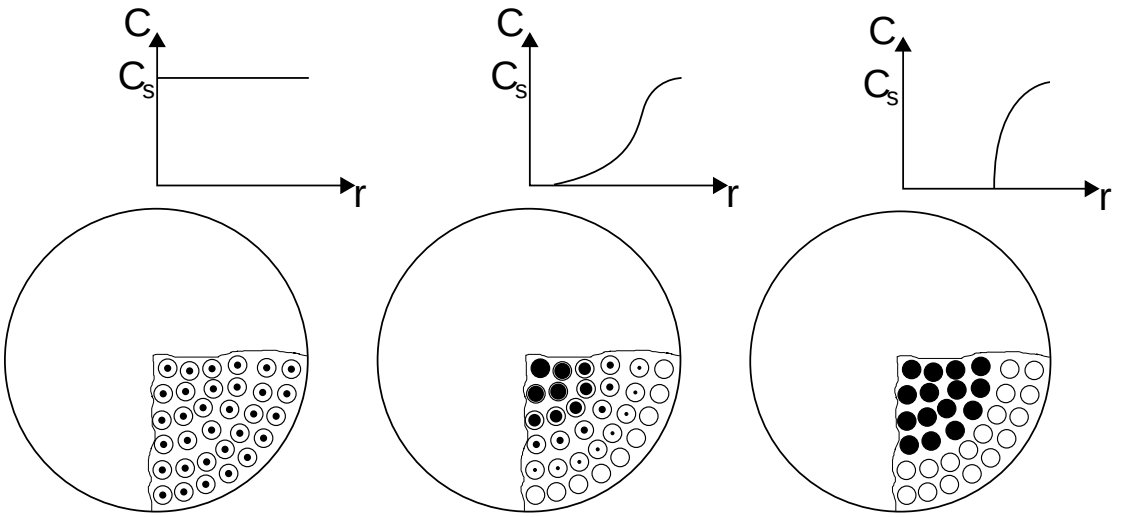
6.1 Modélisation des transferts couplés à l'échelle de la particule.

6.1.1 Choix du modèle.

L'étude du séchage de solides poreux et celle des réactions gaz/solides hétérogènes présentent de grandes similitudes. Ainsi les modèles utilisés pour le séchage de solides poreux dérivent le plus souvent de ceux employés pour les réactions gaz/solides (Agarwal et al., 1986) (Abuaf and Staub, 1986) (Cheong et al., 1986) (Levi-Hevroni et al., 1995).

Szekely et al. (1976) résument les différentes étapes rencontrées lors des intéractions chimiques entre un gaz et des particules solides poreuses :

– Transports externes (de chaleur et/ou de matière) du gaz vers la surface externe des particules.



(a) Réaction lente devant la diffusion.

(b) Cas intermédiare.

(c) Réction rapide devant la diffusion.

FIGURE 6.1 – Représentation du modèle pastille-grain lors de la réaction d'un solide poreux avec un gaz (les courbes représentent schématiquement les profils radiaux de la concentration de réactif).

- Diffusion des réactifs en phase fluide à travers les pores des particules.
- Réaction chimique (ou, dans notre cas particulier, évaporation de l'humidité) en surface.
- Diffusion des produits dans les pores, vers la surface des particules.
- Transports externes de la surface des particules vers le gaz.

De nombreuses études (Ishida and Wen, 1971), (Szekely et al., 1973) et (Tien and Turkdogan, 1972) concernent la modélisation de ces phénomènes dans le cas de particules composées d'agglomérats de particules primaires. On parle alors de modèle "pastille-grain", représenté sur la Figure 6.1. En général, deux cas limites sont pris en compte :

- Si l'étape de transformation est lente devant la diffusion dans le solide, la réaction va avoir lieu uniformément dans tout le volume de la particule, et la concentration du gaz sera considérée comme homogène (Figure 6.1(a)). On parle alors du modèle volumique uniforme.
- A l'inverse, si la diffusion dans le solide est extrêmement lente, la transformation aura lieu au sein de la particule, à l'image d'un front qui sépare nettement une zone non convertie d'une zone ayant totalement réagi (Figure 6.1(c)). On parle alors de réaction contrôlée par la diffusion en phase solide.

La Figure 6.1(b) présente un cas intermédiaire, où la transformation est contrôlée la fois par la réaction chimique, et par la diffusion dans les pores.

Comme montré dans les Chapitres 1 et 2, les particules de PVC sont constituées d'un empilement de particules primaires de formes plus ou moins sphériques. L'étude morphologique (distribution de tailles de pores) a montré la présence de deux familles de pores :

- les pores externes aux agglomérats, de tailles supérieures à 250 nm, qui représentent l'espaces interstitiel de la pastille (espace libre entre les agglomérats) et qui constituent plus de 93% du volume poreux,
- et les mésoporosités qui représentent la porosité des agglomérats, cette porosité représente entre 1,7 et 6,7% du volume poreux.

A cause de la faible valeur de la porosité des agglomérats, une particule de PVC humide est considérée comme une pastille constituée de grains non poreux dont l'espace interstitiel entre les grains est rempli d'eau. De plus, dans le cas où l'humidité initiale des particules est supérieure à celle nécessaire pour combler le volume poreux, on tient compte de la présence de l'eau surfacique (Figure 6.2). En tenant compte de la faible affinité de l'eau vis à vis du PVC (forte valeur de l'angle de contact, faible valeur de l'humidité à l'équilibre) et des grandes dimensions des pores, on peut négliger certains processus élémentaires du séchage comme la capillarité et la diffusion en phase liquide (migration). Dans ce cas, le seul mécanisme pouvant contrôler la cinétique de séchage est celui de la diffusion de la vapeur d'eau dans les pores.

Ainsi, à un instant donné du séchage, un grain de PVC peut être représenté comme un noyau humide dont l'humidité est identique à l'humidité initiale de la particule, entouré d'une zone dite "sèche" constituée d'agglomérats secs (Figure 6.2). Cette zone sèche est traversée par un flux de vapeur d'eau dont la valeur dépend de la température de la particule, qui impose la pression partielle de vapeur d'eau à la surface du noyau humide, et la pression partielle de la vapeur d'eau dans l'atmosphère entourant la particule. On considère le plus souvent un équilibre local entre la phase solide et le gaz dans la zone sèche. En se basant sur les équilibres de sorption de la vapeur d'eau sur les particules de PVC, présentés dans le Chapitre 2, on peut conclure que l'humidité résiduelle (humidité à l'équilibre) dans la zone sèche est extrêmement faible (inférieure à 1,7 g d'eau / kg de PVC sec). Pour cette raison, lors de la modélisation, on considère cette zone comme complètement sèche.

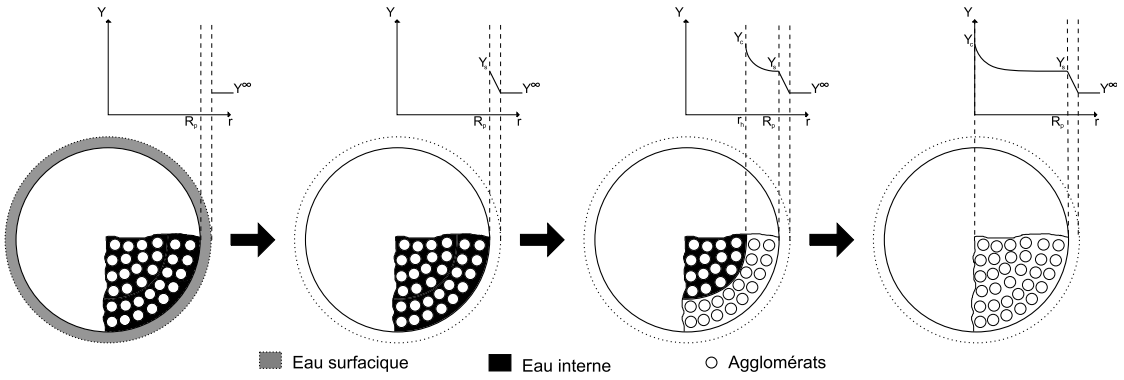


FIGURE 6.2 – Principe du modèle de type noyau rétrécissant (les courbes représentent les profils radiaux d'humidité de l'air dans la zone sèche).

6.1.2 Modélisation de la cinétique de séchage à l'échelle du grain.

Dans un premier temps, la modélisation de la cinétique de séchage à l'échelle de la particule a été réalisée en modélisant le séchage d'une particule isolée placée dans une atmosphère gazeuse à température et humidité données et constantes dans le temps, sans prendre en considération les phénomènes hydrodynamiques ou géométriques du lit fluidisé. Ce modèle considère :

– une seule direction de transfert,
– les échanges convectifs de chaleur et de matière en surface de la particule,
– la diffusion de la vapeur d'eau dans le gaz contenu dans les pores de la particule,

– et la conduction de la chaleur de la surface externe vers la surface du noyau humide, en considérant qu'à chaque instant la température est uniforme dans le noyau.

Dans le but d'alléger le manuscrit, les hypothèses, le développement des équations, et les résultats de ce modèle sont présentés dans l'Annexe F page 268.

L'intégration des équations du modèle fournit l'évolution temporelle du rayon du noyau humide, sa température, ainsi que les profils de température et d'humidité de l'air dans la zone sèche.

La faible taille des particules de PVC, les conditions de séchage retenues (faible température), et la faible valeur du nombre de Biot thermique (voir Annexe F) laissent penser que la conduction dans la croûte sèche est très rapide devant l'échange de chaleur convectif. Ainsi, une simulation a été réalisée en négligeant ce phénomène, c'est à dire en considérant qu'à chaque instant la température est uniforme dans la particule.

La Figure 6.3 présente les évolutions de la température et de l'humidité du solide avec ou sans la conduction de la chaleur dans la croûte sèche.

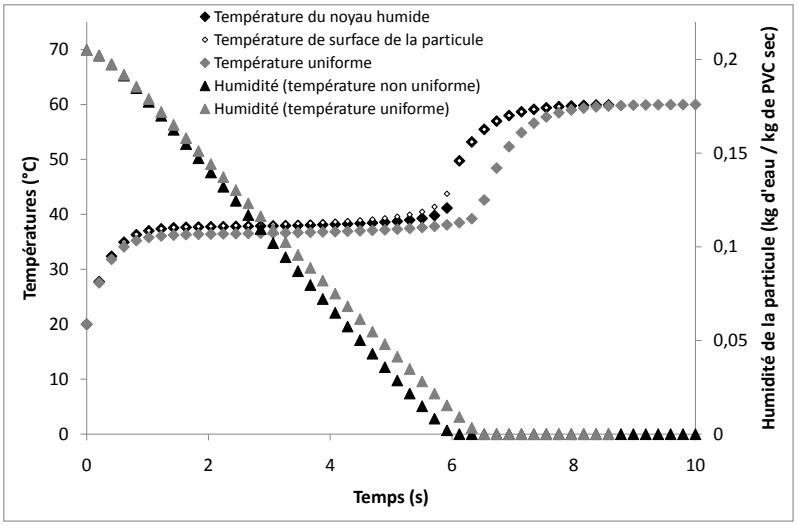


FIGURE 6.3 – Comparaison des résultats de modélisation avec et sans la conduction de la chaleur dans la croûte sèche.

Les résultats de ce modèle ont montré que, dans nos conditions opératoires (particules de faibles tailles, température de l'air comprise entre 40 et 60°C, ...) la conduction de la chaleur dans la croûte sèche a peu d'influence sur les résultats de simulation. En effet, cette Figure montre que les évolutions de l'humidité du solide sont proches, et que, dans le cas où la conduction de la chaleur est prise en compte, la différence de température entre le noyau humide et la surface de la particule n'excède jamais 0,5°C. De ce fait, ce phénomène est négligé dans l'établissement du modèle cinétique en lit fluidisé à immersion.

6.2 Modélisation du lit fluidisé à immersion.

Le séchoir à lit fluidisé à immersion est considéré comme un mélangeur parfait vis à vis des particules. Il est constitué de deux populations de particules :

- Les billes de verre (média), dont la température est considérée uniforme et constante dans le temps (température du lit). En effet, comme montré par les résultats expérimentaux (voir Figure 5.1(b) page 116), la faible masse de cake intoduite dans le lit (inférieure à 3 grammes) permet de garantir une isothermicité du lit.
- Les particules de PVC humide, dont la température est considérée uniforme et variable dans le temps.

Dans le but d'exploiter nos résultats expérimentaux, le modèle de la cinétique de séchage développée précédemment est intégré dans le modèle du séchoir à lit fluidisé à immersion. Les équations du modèle mettent en jeu les bilans couplés de matière et de chaleur sur l'échantillon de cake ainsi que le bilan sur la phase gazeuse présente dans le séchoir. Ce dernier est représenté par différents modèles :

- Mélange parfait du gaz,
- Ecoulement piston du gaz et mélange parfait de la phase émulsion,
- Modèle bulles-émulsion.

Cependant l'effet sur les résultats étant peu notable, seuls les résultats obtenus avec le modèle le plus simple (réacteur parfaitement agité) sont présentés.

Ce modèle repose sur les hypothèses suivantes :

- les particules de PVC sont considérées parfaitement sphériques et quasi-homogènes,
- l'humidité de la particule est répartie entre l'humidité interne et l'humidité surfacique,
- l'évaporation de l'eau a lieu à la surface du noyau humide, appelée le front de séchage,
- à chaque instant, l'humidité du noyau humide est égale à l'humidité interne initiale de la particule,
- la température de la particule est uniforme.
- le transfert de matière est dirigé par la diffusion de la vapeur à travers la croûte sèche et par le transfert convectif à la surface de la particule,
- le transfert de chaleur est dirigé par le transfert convectif à la surface de la particule,

◇ *Bilans couplés sur la particule :*

Le modèle considère deux phases de séchage :

- l'élimination de l'eau surfacique (phase 1) qui implique seulement les transferts externes à la particule,
- l'élimination de l'eau interne (phase 2) qui implique à la fois les transferts externes et les transferts internes à la particule.

Suivant les caractéristiques des différents grades de PVC étudiés (porosité et humidité initiale), le modèle détermine si les particules présentent ou non de l'eau surfacique.

L'humidité maximale pouvant être contenue dans les pores des particules est calculée à partir de la porosité de la particule, χ, par la relation suivante :

$$X_{pore} = \frac{\rho_{eau} \cdot \chi}{\rho_p}. \tag{6.1}$$

Dans le cas où l'humidité intiale des particules est supérieure à cette valeur, on considère que de l'eau surfacique est présente. L'humidité surfacique est alors déternminée ainsi :

$$X_{surf} = X_0 - X_{pore} \tag{6.2}$$

➢ *Elimination de l'humidité surfacique :*

L'élimination de l'humidité surfacique est simulée de manière analogue au modèle simulant le séchage de billes de verre présenté dans le chapitre précédent (Chapitre 5 Section 5.1.2 page 118) en considérant la présence d'un film continu d'eau à la surface de la particule.

On peut donc appliquer le bilan matière effectué sur les billes de verre humides (Equation (5.6)) au cas des particules de PVC :

$$\begin{aligned} \frac{dX}{dt} &= \frac{\rho_{eau}}{\rho_p} \cdot \frac{6}{d_p^3} \cdot (d_p + 2 \cdot \delta_{eau})^2 \cdot \frac{d\delta_{eau}}{dt}. \\ &= -k_y \cdot \frac{6}{\rho_p \cdot d_p^3} \cdot (d_p + 2 \cdot \delta_{eau})^2 \cdot (Y^* - Y_s). \end{aligned} \tag{6.3}$$

avec δ_{eau}, l'épaisseur du film d'eau et k_y le coefficient de transfert de matière convectif.

De la même manière, on peut adapter le bilan enthalpique effectué sur les billes de verre humides (Equation (5.16)) au cas des particules de PVC :

$$\begin{aligned} (Cp_p + X \cdot Cp_{eau}^L) \cdot \frac{dT_p}{dt} = \frac{dX}{dt} \cdot \Big[\Delta H_V(T_p) - Cp_{eau}^L \cdot (T_p - T_{ref})\Big] \\ + \frac{6 \cdot h}{\rho_p \cdot \pi \cdot d_p^3} \cdot \Big(\pi \cdot (d_p + 2 \cdot \delta_{eau})^2\Big) \cdot (T_{lit} - T_p), \end{aligned} \tag{6.4}$$

avec h le coefficient de transfert convectif, et $\Delta H_V(T_p)$ l'enthalpie de vaporisation de l'eau à la température de la particule.

➢ *Elimination de l'humidité interne :*

Une fois l'humidité surfacique évaporée (ou dans le cas où la particule ne contient que de l'humidité interne), les bilans sur l'échantillon de PVC sont semblables aux bilans présentés dans l'Annexe F (Equations (F.20) et (F.28)) et rappelés ci-dessous. Le bilan matière prend en compte à la fois la diffusion de la vapeur d'eau dans la croûte sèche et l'échange convectif en surface de la particule. Il s'eprime donc de la façon suivante :

$$\frac{dX}{dt} = -\frac{6}{\rho_p \cdot d_p} \cdot \frac{k_y}{1 + Bi_M \cdot (1 - R_p/r_h)} \cdot (Y^* - Y), \tag{6.5}$$

avec X, l'humidité de l'échantillon, k_y le coefficient de transfert de matière convectif, et Bi_M le nombre de Biot matière définit par :

$$Bi_M = \frac{k_y \cdot R_p}{D_{app} \cdot \rho_g} \tag{6.6}$$

Comme la température des particules de PVC est supposée uniforme, le bilan thermique ne tient compte que de l'échange convectif avec le gaz :

$$Cp_{h,p} \cdot \frac{dT_p}{dt} = \frac{3 \cdot h}{\rho_p \cdot R_p} \cdot (T_{Lit} - T_p) + \Big(\Delta H_V(Tp) - Cp_{eau}^L \cdot (T_p - T_{ref})\Big) \frac{dX}{dt}. \tag{6.7}$$

◇ *Bilan matière sur la phase gazeuse présente dans le séchoir :*

A l'instar du modèle présenté dans le chapitre précédent, le bilan matière sur le lit est exprimé de façon classique :

$$\Big(Entrée\Big)+\Big(Production\Big)=\Big(Sortie\Big)+\Big(Accumulation\Big). \tag{6.8}$$

On obtient alors :

$$F_g^0 \cdot Y_e - m_0 \cdot \frac{dX}{dt} = F_g^0 \cdot Y_s + V_{Lit} \cdot \alpha_g \cdot \rho_g \frac{dY_s}{dt}, \tag{6.9}$$

avec, F_g^0 le débit massique d'air sec, m_0 la masse de d'échantillon sec (PVC), V_{Lit} le volume effectif du lit de particules, et α_g le taux de présence du gaz dans le lit.

◇ *Paramètre du modèle :*

Le traitement du modèle nécessite la détermination :

– du coefficient de transfert de matière convectif : k_y,
– du coefficient de transfert de chaleur convectif : h,
– et du coefficient de diffusion apparent de la vapeur d'eau dans les pores : D_{app}.

Le coefficient de transfert de matière est déterminé à partir de l'étude réalisée sur les billes de verre (voir Chapitre 5). Cette étude a montré que la température du lit influence peu le coefficient de transfert, contrairement à la vitesse de l'air. La corrélation suivante a donc été établie :

$$Sh = 0,149 \cdot Re^{0,786}, \tag{6.10}$$

avec Sh, le nombre de Sherwood, et Re, le nombre de Reyolds.

Le coefficient de transfert de chaleur est déterminé à partir de l'analogie de Chilton et Colburn :

$$\frac{h}{k_y} = Cp_{h,g} \cdot Le^{2/3}, \tag{6.11}$$

avec Le le nombre de Lewis, égal à 1 pour le mélange air - vapeur d'eau.

Le coefficient apparent de diffusion de la vapeur d'eau dans les pores est déterminé à partir du coefficient de diffusion effectif D_{eff}, et corrigé par la relation proposé par Akanni et al. (1987) :

$$D_{app} = D_{eff} \cdot \frac{\chi}{\tau}, \tag{6.12}$$

avec χ la porosité des particules, et τ la tortuosité de leurs pores.

Comme la paricule de PVC comprend des mésopores, il faut à la fois prendre en compte la diffusion moléculaire et la diffusion de Knudsen. Le coefficient de diffusion effectif est donc calculé à partir de la relation suivante :

$$D_{eff} = \left(\frac{1}{D_M} + \frac{1}{D_K}\right)^{-1}, \tag{6.13}$$

avec, D_M le coefficient de diffusion moléculaire de la vapeut d'eau dans l'air, D_K et le coefficient de diffusion de Knudsen. Les corrélations permettant de déterminer ces coefficients sont présentées dans le Chapitre 3 Section 3.3 page 85.

Le traitement numérique de ces équations est effectué par la méthode de Runge-Kutta à pas variable. Il permet d'obtenir les résultats dits de "cinétique intrinsèque".

En effet, comme précisé dans le chapitre 4, le temps de réponse de la sonde hygrométrique est du même ordre de grandeur que la durée des expériences, et par conséquent, altère les résultats expérimentaux. On distingue donc :

– la cinétique intrinsèque, c'est à dire l'évolution réelle des humidités du PVC et de l'air dans le lit,
– la cinétique corrigée, c'est à dire l'évolution des humidités du PVC et de l'air modifiées par le temps de réponse de la sonde.

Cette dernière a été obtenue en intégrant au modèle les équations caractérisant la fonction de transfert associée à la sonde, et ce dans le but de comparer les résultats théoriques avec les résultats expérimentaux.

6.2.1 Exemples de résultats :

La Figure 6.4 présente un exemple de résultats du modèle (cinétique intrinsèque), réalisé avec le grade de PVC A. Les paramètres de simulation, résumés dans le tableau 6.1, correspondent aux paramètres morphologiques du PVC A et aux paramètres opératoires de l'expérience C-16 présentée dans le chapitre 5. D'après les valeurs de porosités et d'humidités initiales, le PVC A ne contient que de l'humidité interne.

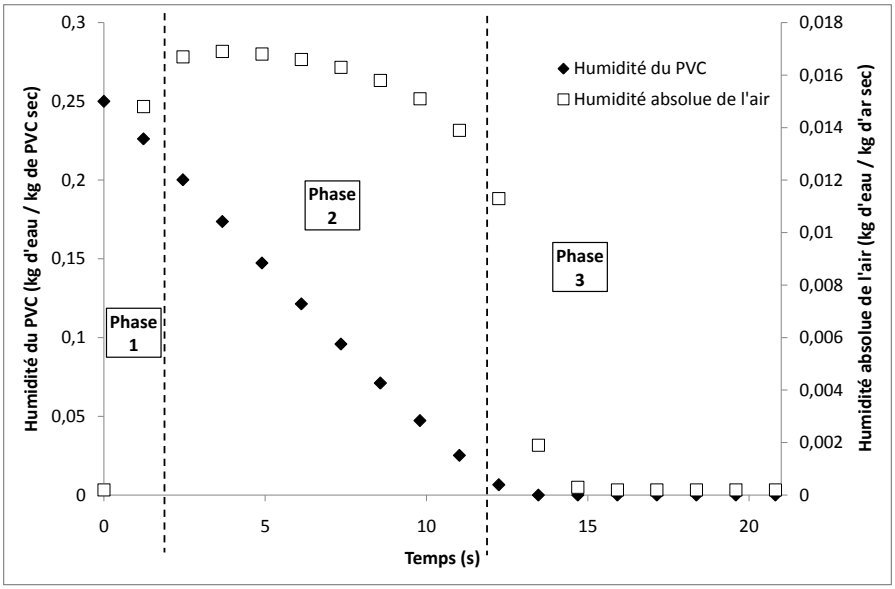
Tableau 6.1 – Paramètres de simulations de l'exemple de résultats du modèle du lit à immersion.

Morphologie de la particule			Paramètres opératoires		
d_p	142,0	μm	m_{ech}^{sec}	2,32	g
X_0	0,25	kg_{eau}/kg_{PVCsec}	T_p^0	15	°C
χ	29,2	%	T_{Lit}	42,0	°C
τ	3,6461	-	F_g	10,8	kg/h
$\bar{d}_{pore}$	3103	nm	Y_0	0,2	g_{eau}/kg_{AIRsec}

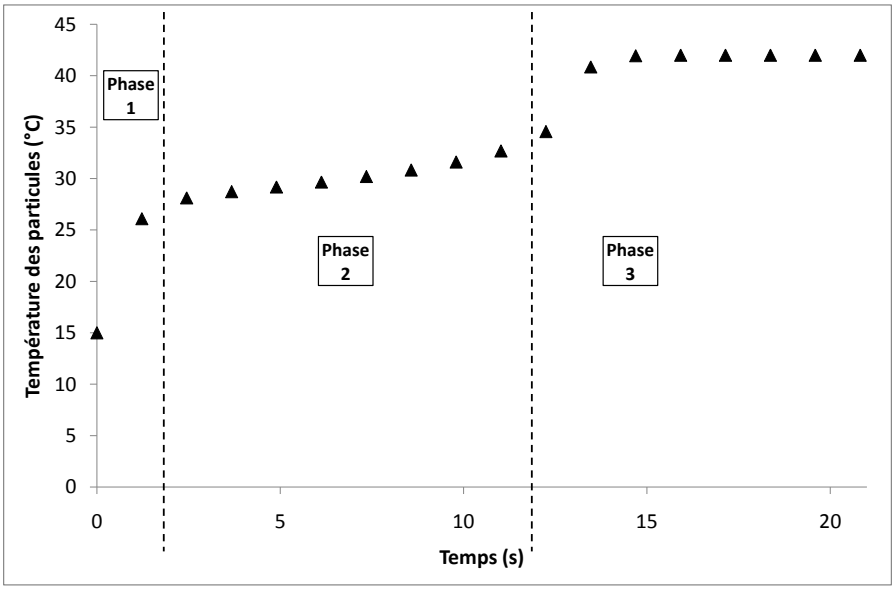
Ces résultats montrent que le temps de séchage de notre échantillon est en réalité de seulement 13,5 secondes, ce qui est 4 fois plus court que le temps observé par l'hygromètre. De plus, sur la Figure 6.4, on distingue trois zones :

– la zone 1, appelée la phase d'initiation, où la température du produit augmente rapidement, de 0 à 2 secondes,
– la zone 2, semblable à la phase de séchage à vitesse constante, de 2 à 12 secondes,
– et la zone 3, de courte durée, correspondant à la phase de séchage à vitesse décroissante, de 12 à 13,5 secondes.

Contrairement à la modélisation du séchage des billes de verre, on n'observe pas de palier de température dans la deuxième zone (Figure 6.4(b)). Ceci est dû à l'effet de la diffusion de la vapeur d'eau dans la croûte sèche sur la cinétique d'évaporation. En effet, lors du séchage, la diminution du rayon du noyau humide conduit à une augmentation de la longueur à travers laquelle la vapeur d'eau doit diffuser, ce qui ralentit la cinétique de séchage. On observe alors une légère diminution de l'humidité de l'air, et une légère augmentation de la température de la particule pendant cette phase de séchage.



(a) Evolution temporelle de l'humidité du PVC et de l'humidité absolue de l'air.



(b) Evolution temporelle de la température du PVC.

FIGURE 6.4 – Résultats de modélisation de l'expérience C-16 : cinétique intrinsèque.

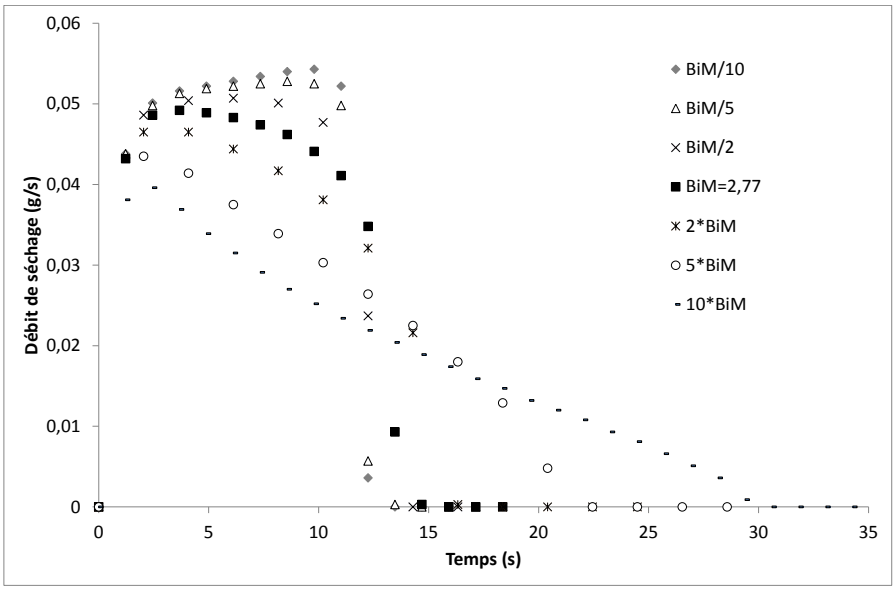


FIGURE 6.5 – Evolution du débit de séchage pour différentes valeurs du nombre de Biot matière (cinétique intrinsèque).

Influence relative des résistances internes et externes au transfert de matière.

Afin de mieux évaluer l'influence relative des résistances internes et externes au transfert de matière, on étudie l'effet du nombre de Biot matière sur la cinétique intrinsèque de séchage. Pour rappel, l'expression de ce nombre adimentionnel est la suivante :

$$Bi_M = \frac{k_y \cdot R_p}{D_{app} \cdot \rho_g} = \frac{R_p/D_{app}}{\rho_g/k_y} = \frac{\text{Résistance interne}}{\text{Résistance externe}}. \tag{6.14}$$

On réalise cette étude à partir de la simulation de l'expérience C-16 (présentée ci-dessus), pour laquelle le nombre de Biot matière est évalué à 2,77, ce qui signifie qu'il y a une compétition entre les deux résistances. La Figure 6.5 présente l'évolution du débit de séchage pour différentes valeurs du nombre de Biot matière. Ces résultats montrent que, pour des nombres de Biot élevés, le séchage est plus lent, ce qui est dû à la grande résistance interne. Dans le cas où le nombre de Biot est faible, le phénomène de diffusion est très rapide devant l'échange externe, on se trouve donc dans un cas comparable au séchage évaporatif.

Dans notre cas, les résistances internes et externes sont comparables. Ceci peut s'expliquer grâce aux paramètres morphologiques des particules de PVC. En effet la faible taille des particules implique une faible longueur de diffusion, et la grande taille des pores de la particule limite l'effet de la diffusion de Knudsen. Tout ceci engendre une faible résistance à la diffusion.

Comparaison avec les résultats expérimentaux.

Sur la Figure 6.6 sont confrontés les résultats de la cinétique de séchage corrigée par la fonction de transfert de la sonde avec ceux obtenus expérimentalement (C-16). On remarque une bonne concordance entre les prédictions du modèle et les résultats expérimentaux dans la première partie de la courbe (jusqu'à 20 secondes), alors qu'on observe un décalage à la fin de l'opération.

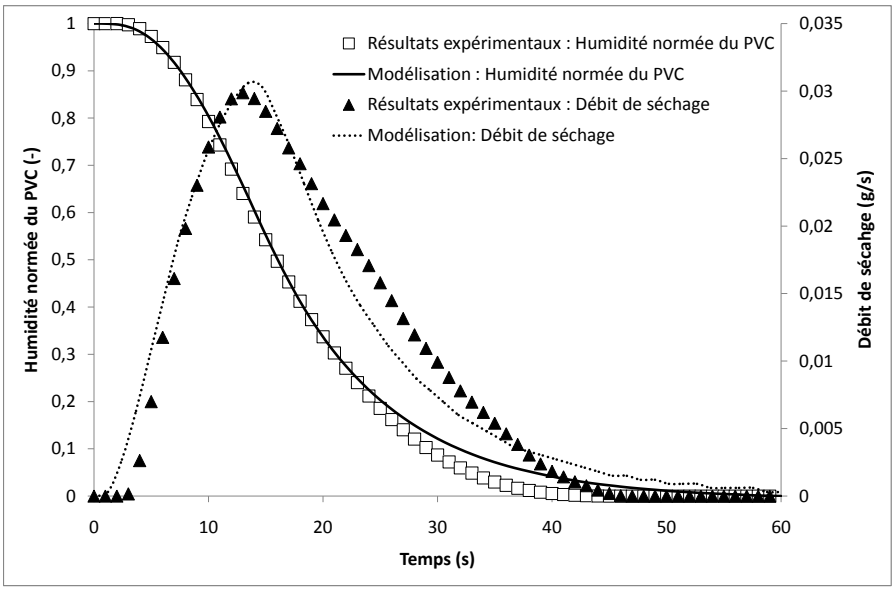


FIGURE 6.6 – Comparaison des résultats expérimentaux et des prédictions du modèle (cinétique corrigée) pour l'expérience C-16 : évolution de l'humidité normée du PVC et du débit de séchage.

Le décalage observé peut avoir plusieurs origines :

- Le modèle considère les particules de PVC comme monodisperses, alors qu'en réalité la taille des particules suit une distribution gaussienne. L'influence du diamètre des particules sur les résultats de simulation sera discutée dans la section suivante.
- Les erreurs de mesures liées aux propriétés texturales des particules de PVC (porosité, tortuosité, diamètre moyen des pores) peuvent entraîner une mauvaise estimation du coefficient de diffusion apparent. Or, ce coefficient impacte principalement les résultats de simulation en fin d'opération. En effet, au début du séchage, la faible épaisseur de la croûte sèche en surface nous permet de supposer que le transfert se fait essentiellement par convection. Alors qu'en fin de séchage, la longueur de diffusion étant plus importante, le phénomène de diffusion ne peut plus être considéré comme négligeable. L'influence des propriétés texturales des particules sur les résultats de simulation sera discutée dans la section suivante.
- La précision de l'hygromètre utilisé pour les mesures expérimentales est de l'ordre de 0,1 g d'eau / kg d'air sec : cette imprécision peut entraîner des erreurs de 10 à 20% en fin d'expérience.
- Pour des raisons pratiques, la fonction de transfert de la sonde a été évaluée uniquement

lors d'un échelon croissant d'humidité. Cependant, le temps de retard en cas d'échelon négatif est légèrement différent.

Dans le but d'étudier l'influence de la précision de la sonde, La Figure 6.7 présente les prédictions du modèle avec les résultats expérimentaux bruts et corrigés de plus ou moins 0,1 g d'eau / kg d'air sec.

Cette Figure montre que la précision de la sonde a un impact sur les résultats expérimentaux, notamment en fin d'expérience. De plus, l'imprécision de la mesure de l'humidité par la sonde en fin de séchage (Y < 0,005 kg d'eau / kg d'air sec) rend difficile d'évaluer avec précision l'humidité du solide, le débit de séchage, ainsi que les temps caractéristiques. En effet, les expériences sont considérées comme terminées lorsque la valeur indiquée par la sonde hygrométrique atteint la valeur initiale : généralement 0,2 g d'eau / kg d'air sec. Cette valeur étant proche de la précision de la sonde, on remarque que l'erreur comise sur la détermination du temps de fin d'expérience peut facilement atteindre plusieurs secondes, et donc modifier l'allure des profils d'humidité en fin d'expérience.

6.2.2 Etude paramétrique du modèle.

Influence de la distribution de tailles de particules.

Les simulations ont été effectuées en considérant les particules de PVC comme monodisperses, alors qu'en réalité, elles présentent une distribution de taille de forme d'une Gaussienne (voir Chapitre 2 Section 2.1 page 50). Sur la Figure 6.8 sont confrontés les résultats des simulations réalisées avec différentes tailles de particules, d_{10}, $d_{[3,2]}$, et d_{90}, aux résultats expérimentaux.

Elle montre qu'une augmentation de la taille des particules conduit à une diminution de la vitesse de séchage. En effet, plus les particules sont grosses, plus la longueur de diffusion de la vapeur d'eau sera grande, ce qui conduit à des temps de séchage plus long. Cependant, l'influence de ce paramètre sur les résultats de modélisation reste modérée et n'explique pas les écarts observés en fin de séchage.

Influence des propriétés texturales des particules de PVC.

Comme expliqué précédemment, la diffusion de la vapeur d'eau dans l'air contenu dans les pores influence la cinétique de séchage principalement en fin d'opération (lorsque la longueur de diffusion dans les pores est suffisamment importante). Pour rappel, le coefficient de diffusion apparent est calculé par les relations suivantes :

$$D_{app} = D_{eff} \cdot \frac{\chi}{\tau}, \tag{6.15}$$

$$D_{eff} = \left(\frac{1}{D_M} + \frac{1}{D_K} \right)^{-1}, \tag{6.16}$$

La diffusion de Knudsen influence le transfert de l'humidité à l'intérieur de la particule essentiellement dans les pores de faibles tailles. Or, comme indiqué dans le Chapitre 2, les particules de PVC contiennent deux familles de pores :

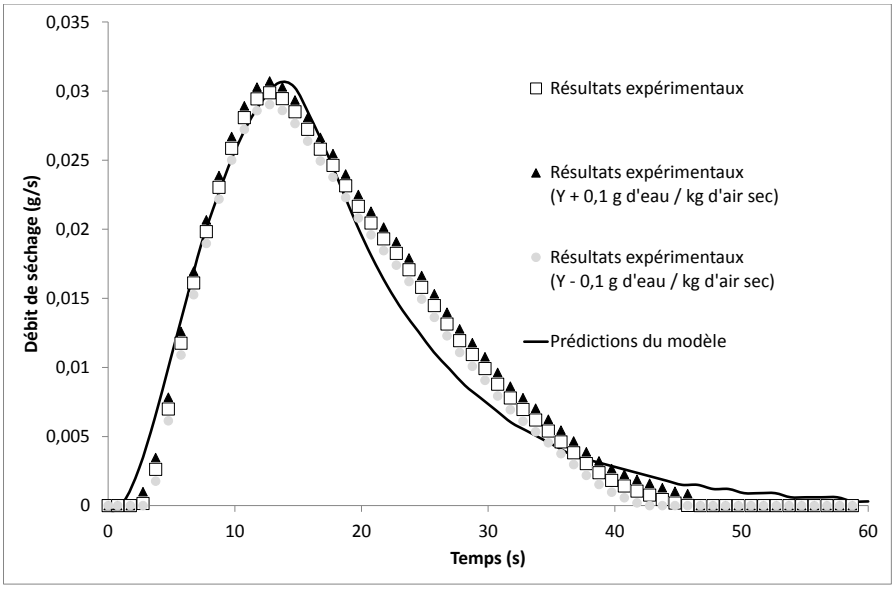


FIGURE 6.7 – Influence de l'erreur de mesure de la sonde hygromètrique.

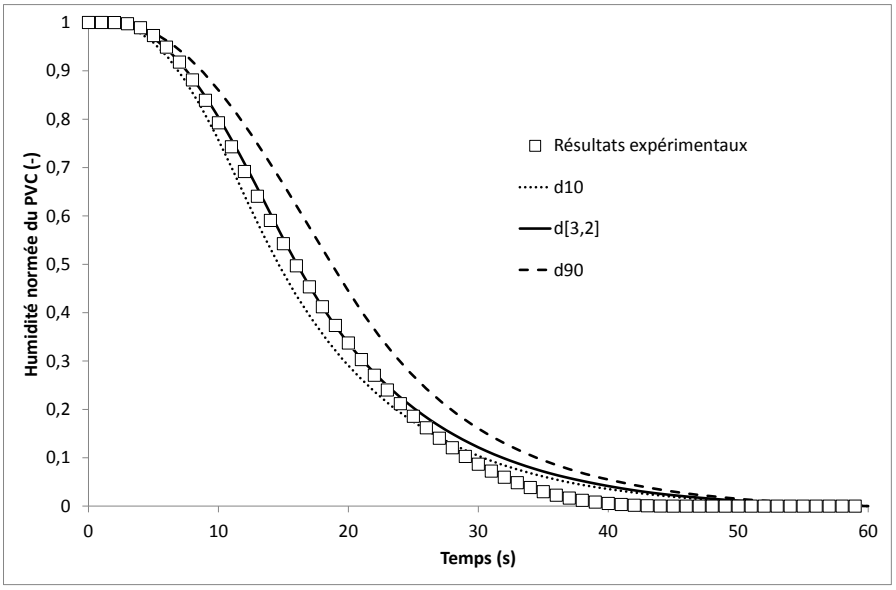


FIGURE 6.8 – Influence du diamètre des particules sur l'évolution de l'humidité normée du PVC.

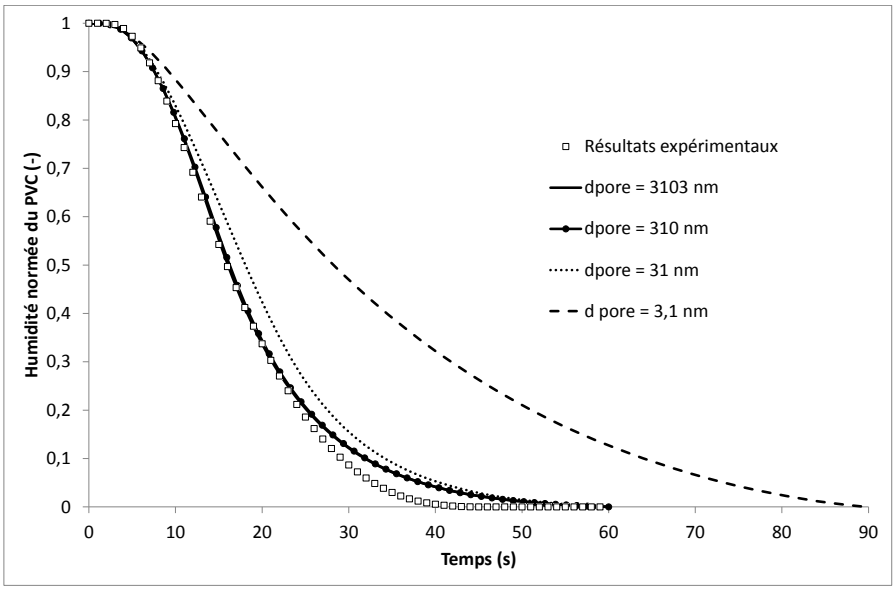


FIGURE 6.9 – Influence du diamètre des pores sur l'évolution de l'humidité normée du PVC.

– les pores externes aux agglomérats, de tailles supérieures à 250 nm,
– et les pores internes aux agglomérats, de tailles comprises entre 50 et 250 nm.

Ainsi, pour évaluer l'influence de ce mécanisme de transfert, différentes simulations ont été réalisées en considérant des tailles de pores différentes : environ 3000, 300, 30 et 3 nm. Précisons que 3000 nm représente le diamètre moyen pondéré de l'ensemble des pores des particules de PVC. L'observation de la Figure 6.9 montre une influence non significative de la diffusion de Knudsen pour des pores de tailles supérieures à 300 nm, une faible influence pour des tailles des pores allant de 300 à 30 nm, et une forte influence pour des tailles de pores allant de 30 à 3 nm.

Les résultats de porosimétrie ont montré que les particules de PVC sont essentiellement macroporeuses ($d_{pore} > 50$ nm), ainsi l'effet de la diffusion de Knudsen est négligeable devant la diffusion moléculaire.

Influence de l'humidité initiale du cake.

La préparation des échantillons expérimentaux peuvent conduire à des variations de l'humidité du cake. En effet, le cake étant très cohésif, prélever un échantillon de masse souhaitée peut être long, et comme le PVC a une faible affinité vis à vis de l'eau (voir Chapitre 2), l'échantillon peut sensiblement sécher durant sa préparation. Ceci peut expliquer les variations d'humidités initiales des échantillons utilisés pour l'étude expérimentale présentée dans le Chapitre 5 (Tableau 5.4).

Afin d'évaluer l'influence de ce paramètre sur les résultats du modèle, différentes simulations, présentées sur la Figure 6.10, ont été réalisées dans les conditions opératoires de

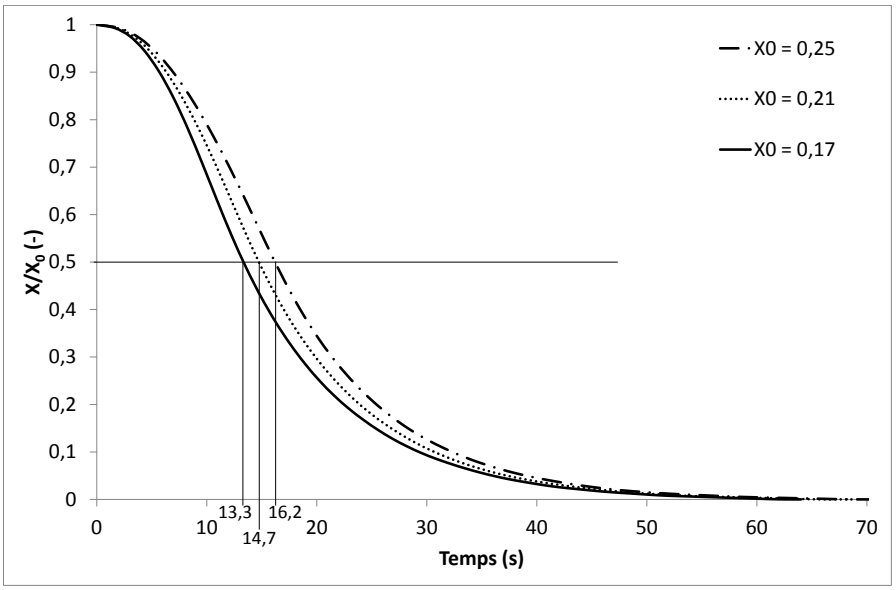


FIGURE 6.10 – Influence de l'humidité initiale du cake sur l'évolution de l'humidité normée du PVC.

l'expérience C-16 en faisant varier l'humidité initiale du cake, X_0, de 0,17 à 0,25 kg d'eau / kg de PVC sec. Ces résultats montrent que l'humidité initiale a une influence non négligeable sur l'évaluation des temps caractéristiques. En effet, une telle augmentation de l'humidité initiale conduit à une augmentation du temps caractéristique t_{50} de 13,3 à 16,2 secondes.

En conclusion, ces résultats permettent d'expliquer les différences observées entre les temps caractéristiques d'expériences réalisées dans des conditions opératoires proches.

A partir de cette étude de sensibilité paramétrique, on peut conclure que les propriétés granulométriques et texturales du PVC ont une légère influence sur les résultats de modélisation. Ainsi les écarts observés entre les résultats expérimentaux et les prédictions du modèle en fin de séchage proviennent du manque de précision de la sonde (pour des valeurs d'humidité absolue de l'air inférieures à 1 g d'eau / kg d'air sec) d'une part et de la fonction de transfert de la sonde d'autre part. Toutefois, ce modèle ne comporte aucun paramètres ajustables, on peut donc considérer que cet écart est acceptable.

6.2.3 Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux : influence des paramètres opératoires.

Les Figures 6.11, 6.12, et 6.13 présentent la comparaison des temps caractéristiques déterminés expérimentalement avec ceux prédis par le modèle en fonction, respectivement, de la température du lit, du débit de fluidisation, et de l'humidité initiale de l'air.

Ces résultats montrent que le modèle prédit correctement l'effet :

– de la température du lit,

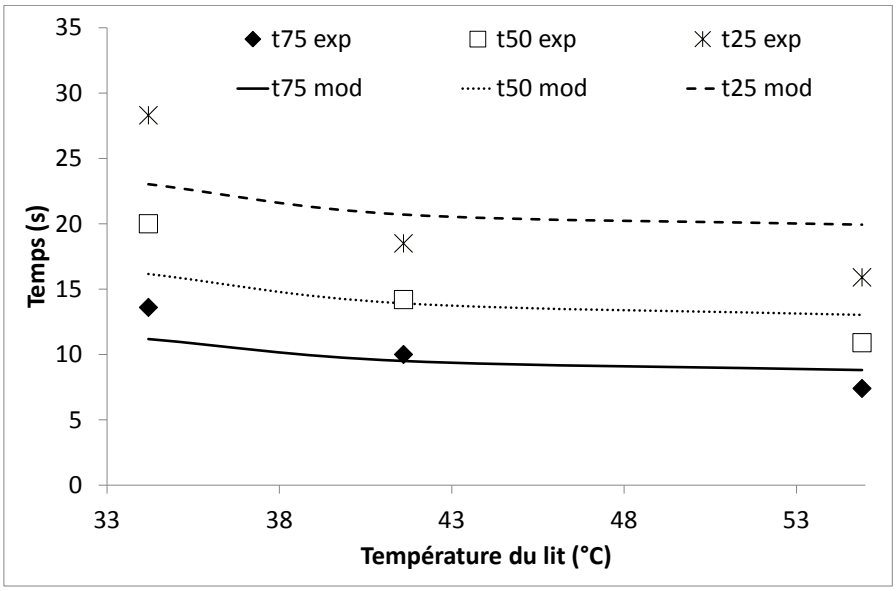


FIGURE 6.11 – Comparaison des temps caractéristiques déterminés expérimentalement et prédits par le modèle pour différentes températures du lit (F_g^0 = 10,8 kg/h ; Y_0 = 0,2 g d'eau / kg d'air sec).

– du débit de fluidisation pour des valeurs supérieures à 10 kg/h ($U/U_{mf} > 3,7$),
– de l'humidité initiale de l'air entre 0 et 16 g d'eau / kg d'air sec.

Pour de faibles débits d'air sec et de fortes valeurs d'humidité de l'air en entrée, le modèle sous-estime les temps caractéristiques, et en particulier t_{25} (le temps nécessaire pour que l'humidité du solide atteigne 25% de sa valeur initiale).

En effet, ces deux paramètres ont une grande influence sur la dispersion de l'échantillon de cake dans le lit de billes de verre :

– plus le débit de fluidisation est faible, moins le mélange des particules est efficace, et donc plus la dispersion du cake est difficile,
– plus l'humidité de l'air en entrée est élevée, plus le séchage sera lent, et donc plus la rupture des ponts liquides présents entre les particules sera lente.

Or, ce modèle considère que la dispersion de l'échantillon est instantanée. Les écarts entre le modèle et l'expérience seront donc d'autant plus grands que la dispersion du cake sera lente.

Les résultats du modèle du lit fluidisé à immersion, présentés dans cette section, montrent que le modèle de cinétique de séchage que nous avons développé permet de prédire correctement le comportement de notre système expérimental, bien que ses performances soient moins bonnes lorsque les conditions opératoires ne sont pas optimisées. A partir de ces constatations, nous avons décidé d'intégrer ce modèle de cinétique de séchage à la fois dans le code de simulation 3D présenté dans la suite de ce chapitre, et dans le modèle 1D simulant le séchoir pneumatique industriel (voir Chapitre 8 page 211)

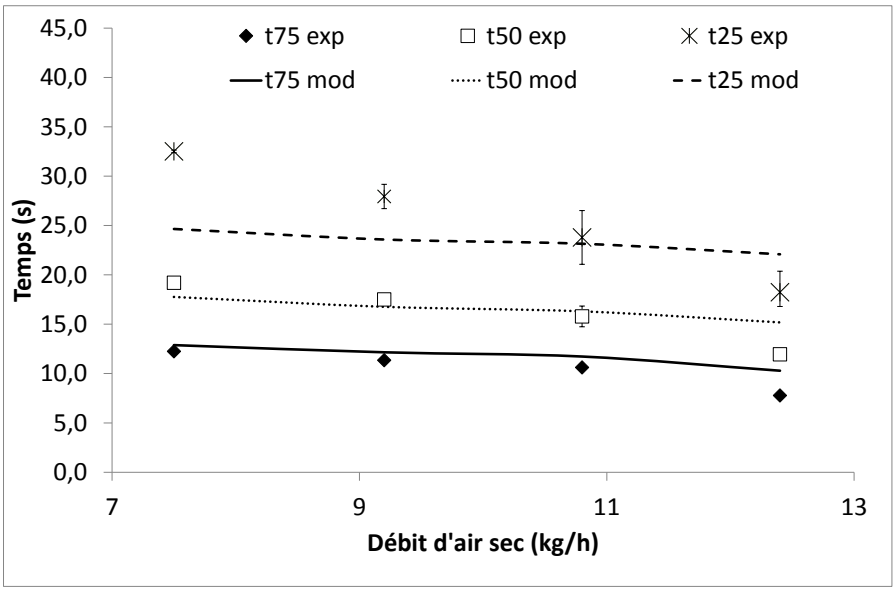


FIGURE 6.12 – Comparaison des temps caractéristiques déterminés expérimentalement et prédits par le modèle pour différents débits d'air sec (T_{Lit} = 42,5°C ; Y_0 = 0,2 g d'eau / kg d'air sec).

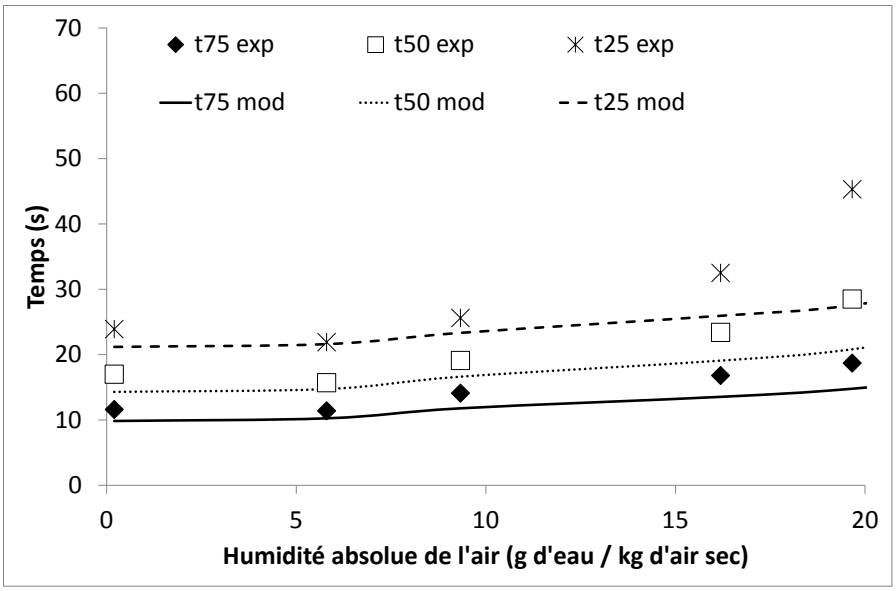


FIGURE 6.13 – Comparaison des temps caractéristiques déterminés expérimentalement et prédits par le modèle pour différentes humidités initiales de l'air (F_g^0 = 9,8 kg/h ; T_{Lit} = 36,6°C).

6.3 Simulation numérique 3D du lit fluidisé à immersion avec le code NEPTUNE_CFD.

Le modèle 0D simulant le lit fluidisé à immersion permet de prédire convenablement le comportement de notre système expérimental. Cependant, ce modèle ne prend ni en compte l'hydrodynamique du lit fluidisé à immersion, ni la géométrie du pilote. C'est pourquoi, une simulation 3D du système expériemental a été réalisée à l'aide d'un code CFD multiphasique, non structuré, parallèle, à approche eulérienne n-fluide en volumes finis (NEPTUNE_CFD). Ce code est développé dans le cadre du projet NEPTUNE, financé par le consortium Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), Electricité de France (EDF), Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) et AREVA. La modélisation des écoulements gaz-particules polydisperses et turbulents, avec prise en compte des transferts thermiques et matières couplés, est développée par l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT).

Dans cette approche, il s'agit de résoudre les équations de transport moyennées (masse, quantité de mouvement, chaleur, et conservation des scalaires) pour chaque phase. De plus, ces équations sont couplées à travers des termes de transferts à l'interface.

6.3.1 Equations de transport.

Les équations de transports sont écrites pour chaque phase "k" (Parmentier et al., 2012) (Konan et al., 2009), qui peut être la phase gaz (k = g) ou une des deux phases solides (PVC : k = p,PVC ; ou billes de verre k = p,BV). En plus des équations de transport, ce code s'assure que les fractions volumiques des phases respectent bien l'équation suivante :

$$\alpha_g + \alpha_{p,PVC} + \alpha_{p,BV} = 1. \tag{6.17}$$

◇ *Equations du bilan massique :*

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\alpha_k \cdot \rho_k\right) + \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\alpha_k \cdot \rho_k \cdot U_{k,i}\right) = \Gamma_k, \tag{6.18}$$

avec, Γ_k le terme source de matière de la phase k.

Les billes de verre étant inertes, le terme source de cette phase est nul ($\Gamma_{p,BV} = 0$), tandis que pour la phase gaz et le PVC, ils vérifient la relation suivante :

$$\Gamma_{p,PVC} + \Gamma_g = 0. \tag{6.19}$$

Ces termes sources sont définis à partir de la loi cinétique développée pour les modèles présentés dans les premières Sections de ce Chapitre. On obtient donc :

$$\Gamma_g = \alpha_{p,PVC} \cdot s_{p,PVC} \cdot K_y \cdot (Y^* - Y), \tag{6.20}$$

avec $s_{p,PVC}$, la surface spécifique des particules de PVC.

◇ *Equations du bilan de quantité de mouvement :*

$$\alpha_k \cdot \rho_k \cdot \left(\frac{\partial U_{k,i}}{\partial t} + U_{k,j} \cdot \frac{\partial U_{k,i}}{\partial x_j} \right) = -\alpha_k \cdot \frac{\partial P_g}{\partial x_i} + \alpha_k \cdot \rho_k \cdot g_i + I_{k,i} + [U_{\sigma,i} - U_{k,i}] \cdot \Gamma_k - \frac{\partial}{\partial x_j} \Sigma_{k,ij}. \tag{6.21}$$

Les deux premiers termes du membre de droite de l'équation représentent respectivement l'influence de la pression et de la gravité sur la phase "k". $U_{\sigma,i}$ représente la i-ème composante de la vitesse de la matière traversant l'interface entre les phases, c'est à dire, dans notre cas, la vitesse de la vapeur d'eau évacuant la particule. Nous considérons donc qu'il s'agit de la vitesse des particules. $\Sigma_{k,ij}$ représente le tenseur effectif des contraintes, il possède deux contributions :

$$\Sigma_{k,ij} = \alpha_k \cdot \rho_k \cdot \left\langle u'_{k,i} \cdot u'_{k,j} \right\rangle + \Theta k, ij, \tag{6.22}$$

avec $\left\langle u'_{k,i} \cdot u'_{k,j} \right\rangle$ les contraintes cinétiques, et $\Theta_{k,ij}$ le tenseur des contraintes visqueuses pour le gaz et les contraintes collisionnelles pour les phases particulaires (Boelle et al., 1995).

$I_{k,i}$ représente le terme de transfert de quantité de mouvement entre phases, qui, dans notre cas, est le couplage au travers la force de traînée :

$$I_{p,i} = -I_{g,i} = -\frac{\alpha_p \cdot \rho_p}{\tau^F_{gp}} \cdot V_{r,i}, \tag{6.23}$$

avec $V_{r,i}$ la vitesse relative moyenne entre les phases, et τ^F_{gp}, le temps de relaxation de la particule donné par l'équation suivante :

$$\frac{1}{\tau^F_{gp}} = \frac{3}{4} \cdot \frac{\rho_g \cdot C_D(\langle Re_p \rangle_p)}{\rho_p \cdot d_p} \cdot \langle |\vec{v}_r| \rangle_p \,, \tag{6.24}$$

avec $\langle |\vec{v}_r| \rangle_p$ la vitesse instantanée relative entre les phases.

Le coefficient de traînée est exprimé par la corrélation de Wen et Yu limité par celle d'Ergun (Gobin et al., 2003) :

avec,

$$C_D(\langle Re_p \rangle_p) = \begin{cases} C_{D,Wen\&Yu} & \text{si } \alpha_g \geq 0,7, \\ min(C_{D,Wen\&Yu}, C_{D,Ergun}) & \text{sinon,} \end{cases} \tag{6.25}$$

et,

$$C_{D,Wen\&Yu} = \begin{cases} \frac{24}{Re_p} \left[1 + 0,15 \cdot Re_p^{0,687} \right] \cdot \alpha_g^{-1,7} & \text{si } Re_p < 1000, \\ 0,44 \cdot \alpha_g^{-1,7} & \text{si } Re_p \geq 1000, \end{cases} \tag{6.26}$$

$$C_{D,Ergun} = 200 \cdot \frac{\alpha_p}{Re_p} + \frac{7}{3}. \tag{6.27}$$

Les interactions entre les différentes phases particules dans les zones denses sont complétées avec le modèle frictionnel de Srivastava and Sundaresan (2003). La prise en compte des interactions entre les particules des différentes espèces (PVC et billes de verre) se fait au travers d'un modèle polydisperse déjà employé pour la simulation de lits fluidisés circulant (Batrak et al., 2005).

La modélisation de la turbulence des fluides est fermée à l'aide d'un modèle $k-\varepsilon$ à deux équations, étendu aux flux chargés de particules (en tenant compte des termes sources additionnels dus aux interactions entre les phases) (Vermorel et al., 2003). Pour les phases particulaires, le système d'équations de transport couplés est résolu sur l'énergie d'agitation particulaire et la covariance fluide-particule ($q_p^2 - q_{fp}$).

◇ *Equations du bilan enthalpique :*

$$\alpha_k \cdot \rho_k \cdot \frac{\partial H_k}{\partial t} + \alpha_k \cdot \rho_k \cdot U_{k,j} \cdot \frac{\partial H_k}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j}\left(\alpha_k \cdot \rho_k \cdot K_k \cdot \frac{\partial H_k}{\partial x_j}\right) + [H_\sigma - H_k] \cdot \Gamma_k + \sum_{m \neq k} \Pi_{k \to m}. \quad (6.28)$$

Le premier terme du membre de droite de cette équation est un terme de transport sous l'effet d'un gradient, avec K_k le coefficient de diffusivité.

H_σ représente l'enthalpie de la matière échangée entre les phases, c'est à dire l'enthalpie de la vapeur d'eau :

$$H_\sigma = \Delta H^0_{vap} + \int_{T_{ref}}^{T_g} Cp^V_{eau} \cdot dT. \quad (6.29)$$

L'échange de chaleur entre les phases est représenté par les termes sources $\Pi_{k \to m}$. On ne considère pas d'échange de chaleur entre les deux phases particulaires, les termes sources s'expriment donc de la manière suivante :

$$\Pi_{g \to p,PVC} = -\Pi_{p,PVC \to g} = \alpha_{p,PVC} \cdot s_{p,PVC} \cdot h \cdot (T_g - T_{p,PVC}), \quad (6.30)$$

et,

$$\Pi_{g \to p,BV} = -\Pi_{p,BV \to g} = \alpha_{p,BV} \cdot s_{p,BV} \cdot h \cdot (T_g - T_{p,BV}), \quad (6.31)$$

avec h le coefficient de transfert de chaleur.

◇ *Equations de conservation des scalaires*

En plus de l'enthalpie des différentes phases, on définit deux scalaires :

– X, porté par la phase PVC, représentant l'humidité du PVC,
– et, Y, porté par la phase gazeuse, représentant l'humidité absolue de l'air.

L'évolution de ces scalaires est représentée par les équations de transport suivantes :

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\alpha_p \cdot \rho_p \cdot X\right) + \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\alpha_p \cdot \rho_p \cdot U_{p,i} \cdot X\right) = \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\alpha_p \cdot \rho_p \cdot D_p \cdot \frac{\partial X}{\partial x_i}\right) + \Gamma_p, \tag{6.32}$$

et,

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\alpha_g \cdot \rho_g \cdot Y\right) + \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\alpha_g \cdot \rho_g \cdot U_{g,i} \cdot Y\right) = \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\alpha_g \cdot \rho_g \cdot D_g \cdot \frac{\partial Y}{\partial x_i}\right) + \Gamma_g, \tag{6.33}$$

Dans chacune des équations, le premier terme du membre de droite représente la diffusion du scalaire à travers sa phase porteuse. Dans le cas de la phase PVC, on considère que l'humidité ne diffuse pas à travers les particules. Au contraire, la vapeur d'eau peut diffuser à travers la phase gazeuse, le coefficient D_g sera donc le coefficient de diffusion moléculaire de la vapeur d'eau dans l'air D_M, défini dans le Chapitre 3 Section 3.3 page 85.

◇ *Calcul des coefficients de transferts convectifs.*

L'étude expérimentale permettant de déterminer le coefficient de transfert de matière associé au lit fluidisé à immersion (présenté dans le Chapitre 5 Section 5.1.2 page 117) n'est pas adaptée aux simulations 3D effectuées par le code NEPTUNE_CFD.

En effet, ce code réalise les calculs à l'échelle locale alors que les mesures expérimentales permettent d'estimer le coefficient de transfert de matière d'un point de vue macroscopique, c'est à dire en considérant ce coefficient constant durant toute l'opération de séchage, et en considérant la vitesse relative entre le gaz et les particules de cake égale à la vitesse superficielle du gaz.

De ce fait nous avons utilisé la corrélation de Baeyens et al. (1995) associée à l'analogie de Chilton and Colburn (1934) :

$$Nu = 0,15 \cdot Re_p, \tag{6.34}$$

$$\frac{h}{k_y} = Cp_{g,h} \cdot Le^{2/3}. \tag{6.35}$$

Bien que cette corrélation fut établie dans le cas du séchage de PVC en poudre dans un séchoir pneumatique, elle est mieux adaptée à ce cas de calcul. En effet, dans ce type de séchoir, le taux de présence des particules est extrêmement faible ($\alpha_p < 0,01$), ainsi les prédictions de cette corrélation peuvent être considérées comme proches des coefficients de transferts à l'échelle locale entre une particule et le gaz environnant.

6.3.2 Paramètres numériques du cas de calcul.

Maillage du lit fluidisé à immersion.

Un maillage 3D, de type O-Grid, du lit fluidisé à immersion est réalisé, comme représenté sur la Figure 6.14.

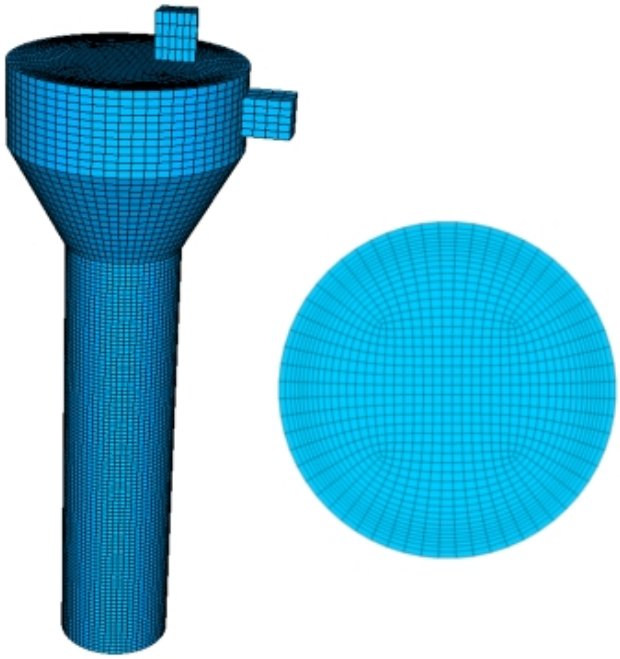


FIGURE 6.14 – Maillage 3D de type O-Grid du lit fluidisé à immersion et vue d'une section.

La hauteur de la géométrie est de 55 cm, elle est composée d'un cylindre de 10 cm de diamètre et de 40 cm de hauteur, ainsi que d'une section tronconique (zone de désengagement) de 15 cm de haut et dont le diamètre maximal est de 20 cm. Le maillage O-grid de chaque section de la colonne est composé de 45 mailles par diamètre ($\Delta r = 0{,}22$ cm), et la hauteur entre deux sections est $\Delta z = 0{,}4$ cm. L'entrée de PVC est représentée en extrudant une partie de la face supérieure du maillage, tandis que la sortie (de gaz et de solide) est représentée en extrudant une partie latérale de la zone tronconique. Ce maillage comprend donc 140 781 hexaèdres. Un maillage plus grossier a été testé, mais avec des cellules de tailles plus importantes ($\Delta r = 0{,}666$ cm et $\Delta z = 0{,}975$ cm) on constate l'envol de particules de PVC dû à une sous-résolution des structures à petites échelles.

Propriétés des phases.

La température de référence des différentes phases est 20°C.

Les différentes propriétés de la phase gazeuse sont calculées en fonction de la température :

– La masse volumique de l'air sec est calculée à partir de la loi des gaz parfaits :

$$\rho_g^0 = \frac{P \cdot M_{air}}{R \cdot T_g}. \tag{6.36}$$

De plus, la masse volumique est corrigée pour prendre en compte l'humidité de l'air :

$$\rho_g = \rho_g^0 \cdot (1 + Y). \tag{6.37}$$

– La viscosité dynamique est calculée à partir de la relation suivante :

$$\mu_g = -2,9228 \cdot 10^{-11} \cdot T_g^2 + 6,6391 \cdot 10^{-8} \cdot T_g + 1,1308 \cdot 10^{-6}. \tag{6.38}$$

– Le coefficient de diffusion moléculaire de la vapeur d'eau dans l'air est calculé par la relation suivante :

$$D_M = 1,1757 \cdot 10^{-9} \cdot T_g^{1,75}. \tag{6.39}$$

– la conductivité thermique de l'air est calculée à partir de la relation suivante

$$\lambda_g = 1,7864 \cdot 10^{-11} \cdot T_g^3 - 5,7712 \cdot 10^{-8} \cdot T_g^2 + 1,0803 \cdot 10^{-4} \cdot T_g - 1,2616 \cdot 10^{-3}. \tag{6.40}$$

– Finalement, les capacités calorifiques de l'air sec et de la vapeur d'eau sont calculées par les relations suivantes :

$$Cp_{air} = 1000 \cdot (0,9774 + T_g \cdot 10^{-4} + 0,19035 \cdot T_g^2 \cdot 10^{-7}), \tag{6.41}$$

et,

$$Cp_{eau}^V = 1601,42 + 0,00669 \cdot T_g + \frac{5,584 \cdot 10^6}{T_g^2}. \tag{6.42}$$

En ce qui concerne les phases particulaires, on considère des distributions de tailles de particules monodisperses avec :

$$d_{p,PVC} = 142\ \mu\text{m} \qquad et \qquad d_{p,BV} = 323\ \mu\text{m}. \tag{6.43}$$

Les masses volumiques du PVC sec et des billes de verre sont considérées constantes :

$$\rho_{p,PVC} = 990\ \text{kg} \cdot \text{m}^{-3} \qquad et \qquad \rho_{p,BV} = 2500\ \text{kg} \cdot \text{m}^{-3}. \tag{6.44}$$

A l'instar de la phase gazeuse, l'humidité est prise en compte dans la masse volumique du PVC :

$$\rho_{p,PVC} = \rho_{p,PVC}^0 \cdot (1 + X). \tag{6.45}$$

Les capacité calorifiques du PVC sec et des billes de verre sont considérées constantes :

$$Cp_{p,PVC} = 1400\ \text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1} \qquad et \qquad Cp_{p,BV} = 2500\ \text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}, \tag{6.46}$$

alors que la capacité calorifique de l'eau liquide est calculée en fonction de la température :

$$Cp_{eau}^L = 4020,625 + 0,577 \cdot T_p - 8,305 \cdot 10^{-5} \cdot T_p^2. \tag{6.47}$$

Conditions aux limites.

La Figure 6.15, représentant un plan de coupe du maillage du lit fluidisé à immersion, indique la position des différentes entrées et sorties de la géométrie. Les autres frontières sont des parois vis à vis des trois phases.

L'entrée 1 représente le distributeur du lit fluidisé. Elle est donc vue comme une entrée pour l'air et comme une paroi pour les phases particulaires. On impose un débit de gaz de 10,8 $\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}$ avec un taux de présence de 1, et une humidité de 0,005 kg d'eau / kg d'air sec. Les températures des différentes phases sont imposées sous forme de dirichlet à 42°C chacune.

L'entrée 2 représente l'alimentation en PVC humide, effectuée par ouverture d'une vanne. L'alimentation en PVC n'est pas continue, le débit de PVC est donc initialement nul, et,

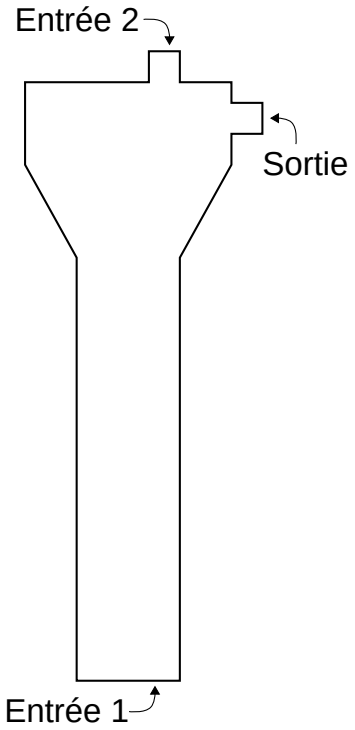


FIGURE 6.15 – Plan de coupe du maillage du lit fluidisé à immersion.

entre $t_0 = 0,2$ *et* $t_f = 0,3$ s, on impose une valeur de débit de 0,029 kg/s, ce qui correspond à une masse d'échantillon introduite de 2,9 g. En plus du PVC, pendant ce laps de temps, on introduit un faible débit d'air, calculé de sorte que les vitesses d'air et de PVC soient égales et que le taux de présence des deux phases soit 0,5 :

$$F_g = F_p \cdot \frac{\rho_g}{\rho_p}. \tag{6.48}$$

La température des deux phases est fixée à 20°C, et leurs humidités respectives à 0,205 kg d'eau / kg de PVC sec et 0,005 kg d'eau / kg d'air sec.

Conditions initiales.

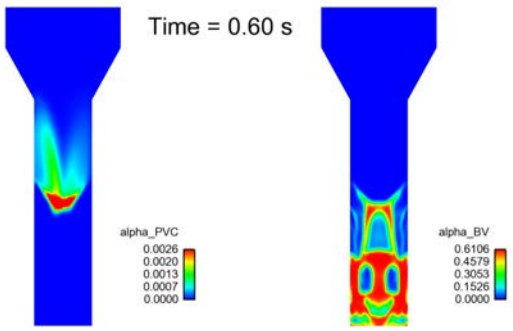
Initialement, la colonne est remplie, entre 0 et 20 cm, de billes de verre avec un taux de présence, $\alpha_{p,BV}$, de 0,4, ce qui équivaut à une masse initiale de 1,6 kg.

La température des phases gazeuses et celle des billes de verre sont fixées à 42°C, alors que la température de la phase PVC est fixée à 20°C.

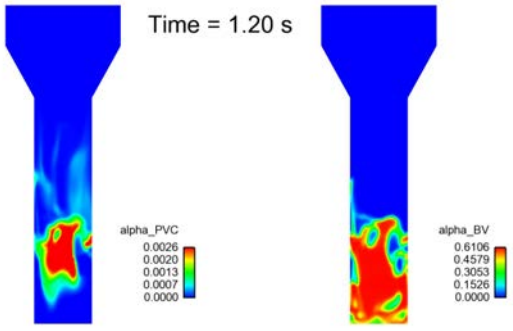
6.3.3 Présentation des résultats.

Les simulations présentées dans cette section sont effectuées en deux étapes :

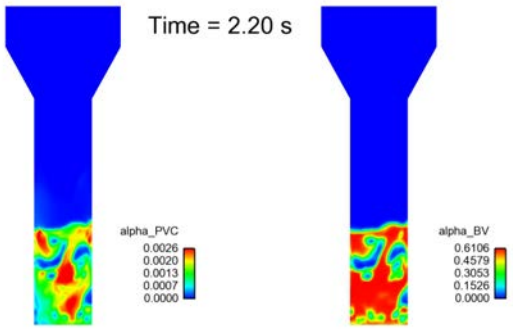
- une étape de calcul transitoire qui dure entre 22 et 35 secondes suivant les conditions opératoires,
- et une étape de 50 secondes permettant de calculer les moyennes temporelles.



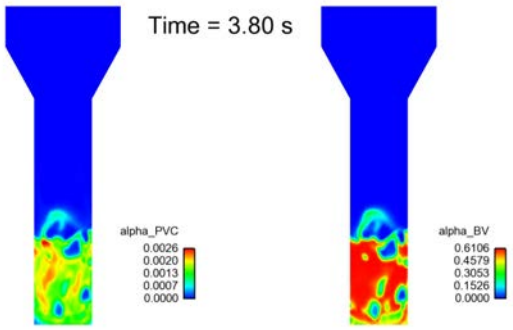
(a) t = 0,6 s



(b) t = 1,2 s



(c) t = 2,2 s



(d) t = 3,8 s

FIGURE 6.16 – Champs des taux de présence du PVC (image de gauche) et des billes de verre (image de droite) à différents instants.

Les calculs de l'étape transitoire permettent d'acquérir les évolutions temporelles de l'humidité absolue de l'air, de la température des différentes phases, ainsi que de l'indice de mélange, alors que les moyennes temporelles permettent d'établir les profils de pression en fonction de la hauteur du lit ainsi que les profils radiaux de vitesses des phases.

Etude hydrodynamique.

L'injection de l'échantillon de cake se fait rapidement (un dixième de seconde), mais sa dispersion dans le lit peut être plus longue. Ceci est illustré sur la Figure 6.16, qui présente des plans de coupe de la géométrie colorés par les champs de taux de présence du PVC (images de gauche) et des billes de verre (images de droite) à différents instants (0,6 s ; 1,2 s ; 2,2 s ; et 3,8 s). Cette Figure met en évidence la chute de l'échantillon de PVC dans le lit, et montre qu'au bout de 2 secondes, le PVC est présent dans l'ensemble du lit, mais n'est pas encore parfaitement dispersé (des zones concentrées en PVC sont encore visibles). Vers 3,8 secondes, le PVC est bien réparti dans le lit.

Ces observations sont confirmées en étudiant l'indice de mélange global du lit, I_G, défini par la relation suivante (Mourad, 1992) :

$$I_G = 1 - \left(x_G \cdot \frac{\sum_{i=1}^{n} (I_i - 1)^2}{n \cdot (1 - x_G)} \right), \tag{6.49}$$

avec x_G la fraction massique du PVC dans l'ensemble du lit, et I_i, l'indice de mélange d'une couche"i" du lit, défini par :

$$I_i = \frac{x_i}{x_G} \tag{6.50}$$

avec x_i, la fraction massique du PVC dans la couche "i".

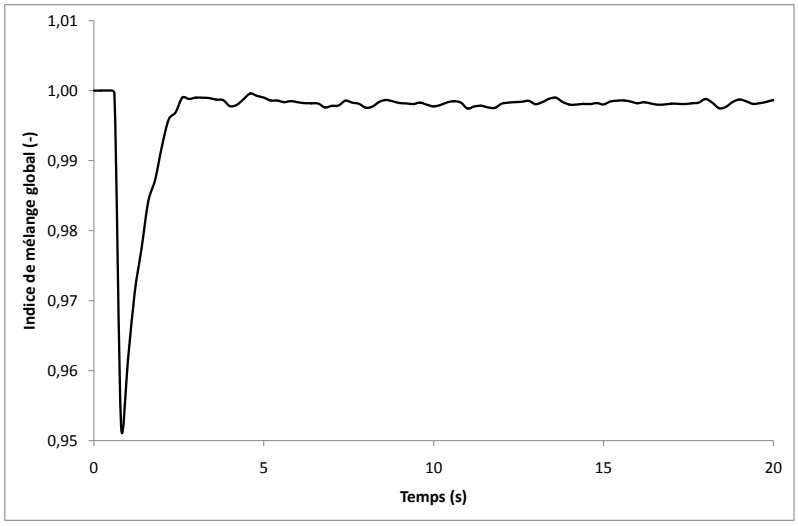


FIGURE 6.17 – Evolution de l'indice de mélange global au cours du temps

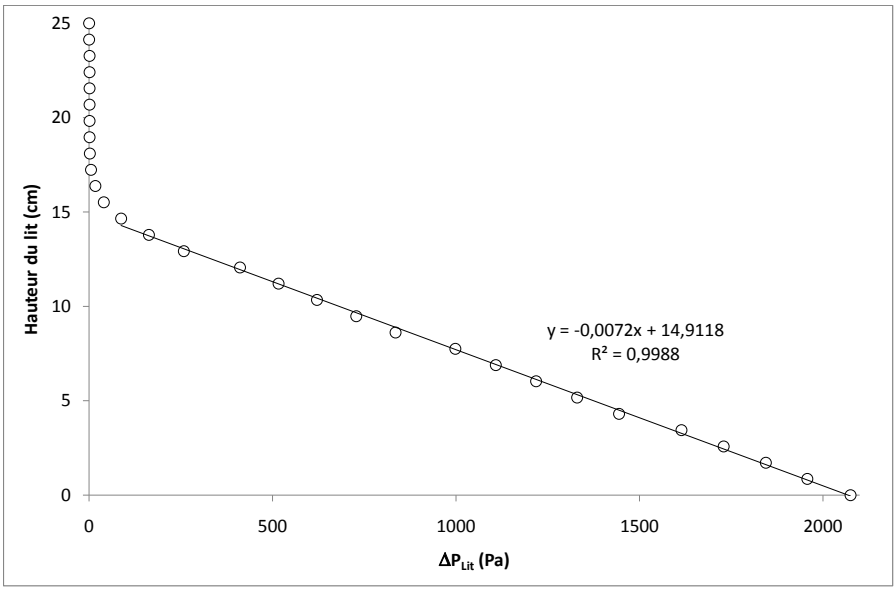


FIGURE 6.18 – Profil de pression moyenne en paroi en fonction de la hauteur du lit.

Un indice de mélange global de 1, correspond donc à un mélange parfait.

La Figure 6.17 présente l'évolution de l'indice de mélange global du lit, déterminé en divisant le lit en six couches, en fonction du temps. On observe une chute de l'indice de mélange due à l'injection de l'échantillon dans le lit, et une remontée progressive pour atteindre, vers 3 secondes, un indice de mélange oscillant autour d'une valeur moyenne de 0,997.

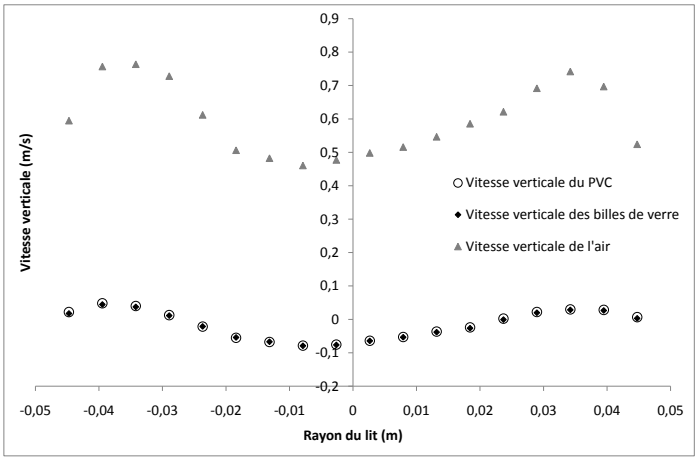
Ceci montre que l'échantillon de PVC se disperse rapidement dans le lit (3 secondes), l'hypothèse de mélageur parfait est donc acceptable. Cependant, il est important de noter que les liaisons entre particules dues à l'humidité (liasons pendulaires ou funiculaires) ne sont prises en compte ni dans le modèle 0D, ni dans la simulation 3D.

De plus, une simulation purement hydrodynamique (lorsqu'il n'y a plus de transfert de matière ou de chaleur) a été réalisée sur cette géométrie. Elle a permis d'établir le profil de pression moyenne du lit, et les profils radiaux de vitesses verticales moyennes des différentes phases. Lors de ce calcul, les moyennes ont été effectuées durant 50 secondes de temps physique.

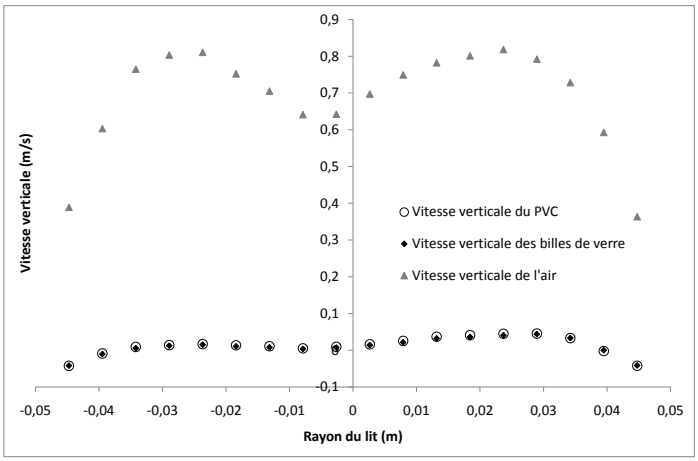
La hauteur moyenne du lit est évaluée à partir de la Figure 6.18 (profil axial de pression pariétale du lit). Sa valeur est : $Z_{lit} = 14,9$ cm.

Les profils radiaux de vitesses verticales ont été établis à différentes hauteurs du lit : 5, 10, et 15 cm (Figure 6.19). Ces résultats, couplés à l'observation des vecteurs vitesses des billes de verre sur une coupe du lit fluidisé (Figure 6.20), montrent que la vitesse des deux phases particulaires est semblable quelle que soit la hauteur du lit. L'hydrodynamique du lit est donc dirigée par les billes de verre.

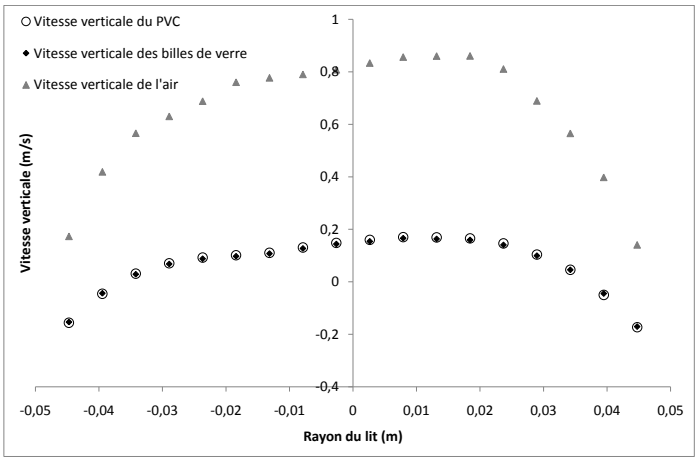
De plus la forme des profils à 5 et 10 cm montre la présence de zones de recirculation au sein du lit et la présence de bulles d'air proches des parois. A 15 cm, les profils de vitesse



(a) z = 5 cm



(b) z = 10 cm



(c) z = 15 cm

FIGURE 6.19 – Profils radiaux des vitesses verticales moyennes des trois phases (PVC, Billes de verre et Air) à trois hauteurs du lit.

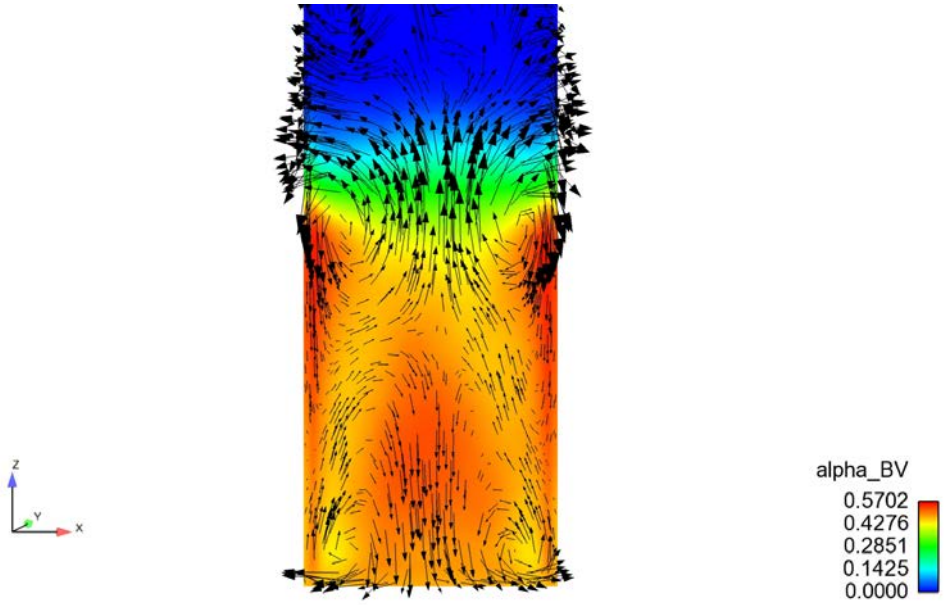


FIGURE 6.20 – Vecteurs vitesse des billes de verre projetés sur une coupe du lit fluidisé, colorée en fonction du taux de présence des billes de verre.

ont une forme parabolique. Ceux-ci montrent que la coalescence des bulles conduit à un déplacement des zones de bullage des parois vers le centre de la colonne, ce qui conduit à :

– un mouvement ascendant des particules du bord du lit vers le centre,
– et, un mouvement descendant des particules près des parois.

Champs de température et évolution au cours du temps.

La Figure 6.21 présente l'évolution des températures moyennes, minimales, et maximales du PVC ainsi que de la température moyenne des billes de verre au cours du temps. Cette Figure montre que la température moyenne des billes de verre chute de 0,3°C au cours de l'opération de séchage. Cette valeur est similaire à celles mesurées expérimentalement (Figure 5.1(b) page 116). L'hypothèse d'isothermicité du lit est donc valide.

Concernant l'évolution de la température du PVC, les différentes phases du séchage sont clairement identifiables sur cette Figure :

– la période de mise en température du produit (jusqu'à 2,2 secondes),
– la période de séchage à vitesse constante, où l'évolution de la température du PVC présente un pseudo-palier (de 2,2 à 8,2 secondes),
– la période de séchage à vitesse décroissante où la tempérautre du PVC augmente pour atteindre l'équilibre thermique (de 8,2 à 15 secondes).

On constate aussi, qu'à chaque instant, la température des particules de PVC n'est pas uniforme dans l'ensemble du lit. En effet, il existe des écarts de température du PVC dans le lit de l'ordre de 10°C pendant l'opération de séchage.

Les Figures 6.22 et 6.23 présentent, à différents instants (1,8 ; 3,6 ; 7,2 ; et 10,2 secondes), les champs de température (images de gauche) et de taux de présence (images du centre) du PVC, ainsi que les champs du flux d'évaporation Γ_g (images de droite) à différentes hauteurs du lit : z = 3 cm (images du haut) et z = 12 cm (images du bas).

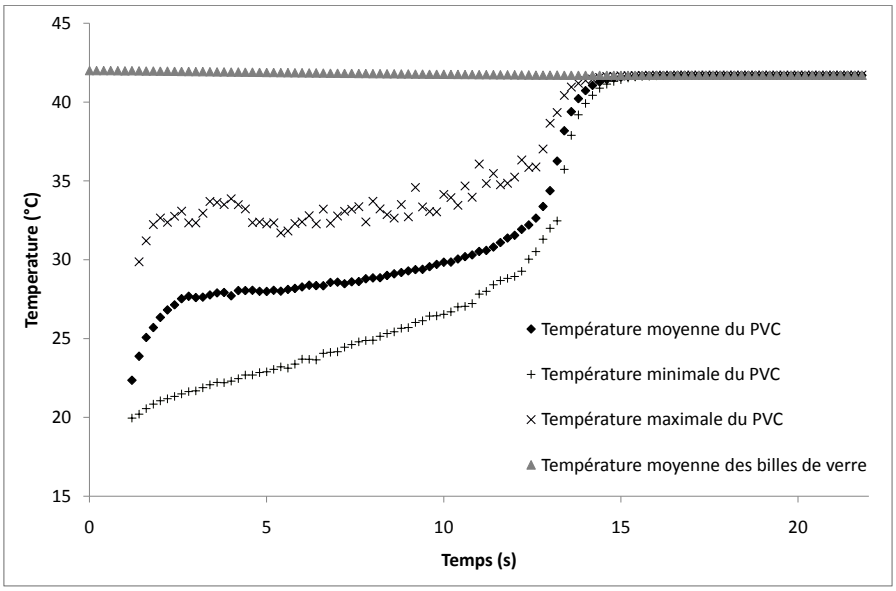


FIGURE 6.21 – Evolution des températures moyennes, minimales, et maximales du PVC et de la température moyenne des billes de verre.

D'une manière générale la température du PVC est uniforme sur les sections supérieures, mises à part les zones où le taux de présence du PVC est faible. Sur les sections inférieures, on remarque que la température du PVC n'est pas uniforme, ceci est essentiellement dû aux phénomènes de recirculation du solide dans le lit fluidisé.

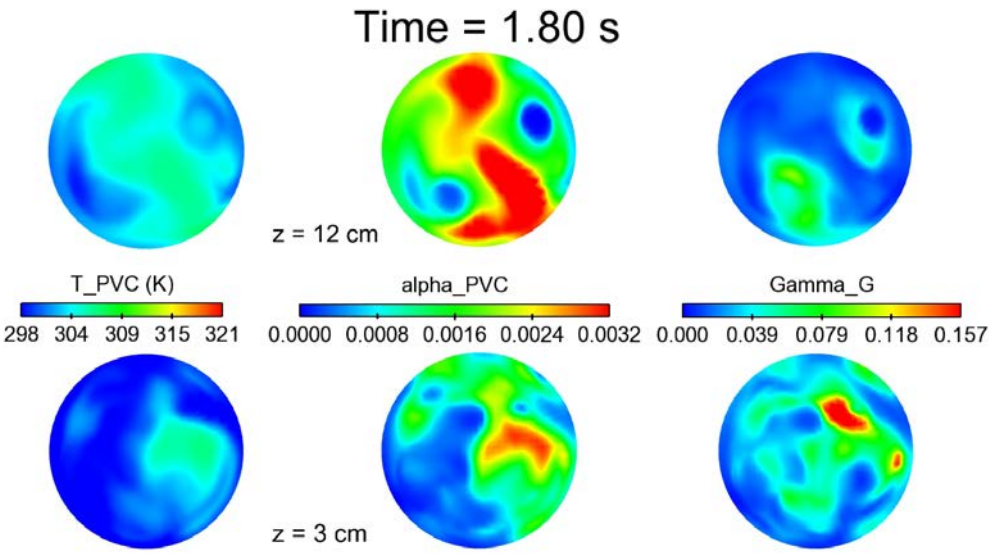
On constate aussi que la température est légèrement plus faible sur les sections à 3 cm, que sur les sections à 12 cm. Ceci est dû à une plus forte intensité de séchage dans la partie basse du lit (comme indiqué par les champs de flux d'évaporation). En effet le bas du lit étant alimenté par de l'air "frais", l'humidité de l'air dans le bas du lit est plus faible, ce qui entraîne un plus grand potentiel de séchage. Ceci est bien illustré par la Figure 6.24 présentant des coupes verticales du lit fluidisé à l'instant t = 5,4 s. Sur cette Figure, les champs de température (image en haut à gauche) et les champs de taux de présence (image en haut à droite) du PVC ainsi que les champs de flux d'évaporation (image en bas à gauche) et d'humidité absolue de l'air (image en bas à droite) sont représentés.

A 10,2 secondes, le séchage est presque terminé (le flux d'évaporation est quasiment nul), et on observe alors que la température du PVC est uniforme entre les sections à 3 et 12 cm, ce qui correspond bien au resserrement de l'écart entre les températures maximales et minimales présentées sur la Figure 6.21.

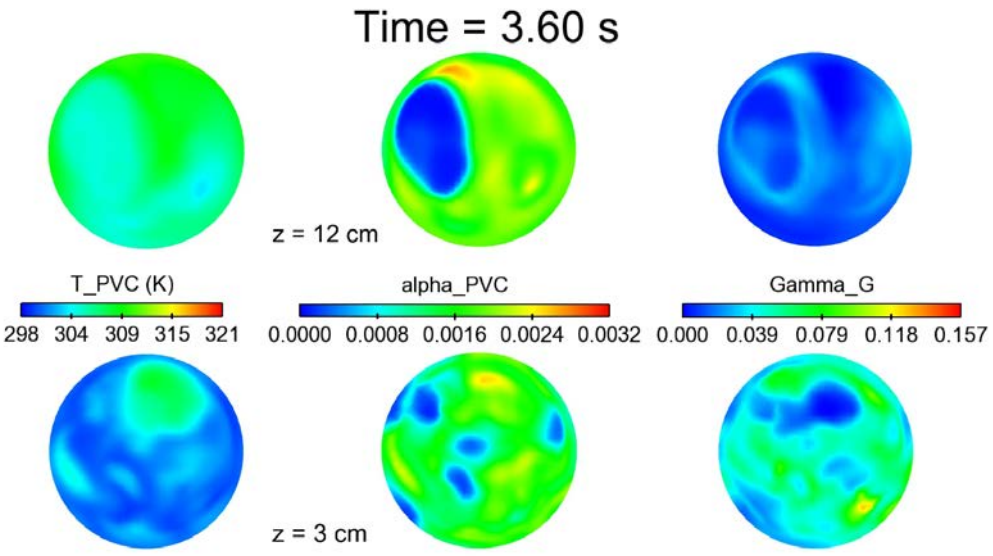
Cette étude montre les limites des hypothèses formulées lors de la réalisation du modèle 0D du lit fluidisé à immersion :

– Les particules de PVC ne sont convenablement dispersées dans le lit qu'au bout de quelques secondes,
– et, la température des particules de PVC n'est pas uniforme sur toute la hauteur du lit, bien qu'elle soit rapidement uniforme sur une section.

Cependant, les évolutions de la température du PVC et de l'humidité absolue de l'air

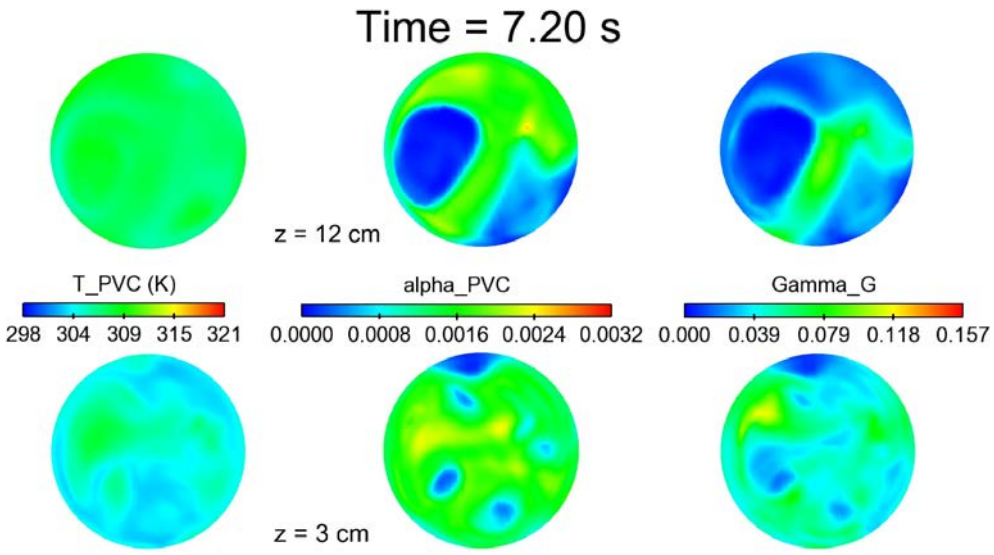


(a) t = 1,8 s

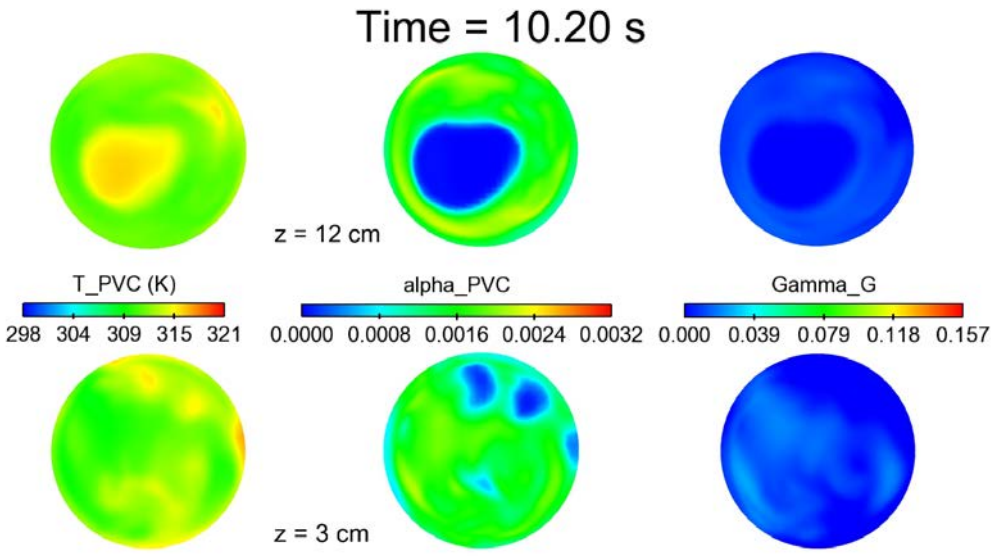


(b) t = 3,6 s

FIGURE 6.22 – Champs de température (images de gauche) et de fraction volumique (images du centre) du PVC et champs du flux d'évaporation (images de droite) à z = 3 cm (images du bas) et z = 12 cm (images du haut), à deux instants : 1,8 et 3,6 s.



(a) t=7,2 s



(b) t=10,4 s

FIGURE 6.23 – Champs de température (images de gauche) et de fraction volumique (images du centre) du PVC et champs du flux d'évaporation (images de droite) à z = 3 cm (images du bas) et z = 12 cm (images du haut), à deux instants 7,2 et 10,2 s.

en sortie obtenues avec le modèle 0D sont proches des résultats moyens obtenus avec la simualtion 3D. Donc, malgré une forte simplification de l'hydrodynamique du système, le modèle 0D du lit fluidisé à immersion permet de prédire correctement le traitement thermique subi par les particules de PVC, et la cinétique de séchage.

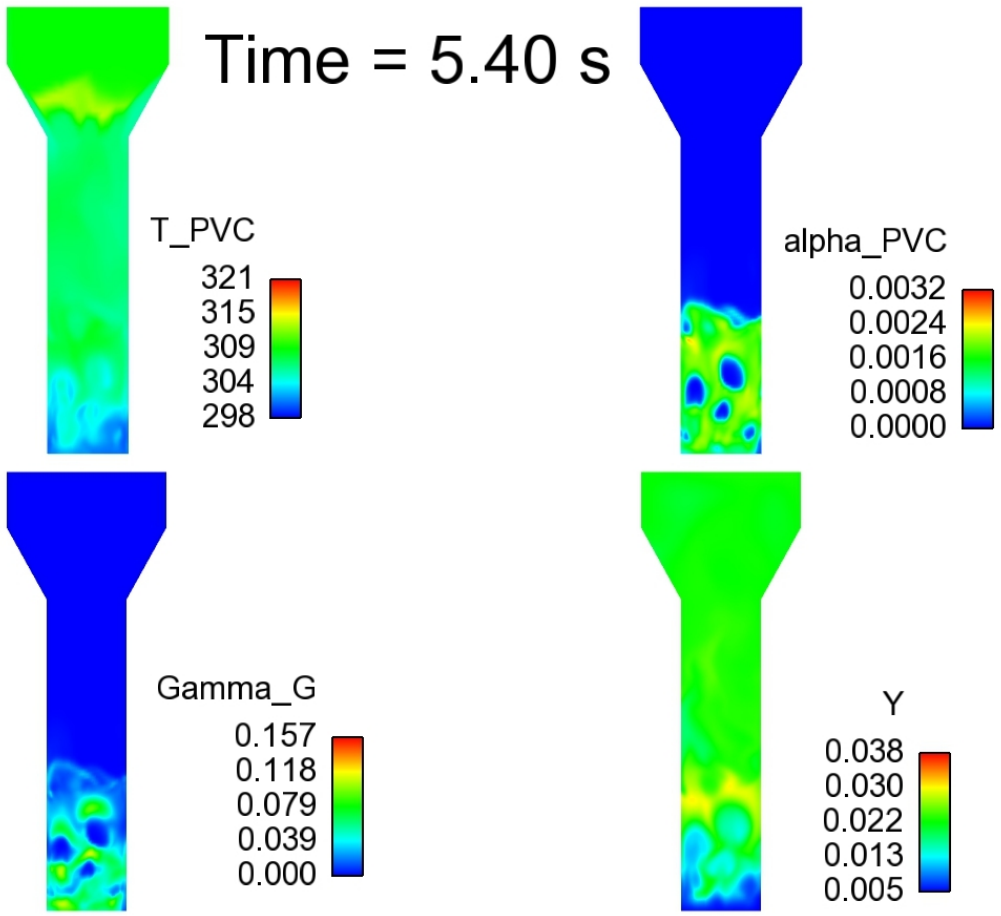


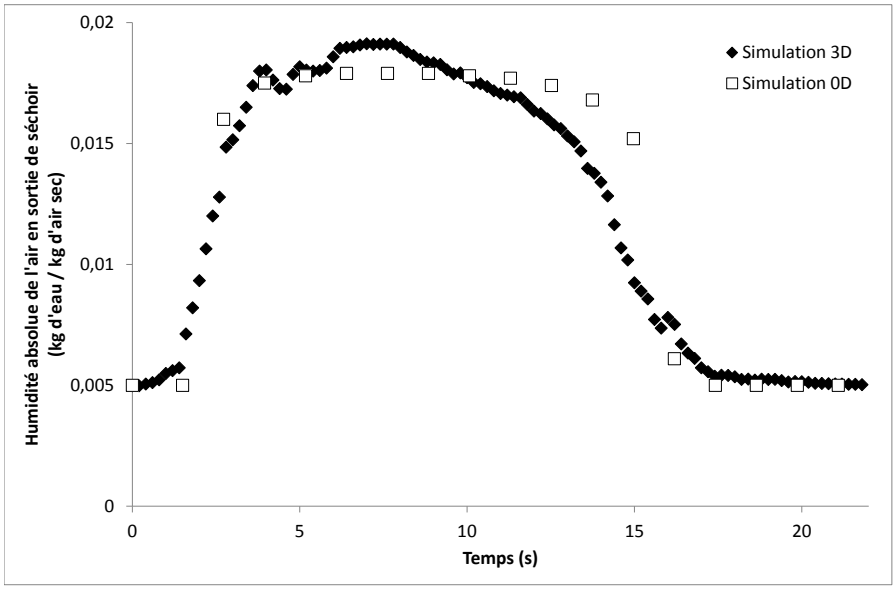
FIGURE 6.24 – Champs de température (image en haut à gauche) et de taux de présence (image en haut à droite) du PVC, champs du flux d'évaporation (image en bas à gauche) et champs d'humidité absolue de l'air (image en bas à droite) à l'instant t = 5,4 s.

Evolution de l'humidité en sortie du lit.

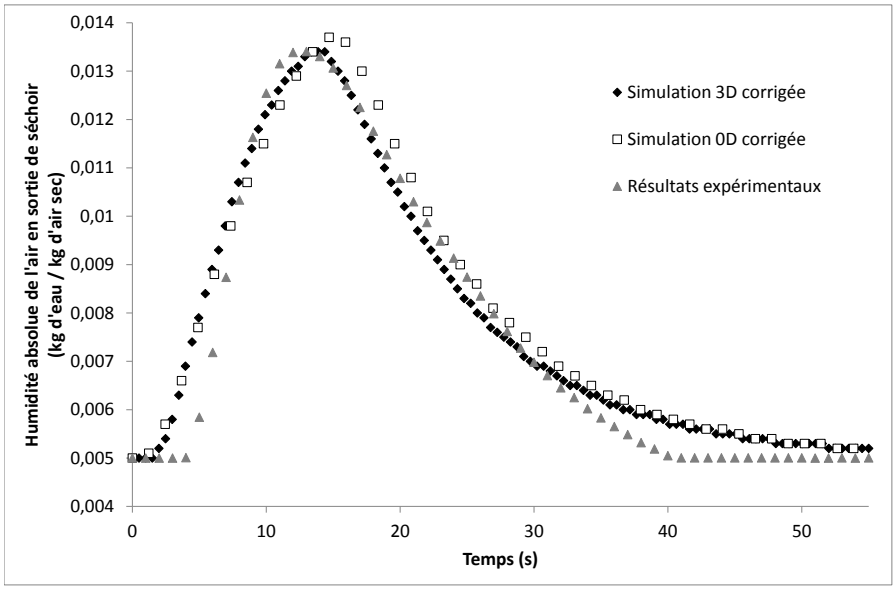
L'évolution de l'humidité de l'air en sortie du lit fluidisé est obtenue en faisant une moyenne volumique sur les mailles composant la sortie de gaz. En effet, la mesure expérimentale de l'humidité de l'air se fait à proximité de cette sortie.

La Figure 6.25(a) présente l'évolution de l'humidité absolue de l'air en sortie du lit fluidisé obtenue par les modèles 0D et 3D, tandis que la Figure 6.25(b) présente ces mêmes résultats corrigés par la fonction de transfert de la sonde, et les compare aux résultats expérimentaux.

Cette Figure montre que les résultats obtenus par simulation 3D sont en accord avec les résultats de la simulation 0D. Les hypothèses émises lors de la réalisation du modèle 1D (mélangeur parfait, isothermicité du lit) n'affectent donc pas l'évolution de l'humidité de l'air de manière significative. De plus, les résultats de simulations sont proches des résultats



(a) Sans correction par la fonction de transfert de la sonde.



(b) Avec correction par la fonction de transfert de la sonde.

FIGURE 6.25 – Evolution de l'humidité absolue de l'air en sortie de lit fluidisé : comparaison des résultats des modèles 0D et 3D et des résultats expérimentaux.

expérimentaux, ce qui montre qu'à la fois le modèle 0D et les simulations 3D permettent de prédire avec précision le comportement du lit fluidisé à immersion expérimental.

Influence de la nature du média fluidisé.

Le séchoir à lit fluidisé industriel fonctionne en continu. Dans ce cas, le cake est injecté en continu dans un lit fluidisé constitué d'une quantité très importante de PVC sec. Dans le but de mieux comprendre l'influence de la nature du média fluidisé sur la cinétique de séchage, une simulation a été effectuée en remplaçant les billes de verres par des particules de PVC sec, et en gardant tous les paramètres opératoires identiques aux précédents. La masse de média fluidisé est gardée constante, et comme les particules de PVC ont un diamètre et une masse volumique plus faible que ceux des billes de verre, la simulation 3D conduit à une expansion du lit fluidisé plus importante, d'environ 40,5 cm (Figure 6.26), que celle prédite avec les particules de billes de verre (14,9 cm). Ceci entraîne des taux de présences des particules plus faibles dans l'ensemble du lit.

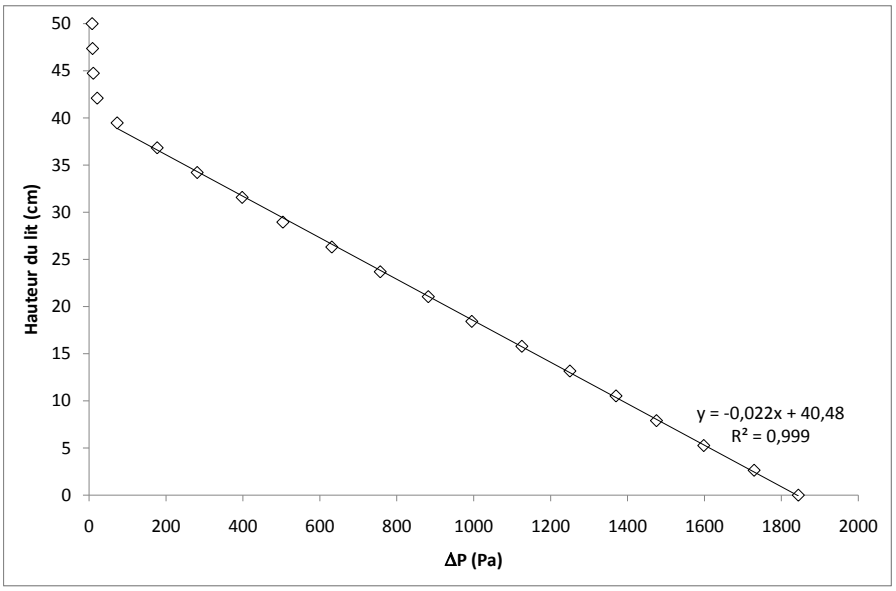
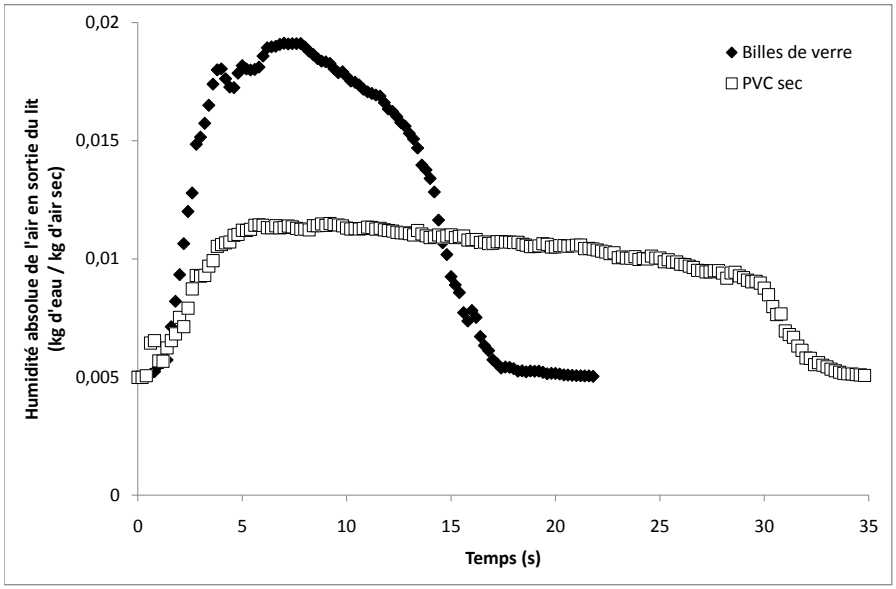
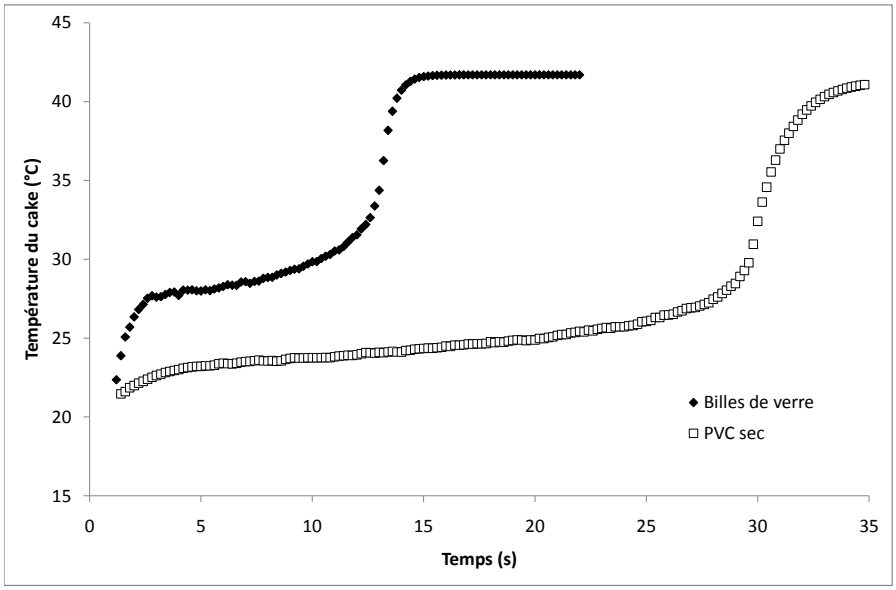


FIGURE 6.26 – Profil de pression moyenne en paroi en fonction de la hauteur du lit dans le cas où le lit est rempli de PVC sec.

La Figure 6.27 représente l'effet de la nature du média sur le séchage du PVC. La Figure 6.27(a) présente l'évolution temporelle de l'humidité absolue de l'air en sortie alors que la Figure 6.27(b) présente l'évolution temporelle de la température moyenne du cake. Ces Figures montrent que le séchage est environ deux fois plus long lorsque les billes de verres ont été remplacées par le PVC sec. Par ailleurs, l'analyse des résultats de simulations montrent que les coefficients de transferts moyens instantanés de matière et de chaleur sont deux fois plus faibles dans le cas de l'utilisation du PVC sec comme média. Ceci est directement lié à la vitesse relative entre le gaz et les particules de cake (ou vitesse de glissement).



(a) Evolution de l'humidité absolue de l'air en sortie du lit fluidisé.



(b) Evolution de la température moyenne du cake.

FIGURE 6.27 – Influence de la nature du média fluidisé sur la cinétique de séchage : comparaison entre les billes de verre et le PVC sec.

En effet, l'observation de la Figure 6.28, où sont portés les profils radiaux, à mi-hauteur du lit, de la différence"$W_{f@p,PVC} - W_{p,PVC}$" pour les deux cas simulés, montre clairement que la différence entre la vitesse verticale moyenne du gaz et celle des particules est plus importante lorsque les billes de verre sont utilisées comme média. $W_{f@p,PVC}$ représente la moyenne au sens de Fabre de la vitesse du gaz pondérée par le taux de présence des particules, c'est à dire la vitesse moyenne du gaz où se trouvent les particules :

$$W_{f@p,PVC} = \frac{\sum_{i=p} \alpha_p \cdot W_g \cdot \Delta_t \cdot \rho_g}{\sum_{i=p} \alpha_p \cdot \Delta_t \cdot \rho_g} \tag{6.51}$$

Ceci entraîne donc un nombre de Reynlods particulaire plus important, et donc des coefficients de transfert de matière et de chaleur plus importants.

Cette différence de "$W_{f@p,PVC} - W_{p,PVC}$" est due à l'effet de la nature du média sur la vitesse interstitielle du gaz d'une part et sur la vitesse des particules d'autre part. En effet, le taux de présence des particules étant plus faible lorsque le lit est rempli de PVC sec, la vitesse interstitielle du gaz sera donc plus faible pour un même débit d'air.

De plus, la masse de cake introduite dans le lit étant très faible devant la masse de média fluidisé, le comportement hydrodynamique des particules de cake est dirigé par celui des particules de média fluidisé : la vitesse moyenne locale du cake est égale à celle du média (Figure 6.19). Or, comme les particules de PVC sec ont un diamètre et une masse volumique plus faibles que les billes de verre, leurs vitesses locales seront plus importantes. En effet, bien que le flux global de particules sur le lit fluidisé soit nul (pas d'envol de particules), les particules de PVC sec parcourent les boucles de recirculation du lit à une vitesse plus importante que les billes de verre. Ainsi, les vitesses des particules de cake sont plus importantes dans le cas où le lit fluidisé est rempli de PVC sec.

Ces résultats peuvent aussi être expliqués par l'analyse macroscopique des phénomènes. En effet, un lit fluidisé peut être considéré comme un milieu diphasique vis à vis du gaz :

- une phase émulsion (ou dense), constituée des particules solides essentiellement en état de minimum de fluidisation : le débit gazeux traversant cette phase correspond au débit au minimum de fluidisation et les échanges gaz-particules ont lieu dans cette phase,
- et, une phase bulle, constituée de cavités presque vides de solide, en mouvement ascendant : le débit gazeux traversant cette phase correspond au débit en excès par rapport à celui au minimum de fluidisation.

Dans la phase émulsion, la vitesse de glissement est supposée égale à la vitesse minimale de fluidisation interstitielle des particules solides (U_{mf}/ε_{mf}). Comme les valeurs de la vitesse minimale de fluidisation des particules de PVC et des billes de verre sont, respectivement, 1,2 et 8,8 cm/s (voir Chapitre 2), le débit ou la vitesse du gaz dans la phase émulsion est plus faible dans le cas où le média est constitué de particules de PVC sec. Les transferts de matière et de chaleur entre le gaz et les particules sont donc moins intenses, et le temps de séchage plus long, dans ce cas.

En conclusion ces résultats montrent que la nature du média fluidisé a une forte influence sur le comportement hydrodynamique des particules de cake, et donc sur la cinétique de séchage. De plus ils montrent que les hypothèses formulées lors de l'établissement du modèle 0D (vitesse de glissement équivalente à la vitesse superficielle du gaz) ne sont

probablement valides que dans le cas où le média fluidisé a une forte inertie hydrodynamique, c'est à dire, que ses vitesses ascendantes et descendantes (et donc celles des particules de PVC) sont suffisamment faibles. En effet, comme le montre la Figure 6.29, l'évolution de l'humidité de l'air en considérant le lit rempli de PVC sec est très différente selon l'approche employée, la simulation 3D ou le modèle 0D. Cependant, en l'absence de résultats expérimentaux à comparer, on ne peut pas démontrer quelle est l'approche qui donne les meilleurs résultats. Ainsi, une étude systématique portant sur l'effet de la taille et de la masse volumique du média fluidisé doit confirmer ou non les remarques formulées ci-dessus.

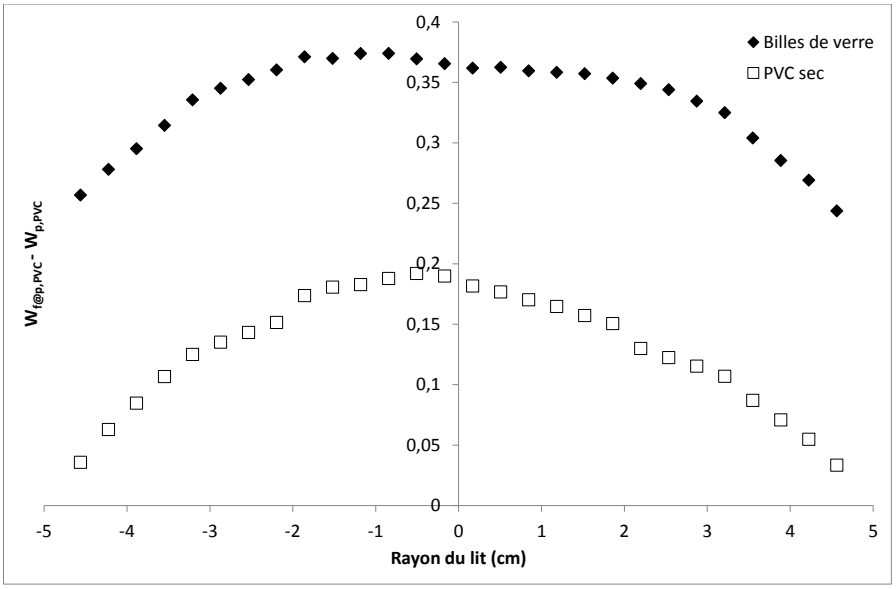


FIGURE 6.28 – Comparaison des profils de vitesses dans les deux cas de simulations.

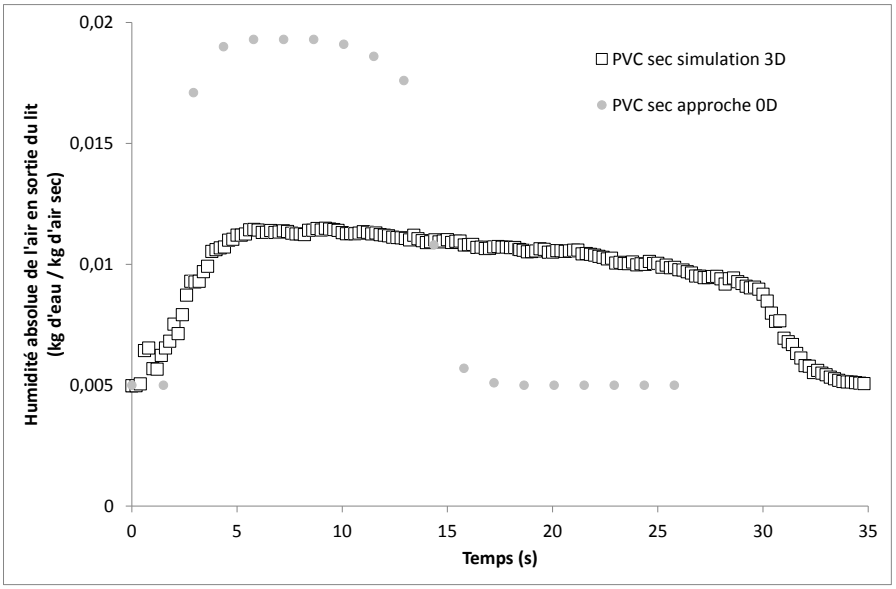


FIGURE 6.29 – Comparaison des résultats de simulation 3D et de l'approche 0D dans le cas du PVC sec comme média fluidisé.

6.4 Conclusion.

Dans ce chapitre, l'étude numérique de la cinétique de séchage à l'échelle d'une particule de PVC a été réalisée. Cette étude consiste en la réalisation de :

- un modèle de séchage d'une particule isolée, permettant d'établir une loi cinétique du séchage du PVC,
- un modèle simulant le pilote expérimental (le lit fluidisé à immersion), permettant de valider cette loi par comparaison avec les résultats expérimentaux,
- et, finalement, une simulation 3D du pilote expérimental, permettant de simuler avec précision l'hydrodynamique du lit fluidisé.

La loi cinétique développée considère que le séchage a lieu sur un front d'évaporation mobile progressant de la surface de la particule vers son cœur. Ce front de séchage divise la particule en deux zones :

- un noyau humide, contenant toute l'humidité de la particule,
- et, une croûte sèche, à travers laquelle la vapeur d'eau diffuse du front d'évaporation vers la surface de la particule.

Les résultats théoriques ont montré que, pour les conditions opératoires retenues, la conduction de la chaleur à travers la croûte sèche n'est pas limitante. Ainsi la température de la particule est considérée comme uniforme.

La loi cinétique ainsi établie est intégrée dans le modèle du lit fluidisé à immersion en considérant le lit fluidisé comme un milieu parfaitement mélangé. Les résultats montrent que le modèle prédit correctement l'influence :

- de la température du lit,
- du débit d'air sec pour des valeurs supérieures à 10kg/h ($U/U_{mf} > 3,7$),
- et, de l'humidité initiale de l'air entre 0 et 16 g d'eau / kg d'air sec.

Pour des débits d'air sec plus faibles et des humidités de l'air en entrée plus hautes, le modèle surestime la cinétique de séchage. Ce phénomène peut être attribué à l'influence importante de ces deux paramètres sur la dispersion de l'échantillon de cake. En effet, à haute humidité initiale ou à faible débit d'air sec, la dispersion de l'échantillon est plus difficile, or, ce modèle considère que la dispersion de l'échantillon est instantanée et parfaite.

De plus, l'étude paramétrique réalisée sur ce modèle a montré que la cinétique de séchage du PVC en poudre était contrôlée par une compétition entre les transferts internes et externes à la particule.

Finalement, une simulation 3D du lit fluidisé a été réalisée à l'aide du code NEPTUNE_CFD, permettant de simuler le pilote expérimental en tenant compte des interactions hydrodynamiques entre l'air, les billes de verre, et les particules de PVC. Ces résultats ont montré que les particules de PVC se dispersent rapidement dans l'ensemble du lit, validant ainsi l'hypothèse du mélangeur parfait. Malgré les hypothèses simplificatrices utilisées pour l'établissement du modèle 0D, les résultats de ce modèle sont proches des résultats de la simulation 3D ainsi que des résultats expérimentaux.

Cependant la simulation réalisée avec du PVC sec comme média fluidisé a montré que la nature du média fluidisé a une forte influence sur les comportement hydrodynamique

des particules de cake, et donc sur la cinétique de séchage. Les hypothèses formulées lors de la conception du modèle 0D ne sont donc valides que dans le cas où le média fluidisé a une forte inertie hydrodynamique. D'autre part ces résultats montrent qu'il existe un gradient de température du PVC entre le bas et le haut du lit fluidisé, mettant en défaut l'hypothèse d'isothermicité du lit fluidisé.

Lire la seconde partie de la thèse

Lire la première partie de la thèse

Troisième partie

Etude du procédé industriel

Chapitre 7

Description et modélisation du procédé de séchage thermique.

Sommaire

7.1 Présentation du procédé de séchage industriel. 192
7.1.1 Fonctionnement du séchoir pneumatique : 192
7.1.2 Fonctionnement du séchoir à lit fluidisé : 194
7.2 Données opératoires et acquisition des données expérimentales sur le séchoir pneumatique industriel. 198
7.3 Modélisation du procédé. 201
7.3.1 Principe du modèle. 201
7.3.2 Influence des paramètres opératoires. 203
7.4 Optimisation du procédé. 207
7.4.1 Modification de la politique de contrôle du procédé. 207
7.4.2 Autres modifications du procédé. 208
7.5 Conclusion 209

Ce chapitre est divisé en trois parties. La première est consacrée à la présentation de l'unité de séchage industriel d'INEOS ChlorVinyls constituée d'un séchoir pneumatique couplé à un séchoir à lit fluidisé dense. L'analyse du procédé a permis de mettre en évidence le fait que le séchoir pneumatique consomme bien plus d'énergie que le séchoir à lit fluidisé. Ainsi l'optimisation du procédé nécessitera une analyse approfondie du séchoir pneumatique.

La deuxième partie est consacrée à l'instrumentation de l'un des séchoirs pneumatiques de la société INEOS ChlorVinyls. L'acquisition des données sur le séchoir a permis d'accéder aux profils axiaux de température et d'humidité de la phase gazeuse. Ces données sont indispensables pour la validation du modèle de séchoir pneumatique présenté dans le Chapitre 8

La dernière partie de ce chapitre est dédiée à la modélisation globale du procédé de séchage (modèle entrée/sortie). Ce modèle permet d'évaluer la consommation énergétique associée à différents éléments du procédé et d'étudier l'influence des divers paramètres opératoires.

A partir de cette étude, diverses propositions de modification de l'unité ont été formulées pour réduire la consommation énergétique de l'usine.

7.1 Présentation du procédé de séchage industriel.

Le procédé de séchage thermique d'INEOS ChlorVinyls FRANCE comprend quatre lignes de production identiques. Dans chaque ligne, le séchage est réalisé par deux séchoirs convectifs installés en série :

– un séchoir pneumatique, permettant d'éliminer la majeure partie de l'humidité contenue dans les particules de PVC,
– et, un séchoir à lit fluidisé, permettant d'uniformiser le traitement thermique subi par les particules, et de finaliser le séchage.

L'étude présentée dans ce chapitre est réalisée sur une seule ligne de production, mais les résultats obtenus sont directement transférables aux autres lignes.

L'ensemble du procédé de séchage thermique (c'est à dire les différents séchoirs, les préchauffeurs, les organes de séparations, et les appareils constituant le circuit du solide) est représenté sur la Figure 7.1.

7.1.1 Fonctionnement du séchoir pneumatique :

Le rôle de ce séchoir est d'éliminer la majorité de l'humidité contenue dans les particules de PVC, tout en conservant la température des particules inférieure à 70°C, température de dégradation du PVC.

Le cake, obtenu suite à l'étape de centrifugation, est introduit en continu dans le séchoir pneumatique grâce à un tapis vibrant et une vis sans fin. Il faut préciser que ce système d'alimentation conduit à une injection intermittente du cake dans le séchoir. Le cake est entraîné le long du séchoir par un important flux d'air (environ 54 t/h) chauffé entre 180 et 200°C. Le temps de séjour des particules est de l'ordre d'une seconde. En sortie, les

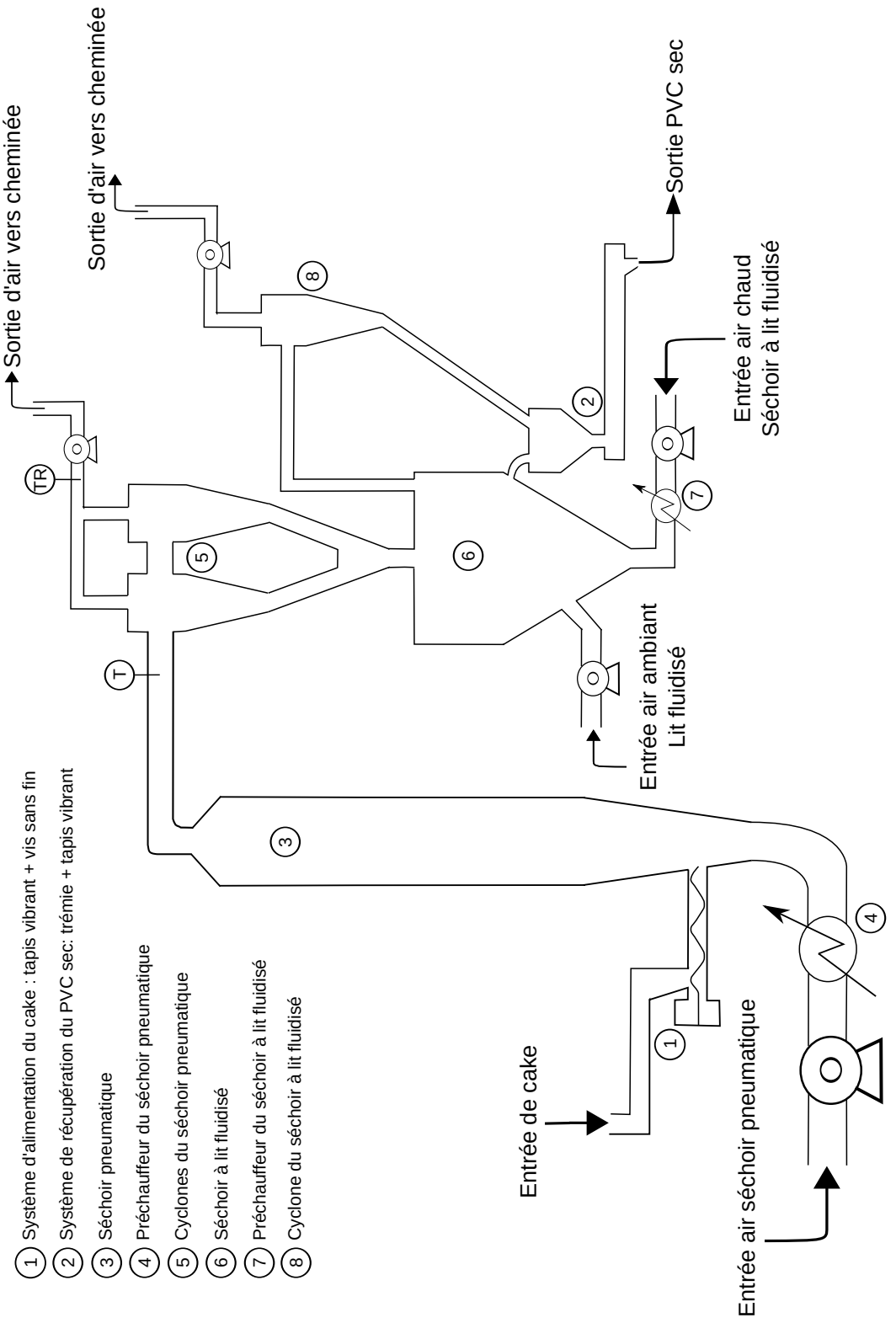


FIGURE 7.1 – Schéma du procédé de séchage thermique d'INEOS ChlorVinyls FRANCE.

particules de PVC sont séparées de l'air par deux séparateurs cycloniques installés en série. L'air est alors envoyé vers des cheminées, tandis que le PVC quasi-sec est dirigé vers le séchoir à lit fluidisé.

Comme remarqué lors de l'étude expérimentale, le cake est une poudre très cohésive, et la dispersion des particules a un rôle prépondérant sur la cinétique de séchage. Afin de maximiser cette dispersion, c'est à dire de casser les liaisons entre les particules, de fortes vitesses d'air (environ 50 m/s) sont imposées à la base du séchoir (dans la zone d'injection du cake).

La circulation de l'air à travers le séchoir pneumatique est assurée par le biais de deux ventilateurs :

– un ventilateur "pousseur" installé en amont du préchauffeur,
– et, un ventilateur "tireur", installé en aval des cyclones.

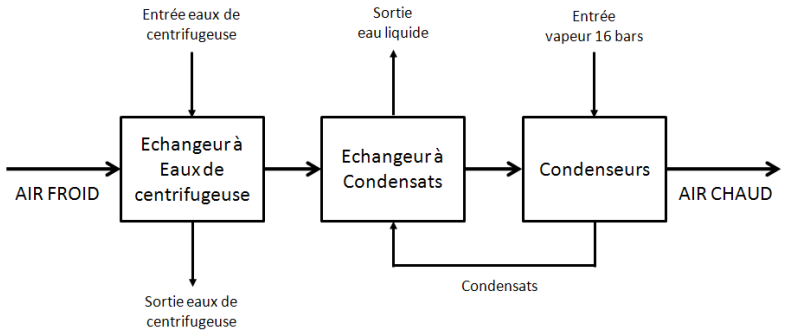
La chauffe du courant d'air est réalisée par un préchauffeur, qui peut être de deux types (Figure 7.2) :

– Une batterie d'échangeurs, alimentée par le liquide sortant de la centrifugeuse d'une part et de la vapeur d'eau à 16 bars d'autre part (Figure 7.2(a)), appelée "Configuration vapeur". Les différents échangeurs constituant la batterie de chauffe sont des échangeurs multi-tubulaires et multi-passes. L'air de séchage est d'abord légèrement réchauffé par l'échangeur à eaux de centrifugeuses (dont la température d'entrée est d'environ 55°C). L'air traverse ensuite un échangeur de chaleur alimenté par des condensats. Ces condensats proviennent des trois condenseurs, constituant les derniers éléments de la batterie de chauffe. Ces condenseurs sont alimentés par de la vapeur d'eau à 16 bars dont le débit est imposé par le système de régulation du séchoir.
– Un échangeur à contact direct, appelé "Configuration brûleur", réalisant le chauffage direct du flux d'air (Figure 7.2(b)). Dans cette configuration, la combustion in-situ du gaz naturel, dont le débit est aussi imposé par le système de régulation du séchoir, permet de réaliser l'échauffement du gaz caloporteur, constitué de l'air et des fumées provenant de la combustion du gaz naturel. Cette configuration du préchauffeur permet d'atteindre des températures d'air supérieures à celles atteintes par la batterie de chauffe.

En ce qui concerne le système de régulation du séchoir, la température d'entrée du gaz caloporteur, dépendant du débit d'utilité à apporter (débit de vapeur ou de gaz naturel), est initialement régulée en respectant une consigne imposée sur la température du gaz en sortie de séchoir (indiqué par le symbole T sur la Figure 7.1). Cependant, l'étude présentée dans la suite de ce chapitre a montré qu'il était plus judicieux de contrôler le débit d'utilité par la mesure du point de rosée du gaz en sortie des cyclones (indiqué par le symbole TR sur la Figure 7.1). En prenant comme consigne une température légèrement supérieure au point de rosée (entre 4 et 7°C), il est possible d'utiliser pleinement le potentiel d'évaporation du gaz caloporteur, et donc de réduire la consommation énergétique, tout en gardant une sécurité pour éviter la condensation de l'humidité de l'air.

7.1.2 Fonctionnement du séchoir à lit fluidisé :

La géométrie et les conditions opératoires (fort débit d'air et alimentation intermittente du solide) du séchoir pneumatique entraînent une distribution des temps de séjour des



(a) Configuration vapeur



(b) Configuration bruleur

FIGURE 7.2 – Les différentes configurations du préchauffeur d'air du séchoir pneumatique.

particules de PVC. Ceci conduit à la non uniformité de l'humidité et de la température du produit en sortie de séchoir. Le rôle du séchoir à lit fluidisé est donc d'uniformiser la qualité du traitement des particules de PVC d'une part, et de respecter les normes requises d'humidité d'autre part.

Le séchoir à lit fluidisé (Figure 7.3) est construit comme un lit fluidisé en bande, enroulé en spirale. Les particules de PVC, introduites au centre du lit, progressent vers la périphérie du séchoir. Une fois sèches, les particules sortent du lit par débordement. L'air sortant du séchoir est envoyé vers un cyclone pour récupérer les fines particules éventuellement entraînées, et ensuite vers la cheminée. L'ensemble des particules est alors récupéré par une trémie avant d'être dirigé vers les différents stocks par le biais d'un tapis vibrant et d'un système de transport pneumatique.

Le séchoir comporte deux alimentations différentes pour l'air de fluidisation :

– une alimentation d'air chaud au centre du lit (c'est à dire au début du passage des particules), permettant de finaliser le séchage,
– et une alimentation d'air ambiant en périphérie, pour refroidir et stabiliser le produit.

A l'instar du séchoir pneumatique, la circulation d'air est assurée par différents ventilateurs :

– un ventilateur "pousseur" au niveau de chaque alimentation d'air,
– et, un ventilateur "tireur" placé en aval du cyclone.

Le préchauffage de l'air chaud est réalisé par une batterie de chauffe, similaire à celle présentée pour le séchoir pneumatique, si ce n'est qu'elle ne comporte pas d'échangeur à eaux de centrifugation.

Les données géométriques et opératoires des deux séchoirs sont résumées dans le Tableau 7.1.

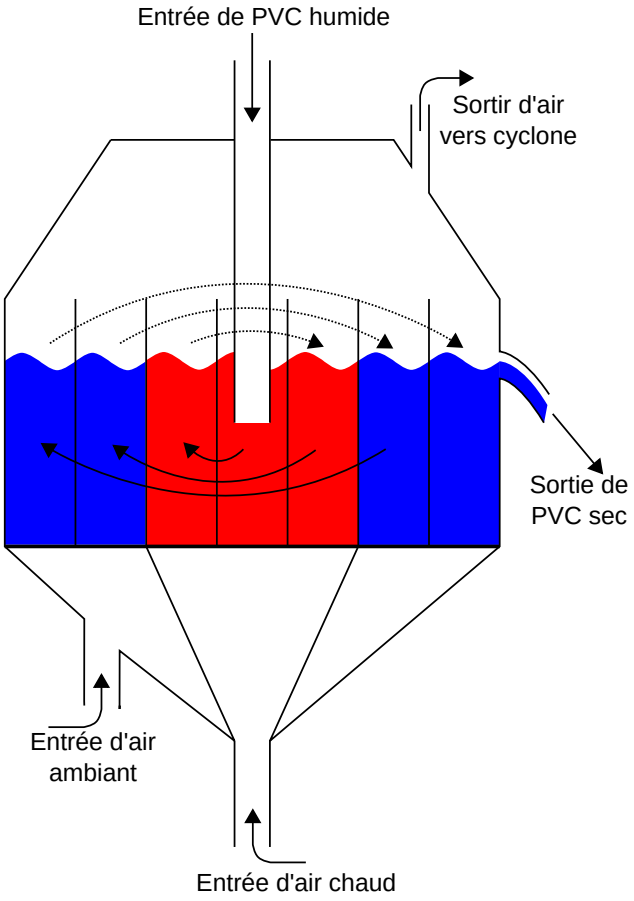


FIGURE 7.3 – Principe de fonctionnement du séchoir à lit fluidisé.

Tableau 7.1 – Données géométriques et opératoires des séchoirs pneumatique et à lit fluidisé

	Séchoir pneumatique	Séchoir à lit fluidisé
Diamètre (m)	1,6	5,5
Diamètre d'alimentation (m)	0,7	∅
Hauteur (m)	22	1,9
Débit d'air chaud ($kg \cdot h^{-1}$)	54 000	8 000
Débit d'air ambiant ($kg \cdot h^{-1}$)	∅	500
Température de l'air chaud (°C)	180 - 200	60 - 70

Au vu des paramètres opératoires, il est facile de comprendre que ce procédé de séchage est très énergivore, notamment le séchoir pneumatique. En effet, dans les conditions actuelles, la puissance à apporter aux préchauffeurs pour amener les flux d'air à leur température d'entrée est d'environ 2400 kW pour le séchoir pneumatique et seulement d'environ 90 kW pour le séchoir à lit fluidisé. Ainsi, l'étude menant à l'optimisation du procédé se focalisera sur le séchoir pneumatique.

7.2 Données opératoires et acquisition des données expérimentales sur le séchoir pneumatique industriel.

L'optimisation du procédé de séchage thermique nécessite la réalisation d'un modèle simulant le séchoir pneumatique (voir Chapitre 8 page 211). Il est donc nécessaire de récolter des données de fonctionnement du séchoir pneumatique. Certaines données opératoires sont accessibles par le système de contrôle du procédé, comme :

– le débit de PVC sec,
– le débit d'air,
– l'humidité de l'air ambiant,
– et, les températures d'entrée et de sortie de l'air.

D'autres données comme la température et l'humidité du PVC en entrée et en sortie nécessitent de prélever des échantillons de PVC en sortie des centrifugeuses et en sortie des cyclones. Ces données industrielles sont résumées dans le Tableau 7.2.

Tableau 7.2 – Données d'entrée et de sortie du séchoir pneumatique pour les différents grades de PVC.

	Entrée		Sortie	
	Humidité (kg_{eau}/kg_{PVCsec})	Température (°C)	Humidité (kg_{eau}/kg_{PVCsec})	Température (°C)
PVC A	0,242	60,7	0,0279	45,2
PVC B	0,330	55,3	0,0069	43,7
PVC C	0,255	58,6	0,0037	43,0
PVC D	0,412	56,7	∅	∅

Enfin, afin de valider les profils théoriques de températures et d'humidité le long du séchoir, il est nécessaire de mesurer ces grandeurs à différents niveaux du séchoir pneumatique. Pour ce faire, six piquages ont été effectuées dans le séchoir pneumatique, permettant de mesurer la température et l'humidité de l'air à différents niveaux du séchoir. Leurs positions par rapport à l'alimentation en cake sont indiquées sur la Figure 7.4.

Les premiers mètres après l'alimentation de solide d'un séchoir pneumatique sont appelés zone d'accélération du séchoir. En effet, c'est dans cette zone que les particules sont accélérées par le flux de gaz avant d'atteindre leur vitesse maximale. La vitesse de glissement entre le gaz et les particules va alors fortement diminuer dans cette zone pour atteindre une valeur proche de celle de la vitesse terminale de chute libre des particules de PVC. En conséquence, les transferts de matière et de chaleur sont très intenses dans cette zone. Il est donc nécessaire de prélever un grand nombre d'informations dans cette région, et donc de concentrer les piquages dans les premiers mètres du séchoir.

Ces piquages permettent de mesurer à la fois la température et l'humidité de l'air. L'humidité de l'air est mesurée par des hygromètres (VAISALA - DMT345) du même type que l'hygromètre placé dans le dispositif de prélèvement et présenté dans le Chapitre 4 Section 4.2 page 98. En raison du débit important imposé dans le séchoir pneumatique, les hygromètres ne peuvent pas être installés directement dans la conduite, car ils risqueraient d'être fortement endommagés par les chocs avec les particules. En effet, les essais préalables ont montré qu'après 2 jours de fonctionnement le capteur est totalement détruit.

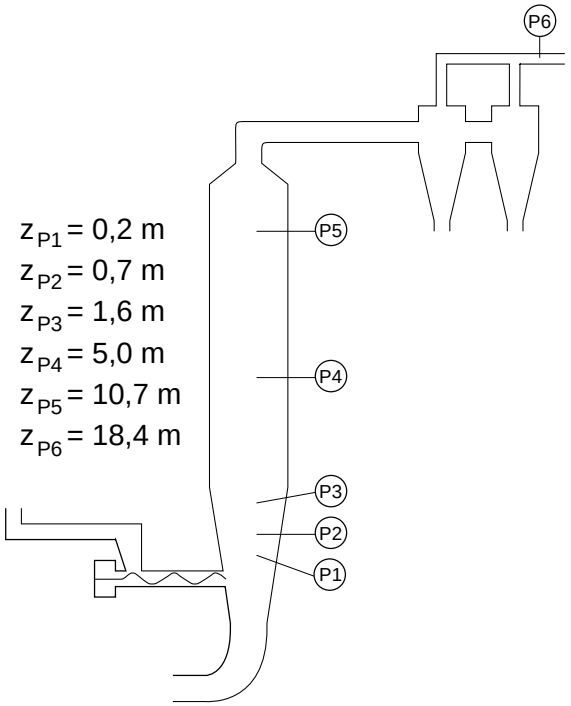


FIGURE 7.4 – Position des piquages installés sur le séchoir pneumatique.

Ainsi, un système de prélèvement d'air (Figure 7.5) a donc été mis en place, permettant de mesurer son humidité tout en protégeant les hygromètres.

Ce système est constitué d'une chambre de mesure de forme tronconique à l'intérieur de laquelle est placée la sonde. Afin de prélever l'échantillon gazeux dans les zones éloignées des parois du séchoir(à 30 cm de la paroi), une canne de prélèvement est fixée sur cette chambre. Cette canne est munie de filtres dont le rôle est d'empêcher les particules de rentrer dans la chambre de mesure. La débit de prélèvement gazeux est contrôlé par une pompe à vide et un rotamètre.

En plus de l'humidité, la sonde hygrométrique permet, en théorie, de mesurer aussi la température de l'air. Cependant, notre système de mesure entraîne des pertes thermiques, ce qui fausse cette mesure. La température de l'air est donc mesurée à l'aide d'une sonde de type PT100, insérée dans les piquages. L'influence de la position de cette sonde est aussi évaluée.

Les profils d'humidité et de température de l'air sont mesurés sur une période de trois jours et les résultats ainsi obtenus sont présentés sur la Figure 7.6. On remarque une évolution exponentielle décroissante de la température de l'air alors qu'elle est exponentielle croissante pour l'humidité de l'air. La forte variation de la température et de l'humidité de l'air dans la zone d'entrée du cake montre l'importance de la zone d'accélération sur les échanges entre phases.

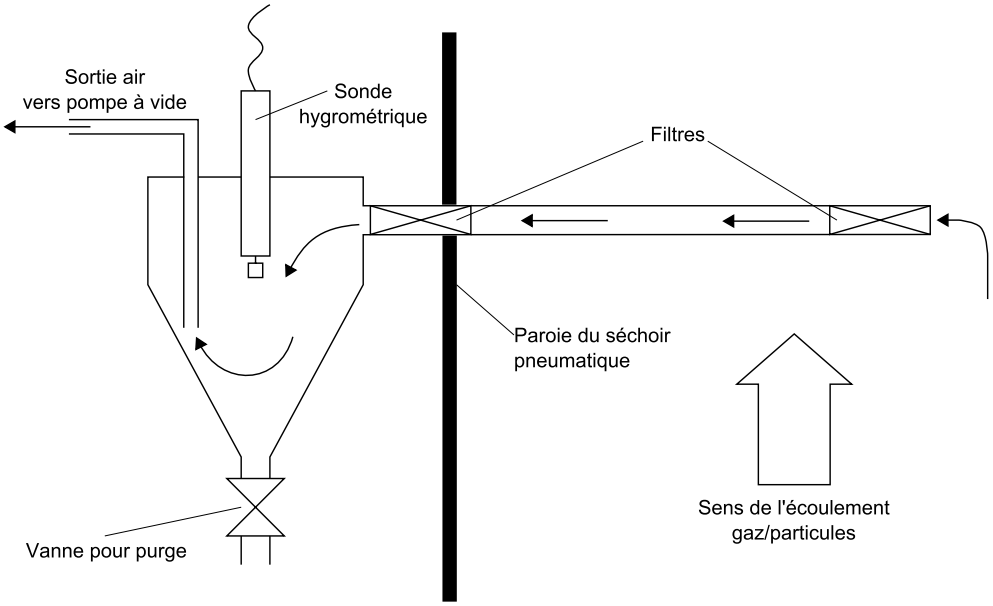


FIGURE 7.5 – Système de mesure de l'humidité de l'air.

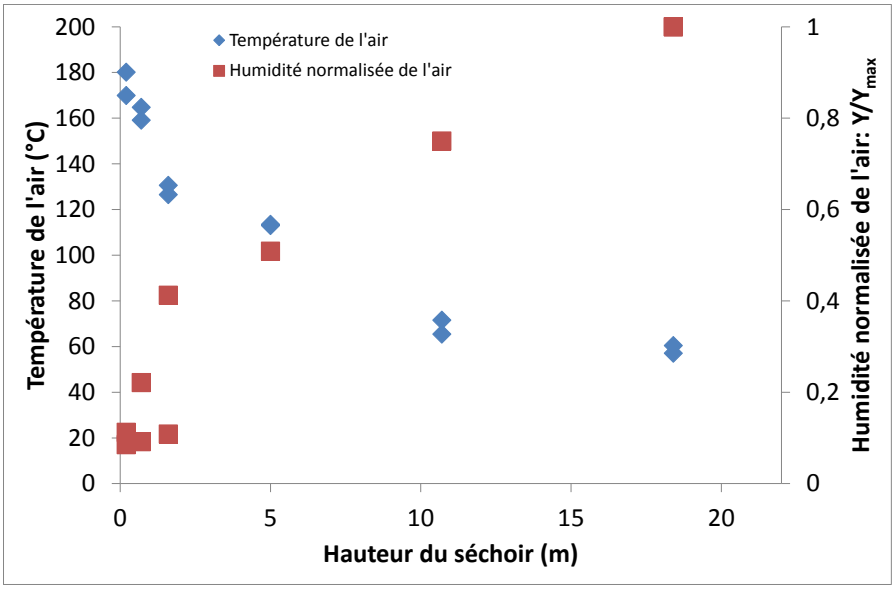


FIGURE 7.6 – Profils axiaux de température et d'humidité de l'air dans le séchoir peumatique d'INEOS ChlorVinyls.

7.3 Modélisation du procédé.

7.3.1 Principe du modèle.

Dans le but d'évaluer la consommation énergétique de chacun des séchoirs, un modèle global est réalisé sur l'ensemble de ce procédé. Ce modèle est basé sur l'écriture des bilans globaux de matière et d'énergie sur chacun des éléments du procédé. Il permet, à partir des données opératoires du procédé, d'évaluer la température de l'air à imposer en entrée de séchoir, et donc la puissance consommée.

Les équations régissant ce modèle, présentées dans l'Annexe G.1 page 278, sont basées sur les bilans entrée/sortie de matière et de chaleur sur chaque séchoir. Leur résolution nécessite la connaissance des paramètres présentés dans le Tableau 7.3. Comme dans le procédé industriel, la température d'air en entrée des séchoirs est déterminée à partir de la consigne de température imposée en sortie des séchoirs.

Tableau 7.3 – Liste des données nécessaires au modèle entrée/sortie.

Symbole	Paramètre	Unité
	PVC	
F_p^0	Débit de PVC sec	kg/h
$T_{p_F}^e$	Température en entrée du séchoir pneumatique	°C
X_F^e	Humidité du cake	kg_{eau}/kg_{PVCsec}
X_F^s	Humidité en sortie du séchoir pneumatique	kg_{eau}/kg_{PVCsec}
$T_{p_F}^s$	Température de sortie du séchoir pneumatique	°C
X_{LF2}^s	Humidité du PVC sec	kg_{eau}/kg_{PVCsec}
	Air ambiant	
T^{amb}	Température	°C
Y^{amb}	Humidité absolue	kg_{eau}/kgAIRsec
	Séchoir pneumatique	
$F_{g_F}^0$	Débit massique d'air sec	kg/h
$T_{g_F}^s$	Température de sortie de l'air	°C
Qp_F	Pertes thermiques	W
	Séchoir à lit fluidisé	
$F_{g_{LF1}}^0$	Débit massique d'air sec chaud	kg/h
$F_{g_{LF2}}^0$	Débit massique d'air sec ambiant	kg/h
$T_{g_{ML}}^s$	Température de sortie de l'air	°C
Qp_{LF}	Pertes thermiques	W

En plus des équations bilans, ce modèle repose sur deux hypothèses concernant la température du PVC en sortie des deux séchoirs.

– Le temps de séjour des particules dans le séchoir pneumatique étant très court, l'équilibre thermique entre les deux phases n'est pas atteint. On impose alors une condition en

sortie de séchoir, permettant d'assurer qu'il n'y a pas de phénomène de condensation de l'humidité de l'air au contact des particules :

$$T^s_{p_F} = T^* + 5, \tag{7.1}$$

avec $T^s_{p_F}$ la température du PVC en sortie du séchoir pneumatique et T^* la température de saturation adiabatique de l'air.

– A l'opposé, le temps de séjour des particules dans le séchoir à lit fluidisé est suffisamment long pour permettre à l'équilibre thermique de s'établir. Ainsi on établit l'hypothèse suivante :

$$T^s_{p_{ML}} = T^s_{g_{ML}}, \tag{7.2}$$

avec $T^s_{p_{ML}}$ et $T^s_{g_{ML}}$ les températures respectives du PVC et de l'air en sortie du séchoir à lit fluidisé.

La Figure 7.7 schématise le procédé en numérotant de 1 à 10 chaque courant du procédé. Le Tableau 7.4 résume les paramètres de chacun de ces courants pour un point de fonctionnement correspondant aux conditions industrielles. Les paramètres indiqués en gras correspondent aux données d'entrée du modèle, les autres sont les résultats du modèle.

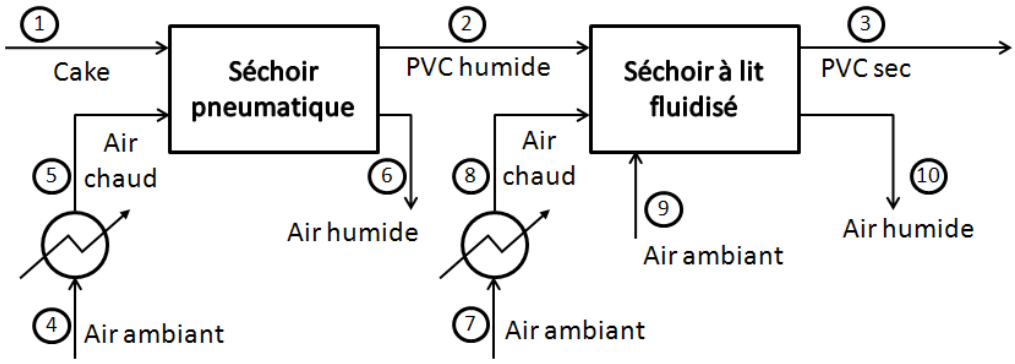


FIGURE 7.7 – Numérotation des courants du procédé de séchage thermique.

Tableau 7.4 – Données et résultats du modèles entrée/sortie.

Courants	1	2	3	4	5
Débit sec (kg/h)	**8000**	**8000**	**8000**	**54000**	**54000**
Débit humide (kg/h)	9936	8160	8008	54270	54270
Température (°C)	**60**	43,5	**30**	**15**	121,7
Humidité (kg_{eau}/kg_{sec})	**0,242**	**0,02**	**0,001**	**0,005**	**0,005**
Humidité relative (%)	∅	∅	∅	47,3	0,4
Courants	6	7	8	9	10
Débit sec (kg/h)	**54000**	**8000**	**8000**	105	8105
Débit humide (kg/h)	56046	8040	8040	105	8297
Température (°C)	**55**	**15**	51,1	**15**	30,5
Humidité (kg_{eau}/kg_{sec})	0,038	**0,005**	**0,005**	**0,005**	0,024
Humidité relative (%)	36,7	47,3	6,2	47,3	85,0

A partir de ces résultats, le modèle calcule les puissances à apporter aux préchauffeurs :

– Séchoir pneumatique : $Q_F = 1766$ kW.
– Séchoir à lit fluidisé : $Q_{LF} = 90$ kW.

On note que la température d'entrée d'air dans le séchoir pneumatique (et donc la puissance à apporter au préchauffeur) calculée par le modèle est nettement inférieure à la valeur indiquée sur le procédé. Ceci est dû notamment aux pertes thermiques, difficilement évaluables en pratique et qui ne sont donc pas prises en compte par le modèle.

La puissance consommée pour alimenter le séchoir à lit fluidisé représente seulement 5% de la puissance consommée par l'ensemble du procédé de séchage thermique. L'optimisation du procédé se concentre alors sur le fonctionnement du séchoir pneumatique.

Cette simulation montre aussi que l'humidité relative de l'air en sortie du séchoir pneumatique est faible (environ 35%), le potentiel de séchage apporté par l'air sec en entrée est donc très peu utilisé. Il y a donc une grande marge d'optimisation de ce procédé.

Le modèle entrée/sortie permet aussi de calculer les débits d'utilités à apporter au préchauffeur du séchoir pneumatique dans les deux configurations. Ces calculs (voir Annexe G.2 page 280) sont réalisés en prenant l'hypothèse que l'efficacité des échangeurs est égale à 1. On obtient alors, pour le cas présenté ci-dessus :

– Un débit de vapeur 16 bars de 2140 kg/h, ce qui représente un coût de 295 000 €/an.
– ou un débit de gaz naturel de 125 kg/h, ce qui représente un coût de 260 000 €/an.

Ces résultats montrent que la configuration brûleur du préchauffeur permet de réduire le coût du procédé de séchage d'environ 12%.

7.3.2 Influence des paramètres opératoires.

Le modèle entrée/sortie permet d'étudier l'influence des différents paramètres opératoires sur la puissance consommée par le séchoir. Les Figures 7.8, 7.9, 7.10, et 7.11 présentent respectivement l'influence du débit d'air sec, de la température d'entrée du cake, du grade de PVC, et de la température de sortie de l'air (paramètre de contrôle du procédé) sur la température d'entrée de l'air, et donc sur la puissance consommée par le préchauffeur du séchoir pneumatique. Les différentes études paramétriques sont réalisées à partir du point de fonctionnement présenté ci-dessus.

L'effet du débit d'air sec est étudié de 40 à 60 t/h. Les résultats du modèle montrent qu'une réduction du débit entraîne une augmentation de la température d'entrée afin d'apporter la même quantité d'énergie aux particules de PVC dans le séchoir pneumatique. Malgré cette augmentation de température, la diminution du débit d'air sec permet de réduire la puissance consommée de 12,5%.

Cependant, la réduction du débit à des valeurs inférieure à 45 t/h va entraîner une réduction de la vitesse de l'air dans le séchoir, notamment dans la zone d'alimentation. Or, dans cette zone, il est nécessaire d'avoir une vitesse d'air suffisante pour briser les liaisons entre les particules humides. Ce paramètre opératoire ne peut donc pas être optimisé en se basant seulement sur le critère de la puissance à apporter au préchauffeur.

Concernant l'effet de la température d'entrée du PVC, la Figure 7.9 montre qu'une réduction de cette température de 60 à 30°C entraîne une augmentation de la puissance à

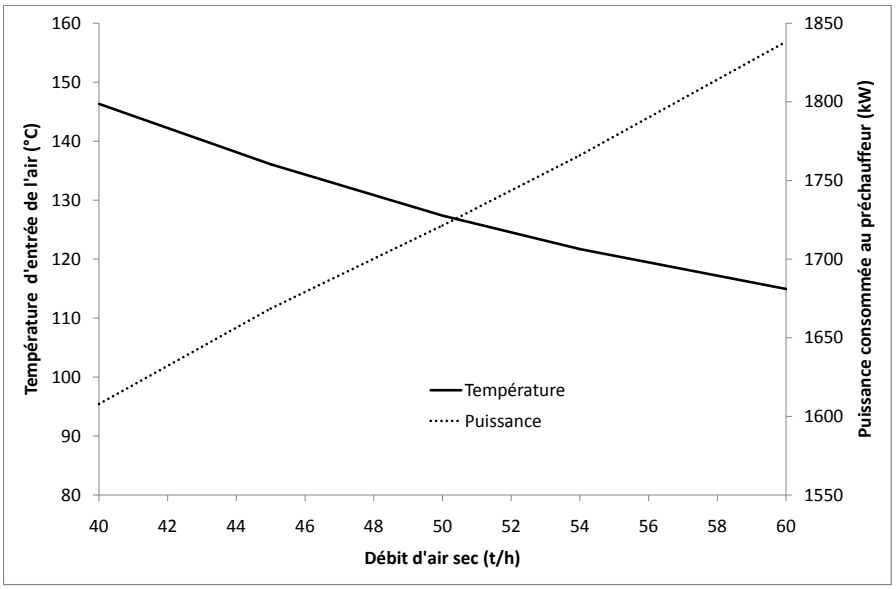


FIGURE 7.8 – Effet du débit d'air sec sur la puissance consommée.

apporter au préchauffeur de 1750 à 2000 kW. En effet, diminuer la température d'entrée du cake impose d'apporter plus de chaleur par le gaz, et donc d'augmenter la température d'entrée du gaz.

Il est donc judicieux de maximiser la température d'entrée du cake pour optimiser le procédé de séchage thermique. Dans cette optique, un échangeur dont le but était de refroidir la bouillie en entrée de centrifugeuse (et donc de diminuer la température du cake) a été supprimé. Toutefois, comme cela a été vu dans le Chapitre I, une augmentation de la température de la bouillie peut être défavorable à l'étape de centrifugation, il faut donc trouver un compromis afin d'optimiser ces deux opérations.

Comme ce modèle ne prend pas en compte les paramètres morphologiques du PVC, étudier l'effet du grade de PVC revient à étudier l'influence de l'humidité initiale du cake (Figure 7.10). Le Tableau 7.5 résume les humidités initiales des différents grades.

Tableau 7.5 – Humidités initiales des différents grades

Grade	Humidité initiale (kg_{eau}/kg_{PVCsec})
PVC A	0,242
PVC B	0,330
PVC D	0,255
PVC D	0,412

Étant donné que l'humidité du PVC en sortie du séchoir pneumatique est fixée à la même valeur pour les quatre grades, une augmentation de l'humidité initiale revient à augmenter la quantité d'eau à évaporer. Ceci entraîne donc une augmentation de la quantité d'énergie à apporter par le gaz et donc une augmentation de la température d'entrée du gaz (le débit et la température de sortie étant fixés). Les résultats confirment ces constats, et montrent

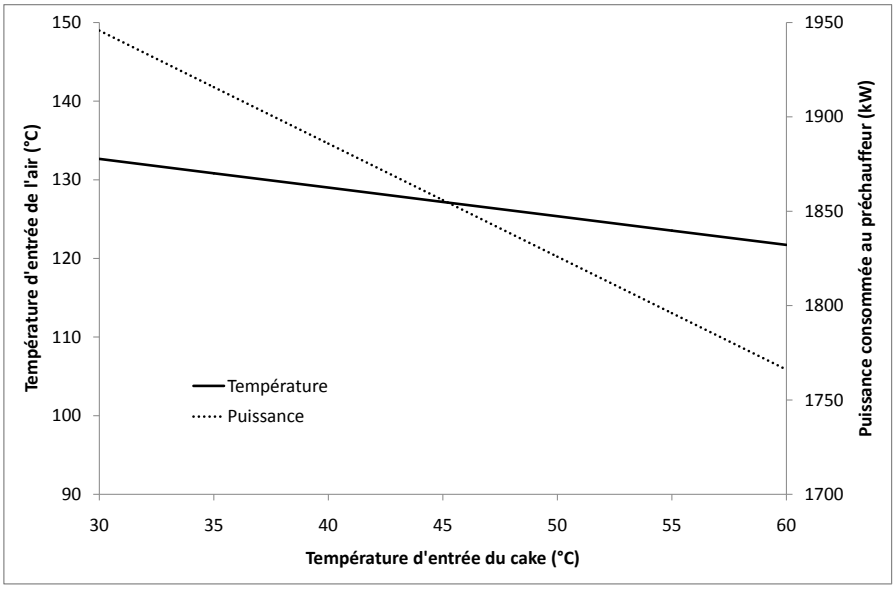


FIGURE 7.9 – Effet de la température du cake sur la puissance consommée.

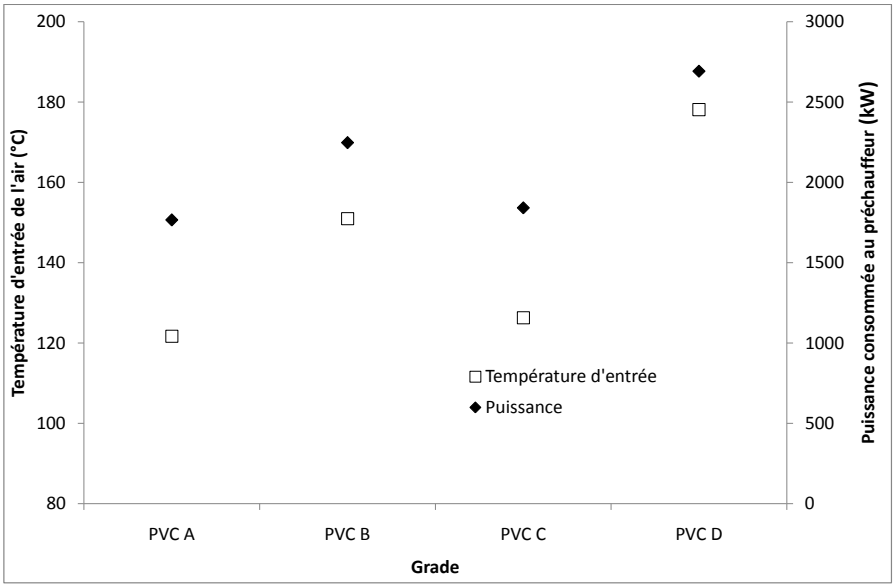


FIGURE 7.10 – Effet du grade de PVC sur la puissance consommée.

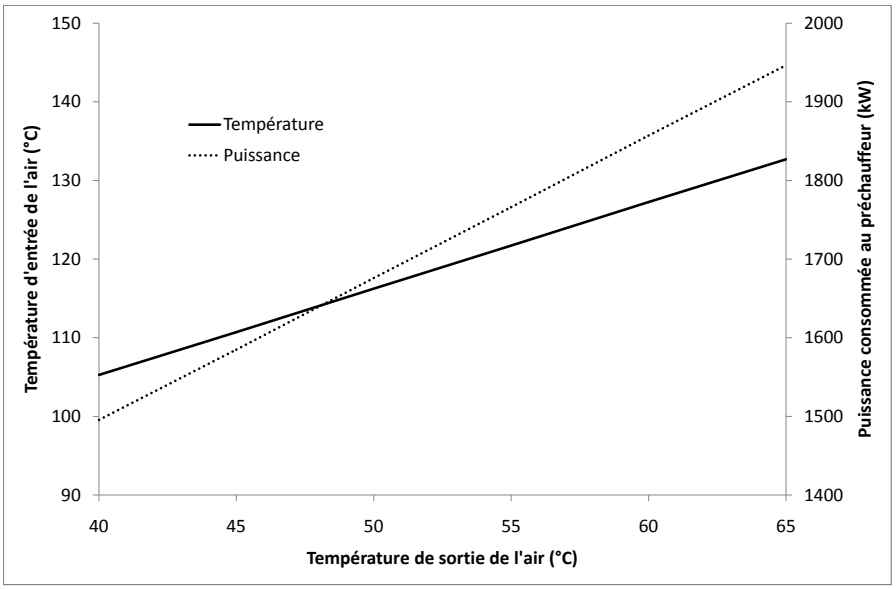


FIGURE 7.11 – Effet de la température de sortie de l'air (paramètre de contrôle du procédé) sur la puissance consommée.

que le traitement d'un grade plus humide nécessite une plus grande puissance à apporter au préchauffeur. Afin d'optimiser la consommation énergétique du procédé, les paramètres opératoires doivent donc être adaptés au grade produit.

Finalement, la Figure 7.11 présente l'influence de la température de sortie de l'air, qui est le paramètre de conduite du procédé. La quantité d'énergie à fournir par le gaz étant la même, une réduction de la température de sortie entraîne une réduction de la température d'entrée, et donc de la puissance à apporter au préchauffeur. Cependant, la température de sortie doit être suffisamment importante pour garantir que l'air ne soit pas saturé en humidité, et éviter les phénomènes de condensation.

7.4 Optimisation du procédé.

7.4.1 Modification de la politique de contrôle du procédé.

Les résultats du modèle entrées/sorties ont montré que, avec les paramètres opératoires actuels du séchoir pneumatique, l'humidité relative de l'air en sortie était seulement de 36%. Il y a donc un grand potentiel d'évaporation non exploité. En pratique, l'humidité relative de l'air en sortie d'un séchoir optimisé est comprise entre 70 et 80% (on garde une sécurité par rapport à la saturation de l'air afin d'amortir les fluctuations du procédé).

Le modèle présenté dans ce chapitre permet de simuler le procédé en prenant comme paramètre de conduite l'humidité relative de l'air en sortie du séchoir pneumatique au lieu de la température. Le Tableau 7.6 résume les paramètres des différents courants du procédé dans le cas d'une telle simulation (avec RH^s=70% comme consigne), et les puissances aux préchauffeurs calculées sont :

– Séchoir pneumatique : $Q_F = 1533$ kW.
– Séchoir à lit fluidisé : $Q_{LF} = 97$ kW.

Cette méthode de contrôle du séchoir pneumatique permet donc d'économiser 12% de la puissance à apporter aux préchauffeurs.

Tableau 7.6 – Données et résultats du modèles entrée/sortie.

Courants	1	2	3	4	5
Débit sec (kg/h)	**8000**	**8000**	**8000**	**54000**	**54000**
Débit humide (kg/h)	9936	8160	8008	54270	54270
Température (°C)	**60**	41,6	**30**	**15**	107,5
Humidité (kg_{eau}/kg_{sec})	**0,242**	**0,02**	**0,001**	**0,005**	**0,005**
Humidité relative (%)	∅	∅	∅	47,3	0,6
Courants	6	7	8	9	10
Débit sec (kg/h)	**54000**	**8000**	**8000**	105	8105
Débit humide (kg/h)	56046	8040	8040	105	8297
Température (°C)	42,1	**15**	54,1	**15**	30,5
Humidité (kg_{eau}/kg_{sec})	0,038	**0,005**	**0,005**	**0,005**	0,024
Humidité relative (%)	**70**	47,3	5,3	47,3	85,0

Afin de réduire la consommation énergétique du séchoir pneumatique, on décide donc de contrôler la température d'entrée de l'air non pas avec la température de sortie, mais avec l'humidité relative de l'air en sortie. Pour cela, on installe un hygromètre en sortie (comme indiqué sur la Figure 7.1 page 193). Contrairement à la sonde de température, cette sonde est installée après les cyclones afin de la protéger contre l'érosion pouvant être provoquée par les chocs avec les particules.

Afin de faciliter la modification du système de contrôle, on impose une consigne de température en fonction de la température de rosée mesurée par l'hygromètre :

$$T_g^s = T_{g_{rosée}}^s + \Delta T, \tag{7.3}$$

avec, T_g^s, la température de l'air en sortie du séchoir pneumatique, et, $T_{g_{rosée}}^s$, sa températures de rosée.

La différence de température ΔT doit être comprise entre 4 et 8°C pour garantir une humidité relative de l'air en sortie entre 70 et 80% (pour des températures comprises entre 40 et 70°C).

Sur l'ensemble du procédé de séchage thermique (quatre lignes de production), cette modification a permis de réaliser une économie de 15 à 20% de la consommation énergétique.

7.4.2 Autres modifications du procédé.

D'autres actions ont été menées afin de réduire la consommation énergétique du procédé de séchage thermique :

- L'échangeur à eaux de centrifugation a été intégré au préchauffeur en configuration "Brûleur" afin d'augmenter la température de l'air en entrée du brûleur.
- Un échangeur visant à refroidir la température de la bouillie en entrée de centrifugation a été supprimé dans le but d'augmenter la température du cake en entrée de séchoir pneumatique.
- Pour causes de risques de départ de feu (fuites de particules chaudes), la gaine du séchoir pneumatique n'était pas calorifugée. Ceci entraînait de lourdes pertes thermiques en parois. Les réparations et le calorifugeage de la gaine ont donc été mis en place.
- Initialement une double enveloppe était installée autour de la gaine du séchoir pneumatique au niveau de l'alimentation en cake. Son rôle était d'éviter que les particules de PVC ne se collent et brûlent au contact des parois du séchoir. Cependant, son efficacité n'étant pas garantie, la décision de la supprimer a été prise, ce qui a permis de diminuer la température de l'air en entrée de séchoir.

L'ensemble de ces actions a permis de réduire encore la consommation énergétique du procédé d'environ 10%.

7.5 Conclusion

Le procédé de séchage thermique d'INEOS ChlorVinyls FRANCE est composé de deux séchoirs installés en série :

- un séchoir pneumatique, qui permet d'éliminer une grande partie de l'humidité contenue dans les particules de PVC,
- et, un séchoir à lit fluidisé dont le rôle et de finaliser le séchage et d'uniformiser le traitement des particules.

Ces séchoirs sont tous deux équipés d'un préchauffeur d'air en entrée, et d'un système de récupération du solide (séparation cyclonique) en sortie. Dans le cas du séchoir pneumatique, le préchauffeur peut être composé, soit d'une batterie de chauffe (composé de divers échangeurs installés en série), soit d'un brûleur à gaz.

Compte tenu des conditions opératoires de ces séchoirs, il est évident que la consommation énergétique du procédé est essentiellement due au fonctionnement du préchauffeur d'air du séchoir pneumatique. Afin de réduire la consommation énergétique du procédé, il est donc nécessaire d'optimiser le fonctionnement du séchoir pneumatique. Certains paramètres d'entrée et de sortie de ce procédé sont directement accessibles à partir du logiciel de conduite, installé dans la salle de contrôle du procédé. Toutefois, l'acquisition de données supplémentaires a nécessité l'organisation de campagnes de mesures. Dans un premier temps, des prises d'échantillons de PVC en entrée et en sortie ont permis de déterminer leurs températures et leurs humidités. Enfin, des piquages ont été réalisés à différents niveaux de la gaine du séchoir pneumatique, afin d'établir les profils d'humidité et de température de l'air le long du séchoir.

Dans le but de mieux comprendre le fonctionnement de ce procédé et d'évaluer sa consommation énergétique, l'ensemble du procédé est simulé par un modèle entrées/sorties. Les résultats de ce modèle confirment que la consommation énergétique du séchoir à lit fluidisé est négligeable devant la consommation du séchoir pneumatique. De plus, les résultats de ce modèle montre que, dans les conditions actuelles, l'humidité relative de l'air en sortie est de seulement 36%. Avec les conditions opératoires actuelles, il y a donc un grand potentiel de séchage inutilisé, c'est à dire, une grande partie de l'énergie apportée au préchauffeur non utilisée.

Ce modèle permet aussi de comparer les deux types de préchauffeur du séchoir pneumatique. Les résultats montrent que l'utilisation du brûleur à gaz permet de réaliser une économie d'utilité de l'ordre de 12%. Il est donc prévu d'étendre ce type de préchauffeur à l'ensemble des quatre lignes du procédé.

Finalement, l'influence des divers paramètres opératoires a pu être mise en évidence grâce à ce modèle. Cette étude a montré que :

- Une augmentation de la température d'entrée du cake permet de réduire la consommation énergétique du procédé.
- Une réduction du débit d'air permettrait de réduire la consommation énergétique de manière conséquente. Cependant, le cake (PVC humide) étant très cohésif, de grandes vitesses d'air sont nécessaires pour améliorer la dispersion des particules. Ceci limite la marge de manœuvre pour ce paramètre.
- L'humidité initiale du cake a un effet prépondérant sur la puissance à apporter au préchauffeur. Il est donc primordial d'adapter les conditions opératoires du procédé au grade en production.

– Finalement, réduire la température de l'air en sortie du séchoir pneumatique (température de consigne) permet de réduire de manière conséquente la consommation énergétique du procédé. Cependant, une température trop basse peut entraîner des phénomènes de condensation (saturation de l'air), nuisibles au bon fonctionnement du séchoir.

Finalement, compte tenu des résultats de ce modèle, diverses propositions d'optimisation ont été formulées. L'optimisation majeure consiste à modifier la méthode de régulation du séchoir, pour prendre en compte, à la fois la température mais aussi l'humidité de l'air en sortie du séchoir pneumatique. Ainsi, un hygromètre, mesurant la température de rosée de l'air, a été installé en sortie gaz des cyclones. Cette sonde, reliée à un régulateur PID, permet d'adapter la température d'entrée du séchoir en fonction de la température de rosée du gaz en sortie, et donc, d'atteindre une humidité relative de l'air en sortie de séchoir comprise entre 70 et 80%. Cette modification permet de réaliser une économie d'énergie de 15 à 20%.

De plus, diverses actions, ne nécessitant pas d'investissement (suppression ou ajout d'échangeurs, calorifugeage des gaines, ...) a permis d'économiser 10% de la consommation énergétique.

Chapitre 8

Modélisation du séchoir pneumatique industriel.

Sommaire

8.1 Principe du modèle. 212
8.2 Présentation et discussion des résultats. 212
8.2.1 Paramètres de simulation. 212
8.2.2 Sensibilité du modèle vis à vis des coefficients de transferts gaz/particules. 213
Étude de sensibilité des paramètres opératoires. 215
8.2.3 Validation du modèle avec les mesures effectuées sur le procédé industriel. 217
8.3 Publication dans le journal Powder Technology. 219
8.4 Conclusion. 233

L'objet de ce chapitre est l'élaboration d'un outil théorique simple permettant de mieux comprendre les phénomènes mis en jeu dans les séchoirs pneumatiques industriels d'une part, et d'analyser les effets des conditions opératoires sur la performance du procédé industriel d'autre part.

Cette étude a fait l'objet d'une publication dans le journal Powder Technology (éditeur : ELSEVIER), présentée à la fin de ce chapitre. On y trouve :

- les problématiques du séchage du PVC en poudre,
- la présentation du modèle cinétique du séchage du PVC et sa validation à partir des résultats obtenus en lit fluidisé à immersion,
- la description (hypothèses et équations) du modèle du séchoir pneumatique,
- une étude de sensibilité du modèle vis à vis des corrélations de la littérature permettant d'estimer les coefficients de transfert de matière et de chaleur gaz/particules,
- une validation des résultats théoriques avec les données expérimentales disponibles dans la littérature et celles obtenues sur le séchoir industriel d'INEOS,
- une étude de sensibilité sur les paramètres opératoires.

Dans ce chapitre, nous présenterons une synthèse des résultats de l'étude réalisée concernant le séchage du PVC en séchoir pneumatique industriel.

8.1 Principe du modèle.

Le modèle présenté repose sur les bilans de matière, enthalpiques, et de quantité de mouvement sur la phase PVC et la phase gaz en tenant compte d'une seule direction de transfert (hauteur du séchoir).

La cinétique de séchage est identique à celle déjà décrite dans le Chapitre 6. Elle considère, dans un premier temps, l'évaporation de l'eau surfacique (phénomène purement convectif) et, dans un second temps, l'évaporation de l'eau contenue dans les pores de la particules. Cette deuxième étape tient compte des phénomènes d'échanges convectifs en surface de la particule, et de diffusion de la vapeur d'eau dans le réseau de pores.

En ce qui concerne les transferts thermiques, seul l'échange convectif en surface des particules est pris en compte.

Les bilans de quantité de mouvement prennent en compte l'influence de la gravité, de la pression, et des frottements en paroi. Les interactions entre phase sont représentées par la force de traînée.

La résolution des équations présentées dans le Tableau 8.1, est effectuée par la méthode de Runge-Kutta à pas variable.

8.2 Présentation et discussion des résultats.

8.2.1 Paramètres de simulation.

Les résultats théoriques sont comparés à ceux disponibles dans la littérature (Baeyens et al., 1995) d'une part, et aux mesures réalisées sur le séchoir pneumatique d'INEOS-ChlorVinyls (lors du séchage du PVC D) d'autre part. Les paramètres utilisés pour effectuer les simulations sont résumés dans le Tableau 8.2.

Tableau 8.1 – Équations régissant le modèle du séchoir pneumatique industriel.

Bilans matières	
$\frac{d}{dz}(\alpha_k \cdot \rho_k \cdot U_k) = \Gamma_k$	(8.1)
$\Gamma_p = -\Gamma_g = -\alpha_p \cdot s_p \cdot K_y \cdot (Y^* - Y)$	(8.2)
Bilans enthalpiques	
$F_k^0 \cdot \frac{dH_k}{dz} = Q_{q\to k} + Q_{w\to k} + A_c \cdot \Gamma_k \cdot H_w^g$	(8.3)
$Q_{g\to p} = -Q_{p\to g} = \alpha_p \cdot A_c \cdot s_p \cdot h \cdot (T_g - T_p)$	(8.4)
$Q_{w\to g} = h_{wall} \cdot (T_{wall} - T_g) \quad et \quad Q_{w\to p} = 0$	(8.5)
Bilans de quantité de mouvement	
$\frac{d}{dz}(\alpha_k \cdot \rho_k \cdot U_k^2) = \alpha_k \cdot \frac{dP}{dz} - \alpha_k \cdot \rho_k \cdot g + I_{q\to k} + (U_p - U_k) \cdot \Gamma_k + F_{f,w\to k}$	(8.6)
$I_{g\to p} = -I_{p\to g} = \frac{3 \cdot \alpha_p \cdot \rho_g \cdot U_r^2 \cdot C_d}{4 \cdot d_p}$	(8.7)
$F_{f,w\to g} = \frac{f \cdot \rho_g}{2 \cdot D_{pipe}} \cdot U_g^2 \quad et \quad F_{f,w\to g} = 0$	(8.8)
Équations de transport de l'humidité	
$\frac{dX}{dz} = \frac{A_c \cdot \Gamma_p}{F_p^0}$	(8.9)
$\frac{dY}{dz} = \frac{A_c \cdot \Gamma_g}{F_g^0} = -\frac{F_p^0}{F_g^0} \cdot \frac{dX}{dz}$	(8.10)

8.2.2 Sensibilité du modèle vis à vis des coefficients de transferts gaz/particules.

La comparaison entre les résultats de simulations effectuées avec différentes corrélations bibliographiques permettant d'estimer les coefficients de transfert gaz/particules et les résultats expérimentaux tirés de la littérature (Baeyens et al., 1995) est présentée sur la Figure 8.1. On constate que les prédictions du modèle sont plus proches des résultats expérimentaux lorsque les corrélations utilisées tiennent compte de l'effet du taux de présence des particules solides sur les coefficients de transfert (Bandrowski and Kaczmarzyk, 1978).

En effet, la prise en compte de ce facteur permet une meilleure estimation des coefficients de transfert dans la zone d'accélération où la vitesse relative entre le gaz et les particules est extrêmement élevée (Figure 8.2).

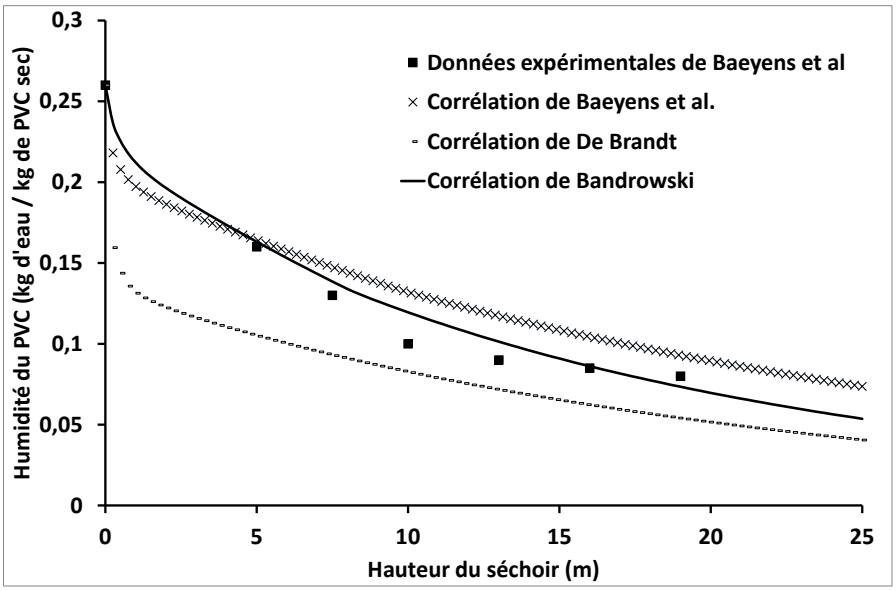


FIGURE 8.1 – Comparaison des résultats du modèle avec les résultats expérimentaux de la littérature : influence des corrélations de la littérature. Evolution de l'humidité du PVC en fonction de la hauteur du séchoir.

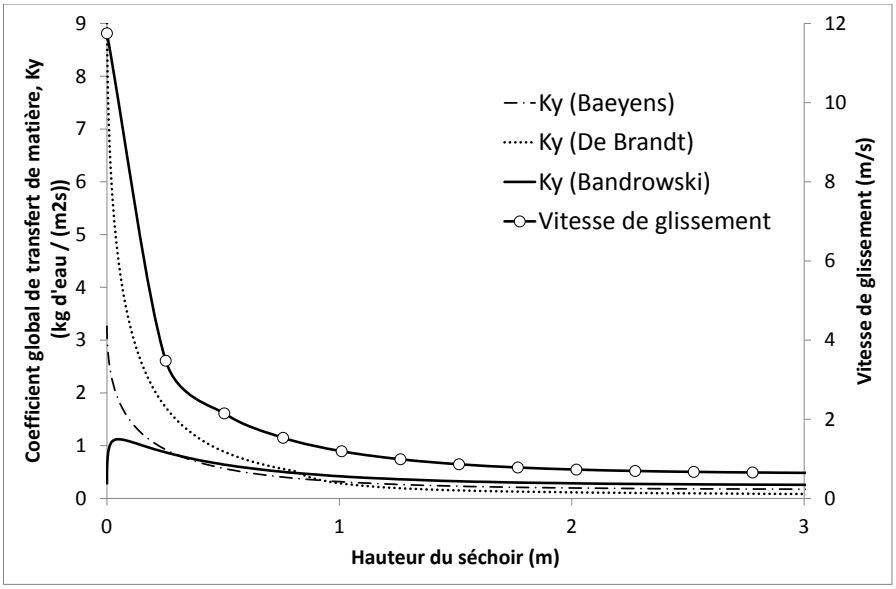


FIGURE 8.2 – Évolution du coefficient global de transfert de matière pour les différentes corrélations de la littérature et de la vitesse relative entre le gaz et les particules en fonction de la hauteur du séchoir.

Tableau 8.2 – Données de simulation (Baeyens et al., 1995).

Données	Baeyens	INEOS
Propriétés des particules		
Diamètre moyen des particules (μm)	180	150
Masse volumique des particules (kg/m^3)	1116	981
Humidité du PVC en entrée (kg_{eau}/kg_{PVCsec})	0,26	0,53
Porosité (-)	0,15	0.30
Tortuosité (-)	8,0	3.1
Géométrie du séchoir		
Diamètre (m)	1,25	1,7
Longueur (m)	25	22
Paramètres opératoires		
Température d'air en entrée (°C)	127	180
Humidité de l'air en entrée (kg_{eau}/kg_{AIRsec})	0,003	0,004
Débit d'air sec (t/h)	46,5	45,0
Débit de PVC sec (t/h)	6,670	8,545
Pertes thermiques (kW/m)	25	25

Étude de sensibilité des paramètres opératoires.

Les Figures 8.4, 8.5, et 8.3 présentent les résultats de sensibilités effectuées sur le modèle du séchoir pneumatique. On y trouve l'influence des trois paramètres étudiés :

– l'humidité de l'air en entrée du séchoir, de 0 à 0,0105 kg d'eau / kg d'air sec. Cette dernière valeur correspond à l'humidité absolue de l'air atmosphérique (15°C) pratiquement saturé en humidité (98,4% d'humidité relative).
– le débit d'air sec, de 25 à 54 t/h,
– la température de l'air en entrée, de 96 à 200°C,

Ces résultats montrent que, dans la plage étudiée, l'humidité de l'air en entrée de séchoir n'influence pas significativement les résultats de modélisation. En effet, une augmentation de ce paramètre de 0 à 0,0105 kg d'eau / kg d'air sec conduit à une augmentation de l'humidité du PVC en sortie de 0,052 à 0,054 kg d'eau / kg de PVC sec. Ce résultat est intéressant, car il montre que les paramètres opératoires du séchoir ne nécessitent pas d'être adaptés en fonction des conditions météorologiques extérieures (paramètres non contrôlables).

En ce qui concerne l'effet du débit d'air, on remarque que pour des valeurs supérieures à 35t/h, le débit d'air sec a peu d'influence sur les résultats de modélisation, alors que son effet est légèrement plus marqué pour des valeurs inférieures :

– une réduction du débit d'air sec de 54 à 35 t/h conduit à une augmentation de l'humidité du PVC en sortie de 0,050 à 0,067 kg d'eau / kg de PVC sec,
– une réduction du débit d'air sec de 35 à 25 t/h conduit à une augmentation de l'humidité du PVC en sortie de 0,067 à 0,099 kg d'eau / kg de PVC sec.

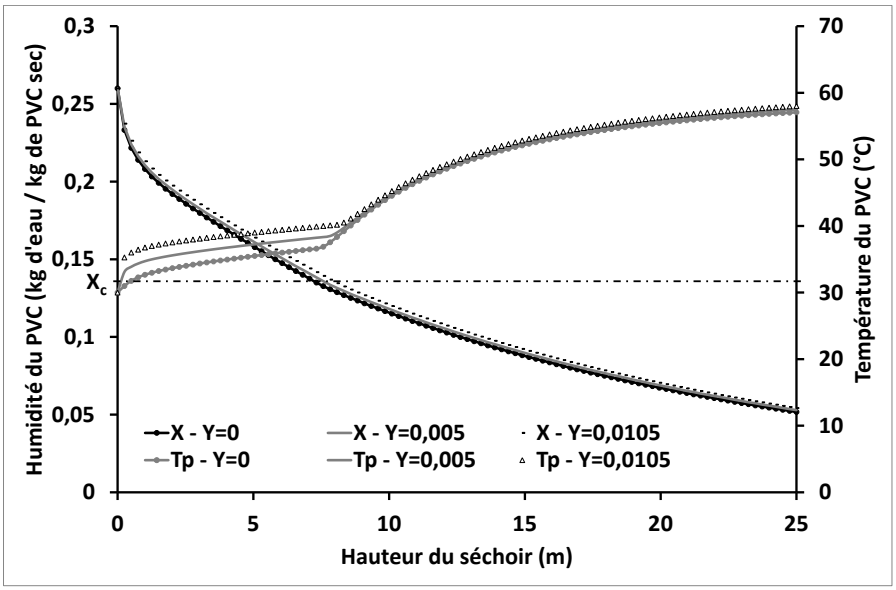


FIGURE 8.3 – Évolution de l'humidité (X) et de la température du PVC (T_p) pour différentes humidités initiales de l'air : 0 ; 0,005 ; 0,0105 kg d'eau / kg d'air sec ($F_g^0 = 46$ t/h et $T_g^e = 126$°C).

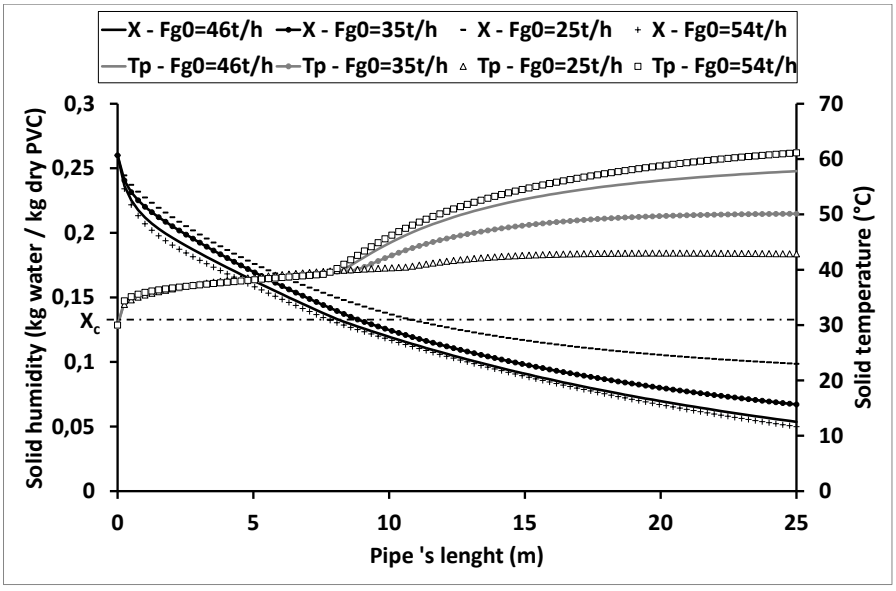


FIGURE 8.4 – Évolution de l'humidité (X) et de la température du PVC (T_p) pour différents débits d'air sec : 25 ; 35 ; 46 ; et 54 t/h ($T_g^e = 126$°C et $Y^e = 8$ g d'eau / kg d'air sec).

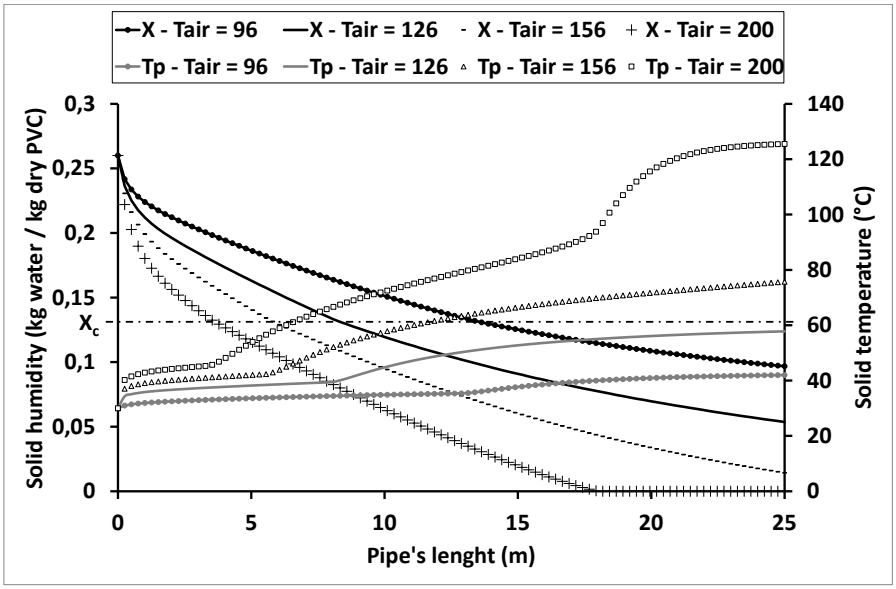


FIGURE 8.5 – Évolution de l'humidité (X) et de la température du PVC (T_p) pour différentes températures initiales de l'air : 96 ; 126 ; 156 ; et 200°C ($F_g^0 = 46$ t/h et $Y^e = 8$ g d'eau / kg d'air sec).

En effet pour de forts débits, l'humidité de l'air en sortie de séchoir est largement inférieure à l'humidité à saturation. Cependant, les fortes valeurs du débit d'air utilisé à l'échelle industrielle sont justifiées par l'effet de ce facteur sur la dispersion du cake à l'entrée du séchoir.

Pour ce qui est de la température de l'air en entrée de séchoir, ce paramètre a un effet dominant sur les performance du séchoir industriel. En effet, une augmentation de ce paramètre de 96 à 156°C conduit à une réduction de l'humidité du PVC en sortie de 0,097 à 0,014 kg d'eau / kg de PVC sec. De plus, on remarque que pour une température d'air en entrée de séchoir de 200°C, le PVC est totalement sec en sortie de séchoir (et même à partir de 18 m de hauteur). Ceci provient du fait que la température de l'air favorise l'opération de séchage sur les plans thermodynamiques et cinétiques.

8.2.3 Validation du modèle avec les mesures effectuées sur le procédé industriel.

La Figure 8.6 présente la comparaison entre les résultats du modèle et les mesures réalisées sur le procédé industriel (évolution de l'humidité et de la température de l'air en fonction de la hauteur du séchoir). Les paramètres géométriques et opératoires du séchoir industriel sont résumés dans le Tableau 8.2.

Cette Figure montre que les profils d'humidité et de température de l'air prédits par le modèle sont proches des mesures réalisées sur le séchoir industriel. Ce modèle simule donc correctement le comportement du séchoir pneumatique industriel. Il peut être utilisé pour

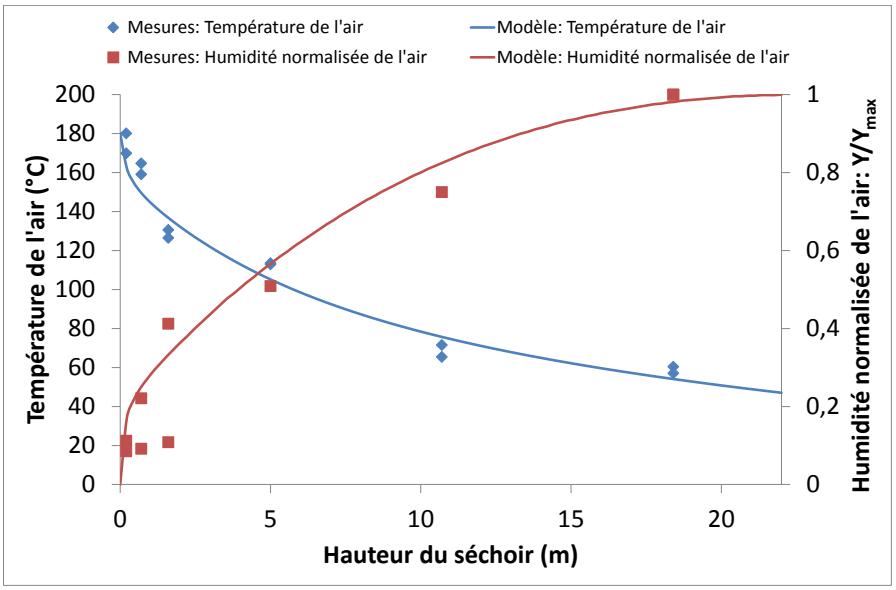


FIGURE 8.6 – Comparaison des résultats de modélisation avec les mesures réalisées sur le procédé industriel.

déterminer les conditions opératoires optimales à fixer en fonction des contraintes industrielles, et donc optimiser la consommation énergétique du procédé. De plus, ce modèle peut être utile dans l'optique d'un dégoulottage de l'unité de production, dans la mesure où les nouvelles conditions n'entraînent pas de complications hydrodynamiques.

8.3 Publication dans le journal Powder Technology.

Author's personal copy

Powder Technology 255 (2014) 120–133

Contents lists available at ScienceDirect

Powder Technology

journal homepage: www.elsevier.com/locate/powtec

Modeling and simulation of drying operations in PVC powder production line: Experimental and theoretical study of drying kinetics on particle scale

Antoine Aubin [a,b,*], Renaud Ansart [a,b], Mehrdji Hemati [a,b], Thierry Lasuye [c], Marc Branly [c]

[a] Université de Toulouse, INPT, UPS, Laboratoire de Génie Chimique, 4 Allée Emile Monso, F-31030 Toulouse, France
[b] CNRS, Laboratoire de Génie Chimique, F-31030 Toulouse, France
[c] INEOS ChlorVinyls France, Chemin des Soldats, F-62670 Mazingarbe, France

ARTICLE INFO

Available online 29 August 2013

Keywords:
PVC
Convective drying
Fluidization
Drying kinetic model
Pneumatic dryer model

ABSTRACT

An experimental method to determine drying kinetic at a particle scale and a pneumatic dryer model are presented. The particle scale kinetics were obtained by immersion of a fixed mass of wet PVC particles (cake) in a batch dense fluidized bed containing inert hot particles (glass bead). It appears clearly that the PVC drying is controlled by a competition between internal and external transfers. The drying kinetic was described by a shrinking core type model and integrated in a one-dimensional steady-state model simulating a pneumatic dryer. A two-phase continuum model was used to describe the steady-state flow of a diluted dispersed phase (wet PVC powder) and a continuous phase (humid air) through dryer. The model takes into account the convective heat, mass and momentum transfers. The numerical results are compared with industrial experimental data. The results show that the inlet temperature is the most important parameter in the operation.

© 2013 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

This study has been realized in the Chemical Engineering Laboratory in Toulouse in partnership with INEOS ChlorVinyls. In PVC powder production line, after the polymerization step, a suspension, composed of water and PVC particles, is obtained. Most of this suspension water is eliminated during a centrifugation step, leading to a wet porous powder, called cake (with a humidity between 0.2 and 0.35 kg of water/kg of dry PVC). The cake drying occurs essentially in a pneumatic dryer coupled with a fluidized bed dryer with a role of eliminating the residual humidity of PVC (less than 0.05 kg of water/kg of dry PVC). This operation, which consumes a lot of energy, between 800 and 1500 kJ/kg dry PVC, in accordance to the operating conditions and the PVC grade, represents 30% of the production cost. With the purpose of reducing drying cost, it is important to understand the different physical phenomena involved (mass transfer, heat transfer, hydrodynamic phenomena specific to the dryers). This study focuses firstly on the acquisition of the kinetics data in a batch dense fluidized bed, and secondly on the modeling of the dehydration of PVC particles in a pneumatic dryer.

The drying kinetic is obtained by immersing a small amount of PVC particles (mean diameter: 143 μm) in a hot fluidized bed filled with glass beads (mean diameter: 324 μm). These bigger particles' role is to suppress the agglomeration phenomena between PVC particles and to realize the drying in isothermal conditions. The experimental results show that the drying kinetic is strongly dependent on air temperature and humidity.

These experimental results were represented according to a kinetic model based on heat and mass exchanges between PVC and air (external transfers), and heat and mass diffusion inside the particle (intern transfers). That kinetic model is then included in a steady-state one-dimensional pneumatic dryer model, which simulates the industrial dryer.

2. Background

Porous media drying is a complex problem and still not well-understood despite of the numerous studies that can be found in the literature, due to the coupled exchanges (mass, heat, and momentum transfers) between the gas and the particles [1], depending on solid particles' morphological parameters and water/solid affinity. As shown in Fig. 1, during the drying of a porous particle, two periods can be distinguished. The first period consists in the elimination of free water located at its surface. In this period the evaporation is controlled by external transfers which can be, in accordance to the dryer technology, e.g., conductive, convective or radiative. In our case (pneumatic and fluidized bed dryer), these transfers are convective and depend on the local relative velocity between air and particles, called slip velocity. These transfers depending on the drying technology have been widely studied, and the literature provides a lot of correlations, sometimes

* Corresponding author at: Université de Toulouse, INPT, UPS, Laboratoire de Génie Chimique, 4 Allée Emile Monso, F-31030 Toulouse, France. Tel.: +33 5 34 32 36 93.
E-mail address: antoine.aubin@ensiacet.fr (A. Aubin).

0032-5910/$ – see front matter © 2013 Elsevier B.V. All rights reserved.
http://dx.doi.org/10.1016/j.powtec.2013.08.019

Author's personal copy

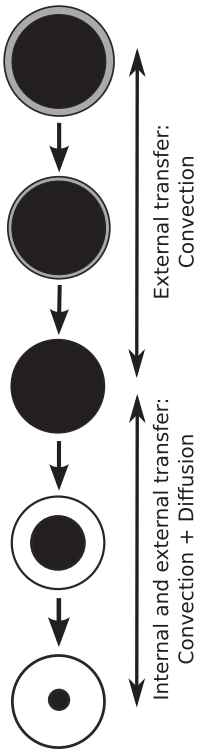


Fig. 1. Different phases of the particle drying.

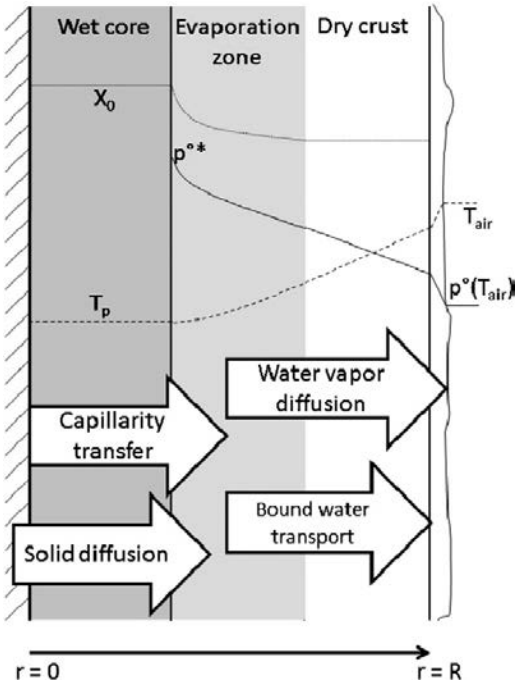


Fig. 2. Internal transfer in a porous particle [23].

contradictory, for its estimation ([2–4]). In the second period, the water located in the particles' pores is eliminated: the drying is controlled by a combination between internal and external transfers. The internal transfers depend on the solid properties and structure. The literature shows that many elementary phenomena may occur during drying. Such phenomena are complex and depend on the structure of the solid particle, the water–solid liaison, and the water composition. These elementary mechanisms, represented in Fig. 2 can be ([5,6]):

- capillary forces, depending on liquid wetting on the solid surface ($\gamma_{LV} \cdot \cos(\theta)$), temperature and particle pore size and distribution. These last properties affect the saturation water vapor tension at the solid/liquid interface and the internal liquid movement in the pores.
- vapor diffusion through the pores under the influence of temperature and water vapor partial pressure,
- solid diffusion, corresponding to bound water migration on the solid surface. This mechanism occurs in the case of a solid partially dissolved in water and with a strong liaison between water and solid (chemical interaction, hydrogen liaisons, …).

Thus, the modeling of a wet particle drying by hot air has to consider: water evaporation at the particle surface during constant drying rate period, and the movement of an evaporation zone between the wet core and the dry crust of the particle. This zone progresses from the particle surface to its core. Several numerical simulations were realized on porous material ([7,8]). The thickness of that drying zone is due to the wetting properties of the liquid in the pores: if the wetting is perfect, the liquid can spread on the pores' internal surface and affect the thermal gradient [9].

In the present case, the wetting properties of PVC, which depends on the superficial tension (γ_{LV}) of the aqueous solution introduced during the polymerization step and the affinity between the solid particles and this solution, are represented by the contact angle (θ). The low values of liquid superficial tension and high values of the contact angle (between 80° and 94.7° [10,11]), lead to suppose that the drying zone could be modeled by a surface of discontinuity.

Concerning the capillarity effect, the pore-size distribution of a PVC particle, presented in Fig. 3, shows that the minimal pore size is about 30 nm. The Kelvin law expresses water activity (p_w/p°) as a function of pore radius and shows that, for pore radius higher than 10 nm, the water activity is equal to 1. Hence the capillary effect does not influence the liquid/water equilibrium in this study. Concerning the solid and liquid diffusion, previous analysis on INEOS's PVC shows that it is non soluble in water and that the PVC has a small affinity

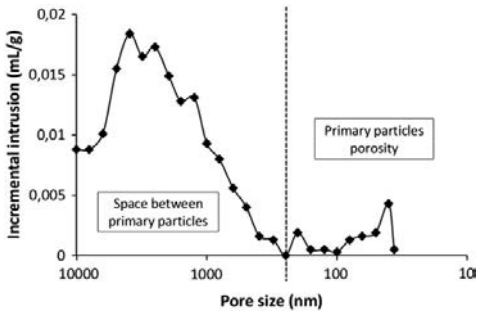


Fig. 3. Pore size distribution of a PVC particle, determined by mercury porosimetry (Micrometrics — Autopore IV).

Author's personal copy

with water. For example, in an atmosphere with 75% of relative humidity, the equilibrium humidity of PVC is 2.4 g of water/kg of dry PVC (at 50 °C). Hence the liquid and solid diffusion can also be neglected in this study, and the only internal transfer remaining is the vapor diffusion. This mechanism is influenced by temperature and water vapor partial pressure gradients.

The SEM picture of a PVC particle (Fig. 4) shows a typical pellet–grain structure [12], indeed each particle is a primary particle stack. With such a structure two pore families can be distinguished (Fig. 3):

- the space between the primary particles (pore size superior to 250 nm), which is macroporosity (the average size of these pores is 3335.6 nm). These pores are dried in the pneumatic dryer (93% of pore volume).
- the primary particles' own porosity (pore size inferior to 250 nm), which is mesoporosity (the average size of these pores is 81.6 nm). These pores are dried in the fluidized bed dryer (7% of pore volume).

A shrinking-core type model is used by numerous authors ([13–16]) to represent the evaporation front evolution with particles having a pellet–grain structure. In this kind of model, the particle is divided into two zones: a wet core, which shrinks over time, and a dry crust, through which the evaporated water diffuses to the particle surface. The elementary mechanisms involved here are conductive heat transfer (from particle surface to its core) and water vapor diffusion through the pores. If the heat transfer leads the drying phenomena, the problem is analogous to the classical Stefan problem for drop evaporation or freezing ([17,18]).

Concerning the pneumatic dryer, this technology is commonly used in order to eliminate free or barely-bound water. A pneumatic dryer is a continuous, convective dryer with a diluted solid transport. This technology presents numerous advantages ([19,20]) such as:

- the short resident time of particles allows the drying of thermosensible product,
- in parallel flow, high temperature can be applied at the inlet, resulting in a high thermal efficiency,
- the dryer can be used as a transport system.

From a hydrodynamic point of view, pneumatic drying is analogous to pneumatic conveying. Hence several pneumatic conveying models ([21,22]) have inspired the pneumatic drying models presented in the literature. These models ([4,23–25]) consider the interactions (mass, heat, and momentum transfer) between a gas phase and a dispersed phase coupled with internal mechanisms.

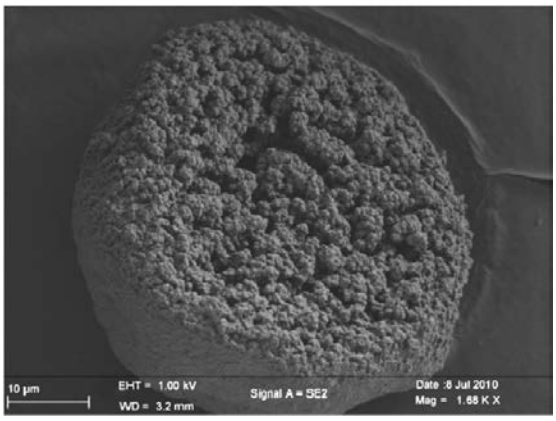


Fig. 4. SEM picture of a PVC particle.

3. Material and methods

The experiments were realized with a cake provided by INEOS Chlorvinyls France (the properties are presented in Table 1). The particle size analysis realized on dry particles shows a Gaussian-type distribution with a mean particle diameter of 144 µm. The characteristic sizes presented in Table 1 are determined by laser granulometry (Malvern Mastersizer 2000–Sirocco 2000 — ±0.1 µm). The particle density, porosity, tortuosity, and pore-size distribution (Fig. 3) were determined by mercury porosimeter on dry product (Micrometrics — Autopore IV — ± 0.1 nm). To determine the cake humidity, different samples were placed in a ventilated oven at 50 °C during 24 h: the cake initial humidity varies between 0.195 and 0.205 kg of water/kg of dry PVC.

Preliminary experiments realized in a convective dryer have shown that the drying kinetic strongly depends on the external conditions (sample weight and thickness, air flowrate, …). The study of the physical phenomena at a particle scale is then difficult to realize. Hence, just as several studies realized in our laboratory, ([26,27]) the drying kinetic is studied by immersing a small sample of wet PVC (about 3 g) in a hot fluidized bed containing 1.3 kg of glass beads with a mean particle diameter of 324 µm (see properties in Table 1).

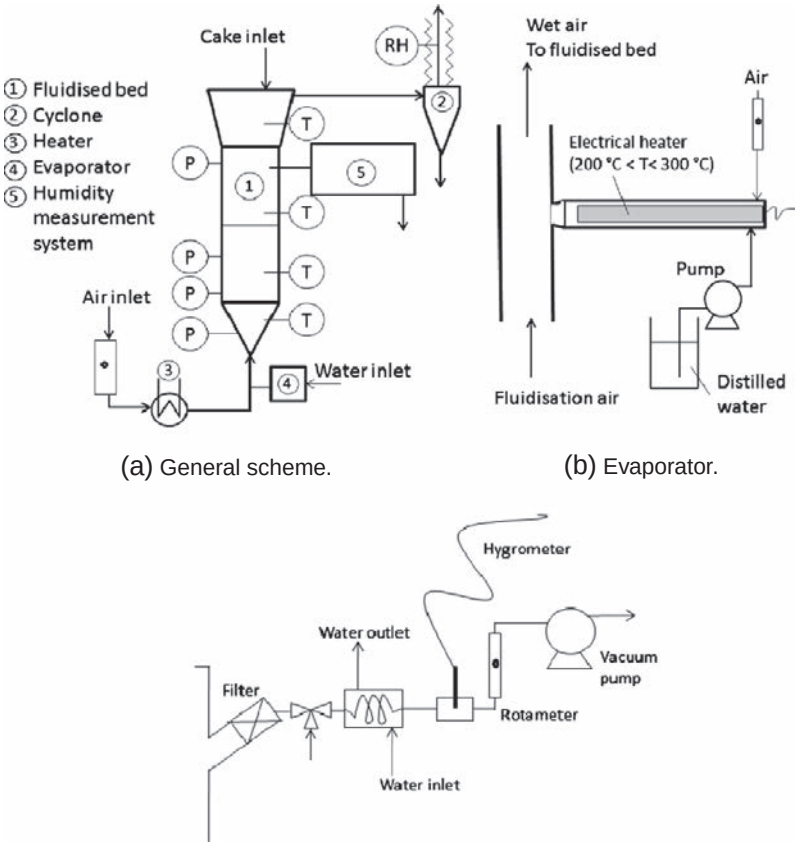
The experimental pilot is represented in Fig. 5. The dryer is composed of a 10 cm diameter and 40 cm height glass column. The presence of an extended section on the top prevents the fine particles to be elutriated. The fluidization air is pre-heated in an electrical heater, and when it is necessary, mixed up with water vapor produces by an evaporator as shown in Fig. 4. A water flowrate is spread on an electrical heater. The water is instantaneously evaporated and carried into the warm air stream. The fluidization flowrates (velocities) are chosen in agreement with the characteristic velocities (minimal fluidization and terminal settling velocity) of PVC particles and glass beads. These values determined at ambient temperatures are presented in Table 1. The air velocity range chosen is from 25 to 40 cm/s, which corresponds to 3 and 4.5 times the minimal fluidization velocity of the glass beads.

The dryer is equipped with several temperatures (±0.1 °C) and pressure (±0.1 mbar) sensors and two capacitive hygrometers (temperature and humidity sensors). As shown in Fig. 4, a vacuum pump collects the wet air to measure its humidity. The measurement system, whose role is to ensure that the humidity measurements are realized at constant conditions (air flowrate and temperature), is equipped with: a filter to prevent particles to damage the sensor, a thermostatic bath to maintain a constant temperature and prevent condensation phenomena, the hygrometer, and a rotameter to maintain a constant flowrate. This hygrometer measures the air dew point with an accuracy of 0.1 °C. This hygrometer measurement is controlled according to a second hygrometer (which measures the relative humidity with an accuracy of 0.1%) placed at the cyclone outlet. To avoid

Table 1
Powder PVC and glass bead physical properties (* experimental measurement ± 0.1 cm/s).

Properties	PVC	Glass beads
d_{50} (µm)	144	324
d_{10} (µm)	104	233
d_{90} (µm)	199	450
$d_{3,2}$ (µm)	139	314
p (kg/m^3)	1175	2500
τ (−)	3.0115	–
χ (%)	37.7	–
λ_p (W/(m · K))	0.17	–
Cp (J/(kg · K))	1670	–
U_{mf}^* (cm/s)	1.2	8.8
U_t (cm/s)	65.3	242.5

Author's personal copy



(a) General scheme. (b) Evaporator.

(c) Humidity measurement system.

Fig. 5. Experimental pilot.

condensation near the sensor, the pipe is heated with heater cables. Both hygrometers are coupled with a data acquisition system, which permits to record the temporal evolution of air humidity.

A previous study, realized on the hygrometers, showed that the response times of the sensors are not neglectable regarding the operation time. Indeed, the response time to a humidity step signal (i.e., transition from a dry air atmosphere to a wet air atmosphere) is about 40 s while the time of the experiments occurring in the fluidized bed is about 1 min (Fig. 6). This study was realized with both hygrometers by switching from a dry air atmosphere to a wet air atmosphere (room atmosphere), according to the three-way valves for the hygrometer placed in the humidity measurement system, and by removing suddenly the sensor from the pilot. The sensor response is modeled by the association of a plug-flow reactor (representing the lag during the first seconds of the experiments) and a batch reactor with a time constant of 9.5 s (Fig. 5). The experimental and numerical responses of the hygrometer to a humidity step are presented in Fig. 5. As this transfer function models correctly the hygrometer behavior, it is used for the kinetic result exploitation and modeling. So it is important to differentiate the experimental kinetic, given by the raw results of the sensor, and the inherent kinetic: the real drying kinetic in the fluidized bed.

The temperature range chosen is from 30 to 60 °C: if the bed temperature is higher than 70 °C the PVC surface becomes sticky and can cause an agglomeration in the bed. The influence of surrounding air relative humidity is studied from 1.2 to 63.1%.

4. Methodology

The temporal evolution of the outlet air relative humidity (RH), recorded during each experiment, permits to calculate at each instant Y, the absolute air humidity (in kg of water/kg of dry air) and so, W_{drying}, the drying flowrate (in g of water/s), knowing the dry air flowrate (F_g^0 in kg/s) going through the dryer:

$$Y = 0.622 \cdot \frac{RH \cdot p^{\circ}(T_h)}{P - RH \cdot p^{\circ}(T_h)} \tag{1}$$

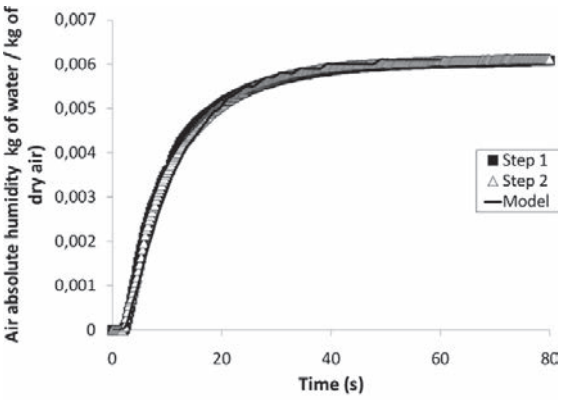
$$p^{\circ}(T_h) = \exp\left(\frac{16.83 \cdot T_h}{228.74 + T_h} + 6.4075\right) \tag{2}$$

$$W_{drying} = F_g^0 \cdot Y \tag{3}$$

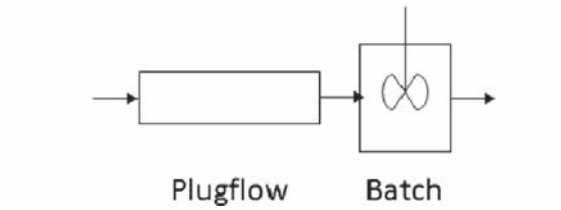
with T_h as the temperature measured by the hygrometer (in °C), $p^{\circ}(T_h)$ as the saturated water vapor pressure at this temperature, and P as the absolute pressure in the dryer.

By integrating the curve representing the temporal evolution of the drying flowrate, the amount of water evaporated during the time t (m_w) and the total amount of water evaporated during the experiments

Author's personal copy



(a) Comparison between numerical and experimental results



(b) Hygrometer transfert function

Fig. 6. Hygrometer response to a step signal.

(m_{w0}) were determined. These informations enable the calculation of the initial (X_0) and the instantaneous (X) solid humidity (with m_0 as the dry sample weight).

$$X = \frac{m_{w0} - m_w}{m_0} \quad \text{and} \quad X_0 = \frac{m_{w0}}{m_0}. \tag{4}$$

The calculated initial humidity corresponds to the initial humidity measured in the ventilated oven at 50 °C during 24 h with an error inferior to 5%.

The temporal evolution of the normalized solid humidity (X/X_0), represented in Fig. 7, is used to determine characteristic times. t_{75}, t_{50}, t_{25}, and the drying time, t_{dry}, correspond to the time necessary for the normalized solid humidity to reach, respectively, 0.75, 0.50, 0.25, and 0.05.

5. Preliminary results

The cake (wet PVC) is a very cohesive powder, so the particles tend to agglomerate themselves. This phenomenon reduces external and internal transfers. Indeed the bigger the particles are, the lower the convective transfer is. In the same way, the internal transfer is reduced with particle agglomerates as the water vapor has a longer diffusion path. So the evolution of outlet air humidity during batch drying is evaluated with cake samples of different masses. The initial calculated humidity was compared to the real sample's humidity. This study showed that the optimal sample mass is between 2 and 4 g of cake. Indeed with inferior mass the sensor precision is too low, and with higher mass the sample is too sticky to disperse and the results are not reproducible. To reduce this phenomenon, the sample is mixed up with glass beads at

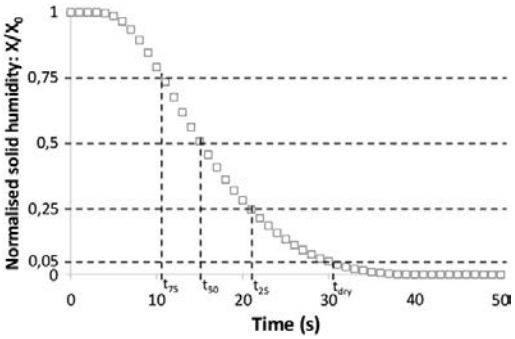


Fig. 7. Definition of the characteristic times.

ambient temperatures before being introduced in the fluidized bed. This proceeding breaks the bounds between wet particles, and so improves the sample dispersion in the bed. Fig. 8 shows that the glass bead mass ratio has an influence until 25%. For higher values, the drying time stays constant. Hence, the following experiments are realized with a glass bead mass ratio of 30%.

Fig. 9a and b shows an example of the results obtained with the experimental conditions summarized in Table 2 (Experiment 1). It can be observed that:

- the drying time is about 30 s, which is close to the response time of the hygrometers,
- there is an initial 3 s lag, due to the sample injection and the time needed for the wet air to reach the hygrometer,
- the absolute air humidity and the drying flowrate have a similar evolution,
- the bed temperature decrease during the experiments stays below 1 °C, which shows that the drying is effectuated in isothermal conditions.

In Fig. 8 the evolutions of the normalized solid humidity versus time for different experiments realized in the same conditions (Exps. 1, 2, & 3) are presented. This figure shows that our experimental system is reproducible and the variance of t_{50} is less than 1 s.

6. Experimental results

Table 2 sums up the experimental data (bed temperature, inlet air absolute humidity, and air velocity) and characteristic times: t_{25}, t_{50},

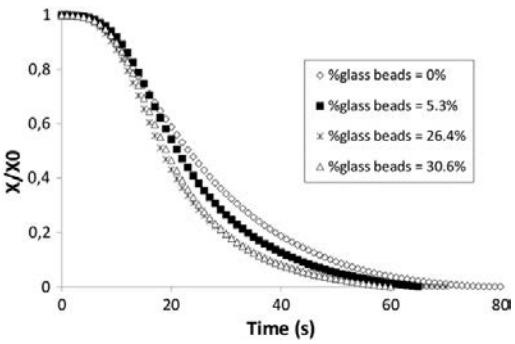
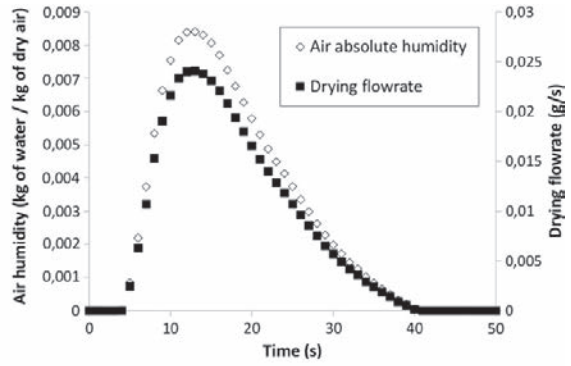
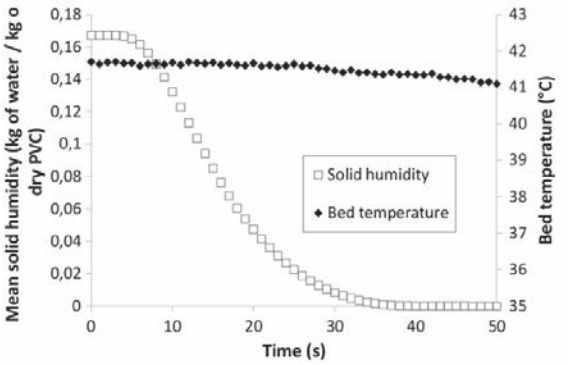


Fig. 8. Evolution of solid humidity for different fraction of glass beads. Air velocity: 32.3 cm/s; T_{bed} = 34.2 °C; cake weight: 2.9 g.

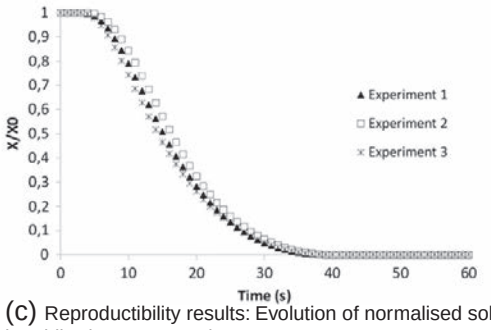
Author's personal copy



(a) Absolute air humidity& drying flowrate evolution (Exp.1)



(b) Solid humidity and bed temperature evolution (Exp. 1)



(c) Reproductibility results: Evolution of normalised solid humidity (Exp. 1, 2, & 3)

Fig. 9. Typical results example obtained during the drying of 2.9 g of wet PVC in fluidized bed at 41.6 °C with an air mass flowrate of 10.8 kg/h.

and t_{75}. Moreover the saturation air humidity (see Eq. (5)) is presented in this table.

$$Y^* = 0.622 \cdot \frac{p^\circ(T_{Bed})}{P - p^\circ(T_{Bed})}. \quad (5)$$

The effect of bed temperature, air velocity, and air initial humidity on the drying kinetic is presented in Figs. 10, 11, and 12. They show that the drying is extremely fast even at low temperature. In the operating conditions used, the drying time stays below 85 s. It is important to note that this is overestimated because of the hygrometer response time. These results also show that even in a strongly stirred dryer, as the fluidized bed, the external transfer resistance is not neglectable. These resistances, controlled by the hydrodynamic parameters of the system, determine the energy and mass flow exchange between the dryer atmosphere and the PVC particles.

Table 2
List of experiments.

Exp.	T_{Bed} (°C)	F_g^0 (kg/h)	Y_0 (g/kg)	Y^* (g/kg)
1	41.6	10.8	0.2	53.9
2	41.2	10.8	0.2	52.7
3	41.9	10.8	0.2	54.9
4	42.6	9.2	0.1	47.2
5	42.5	10.8	0.1	50.9
6	42.5	12.4	0.1	53.6
7	34.2	10.8	0.2	35.1
8	54.9	10.8	0.2	114.6
9	36.6	9.8	0.2	40.4
10	36.5	9.8	5.8	40.2
11	36.5	9.8	9.3	40.2
12	36.7	9.8	16.2	40.6
13	36.6	9.8	19.7	40.4
14	36.7	9.8	25.2	40.6
Exp.	t_{dry} (s)	t_{25} (s)	t_{50} (s)	t_{75} (s)
1	30.0	21.0	15.2	10.7
2	31.1	22.0	16.3	11.8
3	30.1	20.4	14.3	9.9
4	53.0	32.1	21.0	14.4
5	46.4	27.8	19.8	14.6
6	35.8	21.8	15.7	11.5
7	40.8	27.0	18.8	12.9
8	24.2	16.6	11.7	8.0
9	36.5	23.9	17.0	11.6
10	45.5	26.0	18.2	13.0
11	41.3	23.3	17.4	12.7
12	54.7	32.5	23.4	16.8
13	72.4	45.3	28.5	18.7
14	83.6	54.2	36.3	24.3

Indeed, the experimental results in Fig. 10 show that a rise of the air flowrate from 9.2 to 12.4 kg/h decreases the drying time from 53 to 36 s. The higher the air velocity is, the higher the relative velocity between the air and the particles is. Hence, the mass and heat transfers are increased and the drying time is shorter. Regarding the bed temperature effect, the results presented in Fig. 11 show that a rise from 35 to 55 °C strongly decreases the drying time from 40 to 24 s. Indeed, a bed temperature increase will improve the heat transfer between the fluidized bed and the particles but also the mass transfer driving force ($Y^* - Y$).

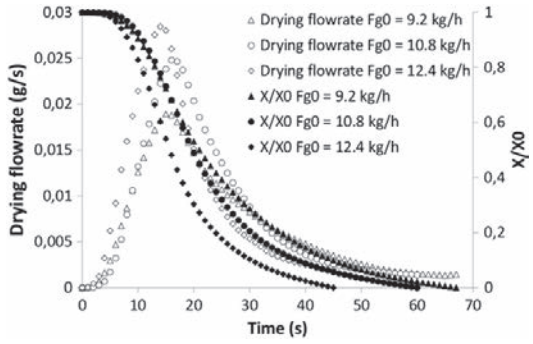
Fig. 12 shows the influence of air humidity on the drying kinetic and drying characteristic times and presents the evolution of the normalized solid humidity versus time. These results show that a rise of the air absolute humidity from 16 to 25 g of water/kg of dry air increases the drying time from 55 to 84 s. This can be explained by the effect of the drying driving force: a rise of initial humidity results to an increase of Y and so there is a drying driving force reduction.

All these results show that the drying kinetic of PVC particles is directed by both external and internal humidity transfer.

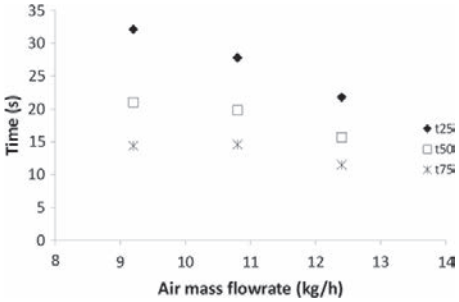
7. Kinetic model

From our experimental results and knowing the properties of the PVC powder, we determined a kinetic law. This law is implemented in a model simulating our experimental setup: the kinetic model. In this section, we described the hypothesis and the equations of this model, and, in order to validate it, we compare its results to our experimental results.

Author's personal copy

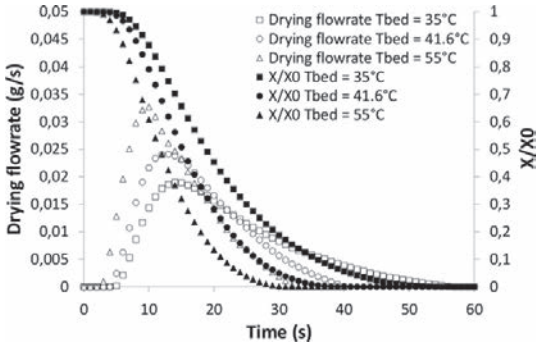


(a) Evolution of drying flowrate and normalised solid humidity versus time

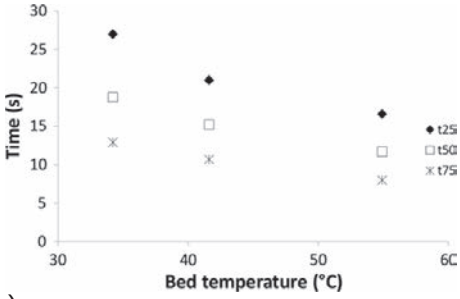


(b) Evolution of characteristic times versus air mass flowrate

Fig. 10. Evolution of drying flowrate, normalized solid humidity, and characteristic times for different air mass flowrate. Exps. 4, 5, & 6.



(a) Evolution of drying flowrate and normalised solid humidity versus time



(b) Evolution of characteristic times versus air temperature

Fig. 11. Evolution of drying flowrate, normalized solid humidity, and characteristic times for different temperatures. Exps. 1, 7, & 8.

7.1. Hypothesis and equations

Knowing the low affinity of water with the PVC surface, the drying inside the particle can be represented by the moving of an evaporation front from the surface to the core of the particle (Fig. 13). The shrinking core model principle is based on the following hypotheses:

- The particles are considered perfectly spherical and uniform.
- The evaporation occurs on the evaporation front.
- The fluidized bed is considered as a stirred tank.
- The wet core humidity and the dry crust humidity are respectively considered equal to the particle initial humidity (X_0) and null.
- The mass transfer is directed by the water vapor diffusion through the dry crust and the convection at the particle surface.
- The heat is transferred from the air to the particle by convection and is diffused in the dry crust by conduction.
- The sample weight is low enough to assure the bed isothermicity.
- The particle temperature is considered uniform. This hypothesis can be justified by the low value of the thermal Biot number. In addition, this hypothesis has been justified with an analog model calculating the temperature profile in the dry crust.
- The instantaneous profile of the air humidity in the dry crust is obtained with the quasi-stationary state hypothesis.

The equations of the model, solved with the variable steps Runge–Kutta method, are presented below:

- Water vapor flux density at particle surface:

$$N_{w|R} = \frac{k_y}{Bi_M \cdot (1-R/r_c)+1} \cdot (Y^* - Y), \tag{6}$$

- with Bi_M the mass Biot number, defined as:

$$Bi_M = \frac{k_y \cdot R}{D_{app} \cdot \rho_g}. \tag{7}$$

- Mass balance on the particle:

$$\frac{d\overline{X}}{dt} = -\frac{6 \cdot N_{w|R}}{\rho_p \cdot d_p}. \tag{8}$$

- Instantaneous solid humidity:

$$\overline{X} = \left(\frac{d_c}{d_p}\right)^3 \cdot X_0. \tag{9}$$

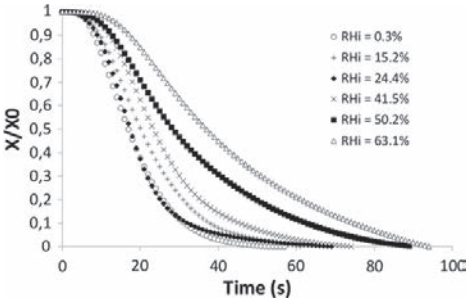
- Wet core radius evolution:

$$\frac{dr_c}{dt} = \frac{-k_y \cdot R^2}{\rho_p \cdot r_c \cdot [Bi_M \cdot (R-r_c)+r_c]} \cdot \frac{Y^* - Y}{X_0}. \tag{10}$$

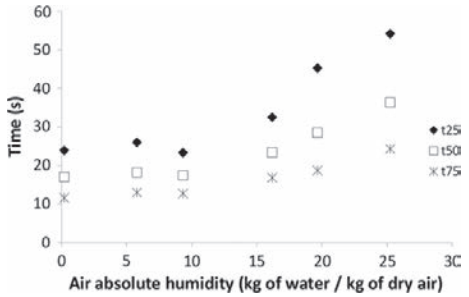
- Heat balance on the particle

$$\rho_p \cdot Cp_h \cdot \frac{dT_p}{dt} = \frac{3 \cdot h}{R} \cdot \left(T^\infty - T_p\right) - \rho_p \cdot \Delta H_V \cdot \frac{d\overline{X}}{dt}, \tag{11}$$

Author's personal copy



(a) Evolution of the normalised solid humidity versus time



(b) Evolution of characteristic times versus inlet air absolute humidity

Fig. 12. Evolution of the normalized solid humidity and characteristic times for different initial relative humidity. Exps. 9 to 14.

- with Cp_h the specific heat of the wet particle, defined as:

$$Cp_h = Cp_p + X \cdot Cp_l. \tag{12}$$

To solve these equations, the apparent diffusion and the mass and heat transfer coefficients are calculated using the below correlations:

- The apparent diffusion coefficient is calculated from the binary molecular diffusion coefficient.

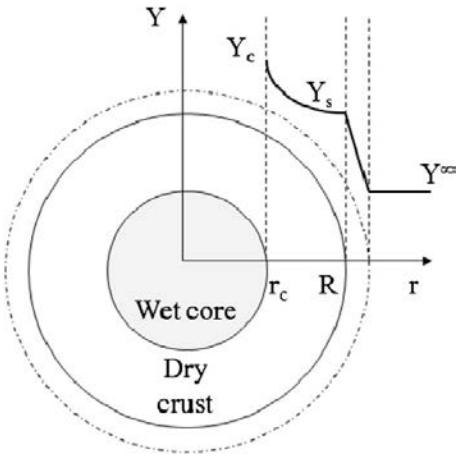


Fig. 13. Shrinking core model.

$$D_{app} = D_{air-H_2O} \cdot \frac{\chi}{\tau} \tag{13}$$

- with χ and τ given in Table 1. The binary molecular diffusion coefficient is calculated from the Fuller, Schettler, and Giddings correlation [28]:

$$D_{air-H_2O} = 1.1757 \times 10^{-9} \cdot T_g^{1.75}. \tag{14}$$

- The heat transfer coefficient is calculated from the Baeyens correlation [29]:

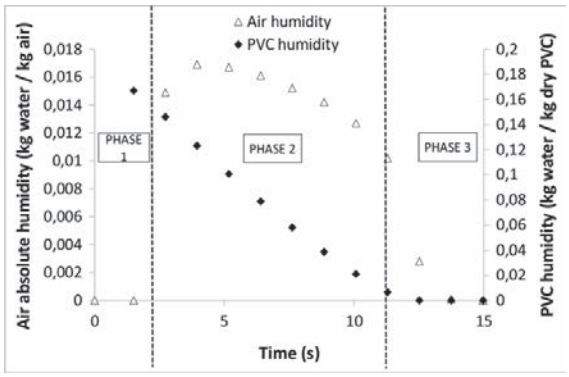
$$Nu = 0.15 \cdot Re. \tag{15}$$

- The mass transfer coefficient is calculated from the Chilton and Colburn analogy, which is classically used in drying:

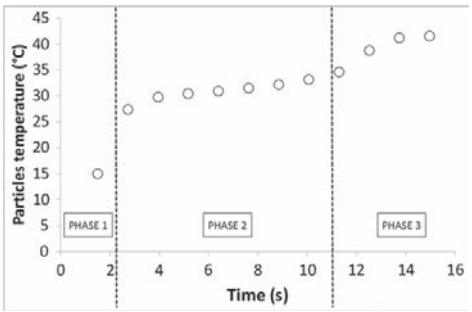
$$\frac{h}{k_y} = Cp_h \cdot \left(\frac{Sc}{Pr}\right)^{2/3}. \tag{16}$$

7.2. Model validation

In Figs. 14 and 15 typical numerical results are presented. These results show that the real drying time is about 11 s, which is four



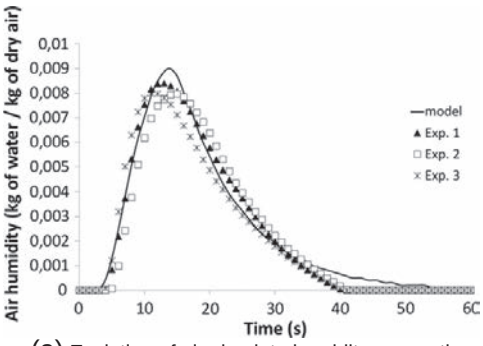
(a) Evolution of air absolute humidity and PVC humidity



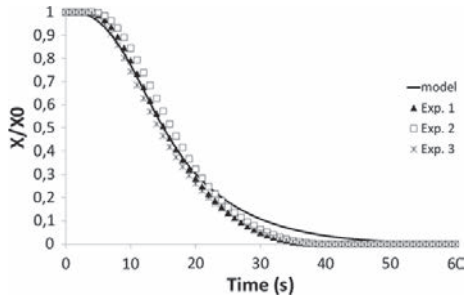
(b) Evolution of particle temperature

Fig. 14. Modeling results: inherent kinetic. Operating parameters: $Y^{\infty} = 0$ kg/kg; $T^{\infty} = 41.6$ °C; $F_g^0 = 9.87$ kg/h; $X_0 = 0.167$ kg/kg; $T_0 = 15$ °C; $m_0 = 2.487$ g.

Author's personal copy



(a) Evolution of air absolute humidity versus time



(b) Evolution of PVC normalised humidity versus time

Fig. 15. Comparison between experimental and numerical results. Drying of 2.9 g of wet PVC in fluidized bed at 41.6 °C with an air velocity of 32.3 cm/s.

times faster than the time observed with the hygrometer and that the drying operation occurs in three phases:

- The sample warming-up period, from 0 to 3 s (phase 1).
- The constant drying rate period, from 3 to 10.5 s (phase 2).
- The falling drying rate period, from 10.5 to 13 s (phase 3).

In order to compare the numerical results with the experimental data, the hygrometer transfer function is integrated in the model. The theoretical results are compared with the experimental finding (Exps. 1, 2, and 3). Fig. 15 indicates a good concordance between the model predictions and the experimental data.

To have a better understanding of the relative influence of the internal and external resistances to mass transfer, the sensitivity of the mass Biot number was studied. Its expression is remembered below:

$$Bi_M = \frac{k_y \cdot R}{D_{app} \cdot \rho_g} = \frac{k_y/\rho_g}{D_{app}/R} \tag{17}$$

$$= \frac{\text{internal resistance}}{\text{external resistance}}.$$

In the previous simulation conditions, the Biot number estimated by the model is equal to 1.44, which means a competition between both transfer resistances. Fig. 16 shows the outlet air absolute humidity evolution versus time for different Biot number values (from 0.1 to 10 times the Biot number calculated by the model). These results show that the drying is longer and more difficult with the high Biot number. So

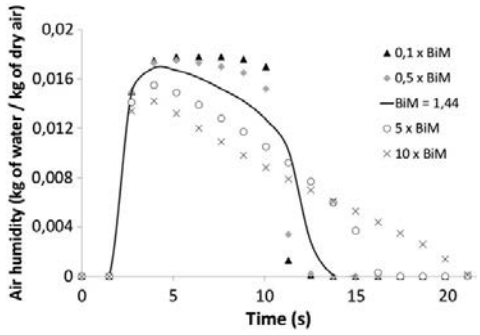


Fig. 16. Air absolute humidity evolution versus time for different Biot number values.

in our case, the external resistance is not negligible in front of internal resistance. This phenomenon can be explained by the morphological parameters of PVC particles. The low internal resistance can be attributed to the evaporation of water inside the macroporosity of small particles and to the low affinity with water.

The model considers a monodisperse granulometry, while in reality the PSD shows a Gaussian-type distribution (d_{10}, d_{50}, and d_{90} presented in Table 1). Fig. 17 shows that, in our case, the particle diameter has a small influence on the characteristic times. So, the monodisperse hypothesis does not alter significantly the model results.

Fig. 18 shows the comparison between the characteristic times given by the model and by the experimental data. These results show that the model predicts correctly the effect of: bed temperature (Fig. 17), inlet air humidity between 0 and 16 g of water/kg of dry air (Fig. 17), and fluidization air flowrate up to 11 kg/s (Fig. 17), on the characteristic times. Besides, at lower air fluidization air flowrate and at higher inlet air humidity (>16 g of water/kg of dry air) the model underestimates the characteristic times, especially t_{25}.

This phenomenon can be explained by different reasons:

- The effect of inlet air humidity and fluidization air flowrate on the cake dispersion. Indeed, a rise of inlet humidity and a decrease of fluidization flowrate disfavor this phenomenon.
- The effect of air humidity on the local equilibrium, which is not taken into account.
- And by considering the PVC particle as a homogeneous media (i.e., a uniform pore size). Indeed, an increase of air humidity can lead to a slow down of the drying rate. Moreover, the presence of mesoporosity in the PVC particles can explain the gaps observed, especially at the

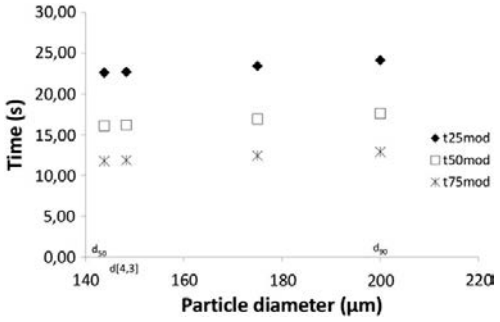
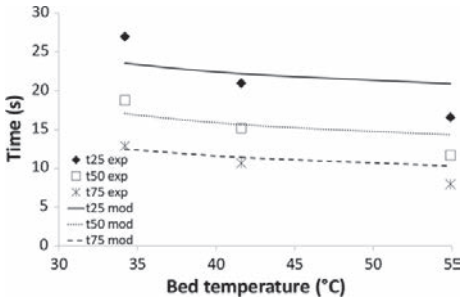
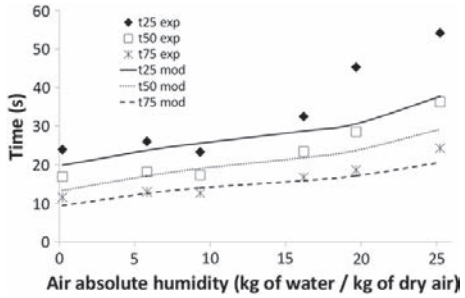


Fig. 17. Influence of particle diameter on the characteristic times.

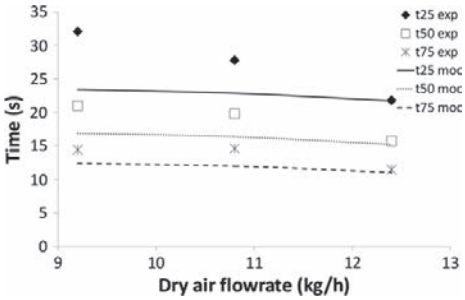
Author's personal copy



(a) Influence of the bed temperature



(b) Influence of the air inlet humidity



(c) Influence of the dry air flowrate

Fig. 18. Comparison of experimental and numerical characteristic times.

end of the drying operations. In that case, transfers are controlled by a combination between molecular and Knudsen diffusion.

8. Pneumatic dryer model

The aim of this study is to model a pneumatic dryer (macroscopic model) using the particle scale kinetics previously elaborated. As shown in Fig. 1, the drying occurs in two periods:

- the removal of surface water, which is governed by a convective mechanism.
- the removal of pore water, which is driven by convective and diffusive mechanisms. This period is modeled with the shrinking core model described in the previous parts.

8.1. Hypothesis and equations

In this model, a two-phase continuum model was used to describe the steady-state flow of a diluted dispersed phase (wet powder) and a continuous phase through a pneumatic dryer. The model is based on the following assumptions:

- Mass, energy and momentum balances occur between the two phases.
- The friction forces between the dispersed phase and the wall can be neglected.
- The continuous phase, composed of a mixture of water vapor and other gas, is considered as an ideal gas.
- The particles are spherical and composed of a homogeneous porous matrix.
- The particle size distribution is considered as monodisperse.
- Electrostatic forces and surface tension effects are neglected.
- The wall heat loss is neglected.

The mass, energy, and momentum balances developed in one-dimensional steady-state for the k-phase and the transport equations for solid and gas humidity, deducted from the mass balances are presented below. In this work, the k-phase can be either the gas phase ($k = g$) or the particle phase ($k = p$).

- Mass balance:

$$\frac{d}{dz}(\alpha_k \cdot \rho_k \cdot U_k) = \Gamma_k \tag{18}$$

- with Γ_k the volume rate of mass transfer of the k-phase, expressed from the water vapor flow density N_w:

$$\Gamma_p = -\Gamma_g = -\alpha_p \cdot s_p \cdot N_w \tag{19}$$

- where α_p is the local volume fraction of solid and s_p the specific surface area of a particle. The water vapor flux density can be expressed as the product of a "global mass-transfer coefficient" and the drying driving force:

$$N_w = K_y \cdot (Y^* - Y). \tag{20}$$

- The global mass-transfer coefficient is expressed as a function of the mass Biot number (as seen in the previous part in Eq. (6)): 0.43

$$K_y = \frac{k_y}{Bi_M \cdot \left[\left(\frac{X}{X_0}\right)^{-1/3} - 1\right] + 1} \cdot \frac{1}{X_0 - X_c}. \tag{21}$$

- Eq. (21) is valuable for solid humidity less than or equal to the critical humidity, X_c:

$$X_c = \frac{\rho_{water} \cdot \chi}{\rho_p}. \tag{22}$$

- This case is commonly observed when the pneumatic dryer is fed by a cake obtained by an efficient centrifugation. In opposite, when the initial humidity is greater than X_c, the evaporation takes place essentially on a continuous liquid film at the particle surface (convective transfer). The reduction of this film thickness during the evaporation decreases the drying surface. In this case the global mass transfer coefficient can be estimated by:

$$K_y = k_y \cdot \left(\frac{\rho_p \cdot X}{\rho_{water}} + 1 - \chi\right)^{2/3} \quad \text{for } X > X_c. \tag{23}$$

- Energy balance:

$$F_k^0 \cdot \frac{dH_k}{dz} = Q_{q \to k} + Q_{w \to k} + A_c \cdot \Gamma_k \cdot H_w^g \tag{24}$$

Author's personal copy

- with $Q_{q\to k}$ as the energy exchanged from the q-phase to the k-phase and $Q_{w\to k}$ is the heat loss of the k-phase.

$$Q_{g\to p} = -Q_{p\to g} = \alpha_p \cdot A_c \cdot s_p \cdot h \cdot \left(T_g - T_p\right) \tag{25}$$

- where A_c is the pipe cross section, h is the heat-transfer coefficient, and T_p and T_g, are the solid and gas phase temperatures, respectively. As the solid flow is very diluted, the heat loss of the solid phase is neglected; for the gas phase it is expressed as:

$$Q_{w\to g} = h_{wall} \cdot \left(T_{wall} - T_g\right). \tag{26}$$

- Momentum balance:

$$\frac{d}{dz}\left(\alpha_k \cdot \rho_k \cdot U_k^2\right) = \alpha_k \cdot \frac{dP}{dz} - \alpha_k \cdot \rho_k \cdot g + I_{q\to k} + \left(U_p - U_k\right) \cdot \Gamma_k + F_{f,w\to k}. \tag{27}$$

- The first two terms on the right-hand side of this equation represent, respectively, the influence of pressure and gravity on the flows, $I_{q\to k}$ represents the interactions between the phases and $F_{f,w\to k}$ represents the friction forces between the wall and the k-phase. In this model, the only interaction taken into account is the drag:

$$I_{g\to p} = -I_{p\to g} = \frac{3 \cdot \alpha_p \cdot \rho_g \cdot U_r^2 \cdot C_d}{4 \cdot d_p} \tag{28}$$

- where U_r is the slip velocity ($U_r = U_g - U_p$). The drag coefficient, C_d is calculated by the Wen and Yu correlation [30]:

$$C_d = \frac{24}{Re}\left(1 + 0.15 \cdot Re^{0.687}\right) \cdot \alpha_g^{-1.7}. \tag{29}$$

- The friction force between the pipe and the continuous phase is estimated by:

$$F_{f,w\to g} = \frac{f \cdot \rho_g}{2 \cdot D_{pipe}} \cdot U_g^2. \tag{30}$$

- The friction factor, f, is calculated by the Blasius formula:

$$f = \frac{64}{Re_{pipe}} \quad \text{if } Re_{pipe} < 2100 \tag{31}$$

$$f = \frac{0.0791}{Re_{pipe}^{1/4}} \quad \text{if } Re_{pipe} > 10,000. \tag{32}$$

- As the solid flow is much diluted, the particle friction forces are neglected.
- Humidity transport equations:

$$\frac{dX}{dz} = \frac{A_c \cdot \Gamma_p}{F_p^0} \tag{33}$$

$$\frac{dY}{dz} = \frac{A_c \cdot \Gamma_g}{F_g^0} = -\frac{F_p^0}{F_g^0} \cdot \frac{dX}{dz} \tag{34}$$

- with F_p^0 and F_g^0 as the dry flowrate of the solid and gas phases.
- Transfer coefficients

Some dimensionless empirical correlations can be used to calculate the heat-transfer coefficient in a pneumatic dryer:

- Baeyens correlation [29] see Eq. (15),
- De Brandt correlation [29]:

$$Nu = 0.16 \cdot Re^{1.3} \cdot Pr^{0.67} \tag{35}$$

- Bandrowski correlation [31]

$$Nu = 0.00114 \cdot \alpha_p^{-0.5984} \cdot Re^{0.8159} \tag{36}$$

The Chilton and Colburn analogy (see Eq. (16)) is used in order to calculate the mass transfer coefficient.

Baeyebs and De Brandt correlations predict the transfer coefficient in a diluted phase. In order to model the effects of collisions between particles on the transfer rate, Bandrowski correlation [31] expressed the Nusselt number as a function of the solid volume fraction, α_p. This relation indicates that in the inlet section of a pneumatic dryer, the important value of α_p can counterbalance the high values of slip velocity. In other words, it takes into account the effect of solid dispersion in the inlet zone.

9. Results and discussion

Firstly, the model predictions are compared with the experimental measurements effectuated by Baeyens [29] on an industrial pneumatic dryer. Secondly, they are confronted with our preliminary industrial results obtained at INEOS ChlorVinyls company.

The simulation data, PVC properties, geometrical and operating parameters, are resumed in Table 3.

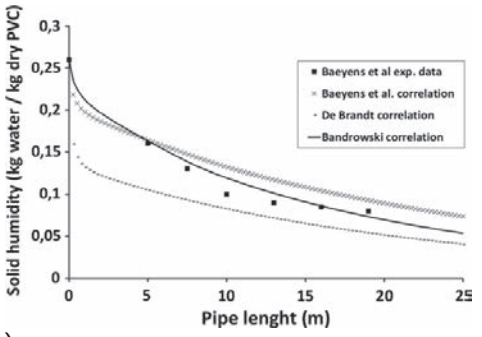
9.1. Comparison with literature findings

In the case of the industrial experiments published by Baeyens [29], the inlet PVC humidity (0.26) is greater than the critical humidity (0.134), so the drying rate is controlled by a two stage process. The first stage corresponds to the surface water evaporation and the second to the pore water evaporation. Fig. 19 represents the theoretical results obtained using the different correlations previously presented and the experimental measurements effectuated by Baeyens [29] on an industrial process. Fig. 18 represents the evolution of solid humidity versus

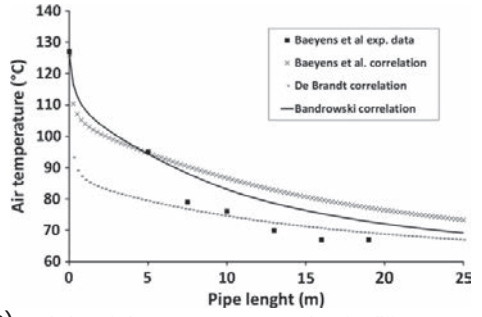
Table 3
Simulation data [29].

Data	Baeyens	INEOS
Particle properties		
Mean particles diameter (μm)	180	160
Solid density (kg/m^3)	1116	1016
Inlet PVC humidity (kg/kg)	0.26	0.33
Porosity (−)	0.15	0.367
Tortuosity (−)	8.0	3.2562
Dryer geometry		
Pipe diameter (m)	1.25	1.7
Pipe length (m)	25	22
Operating parameters		
Inlet air temperature (°C)	127	180
Inlet air humidity (kg/kg)	0.003	0.004
Dry air flowrate (t/h)	46.48	45
Dry PVC flowrate (t/h)	6.670	8.545
Thermal loss (kW/m)	25	25

Author's personal copy



(a) Evolution of solid humidity versus time for different correlations



(b) Evolution of air temperature versus time for different correlations

Fig. 19. Comparison between experimental and numerical results for different correlations.

pipe length while Fig. 18 represents the evolution of air temperature versus pipe length.

The differences observed between experimental data and theoretical results can be explained by the worst dispersion of the wet cohesive PVC in the gas phase at the pipe's inlet zone. The theoretical results which fit the best the experimental data were obtained using the Bandrowski correlation. This can be explained by the effect of the slip velocity on the Reynolds number, and so on the heat and mass transfer coefficients. As shown in Fig. 20, this magnitude is really important at the inlet and progressively decreases along the dryer. This leads to very important variations of the transfer coefficients (see Fig. 21). In the Bandrowski correlation, this effect is attenuated by the solid volume fraction of the dispersed phase.

9.2. Comparison with INEOS ChlorVinyls results

To establish the humidity and temperature profiles along the pneumatic dryer, INEOS' industrial dryer is equipped with several

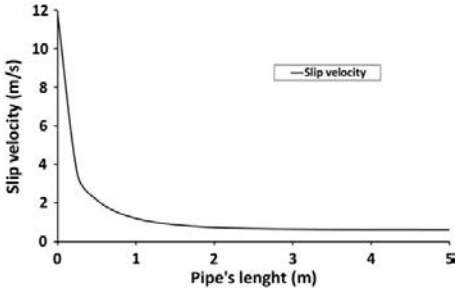


Fig. 20. Evolution of slip velocity versus pipe length.

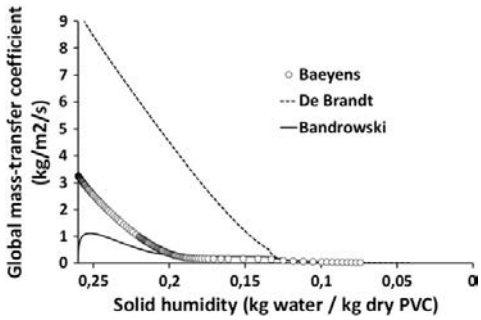


Fig. 21. Evolution of global mass transfer coefficient versus solid humidity for different correlations.

hygrometers and thermocouples. Fig. 22 shows the comparison between industrial data and numerical results obtained using the Bandrowski correlation. It can be noticed that the temperature profile is correct while some differences appear on the drying flowrate evolution: in the industrial dryer, the humidity is barely constant in the first meters while in the model results, humidity rises strongly. This is due to the dispersion phenomenon (not taken into account in the model) which slows down the drying in the acceleration zone.

9.3. Parameter study

The results of the following simulations were obtained using the Bandrowski correlation and Baeyens parameters (see Table 3).

The effect of dry air mass flowrate was examined between 25 and 46.4 t/h. As shown in Fig. 23, this parameter has a small influence on the drying rate above 35 t/h. The air velocity influences the drying rate only in the acceleration zone, then the slip velocity is equal to the terminal settling velocity. At the dryer outlet the air is far to be saturated, so the decrease of the dry air flowrate does not affect the drying driving force significantly (e.g., a decrease of dry air flowrate from 46 t/h to 35 t/h increases the outlet solid humidity from 0.054 to 0.067 kg water/kg dry PVC, and a decrease of dry air flowrate from 35 t/h to 25 t/h increases the outlet solid humidity from 0.067 to 0.097 kg water/kg dry PVC).

Concerning the inlet air temperature, Fig. 24 shows a dominant effect (e.g., an increase of inlet air temperature from 96 °C to 156 °C decreases the outlet solid humidity from 0.097 to 0.014 kg water/kg dry PVC). Indeed, increasing the temperature leads to a more important heat-transfer driving force. But as the equilibrium humidity depends on the temperature, it will also increase the mass-transfer driving force.

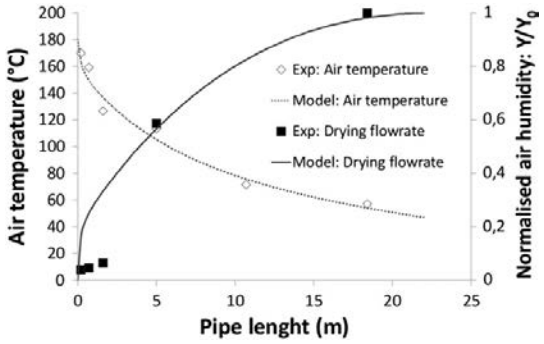


Fig. 22. Comparison between numerical results and INEOS industrial data.

Author's personal copy

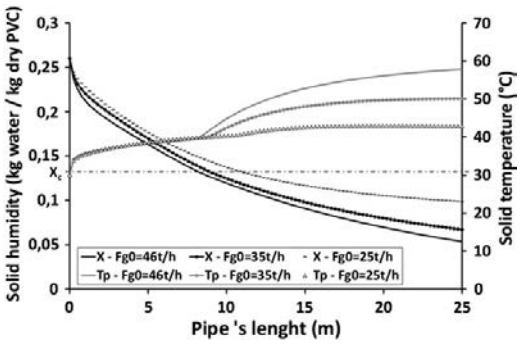


Fig. 23. Evolution of solid humidity and temperature versus pipe length for different dry air flowrates: 46.4, 35, and 25 t/h.

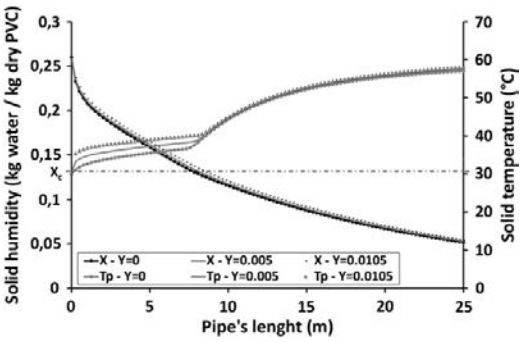


Fig. 25. Evolution of solid humidity and temperature versus pipe length for different inlet air humidity.

The inlet air humidity effects were investigated between 0 and 0.0105 kg water/kg dry air. The last value corresponds to an atmospheric air (15 °C) almost saturated (98.4% of relative humidity). As shown in Fig. 25, such an increase of inlet air humidity increases the outlet solid humidity from 0.052 to 0.054 kg water/kg dry PVC. This increase shows that the inlet air humidity, which is a sustained parameter, slightly influences the drying driving force. It can be noticed that the solid temperature is influenced by:

- the dry air flowrate during the falling drying rate period only,
- the air humidity during the constant drying rate period only, and
- the air temperature influences it during both periods.

In fact the temperature stage value of the constant drying period is controlled by the drying driving forces. As shown in Eqs. (19) and (20), this force depends only on the air humidity, Y^{∞}, and the equilibrium humidity, Y^{*}, which is directly related to the solid temperature. In the falling drying rate period, the solid temperature increases until the thermal equilibrium with the air, this equilibrium is controlled by the dry air flowrate and temperature.

10. Conclusion

An experimental and numerical protocol was developed to study the drying kinetic of porous media at the particle scale. The results show the significant influence of the operating parameters, essentially air temperature and humidity. It appears clearly that the PVC drying is controlled by a competition between internal and external transfers. The use of a shrinking-core type model to simulate the particle-scale drying was confirmed by the experimental results.

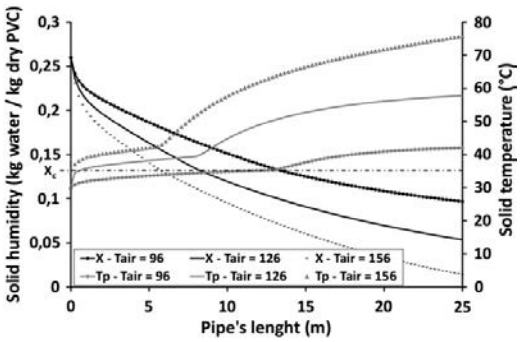


Fig. 24. Evolution of solid humidity and temperature versus pipe length for different inlet temperatures: 126, 96, and 156 °C.

PVC is essentially constituted of macropores ($d_{pore} < 250$ nm). The volume fraction of mesopores ($10 < d_{pore} < 250$ nm) is inferior to 10%. So we choose a shrinking core type model, supposing that the particles can be represented like a spheric pseudo-homogeneous sphere (i.e., uniform porosity and pore size). This model permits the drying kinetic to be simulated correctly. The gaps observed at the end of the drying operation is probably related to the transfers in the mesoporosity (primary particles).

A one-dimensional steady-state model for pneumatic dryer was established. This model is applied for the drying process of wet PVC powder. The drying rate is controlled by the convective transfer in the first period and by the convective and diffusive transfers in the second. The first period corresponds to the surface water drying; besides the second corresponds to the evaporation of the water in the pores, simulated by a shrinking core model. The model takes into account the convective heat, and mass and momentum transfers. The parameter study shows that the inlet temperature is the most important parameter in the operation. But this model does not take into account the wet powder dispersion, which is certainly the limiting step of this process.

Nomenclature

Roman symbols		
A_c	Pipe cross-section	m^2
C_d	Drag coefficient	–
Cp	Specific heat	$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$
d_p	Particle diameter	m
$d_{3,2}$	Sauter diameter	m
d_{50}	Median diameter	m
D_{app}	Apparent diffusion coefficient	$m^2 \cdot s^{-1}$
D_{H2O}	Water vapor/air binary diffusion coefficient	$m^2 \cdot s^{-1}$
D_{pipe}	Pipe diameter	m
f	Friction factor	–
$F_{fw \to k}$	Wall friction force on k phase	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-2}$
g	Acceleration of gravity	$m \cdot s^{-2}$
h	Convective heat transfer coefficient	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$
H_k	k-phase mass enthalpy	$J \cdot kg^{-1}$
H_g^w	Water vapor mass enthalpy	$J \cdot kg^{-1}$
$I_{q \to k}$	Interface forces from q to k phase	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-2}$
k_y	Convective mass transfer coefficient	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$
K_y	Global mass transfer coefficient	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$
m_0	Dry sample mass	kg
m_w	Mass of evaporated water at t time	kg
m_{w0}	Total mass of evaporated water	kg
N_w	Mass transfer rate	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$
p^*	Saturated water vapor pressure	Pa
p_w	Water vapor partial pressure	Pa
P	Absolute pressure	Pa
$Q_{q \to k}$	Heat transfer from q to k phase	$W \cdot m^{-1}$
$Q_{w \to k}$	k-phase wall heat loss	$W \cdot m^{-1}$
r_c	Wet core radius	m

Author's personal copy

Roman symbols

R	Particle radius	m
RH	Air relative humidity	–
s_p	Particle Specific Surface	$m^2 \cdot m^{-3}$
t_{dry}	Time when X reaches	$0.05 \cdot X_0$ s
t_{25}	Time when X reaches	$0.25 \cdot X_0$ s
t_{50}	Time when X reaches	$0.50 \cdot X_0$ s
t_{75}	Time when X reaches	$0.75 \cdot X_0$ s
T_k	k-phase temperature	°C
U_k	k-phase velocity	$m \cdot s^{-1}$
U_{mf}	Minimal fluidization velocity	$m \cdot s^{-1}$
U_r	Relative velocity	$m \cdot s^{-1}$
U_t	Settling velocity	$m \cdot s^{-1}$
W_{drying}	Drying flowrate	$kg \cdot s^{-1}$
X	Solid humidity	$kg \cdot kg^{-1}$
X_c	Critical humidity	$kg \cdot kg^{-1}$
X_{pore}	Pore humidity	$kg \cdot kg^{-1}$
Y	Air absolute humidity	$kg \cdot kg^{-1}$
Y^*	Saturated air humidity	$kg \cdot kg^{-1}$
Z	Pipe length	m

Greek symbols

α_k	k-phase volume fraction	–
γ_{LV}	Superficial tension	$N \cdot m^{-1}$
Γ_k	Volumic mass transfer rate	$kg \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$
ΔH_V	Vaporization enthalpy	$J \cdot kg^{-1}$
θ	Contact angle	°
λ_k	k-phase thermal conductivity	$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
μ_k	k-phase viscosity	$Pa \cdot s$
ρ_k	k-phase density	$kg \cdot m^{-3}$
τ	Pore tortuosity	–
χ	Particle porosity	–

Subscripts

g	Gas phase
h	Humid
l	Liquid
p	Particle phase
w	Wall
0	Initial/inlet

Dimensionless numbers

Nu	Nusselt number	$Nu = \frac{h\, d_p}{\lambda_g}$
Pr	Prandtl number	$Pr = \frac{Cp_g \cdot \mu_g}{\lambda_g}$
Re	Particle Reynolds number	$Re = \frac{\rho_g U_r\, d_p}{\mu_g}$
Re_{pipe}	Pipe Reynolds number	$Re_{pipe} = \frac{\rho_g U_g D_{pipe}}{\mu_g}$
Sc	Schmidt number	$Sc = \frac{\mu_g}{\rho_g D}$
Sh	Sherwood number	$Sh = \frac{k_g\, d_p}{D}$

References

[1] S. Kowalski, Drying of Porous Materials, Springer, 2007.
[2] K. Rajan, B. Pitchumani, S. Srivastava, B. Mohanty, Two-dimensional simulation of gas–solid heat transfer in pneumatic conveying, Int. J. Heat Mass Transf. 50 (5) (2007) 967–976.
[3] M. Mezhericher, A. Levy, I. Borde, Theoretical models of single droplet drying kinetics: a review, Dry. Technol. 28 (2) (2010) 278–293.
[4] A. Levy, I. Borde, Steady state one dimensional flow model for a pneumatic dryer, Chem. Eng. Process. 38 (2) (1999) 121–130.
[5] M. Fortes, M. Okos, A non-equilibrium thermodynamics approach to transport phenomena in capillary porous media, Proceedings of the First International Symposium on Drying, McGill University, Montreal, Canada, August 3–5, 1978, Science Press, 1978, p. 100.
[6] J. Parry, Mathematical modelling and computer simulation of heat and mass transfer in agricultural grain drying: a review, J. Agric. Eng. Res. 32 (1) (1985) 1–29.
[7] M. Prat, Recent advances in pore-scale models for drying of porous media, Chem. Eng. J. 86 (1) (2002) 153–164.
[8] L. Segura, P. Toledo, Pore-level modeling of isothermal drying of pore networks: effects of gravity and pore shape and size distributions on saturation and transport parameters, Chem. Eng. J. 111 (2) (2005) 237–252.
[9] F. Plourde, M. Prat, Pore network simulations of drying of capillary porous media. Influence of thermal gradients, Int. J. Heat Mass Transf. 46 (7) (2003) 1293–1307.
[10] J.-S. Cho, Polymer Surface Modification: Relevance to Adhesion, 2VSP, 2000.
[11] F. Etzler, Acid–Base Interactions: Relevance to Adhesion Science and Technology, VSP, 1991.
[12] J. Szekely, J.W. Evans, H.Y. Sohn, Gas–Solid Reactions, Vol. 66, Academic Press, New York, 1976.
[13] P. Agarwal, W. Genetti, Y. Lee, Coupled drying and devolatilization of wet coal in fluidized beds, Chem. Eng. Sci. 41 (9) (1986) 2373–2383.
[14] H. Cheong, G. Jeffreys, C. Mumford, A receding interface model for the drying of slurry droplets, AICHE J. 32 (8) (1986) 1334–1346.
[15] N. Abuaf, F. Staub, Drying of liquid–solid slurry droplets, Drying '86 Volume 1, Proceedings of The Fifth International Symposium on Drying, 1986, pp. 277–284.
[16] D. Levi-Hevroni, A. Levy, I. Borde, Mathematical modeling of drying of liquid/solid slurries in steady state one-dimensional flow, Dry. Technol. 13 (5–7) (1995) 1187–1201.
[17] S. McCue, B. Wu, J. Hill, Classical two-phase Stefan problem for spheres, Trans. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci. 464 (2096) (2008) 2055–2076.
[18] I. Borde, A. Zlotnitsky, Drying and combustion of solid–liquid slurry droplets, Annual Report.
[19] C. Strumillo, T. Kudra, Drying: Principles, Applications and Design, 3Routledge, 1986.
[20] S. Ouyang, Q. Mao, M. Rhodes, O. Potter, Short contact time gas–solid systems, Rev. Chem. Eng. 19 (2) (2003) 133–228.
[21] O. Molerus, Overview: pneumatic transport of solids, Powder Technol. 88 (3) (1996) 309–321.
[22] Z. Mindziul, A. Kmiec, Modelling gas–solid flow in a pneumatic-flash dryer, Drying 96 (1996) 275–282.
[23] C. Peishi, D.C. Pei, A mathematical model of drying processes, Int. J. Heat Mass Transf. 32 (2) (1989) 297–310.
[24] I. Kemp, D. Oakley, Simulation and scale-up of pneumatic conveying and cascading rotary dryers, Dry. Technol. 15 (6–8) (1997) 1699–1710.
[25] A. Pelegrina, G. Crapiste, Modelling the pneumatic drying of food particles, J. Food Eng. 48 (4) (2001) 301–310.
[26] S. Diguet, Contribution à l'étude de la déshydratation du carbonate de sodium monohydrate en lit fluidisé dense et mise en oeuvre en lit fluidisé circulant: étude expérimentale et modélisation, INP-Toulouse, 1996. (Ph.D. thesis).
[27] M. Mourad, Contribution à l'étude des cinétiques de deshydratation et d'évolution de la qualité commerciale du maïs au cours du séchage en lit fluidisé à flottation, INP Toulouse, 1992. (Ph.D. thesis).
[28] R. Perry, D. Green, Perry's Chemical Engineers' Handbook, McGraw-Hill, New York, 2008.
[29] J. Baeyens, D. Van Gauwbergen, I. Vinckier, Pneumatic drying: the use of large-scale experimental data in a design procedure, Powder Technol. 83 (2) (1995) 139–148.
[30] L. Schiller, A. Naumann, A drag coefficient correlation, Vdi Zeitung 77 (1935) 318–320.
[31] J. Bandrowski, G. Kaczmarzyk, Gas-to-particle heat transfer in vertical pneumatic conveying of granular materials, Chem. Eng. Sci. 33 (10) (1978) 1303–1310.

8.4 Conclusion.

Dans ce chapitre un modèle unidirectionnel, en régime permanent, simulant le séchoir pneumatique d'INEOS ChlorVinyls a été développé. Ce modèle est basé sur les bilans de matière, de chaleur, et de quantité de mouvement sur chacune des phases (gaz et PVC). La cinétique de séchage est contrôlée par un mécanisme purement convectif lors de l'évaporation de l'eau surfacique, tandis qu'elle est contrôlée par la combinaison entre la diffusion de la vapeur d'eau dans les pores des particules et l'échange convectif en surface des particules lors de l'évaporation de l'eau contenue dans les pores. Cependant ce modèle ne prend pas en compte la dispersion des particules humides, c'est à dire l'énergie nécessaire pour casser les liaisons entre les particules humides, dues aux ponts liquides.

L'analyse des corrélations de la littérature a montré que la prise en compte du taux de présence des particules dans le calcul des coefficients de transferts convectifs permettait de simuler au mieux le comportement des séchoirs industriels. En effet ce paramètre permet de limiter l'intensité des transferts dans les premiers mètres du séchoir (zone d'accélération), et donc compense la non-prise en compte de la dispersion des particules humides.

L'étude paramétrique a montré que :

- La température de l'air en entrée du séchoir est le paramètre dominant de l'opération de séchage.
- Le débit d'air sec a peu d'influence tant que l'humidité de l'air en sortie de séchoir est inférieure à l'humidité à saturation. Cependant, le choix de ce paramètre doit tenir compte, en dehors des paramètres thermodynamiques, des contraintes mécaniques (résistances mécaniques du cake). Autrement dit, à l'entrée du séchoir, l'énergie cinétique du courant gazeux doit être suffisante pour assurer la dispersion totale des agglomérats humides dans le courant gazeux.
- Les conditions météorologiques (humidité de l'air en entrée) n'influencent pas significativement les performances du séchoir.

Finalement, la comparaison des résultats de simulations avec les mesures effectuées sur le séchoir industriel d'INEOS ChlorVinyls a confirmé la validité de ce modèle. Il est donc utilisé pour réduire la consommation énergétique du procédé. De plus, il peut être utile dans l'optique d'un dégoulottage de l'unité de production, dans la mesure où les nouvelles conditions n'entraînent pas de complications hydrodynamiques.

Conclusion générale.

La production de PVC en poudre par polymérisation en suspension est un procédé très répandu dans le monde. Ce procédé de fabrication est séparé en deux étapes principales :

– Une étape de génération, c'est à dire l'étape comprenant la réaction de polymérisation. Cette étape a fait l'objet de nombreuses études et est bien maîtrisée.
– Une étape de séparation, comprenant notamment l'opération de séchage thermique. Cette opération est très énergivore, en effet, elle représente environ un tiers de la consommation énergétique de l'ensemble du procédé. Ainsi, dans le but d'optimiser les coûts de production, il faut maintenant fournir un effort sur cette étape du procédé de fabrication.

L'objectif de ce travail était de fournir différents outils théoriques afin d'optimiser le fonctionnent l'unité de séchage thermique de la société INEOS ChlorVinyls. Et pour ce faire, différentes études ont été présentées tout au long de ce travail. Les principales conclusions sont rappelées ci-dessous.

Le procédé de séchage thermique d'INEOS ChlorVinyls FRANCE est composé de deux séchoirs installés en série :

– un séchoir pneumatique, qui permet d'éliminer une grande partie de l'humidité contenue dans les particules de PVC,
– et, un séchoir à lit fluidisé dont le rôle et de finaliser le séchage et d'uniformiser le traitement des particules.

Au vue des conditions opératoires de ces séchoirs, il est évident que la consommation énergétique du procédé est essentiellement due au fonctionnement du préchauffeur d'air du séchoir pneumatique. Afin de réduire la consommation énergétique du procédé, il est donc nécessaire d'optimiser le fonctionnement du séchoir pneumatique. Certains paramètres d'entrée et de sortie de ce procédé sont directement accessibles à partir du logiciel de conduite, installé dans la salle de contrôle du procédé. Toutefois, l'acquisition de données supplémentaires a nécessité l'organisation de campagnes de mesures. Dans un premier temps, des prises d'échantillons de PVC en entrée et en sortie ont permis de déterminer leurs températures et leurs humidités. Enfin, des piquages ont été réalisés à différents niveaux de la gaine du séchoir pneumatique, afin d'établir les profils d'humidité et de température de l'air le long du séchoir.

Pour bien comprendre les phénomènes physiques mis en jeu lors du séchage du PVC en poudre d'une part, et le comportement hydrodynamique de cette poudre dans les différents séchoirs industriels, il est nécessaire de déterminer les différentes grandeurs physiques, physico-chimiques et thermodynamiques du PVC en poudre. Nos résultats ont montré que les différents grades de PVC ont des propriétés morphologiques et texturales relativement proches, et qu'ils ont une faible affinité vis à vis de l'eau (la valeur de l'humidité à l'équilibre ne dépasse jamais 1,7 g d'eau / kg de PVC sec). De plus, ces poudres présentent d'excellentes propriétés d'écoulement, à condition que le milieu soit aéré, ce qui nécessite des vitesses relativement faibles dues aux faibles valeurs des vitesses minimales de fluidisation.

Pour atteindre l'objectif de ce travail de recherche, il est primordial d'étudier les phénomènes physiques sur les plans expérimentaux et théoriques à deux échelles d'observation : la particule de PVC isolée et le séchoir.

Deux dispositifs expérimentaux ont été testés pour mener à bien cette étude cinétique à l'échelle d'une particule. Cependant, seul le lit fluidisé à immersion a permis d'accéder aux données cinétiques.

Ainsi, différentes études ont été menées dans le but :

– de caractériser l'hydrodynamique de ce dispositif, ainsi que les transferts thermiques et massiques associés,
– et d'obtenir les données cinétiques à l'échelle d'un grain de PVC.

L'étude du séchage des particules non poreuses humides (billes de verre) a permis d'accéder au coefficient de transfert de matière. Elle montre que ce coefficient dépend de la vitesse du gaz, alors qu'il est peu dépendant de la température du lit. De plus cette étude a permis d'établir une corrélation permettant d'évaluer le coefficient de transfert de matière en lit fluidisé dense. Cette corrélation donne des résultats proches de ceux de la littérature.

L'influence des différents paramètres opératoires sur la cinétique de séchage du PVC a montré que la cinétique de séchage du PVC en poudre est fortement dépendante :

– des paramètres intensifs du séchage : la température du lit et l'humidité de l'air circulant dans le séchoir,
– des paramètres du procédé : la vitesse d'air de fluidisation,
– des paramètres morphologiques : la porosité et la taille moyenne des pores.

A partir de ces résultats nous avons conclu que la cinétique de séchage à l'échelle d'un grain de PVC est contrôlée à la fois par les transferts externes et par les transferts internes à la particule. La modélisation du séchage d'une particule de PVC devra donc prendre en compte tous les phénomènes physiques associés à ces transferts.

Une loi cinétique caractérisant le séchage à l'échelle d'une particule de PVC est développée. Cette loi, qui ne comporte aucun paramètre ajustable, considère que le séchage a lieu suivant un front d'évaporation mobile progressant de la surface de la particule vers son cœur. Il sépare la particule en un noyau humide d'une part, et une croûte sèche à travers laquelle la vapeur d'eau diffuse d'autre part. Cette loi cinétique a été introduite dans le modèle du séchoir. Ce dernier est représenté par deux approches :

– un modèle 0D en considérant le lit fluidisé comme un milieu isotherme et parfaitement mélangé,
– et une simulation 3D du pilote expérimental, permettant de simuler avec précision l'hydrodynamique du lit fluidisé.

Les résultats théoriques ont montré que la conduction de la chaleur à travers la croûte sèche n'est pas limitante, et que la température de la particule peut être considérée comme uniforme. De plus, les résultats de l'approche 0D montrent que le modèle prédit correctement l'effet :

– de la température du lit,
– du débit d'air sec pour des valeurs supérieures à 10kg/h,
– et, de l'humidité initiale de l'air entre 0 et 16 g d'eau / kg d'air sec.

Pour des débits d'air sec plus faibles et des humidités initiales plus hautes, le modèle surestime la cinétique de séchage. Ce phénomène s'explique par l'effet important qu'ont ces deux paramètres sur la dispersion de l'échantillon de cake. En effet, à haute humidité initiale ou à faible débit d'air sec, la dispersion de l'échantillon est plus difficile, or, ce modèle considère que la dispersion de l'échantillon est instantanée et parfaite.

La simulation 3D du lit fluidisé, réalisée à l'aide du code NEPTUNE_CFD, a permis de simuler le pilote expérimental en prenant compte les interactions hydrodynamiques entre

l'air, les billes de verre, et les particules de PVC. Ces résultats ont montré que les particules de PVC se dispersent rapidement dans l'ensemble du lit, validant ainsi l'hypothèse du mélangeur parfait. Malgré les hypothèses simplificatrices utilisées pour l'établissement du modèle 0D, les résultats de ce modèle sont proches des résultats de la simulation 3D ainsi que des résultats expérimentaux.

Enfin, cette loi cinétique a été introduite dans un modèle de simulation du séchoir pneumatique industriel d'INEOS ChlorVinyls. Ce modèle unidirectionnel, établi en régime permanent, est basé sur les bilans de matière, de chaleur, et de quantité de mouvement sur chacune des phases (gaz et PVC). Cependant il ne prend pas en compte la dispersion des particules humides, c'est à dire l'énergie nécessaire pour casser les liaisons entre les particules humides dues aux ponts liquides. L'analyse des corrélations de la littérature a montré que la prise en compte du taux de présence des particules dans le calcul des coefficients de transferts convectifs permettait de simuler au mieux le comportement des séchoirs industriels. En effet ce paramètre permet de limiter l'intensité des transferts dans les premiers mètres du séchoirs (zone d'accélération), et donc compense la non-prise en compte de la dispersion des particules humides. L'étude paramétrique a montré que la température de l'air en entrée du séchoir est le paramètre dominant de l'opération de séchage, alors que, les conditions météorologiques et le débit d'air sec ont peu d'influence. Cependant, le choix de ce dernier paramètre doit tenir compte, en dehors des paramètres thermodynamiques, des contraintes mécaniques (résistances mécaniques du cake). Autrement dit, à l'entrée du séchoir, l'énergie cinétique du courant gazeux doit être suffisante pour assurer la dispersion totale des agglomérats humides dans le courant gazeux.

Finalement, la comparaison des résultats de simulations avec les mesures effectuées sur le séchoir industriel d'INEOS ChlorVinyls a confirmé la validité de ce modèle. Il est donc utilisé pour réduire la consommation énergétique du procédé. De plus, il peut être utile dans l'optique d'un dégoulottage de l'unité de production, dans la mesure où les nouvelles conditions n'entraînent pas de complications hydrodynamiques.

Dans le but de mieux comprendre le fonctionnement du procédé de séchage industriel dans sa globalité et d'évaluer sa consommation énergétique, l'ensemble du procédé est simulé par un modèle entrées/sorties. Les résultats de ce modèle confirment que :

- la consommation énergétique du séchoir à lit fluidisé est négligeable devant la consommation du séchoir pneumatique,
- dans les conditions actuelles, il y a un grand potentiel de séchage inutilisé, c'est à dire, une grande partie de l'énergie apportée au préchauffeur non utilisée.

Finalement, fort des résultats de ces modèles, diverses propositions d'optimisation ont été formulées. L'optimisation majeure consiste à :

- modifier la stratégie de régulation du séchoir, pour prendre en compte, à la fois la température mais aussi l'humidité de l'air en sortie du séchoir pneumatique. Ainsi, un hygromètre, mesurant la température de rosée de l'air, a été installé en sortie gaz des cyclones. Cette sonde, reliée à un régulateur PID, permet d'adapter la température d'entrée du séchoir en fonction de la température de rosée du gaz en sortie, et donc, d'utiliser pleinement le potentiel d'évaporation du sévhoir pneumatique. Cette modification permet de réaliser une économie d'énergie de **15 à 20%**.
- diverses actions, ne nécessitant pas d'investissement (suppression ou ajout d'échangeurs, calorifugeage des gaines, ...) ont permis d'économiser **10%** supplémentaires sur la consommation énergétique.

En conclusion, la détermination expérimentale des caractéristiques physico-chimiques, thermodynamiques, ainsi que de la cinétique de séchage du PVC en poudre a permis de modéliser avec précision le comportement du séchoir pneumatique (source principale de consommation énergétique). Les résultats obtenus à partir de ce modèle ainsi que l'étude globale du procédé de séchage thermique ont permis de réduire de manière conséquente la consommation énergétique du procédé par le biais d'une nouvelle politique de régulation.

Bibliographie

Abuaf, N. and Staub, F. (1986). Drying of liquid-solid slurry droplets. In *Dryinǵ86 volume 1, Proceedings of the fifth international symposium on drying*, pages 277–284.

Agarwal, P., Genetti, W., and Lee, Y. (1986). Coupled drying and devolatilization of wet coal in fluidized beds. *Chemical engineering science*, 41(9) :2373–2383.

Akanni, K., Evans, J., and Abramson, I. (1987). Effective transport coefficients in heterogeneous media. *Chemical engineering science*, 42(8) :1945–1954.

Allsopp, M. W. et al. (1981). The development and importance of suspension PVC morphology. *Pure Appl. Chem*, 53(2) :449–465.

Andrieu, J. and Stamatopoulos, A. (1986). Moisture and heat transfer modelling during durum wheat pasta drying. In *Drying '86 Ed. A.S. Mujumdar. Hemisphere Publishing Corp., Washington DC, p 492-498.*

Baeyens, J., Van Gauwbergen, D., and Vinckier, I. (1995). Pneumatic drying : the use of large-scale experimental data in a design procedure. *Powder technology*, 83(2) :139–148.

Bandrowski, J. and Kaczmarzyk, G. (1978). Gas-to-particle heat transfer in vertical pneumatic conveying of granular materials. *Chemical Engineering Science*, 33(10) :1303–1310.

Bao, Y. and Brooks, B. (2002). Influences of some polymerization conditions on particle properties of suspension poly (vinyl chloride) resin. *Journal of applied polymer science*, 85(7) :1544–1552.

Batrak, O., PATINO, G., SIMONIN, O., Flour, I., Le Guevel, T., and Perez, E. (2005). Unlike particles size collision model in 3d unsteady polydispersed simulation of circulating fluidised bed.

Biggerstaff, T. (1965). Drying diffusion coefficients in wood as affected by temperature. *Forest Prod. J*, 15(3) :127–133.

Boelle, A., Balzer, G., and Simonin, O. (1995). Second-order prediction of the particle-phase stress tensor of inelastic spheres in simple shear dense suspensions. *ASME-PUBLICATIONS-FED*, 228 :9–18.

Boland, D. and Geldart, D. (1972). Electrostatic charging in gas fluidised beds. *Powder Technology*, 5(5) :289–297.

Borde, I., Levy, A., and Mujumdar, A. (2006). Pneumatic and flash drying. *Handbook of Industrial Drying, 3rd Ed.,(Mujumdar AS Ed.), CRC Press, New York*, - :397–410.

Bramhall, G. (1976). Fick's laws and bound-water diffusion. *Wood science*, 8(3) :153–161.

Bruin, S. and Luyben, K. (1980). Drying of food materials : A review of recent developments. In *Advances in drying Vol. 1, Ed. A.S. Mujumdar, Hemisphere publishing Corp., New York, Chap. 6*, pages 155–255.

Carr, R. (1965). Evaluating flow properties of solid. *Chemical Engineering*, January 18 :163 – 168.

Chen, Z., Agarwal, P. K., and Agnew, J. B. (2001). Steam drying of coal. part 2. modeling the operation of a fluidized bed drying unit. *Fuel*, 80(2) :209–223.

Chen, Z., Wu, W., and Agarwal, P. (2000). Steam-drying of coal. part 1. modeling the behavior of a single particle. *Fuel*, 79(8) :961–974.

Cheong, H., Jeffreys, G., and Mumford, C. (1986). A receding interface model for the drying of slurry droplets. *AIChE journal*, 32(8) :1334–1346.

Chilton, T. H. and Colburn, A. P. (1934). Mass transfer (absorption) coefficients prediction from data on heat transfer and fluid friction. *Industrial & engineering chemistry*, 26(11) :1183–1187.

Ciborowski, J. and Wlodarski, A. (1962). On electrostatic effects in fluidized beds. *Chemical Engineering Science*, 17(1) :23–32.

Crapiste, G. (2000). Simulation of drying rates and quality changes during dehydration of foodstuffs. *Trends in Food Eng*, pages 135–148.

Cui, W., Mujumdar, A., and Douglas, W. (1986). Superheated steam drying of paper : Effects on physical strength properties. *Drying 86*, 2 :575–579.

Degenhardt, P. (1997). Dewatering of PVC by decanter centrifuges. *Filtration and separation*, 34(5) :447–449.

Diguet, S. (1996). *Contribution à l'étude de la déshydratation du carbonate de sodium monohydrate en lit fluidisé dense et mise en oeuvre en lit fluidisé circulant : étude expérimentale et modélisation.* PhD thesis, INP-Toulouse.

Dorobantu, I.-M. (2012). *Vinyl chloride polymerization in microdroplet reactor.* PhD thesis, INP Toulouse.

Etzler, F., Simmons, J., Ladyzhynsky, N., Thomas, V., and Maru, S. (2000). Assessment of acid-base character of polymer surfaces from contact angle and other surface chemical data. *Acid-base interactions : relevance to adhesion science and technology*, 2 :385.

Faber, E., Heydenrych, M., Seppa, R., and Hicks, R. (1986). A techno-economic comparison of air and steam drying. *Drying 86*, 2 :588–594.

Farges, D. (1996). *Contribution à l'étude du séchage par contact sous atmosphère inerte et sous vide : Etude expérimentale et théorique.* PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.

Fortes, M. and Okos, M. (1978). A non-equilibrium thermodynamics approach to transport phenomena in capillary porous media. In *Proceedings of the first International Symposium on Drying, McGill University, Montreal, Canada, August 3-5, 1978*, page 100. Science Press.

Geil, P. (1977). Morphology-characterization terminology. *Journal of Macromolecular Science, Part B : Physics*, 14(1) :171–171.

Geldart, D. (1973). Types of gas fluidization. *Powder technology*, 7(5) :285–292.

Gobin, A., Neau, H., Simonin, O., Llinas, J.-R., Reiling, V., and Sélo, J.-L. (2003). Fluid dynamic numerical simulation of a gas phase polymerization reactor. *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 43(10-11) :1199–1220.

Guardiola, J., Rojo, V., and Ramos, G. (1996). Influence of particle size, fluidization velocity and relative humidity on fluidized bed electrostatics. *Journal of Electrostatics*, 37(1) :1–20.

Haider, A. and Levenspiel, O. (1989). Drag coefficient and terminal velocity of spherical and nonspherical particles. *Powder technology*, 58(1) :63–70.

Ishida, M. and Wen, C. (1971). Comparison of zone-reaction model and unreacted-core shrinking model in solid-gas reactions - i. isothermal analysis. *Chemical Engineering Science*, 26(7) :1031–1041.

Jaturonglumlert, S. and Kiatsiriroat, T. (2010). Heat and mass transfer in combined convective and far-infrared drying of fruit leather. *Journal of Food Engineering*, 100(2) :254–260.

Kawai, S., Nakato, K., and Sadoh, T. (1978). Moisture movement in wood below the fiber saturation point. *Journal of the Japan Wood Research Society*, 24.

Konan, N., Neau, H., Simonin, O., Dupoizat, M., and Le Goaziou, T. (8-13 November, 2009). Cfd prediction of uranium tetrafluoride particle fluorination in fluidized bed pilot. *AIChE Annual Meeting*, Nashville, TN, USA.

Kowalski, S. (2007). *Drying of porous materials*. Springer.

Kremers, G. (1980). Dewatering PVC-slurrier by centrifuging parts 1-5. Technical report, Rapport interne INEOS ChlorVinyls.

Kunii, D. and Levenspiel, O. (1991). *Fluidization engineering*, volume 2. Butterworth-Heinemann Boston.

Lamourette, B. (2000). Cahier de procédé F/PROD/RP/05. Technical report, Rapport interne INEOS ChlorVinyls.

Levi-Hevroni, D., Levy, A., and Borde, I. (1995). Mathematical modeling of drying of liquid/solid slurries in steady state one-dimensional flow. *Drying Technology*, 13(5-7) :1187–1201.

Lozano, J., Rotstein, E., and Urbicain, M. (1983). Shrinkage, porosity and bulk density of foodstuffs at changing moisture contents. *Journal of Food Science*, 48(5) :1497–1502.

Masters, K. (1980). Spray drying. In *Advances in drying Vol. 1, Ed. A.S. Mujumdar, Hemisphere publishing Corp., New York, Chap. 8*, pages 269–298.

McNamara, W. and Hart, C. (1971). An analysis of interval and average diffusion coefficients for unsteady state movement of moisture in wood. *Wood Sci*, 4(1) :37–45.

Meunier, J. and Munz, R. (1986). Flash drying with superheated steam–a mathematical model. *Drying 86*, 2 :580–587.

Mezhericher, M., Levy, A., and Borde, I. (2008). Heat and mass transfer of single droplet/wet particle drying. *Chemical Engineering Science*, 63(1) :12–23.

Mezhericher, M., Levy, A., and Borde, I. (2010a). Spray drying modelling based on advanced droplet drying kinetics. *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification*, 49(11) :1205–1213.

Mezhericher, M., Levy, A., and Borde, I. (2010b). Theoretical models of single droplet drying kinetics : a review. *Drying Technology*, 28(2) :278–293.

Moshonov, A. and Avny, Y. (1980). The use of acetylene glow discharge for improving adhesive bonding of polymeric films. *Journal of Applied Polymer Science*, 25(5) :771–781.

Mourad, M. (1992). *Contribution à l'étude des cinétiques de deshydratation et d'évolution de la qualité commerciale du mais au cours du séchage en lit fluidisé à flottation.* PhD thesis, INP Toulouse.

Mujumdar, A. S. (2007). *Handbook of industrial drying.* CRC Press.

Ouyang, S., Mao, Q., Rhodes, M., and Potter, O. (2003). Short contact time gas-solid systems. *Reviews in Chemical Engineering*, 19(2) :133–228.

Parmentier, J.-F., Simonin, O., and Delsart, O. (2012). A functional subgrid drift velocity model for filtered drag prediction in dense fluidized bed. *AIChE Journal*, 58(4) :1084–1098.

Parry, J. (1985). Mathematical modelling and computer simulation of heat and mass transfer in agricultural grain drying : A review. *Journal of Agricultural Engineering Research*, 32(1) :1–29.

Peishi, C. and Pei, D. C. (1989). A mathematical model of drying processes. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 32(2) :297–310.

Perry, R. and Green, D. (2008). *Perry's chemical engineers' handbook.* McGraw-Hill New York.

Rabia, A. (2008). *Rhéologie des suspensions et des pâtes de PVC : influence des propriétés physiques et physico-chimiques sur la résistance au cisaillement et à la compression des pâtes.* PhD thesis, Université de Paris 7.

Rajan, K., Dhasandhan, K., Srivastava, S., and Pitchumani, B. (2008). Studies on gas–solid heat transfer during pneumatic conveying. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 51(11) :2801–2813.

Rautiainen, A., Stewart, G., Poikolainen, V., and Sarkomaa, P. (1999). An experimental study of vertical pneumatic conveying. *Powder Technology*, 104(2) :139–150.

Säckel, W. and Nieken, U. (2013). On the modeling of reactive spray drying processes. In *Proceeding of Nordic Drying Conference 2013, Copenhagen, June 5-7th.*

Saeki, Y. and Emura, T. (2002). Technical progresses for PVC production. *Progress in polymer science*, 27(10) :2055–2131.

Salin, J. (1986). Steam drying of wood particles for particle board. *Drying 86*, 2 :572–574.

SanMartin, F. A., Laurindo, J. B., and Segura, L. A. (2011). Pore-scale simulation of drying of a porous media saturated with a sucrose solution. *Drying Technology*, 29(8) :873–887.

Schiller, L. and Naumann, A. (1935). A drag coefficient correlation. *Vdi Zeitung*, 77 :318–320.

Segura, L. and Toledo, P. (2005a). Pore-level modeling of isothermal drying of pore networks : Effects of gravity and pore shape and size distributions on saturation and transport parameters. *Chemical Engineering Journal*, 111(2) :237–252.

Segura, L. A. (2007). Pore-level modeling of isothermal drying of pore networks. liquid and vapor diffusivity. *Drying Technology*, 25(10) :1677–1686.

Segura, L. A. and Toledo, P. G. (2005b). Pore-level modeling of isothermal drying of pore networks accounting for evaporation, viscous flow, and shrinking. *Drying Technology*, 23(9-11) :2007–2019.

Skaar, C. and Siau, J. (1981). Thermal diffusion of bound water in wood. *Wood Science and Technology*, 15(2) :105–112.

Srivastava, A. and Sundaresan, S. (2003). Analysis of a frictional–kinetic model for gas–particle flow. *Powder technology*, 129(1) :72–85.

Stanish, M. (1986). The roles of bound water chemical potential and gas phase diffusion in moisture transport through wood. *Wood science and technology*, 20(1) :53–70.

Strumillo, C. and Kudra, T. (1986). *Drying : principles, applications and design*, volume 3. Routledge.

Szekely, J., Evans, J. W., and Sohn, H. Y. (1976). *Gas-solid reactions*, volume 66. Academic Press New York.

Szekely, J., Lin, C., and Sohn, H. (1973). A structural model for gas-solid reactions with a moving boundary - v. an experimental study of the reduction of porous nickel-oxide pellets with hydrogen. *Chemical Engineering Science*, 28(11) :1975–1989.

Thonglimp, V., Hiquily, N., and Laguerie, C. (1984). Vitesse minimale de fluidisation et expansion des couches fluidisées par un gaz. *Powder technology*, 38(3) :233–253.

Tien, R. and Turkdogan, E. (1972). Gaseous reduction of iron oxides : Part iv. mathematical analysis of partial internal reduction-diffusion control. *Metallurgical Transactions*, 3(8) :2039–2048.

Triolo, P. M. and Andrade, J. D. (1983). Surface modification and evaluation of some commonly used catheter materials. i. surface properties. *Journal of biomedical materials research*, 17(1) :129–147.

Tsilingiris, P. (2010). Modeling heat and mass transport phenomena at higher temperatures in solar distillation systems–the chilton–colburn analogy. *Solar Energy*, 84(2) :308–317.

Vermorel, O., Bedat, B., Simonin, O., and Poinsot, T. (2003). Numerical study and modelling of turbulence modulation in a particle laden slab flow. *Journal of Turbulence*, 4(025) :1–39.

Waananen, K. M. and Okos, M. R. (1996). Effect of porosity on moisture diffusion during drying of pasta. *Journal of food engineering*, 28(2) :121–137.

Weisz, P. (1995). Molecular diffusion in microporous materials : formalisms and mechanisms. *Industrial & engineering chemistry research*, 34(8) :2692–2699.

Wilke, C. and Lee, C. (1955). Estimation of diffusion coefficients for gases and vapors. *Industrial & Engineering Chemistry*, 47(6) :1253–1257.

Yang, W.-C. and Keairns, D. (1982). Solid entrainment rate into gas and gas-solid, two-phase jets in a fluidized bed. *Powder Technology*, 33(1) :89–94.

Zerfa, M. and Brooks, B. (1996a). Drop coalescence processes in suspension polymerization of vinyl chloride. *Journal of applied polymer science*, 60(12) :2077–2086.

Zerfa, M. and Brooks, B. (1996b). Prediction of vinyl chloride drop sizes in stabilised liquid-liquid agitated dispersion. *Chemical engineering science*, 51(12) :3223–3233.

Zerfa, M. and Brooks, B. (1996c). Vinyl chloride dispersion with relation to suspension polymerisation. *Chemical engineering science*, 51(14) :3591–3611.

Zerfa, M. and Brooks, B. (1997). Experimental investigation of vinyl chloride drop behavior during suspension polymerization. *Journal of applied polymer science*, 65(1) :127–134.

Zerfa, M. and Brooks, B. (1998). Experimental investigation of pva adsorption at the vinyl chloride/water interface in monomer suspensions. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 132(2) :267–273.

Zimmermann, H. (1996). Poly (vinyl chloride) polymerization performance-enhancing initiators with emphasis on high activity grades and water-based dispersions. *Journal of Vinyl and Additive Technology*, 2(4) :287–294.

Annexes

Annexe A

Définitions des grandeurs utilisées dans ce travail de recherche.

Dans cet annexe, nous définissons les différentes grandeurs liées à l'humidité utilisées dans cette étude. Dans un premier temps nous définissons l'humidité des différentes phases, ensuite leur enthalpie, et finalement nous définissons la vitesse de séchage. Pour rappel, dans cet étude, on raisonne en base sèche, c'est à dire en *kg d'eau / kg de matière sèche*.

On définit l'état de référence qui sera utilisé dans le reste de cette étude :

- Température de référence : $T_{ref} = 0°C$.
- Pression de référence : $P_{ref} = 1\ atm = 1,013\ bar$.
- Etats : Air : gazeux ; Eau : liquide ; PVC : solide.

◇ *Humidités :*

On définit l'humidité d'un solide X, exprimée en kg d'eau / kg de solide sec, comme le rapport entre la masse d'eau $m_{eau,p}$ qu'il contient et la masse du solide sec m_p^0 :

$$X = \frac{m_{eau,p}}{m_p^0}. \tag{A.1}$$

Le rapport entre la masse d'eau et la masse totale du solide humide m_T est appelée fraction massique en eau du solide x_{eau} :

$$x_{eau} = \frac{m_{eau,p}}{m_T}. \tag{A.2}$$

L'humidité et la fraction en eau du solide sont liées par les relations suivantes :

$$X = \frac{x_{eau}}{1 - x_{eau}}, \qquad et \qquad x_{eau} = \frac{X}{1 + X}. \tag{A.3}$$

On peut alors définir la masse volumique d'une particule humide en fonction de son humidité et de la masse volumique du solide sec ρ_p^{sec}

$$\rho_p = \rho_p^{sec} \cdot (1 + X). \tag{A.4}$$

Pour le gaz, on définit l'humidité absolue de l'air, Y, en kg d'eau / kg d'air sec, de façon analogue à l'humidité d'un solide :

$$Y = \frac{m_{eau,g}}{m_g^0}. \tag{A.5}$$

Avec $m_{eau,g}$ la masse d'eau contenue dans l'air m_g^0 la masse de gaz sec. Pour un air saturé en vapeur d'eau, on note l'humidité absolue de l'air Y^*.

De la même manière que pour le solide, on peut définir la masse volumique de l'air humide en fonction de son humidité et de la masse volumique de l'air sec, ρ_g^{sec} :

$$\rho_g = \rho_g^{sec} \cdot (1 + Y). \tag{A.6}$$

L'humidité relative de l'air, RH, est définie comme le rapport entre la pression partielle de vapeur d'eau, p_{vap}, et la pression de vapeur saturante du gaz, $p°$ à sa température T_g. Elle représente le degré d'hygrométrie de l'air et peut varier de 0 à 100%.

$$RH = 100 \cdot \frac{p_{vap}}{p°(T_g)}. \tag{A.7}$$

La pression de vapeur saturante d'un gaz à la température T_g (en °C dans cette expression) se calcule par la relation suivante :

$$p^{\circ}(T_g) = \exp\left(\frac{16,83 \cdot T_g}{228,74 + T_g} + 6,4075\right). \tag{A.8}$$

On peut relier l'humidité absolue à l'humidité relative en exprimant la masse d'eau et la masse d'air sec en fonction de la pression partielle de vapeur d'eau, et de la pression totale, P :

$$Y = \frac{m_{eau}}{m_{air}} = \frac{M_{eau}}{M_{air}} \cdot \frac{p_{vap}}{P - p_{vap}} = 0,622 \cdot \frac{p_{vap}}{P - p_{vap}}. \tag{A.9}$$

Avec M_{eau} et M_{air} les masses molaires respectives de l'eau et de l'air. L'humidité relative de l'air s'exprime alors :

$$RH = 100 \cdot \frac{p_{vap}}{p^{\circ}(T_g)} = 100 \cdot \frac{P \cdot Y}{p^{\circ} \cdot (0,622 + Y)}. \tag{A.10}$$

Quand l'air, à la température T_g, est saturé en humidité, sa pression partielle de vapeur d'eau est égale à la pression de vapeur saturante à la température du gaz :

$$p_{vap} = p^{\circ}(T_g). \tag{A.11}$$

On peut donc calculer l'humidité à saturation de l'air à la température T_g par la relation suivante :

$$Y^{sat} = 0,622 \cdot \frac{p^{\circ}(T_g)}{P - p^{\circ}(T_g)}, \tag{A.12}$$

◇ *Enthalpies :*

On définit l'enthalpie, H_p, d'un solide humide à la température T_p telle que :

$$H_p = \int_{T_{ref}}^{T_p} Cp_p \cdot dT + X \cdot \left(\int_{T_{ref}}^{T_p} Cp_{eau}^{L} \cdot dT + \Delta H_m\right). \tag{A.13}$$

Avec Cp_p et Cp_{eau}^{L} les chaleurs massiques respectives du solide et de l'eau liquide, et ΔH_m l'enthalpie de mélange qui est négligeable dans le cas d'un solide non hygroscopique. On définit alors la chaleur massiqsue d'un solide humide, $Cp_{h,p}$:

$$Cp_{h,p} = Cp_p + X \cdot Cp_{eau}^{L}. \tag{A.14}$$

D'où :

$$H_p = \int_{T_{ref}}^{T_p} Cp_{h,p} \cdot dT + X \cdot \Delta H_m. \tag{A.15}$$

De manière analogue au solide, on définit l'enthalpie de l'air humide ,H_g à la température T_g telle que :

$$H_g = \int_{T_{ref}}^{T_g} Cp_g \cdot dT + Y \cdot \left(\int_{T_{ref}}^{T_g} Cp_{eau}^{V} \cdot dT + \Delta H_V\right). \tag{A.16}$$

Avec Cp_g et Cp_{eau}^{V} les chaleurs massiques respectives de l'air et de la vapeur d'eau, et ΔH_V l'enthalpie de vaporisation de l'eau à la température T_g. On définit alors la chaleur massiqsue de l'air humide, $Cp_{h,g}$:

$$Cp_{h,g} = Cp_g + Y \cdot Cp_{eau}^{V}. \tag{A.17}$$

D'où :

$$H_g = \int_{T_{ref}}^{T_g} Cp_{h,g} \cdot dT + Y \cdot \Delta H_V(T_g). \tag{A.18}$$

L'enthalpie de vaporisation de l'eau à la température T_g est déterminée à partir de l'enthalpie de vaporisation de l'eau à la température de référence, ΔH_V^0 :

$$\Delta H_V(T_g) = \Delta H_V^0 + Cp_{eau}^V \cdot (T_g - T_{ref}) - Cp_{eau}^L \cdot (T_g - T_{ref}). \tag{A.19}$$

◇ *Vitesse de séchage :*

On défit la vitesse de séchage, v_s, comme la perte d'humidité du solide par unité de temps :

$$v_s = -\frac{dX}{dt \cdot m_p^0}. \tag{A.20}$$

◇ *Température de bulbe humide et humidité à saturation adiabatique.*

Lors du séchage d'un solide humide dans un courant gazeux de température T_g, l'humidité absolue à la surface externe du solide prend une valeur Y^* (humidité à saturation adiabatique) supérieure à l'humidité absolue du courant gazeux Y. Du fait de ce potentiel de transfert, l'humidité va être échangée du solide vers le courant gazeux. Cette évaporation va consommer de l'énergie et réduire la température du solide, qui dans le cas de l'évaporation d'eau libre, va correspondre à la température de bulbe humide, T^*. Ces deux grandeurs caractérisent un air humide et peuvent être déterminées par un psychomètre.

Ces grandeurs peuvent être obtenues par calcul itératif à partir de l'égalité du flux de chaleur échangée entre le gaz et le solide, $Q_{g\to p}$, et du flux de chaleur consommée par l'évaporation, Q_{evap} :

$$Q_{g\to p} = h \cdot A \cdot (T_g - T^*) = Q_{evap} = m_w^\circ \cdot \Delta H_V, \tag{A.21}$$

avec, m_w°, le flux de matière échangée, défini par :

$$m_w^\circ = k_y \cdot A \cdot (Y^* - Y), \tag{A.22}$$

et, A la surface d'échange.

A partir de ces expressions et de l'analogie de Chilton and Colburn (1934), on obtient la relation suivante :

$$\frac{Y^* - Y}{T_g - T^*} = -\frac{Cp_{h,g}}{\Delta H_V(T_g)} \cdot Le^{2/3}, \tag{A.23}$$

avec Le, le nombre de Lewis, égal au rapport entre le nombre de Schmidt et le nombre de Prandt, qui dans le cas particulier d'un mélange binaire air-vapeur d'eau est égal à 1. On obtient alors :

$$\frac{Y^* - Y}{T_g - T^*} = -\frac{Cp_{h,g}}{\Delta H_V(T_g)}, \tag{A.24}$$

et

$$Y^* = 0,622 \cdot \frac{p^\circ(T^*)}{P - p^\circ(T^*)}, \tag{A.25}$$

avec $p^\circ(T^*)$ la pression de vapeur saturante de l'air à la température de bulbe humide.

Annexe B

Méthode de calcul de la tortuosité.

Dans cet annexe est présenté le principe d'évaluation de la tortuosité des particules effectuée par le porosimètre à mercure (Micrometrics Autopore IV) du laboratoire. Les informations présentées ci-dessous sont tirées de l'annexe technique fournie avec l'appareil.

La tortuosité (τ) est le rapport entre la distance effectivement parcourue par le mercure entre deux points et la distance minimale entre ces points (Figure B.1) :

$$\tau = \frac{\text{distanceeffective}}{\text{pluscourtedistance}} = \frac{l_e}{l} \tag{B.1}$$

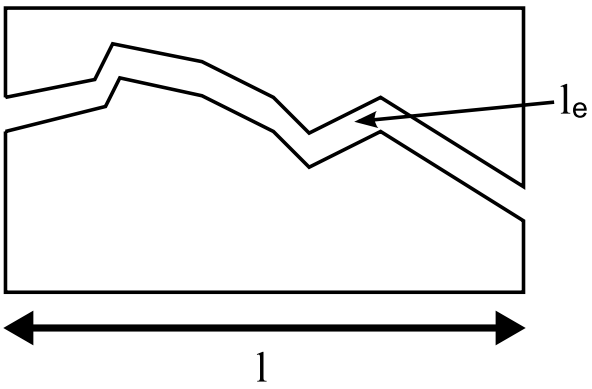


FIGURE B.1 – Définition de la tortuosité

La tortuosité peut être calculée à partir des formules suivantes :

$$\tau = \sqrt{\frac{\rho_p}{24 \cdot K \cdot (1 + \rho_p \cdot V_{tot})} \cdot \int_{r_{c,min}}^{r_{c,max}} r_c^2 \cdot f_v(r_c) dr_c}, \tag{B.2}$$

avec :

- ρ_p la masse volumique des particules,
- V_{tot} le volume totale des pores,
- K la perméabilité des particules,
- et $f_v(r_c)$, la fonction définie par : $f_v(r_c) = -\frac{dV(r_c)}{dr_c}$.

Ou encore :

$$\sqrt{\frac{\bar{d_{pore}}^2}{4 \cdot 24 \cdot K \cdot (1 - \rho_s \cdot I_{tot}}}, \tag{B.3}$$

avec :

- $\bar{d_{pore}}$ le diamètre des pores moyens de la particule,
- ρ_s la masse volumique du squelette solide,
- et I_{tot}, le volume totale de mercure intoduit dans la particule.

Cependant ces formules nécessitent des données qui ne sont pas forcément accessibles par les mesures effectuées par le porosimètre, donc le logiciel évalue la tortuosité par la corrélation suivante :

$$\tau = 0,92 \cdot \left[\left(\Sigma \frac{\Delta I_i}{\bar{d}_{pore_i}} \right) \cdot \frac{4}{S_{BET}} \right] \tag{B.4}$$

avec :

- ΔI_i la différence de volume de mercure introduit entre deux points adjacent $(I_i - I_{i+1})$,
- $\bar{d}_{pore_i}$ la moyenne entre les diamètres des pores de deux points adjacents $(0,5 \cdot (D_i + D_{i+1}))$,
- et S_{BET} la surface de la cellule de mesure du porosimètre.

Annexe C

L'indice de coulabilité d'une poudre selon Carr (1965).

Dans cet annexe nous rappelons la méthode de détermination des critères de Carr Carr (1965) ainsi que leurs correspondances avec l'indice de coulabilité d'une poudre (Tableau C).

Les critères empiriques définis par Carr (1965) sont au nombre de 4 :

- la compressibilité, γ, définie à partir des masses volumiques en vrac et tassée des particules,
- l'angle de talus, θ_t (vor Figure C.1),
- l'angle de spatule, θ_s (voir Figure C.1),
- l'indice d'uniformité, I_u, définit comme : $I_u = \frac{d_{60}}{d_{10}}$.

➢ *Détermination de la compressibilité d'une poudre :*

On définit deux masses volumiques différentes pour caractériser un lit de particules :

- la masse volumique en vrac, ρ_{vr}. Elle est obtenue par la mesure de la masse de poudre introduite en vrac dans un récipient de volume bien défini.
- la masse volumique tassée, ρ_{ta}. Elle est obtenue par la mesure de la masse de poudre permettant de remplir une éprouvette de volume donné et soumise à des chocs normalisés (standard CEMA).

L'écart entre ces masses volumiques représente le facteur de compressibilité, C, défini par :

$$\gamma = 100 \cdot \frac{\rho_{ta} - \rho_{vr}}{\rho_{ta}}. \tag{C.1}$$

➢ *Mesures des angles de talus et de spatules.*

Les angles de talus et de spatules se mesurent optiquement à partir d'un tas de poudre versé sans contrainte sur un plateau (angle de talus) ou extrait d'un bac à l'aide d'une spatule (angle de spatule), comme indiqué sur la Figure C.1.

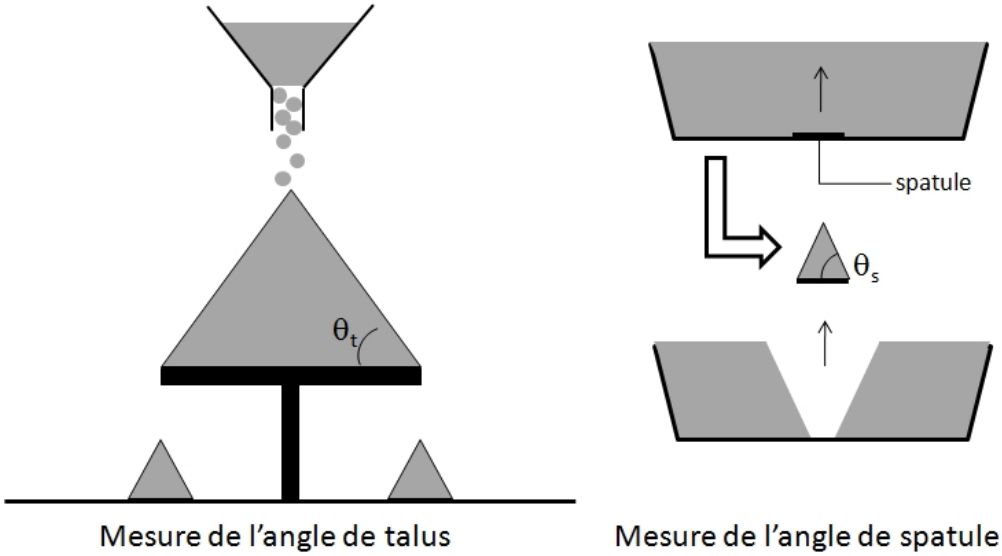


FIGURE C.1 – Méthode de mesure de l'angle de talus et de l'angle de spatule.

➢ *Correspondances entre les critéres empiriques de Carr (1965) et l'indice de coulabilité d'une poudre.*

Le Tableau C présente les correspondances entre les critères empiriques définis ci-dessus et l'indice de coulabilité d'une poudre :

Tableau C.1 – Correspondances entre les critères empiriques de Carr (1965) et l'indice de coulabilité d'une poudre.

Degré de coulabilité	Indice de coulabilité	Compressibilité		Angle de talus		Angle de spatule		Uniformité	
		C (%)	Indice (-)	θ_t (°)	Indice (-)	θ_s (°)	Indice (-)	I_u (-)	Indice (-)
très bon	90 - 100	5	25	25	25	25	25	1	25
		6 - 9	23	26 - 29	24	26 - 30	24	2 - 4	23
		10	22,5	30	22,5	31	22,5	5	22,5
bon	80 - 89	11	22	31	22	32	22	6	22
		12 - 14	21	32 - 34	21	33 - 37	21	7	21
		15	20	35	20	38	20	8	20
assez bon	70 - 79	16	19,5	36	19,5	39	19,5	9	19
		17 - 19	18	37 - 39	18	40 - 45	18	12	17,5
normal	60 - 69	21	17	41	17	46	17	13	17
		22 - 24	16	42 - 44	16	47 - 59	16	14 - 16	16
		25	15	45	15	60	15	17	15
pas bon	40 - 59	26	14,5	46	14,5	61	14,5	18	14,5
		27 - 30	12	47 - 54	12	62 - 74	12	19 - 21	12
		31	10	55	10	75	10	22	10
mauvais	20 - 39	32	9,5	56	9,5	76	9,5	23	9,5
		33 - 36	7	57 - 64	7	77 - 89	7	24 - 26	7
		37	5	65	5	90	5	27	5
très mauvais	0 - 19	38	4,5	66	4,5	91	4,5	28	4,5
		39 - 44	2	67 - 89	2	92 - 99	2	29 - 35	2
		45	0	90	0	100	0	36	0

Annexe D

Principes de fonctionnement de séchoirs classiques.

Choix du type de séchoirs.

Malgré des différences fondamentales de fonctionnement, on retrouve, en général, trois parties classiques dans un séchoir (dans certaines technologies, certaines parties peuvent être regroupées) :

– L'enceinte de séchage.
– Le circuit aéraulique nécessaire pour évacuer la vapeur.
– Le système de manutention du produit.

C'est dans l'enceinte de séchage que le produit à sécher doit être mis en contact avec un gaz chaud ou une paroi chaude. Il existe différents systèmes de mise en contact :

– Atomisation : mouillage de surface ou de garnissage (pour des liquides ou des pâtes).
– Couche statique de solide : traversée ou léchée par le gaz, ou bien mise en contact d'éléments chauffants.
– Couche mobile de solide (mouvement mécanique, entraînement par un gaz, chute par gravité, ...) : circulant à co-courant, contre-courant, ou courant croisés par rapport au gaz, ou bien maintenu en contact avec des surfaces chaudes.

Le choix d'une technologie de séchoir résulte d'un compromis entre différents critères :

◇ *Le mode de fonctionnement du séchoir :*

Les séchoirs peuvent fonctionner de façon continue ou discontinue. Le choix se fait généralement en fonction de la quantité de produit à sécher. Généralement, pour une production faible, on choisira un système discontinu, alors que pour une production importante, un fonctionnement continu permettra de faciliter les opérations de manutention. Les techniques les plus utilisées dans l'industrie sont le séchage convectif et le séchage conductif. Par ailleurs, plusieurs techniques de séchage peuvent être couplées dans un même appareil.

◇ *La nature et la qualité du produit à sécher :*

Le produit à sécher a une influence sur tous les aspects d'un séchoir (préparation, mode d'exploitation, manutention, source de chaleur, mode de transmission, système aéraulique). Il peut s'agir de liquide, de pâtes, de matériaux pulvérulents, granuleux, fibreux, ou compacts.

Les pâtes, produits très visqueux, sont souvent laminées puis déchiquetées pour avoir une texture proche des solides. Elles peuvent aussi être traitées par des séchoirs à bandes ou à vis.

Les solides pulvérulents, susceptibles d'êtres broyés, sont généralement séchés dans des séchoirs à bandes, à cylindres, ou à lit mobile. Pour des produits très cohésifs, on peut envisager un recyclage du produit sec pour réduire l'agglomération.

Les produits compacts ou en morceaux sont souvent traités dans des séchoirs à armoires ou à bandes transporteuses.

Un produit liquide offre de nombreuses possibilités de traitements (atomisation, dispersion sur des cylindres, ...).

La quantité de produit à sécher peut limiter le choix de la technologie à utiliser. Par exemple, certains produits chimiquement sensibles doivent être séchés en évitant toute contamination par l'atmosphère ou d'autres produits.

◇ *La source de chaleur et le mode de transmission :*

Dans les séchoirs à conduction ou convection, on peut utiliser des fluides calo-porteurs classiques (eau chaude, vapeur, gaz de combustion, ...). Ces fluides peuvent circuler dans des doubles enveloppes ou des tubes en contact avec le produit (séchage par conduction), ou dans des préchauffeurs d'air (séchage par convection). Si les gaz de combustion sont suffisamment propres, on peut les amener directement au contact du produit à sécher. Le séchage par rayonnement se fait à l'aide de lampes électriques ou de panneaux chauffants.

Le choix de la température de séchage est souvent compliqué :
- Une température élevée permet d'augmenter la vitesse de séchage, mais elle peut entraîner la formation d'une croûte en surface du produit et empêcher le séchage de l'humidité interne.
- Une température trop basse augmente considérablement le temps de séchage.
- Certains produits sont thermosensibles et ne peuvent pas être séchés à trop haute température (comme les grains de PVC qui brûlent à partir de 70°C).

◇ *La sécurité :*

Les produits toxiques nécessitent des technologies adaptées pour assurer la sécurité des opérateurs. De plus, le transport de poudres sèches (en sortie de séchoir, dans les cyclones, ...) dans un courant d'air peut entraîner des décharges d'électricité statique. Il convient donc d'éviter ce phénomène, par exemple, en augmentant l'humidité de l'air dans les zones sèches.

◇ *La consommation d'énergie :*

Par définition l'efficacité énergétique d'un séchoir est faible. En effet, il s'agit d'évaporer de l'eau liée à un solide par des liaisons de type chimique (ionique, covalent, mécanique) ou de type électrostatique (Van der Waals, pont hydrogène). Le rendement énergétique des séchoirs (rapport entre l'énergie thermique consommée et l'énergie nécessaire à l'évaporation de la même quantité d'eau pure) dépasse donc rarement 60%. Cette opération est donc coûteuse, et il convient d'optimiser le procédé pour réduire sa consommation énergétique.

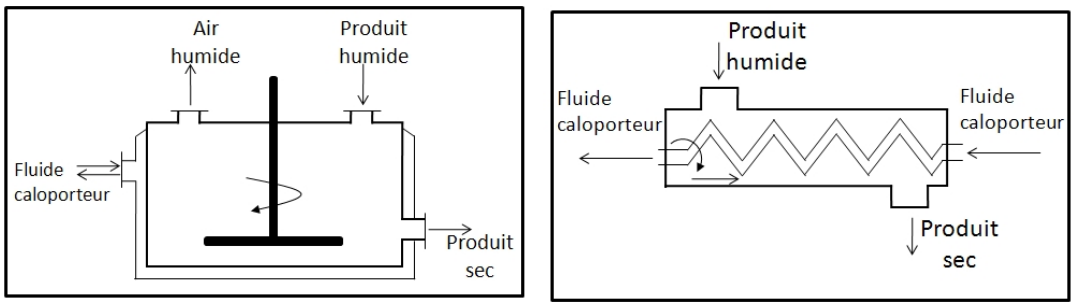
Fonctionnement de séchoirs classiques.

Il existe donc une grande diversité de techniques de séchage thermique. Le fonctionnement d'exemples classiques va être présenté ci-après, notamment le fonctionnement des séchoirs pneumatiques et à lit fluidisé qui nous intéressent particulièrement dans cette étude.

Séchoirs par contact :

Le principe d'un séchoir à contact est d'apporter la chaleur au produit à sécher par conduction à l'aide d'une paroi chaude (double-enveloppe, vis sans fin, tubes, ...) (Farges, 1996). La Figure D.1 présente deux exemples de séchoir par contact.

Le séchoir à lit agité (Figure D.1(a)) est un séchoir fonctionnant en discontinu. Pour garantir une homogénéité du traitement des particules, le produit humide est agité par un arbre rotatif équipé de pales. La chaleur est apportée au produit humide par les parois de la chambre de séchage qui est équipée d'une double enveloppe dans laquelle circule un



(a) Séchoir à lit agité. (b) Séchoir convoyeur à vis.

FIGURE D.1 – Exemples de séchoirs par contact.

fluide caloporteur. L'humidité est évacuée de la chambre par aspiration. D'autres séchoirs (séchoirs à palettes, à cône agités, ...) fonctionnent sur le même principe, seul le mode d'agitation diffère.

La Figure D.1(b) représente un séchoir convoyeur à vis. Ce type de séchoir fonctionne en continu, la chaleur est apportée par la vis sans fin (avec circulation d'un fluide caloporteur). Le produit humide est transporté par la vis et séché progressivement. Les séchoirs discothermes ou rotatifs fonctionnent sur le même principe. Ce type de séchoir peut être traversé par un gaz vecteur afin d'évacuer l'humidité, le principe de fonctionnement reste néanmoins le même.

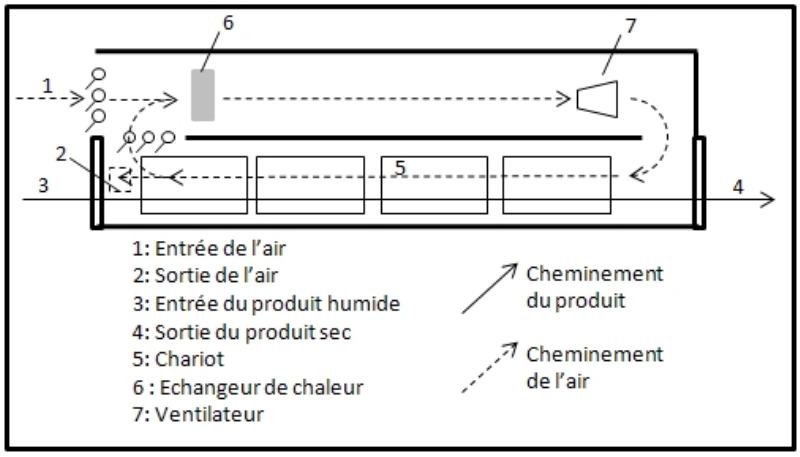


FIGURE D.2 – Séchoir convectif à chariot.

Annexe E

Différentes corrélations pour déterminer le coefficient de transfert thermique.

Pour déterminer le coefficient de transfert thermique, on trouve, dans la litterature, un grand nombre de corrélations en fonction du mode de transport (fluidisation ou transport pneumatique). La plupart de ces corrélations se trouvent sous la forme :

$$Nu = a \cdot Re^b \cdot Pr^c, \tag{E.1}$$

avec a, b, et c, des constantes.

Baeyens et al. (1995) présente une liste de corrélations, utilisées fréquemment dans la littérature, pour les différents systèmes gaz-solide :

– Pour une particule isolée :

La corrélation de Ranz-Marshall (Kunii and Levenspiel, 1991) :

$$Nu = 2 + 0,6 \cdot Re_p^{0,5} \cdot Pr^{0,333}. \tag{E.2}$$

– Pour un lit fluidisé :

La corrélation de Kothari :

$$Nu = 0,03 \cdot Re_p^{1,3}, \qquad 0,1 < Re < 100. \tag{E.3}$$

La corrélation de Walton :

$$Nu = 0,0028 \cdot Re_p^{1,7} \cdot \left(\frac{d_p}{D_c}\right)^{-0,2}. \tag{E.4}$$

La corrélation de Gamson

$$Nu = 1,06 \cdot Re_p^{0,59} \cdot Pr^{0,33}. \tag{E.5}$$

– Pour un lit transporté :

La corrélation de De Brandt :

$$Nu = 0,16 \cdot Re_p^{1,3} \cdot Pr^{0,67}. \tag{E.6}$$

La corrélation de Baeyens :

$$Nu = 0,15 \cdot Re_p, \qquad 0,01 < Re < 1000. \tag{E.7}$$

La corrélation de Bandrowski :

$$Nu = 0,00114 \cdot \alpha_p^{-0,5984} \cdot Re_p^{0,8159}. \tag{E.8}$$

Rajan et al. (2008) proposent des corrélations prenant en compte le ratio entre le débit massique d'air et celui de solide, F_m, et le nombre de Fedorov, Fe :

$$F_m = \frac{F_p}{F_g}, \tag{E.9}$$

avec F_p et F_g, respectivement, les débits humides de solide et de gaz.

$$Fe = d_p \cdot \left[\frac{4 \cdot g \cdot \rho_g^2}{3 \cdot \mu_g^2} \cdot \left(\frac{\rho_p}{\rho_g} - 1\right)\right]^{1/3} = Ga^{1/3}. \tag{E.10}$$

– Pour un flux dilué :

$$Nu = 8,2951 \cdot 10^{-7} \cdot Re_p^{5,3365} \cdot F_m^{-1,3863} \cdot Fe^{-5,0530}. \tag{E.11}$$

– Pour un flux dense :

$$Nu = 1,3360 \cdot 10^{-4} \cdot Re_p^{2,7624} \cdot F_m^{0,6792} \cdot Fe^{-1,8344}. \tag{E.12}$$

Ces deux corrélations admettent le domaine de validité suivant :

$$0,09 < F_m < 0,87 \quad \text{et} \quad 8,28 < Fe < 26,79 \quad \text{et} \quad 36,59 < Re_p < 175,33.$$

Annexe F

Modèle à l'échelle d'une particule isolée : Cas général.

Dans un premier temps, la modélisation de la cinétique de séchage est réalisée sur une particule isolée placée dans une atmosphère à température et humidité données (voir Figure F.1). Ce modèle, de type noyau rétrécissant, permet de déterminer les profils d'humidité de l'air et de température dans la croûte sèche formée durant le séchage, sans prendre en compte les problématiques liées à l'hydrodynamique du séchoir.

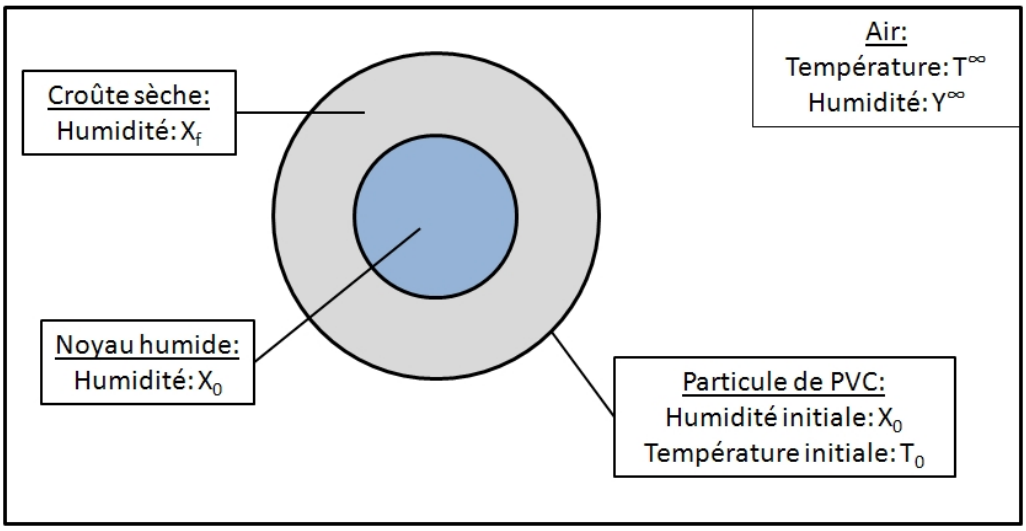


FIGURE F.1 – Principe du modèle à l'échelle d'une particule.

F.1 Hypothèses et équations.

Ce modèle repose sur les hypothèses suivantes :

- la particule est considérée parfaitement sphérique et quasi-homogène, le problème est donc réduit à l'étude sur un rayon de la sphère,
- la particule ne contient que de l'humidité interne,
- l'évaporation de l'eau a lieu à la surface du noyau humide, appelée le front d'évaporation,
- la température du noyau humide est uniforme (cette hypothèse repose sur le fait que l'eau contenue dans le noyau a une plus grande conductivité thermique que l'air ou le solide, et donc que l'eau impose la température à l'ensemble du noyau),
- le transfert de matière est dirigé par la diffusion de la vapeur à travers la croûte sèche et par le transfert convectif à la surface de la particule,
- le transfert de chaleur est dirigé par le transfert convectif à la surface de la particule et par conduction dans la croûte sèche,
- l'énergie cédée par la vapeur lors de sa diffusion à travers la croûte sèche est négligée,
- et, les profils à l'intérieure de la croûte sèche sont établis dans l'état quasi-stationnaire.

F.1.1 Détermination des profils d'humidité et de température dans la croûte sèche.

Afin de déterminer les profils d'humidité et de température à l'intérieur de la croûte sèche, on se place dans l'hypothèse de l'état quasi-stationnaire. On définit alors, comme présenté sur la Figure F.2, le rayon du noyau humide, r_h. On définit aussi différentes grandeurs :

– loin du grain : T^{∞} et Y^{∞}, respectivement, la température et l'humidité de l'air,
– à la surface de la particule : T_s, la température de surface de la particule, et Y_s l'humidité de l'air,
– au front de séchage : T_h, la température du noyau humide de la particule, et Y^* l'humidité de l'air, égale à l'humidité de saturation adiabatique.

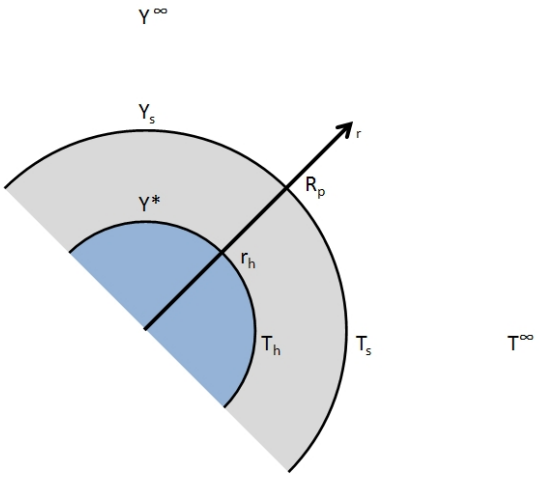


FIGURE F.2 – Nomenclature du modèle à l'échelle d'une particule.

Profil d'humidité du gaz :

Le transfert de matière interne à la particule est dirigé par la diffusion de la vapeur dans les pores. La densité de flux d'évaporation en un point de la croûte sèche, $\dot{N}_W(r)$, s'obtient alors par la loi de Fick :

$$\dot{N}_w(r) = -D_{app} \cdot \rho_g^0 \cdot \left.\frac{\partial Y(r)}{\partial r}\right|_r, \tag{F.1}$$

avec D_{app} le coefficient apparent de diffusion de la vapeur d'eau dans les pores, déterminé à partir du coefficient de diffusion effectif, D_{eff}, et corrigé par la relation proposée par Akanni et al. (1987) :

$$D_{app} = D_{eff} \cdot \frac{\chi}{\tau}, \tag{F.2}$$

avec χ la porosité des particules, et τ la tortuosité des pores.

Comme la particule de PVC comprend des mésopores, il faut à la fois prendre en compte la diffusion moléculaire et la diffusion de Knudsen. Le coefficient de diffusion effectif est donc calculé à partir de la relation suivante :

$$D_{eff} = \left(\frac{1}{D_M} + \frac{1}{D_K}\right)^{-1}, \tag{F.3}$$

avec, D_{bin}, le coefficient de diffusion moléculaire, D_K, et le coefficient de diffusion de Knudsen. Les corrélations permettant de déterminer ces coefficients sont présentées dans le Chapitre 3 Section 3.3 page 81.

En régime quasi-permanent, le bilan matière sur un élément de volume de la croûte sèche s'écrit ainsi :

$$-\frac{1}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r}\left(r^2 \cdot \dot{N}_W(r)\right)\Big|_r = 0. \tag{F.4}$$

En combinant les équations (F.1) et (F.4), on obtient l'équation suivante :

$$D_{app} \cdot \rho_g^0 \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \cdot \frac{\partial Y(r)}{\partial r} \right) \Big|_r = 0. \tag{F.5}$$

Après intégration, et avec les conditions aux limites suivantes :

– en r = R_p, Y = Y_s,
– et, en r = r_h, Y = Y^*,

on obtient le profil d'humidité de l'air dans la croûte sèche :

$$Y(r) = \frac{Y^* - Y_s}{1/R_p - 1/r_h} \cdot \left(\frac{1}{R_p} - \frac{1}{r} \right) + Y_s. \tag{F.6}$$

On peut aussi exprimer la densité de flux d'évaporation en fonction du rayon de la particule :

$$\dot{N}_W(r) = D_{app} \cdot \rho_g^0 \cdot \frac{Y^* - Y_s}{1/R_p - 1/r_h} \cdot \frac{1}{r^2}. \tag{F.7}$$

Profil de température de la particule :

De la même manière, comme le transfert de chaleur interne à la particule est régi par le phénomène de conduction thermique, on définit la densité de flux d'énergie, $\dot{q}$, à partir de la loi de Fourier :

$$\dot{q}(r) = -\lambda_p \cdot \frac{\partial T_p}{\partial r} \Big|_r, \tag{F.8}$$

avec λ_p la conductivité thermique de la croûte sèche.

En régime quasi-permanent, le bilan thermique sur un petit élément de la croûte sèche s'écrit ainsi :

$$-\frac{1}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \cdot \dot{q}(r) \right) \Big|_r = 0. \tag{F.9}$$

En combinant les équations (F.8) et (F.9), on obtient l'équation suivante :

$$\lambda_p \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \cdot \frac{\partial T_p(r)}{\partial r} \right) \Big|_r = 0. \tag{F.10}$$

Après intégration, et avec les conditions aux limites suivantes :

– en r = R_p, T_p = T_s,
– et, en r = r_h, T_p = T_h,

on obtient le profil de température dans la croûte sèche :

$$T_p(r) = \frac{T_h - T_s}{1/R_p - 1/r_h} \cdot \left(\frac{1}{R_p} - \frac{1}{r} \right) + T_s. \tag{F.11}$$

On peut aussi exprimer la densité de flux d'énergie en fonction du rayon de la particule :

$$\dot{q}(r) = -\lambda_p \cdot \frac{T_h - T_s}{1/R_p - 1/r_h} \cdot \frac{1}{r^2}. \tag{F.12}$$

F.1.2 Bilans sur la particule.

Bilan matière :

Le bilan global de matière sur une particule peut s'écrire de la façon suivante :

$$\frac{d(V_p \cdot \rho_p \cdot X)}{dt} = A_p \cdot \dot{N}_W|_{R_p}, \tag{F.13}$$

avec V_p, le volume de la particule, A_p sa surface externe ($\pi \cdot d_p^2$), ρ_p sa masse volumique, d_p, son diamètre, X, l'humidité moyenne de la particule à l'instant t, et $\dot{N}_W|_R$ la densité de flux d'évaporation à la surface de la particule.

Après simplification, l'équation (F.13) s'écrit sous la forme :

$$\frac{dX}{dt} = \frac{6}{d_p \cdot \rho_p} \cdot \dot{N}_W|_{R_p} \tag{F.14}$$

A partir de l'équation (F.7), on peut exprimer la densité de flux d'évaporation à la surface de la particule comme :

$$\dot{N}_W|_{R_p} = D_{app} \cdot \rho_g \cdot \frac{Y^* - Y_s}{1/R_p - 1/r_h} \cdot \frac{1}{R_p^2} = k_d \cdot (Y^* - Y_s), \tag{F.15}$$

avec k_d le coefficient de transfert de matière interne à la particule défini comme :

$$k_d = \frac{D_{app} \cdot \rho_g}{1/R_p - 1/r_h} \cdot \frac{1}{R_p^2} = \frac{k_y}{Bi_M \cdot (1 - R_p/r_h)}, \tag{F.16}$$

avec k_y le coefficient de transfert de matière convectif, et Bi_M, le nombre de Biot matière : $Bi_M = \frac{k_y \cdot R_p}{D_{app} \cdot \rho_g}$.

En écrivant l'égalité des flux diffusifs et convectifs en surface de la particule, on obtient :

$$\dot{N}_W|_{R_p} = k_y \cdot (Y_s - Y^\infty) = k_d \cdot (Y^* - Y_s). \tag{F.17}$$

L'équation (F.17) peut se développer sous la forme :

$$\dot{N}_W|_{R_p} = \frac{Y^* - Y_s}{1/k_d} = \frac{Y_s - Y^\infty}{1/k_y} = \frac{Y^* - Y^\infty}{1/k_y + 1/k_d}. \tag{F.18}$$

Ou encore :

$$\dot{N}_W|_{R_p} = \frac{k_y}{1 + Bi_M \cdot (1 - R_p/r_h)} \cdot (Y^* - Y^\infty) = K_y \cdot (Y^* - Y^\infty), \tag{F.19}$$

avec $K_y = \frac{k_y}{1+Bi_M \cdot (1-R_p/r_h)}$ le coefficient global de transfert de matière.

Le bilan matière sur la particule s'écrit alors :

$$\frac{dX}{dt} = -\frac{6}{\rho_p \cdot d_p} \cdot K_y \cdot (Y^* - Y^\infty). \tag{F.20}$$

L'humidité de la particule peut s'exprimer en fonction du rayon du noyau humide :

$$X = \frac{m_{eau}}{m_p^0} = \frac{4\pi/3 \cdot r_h^3 \cdot \rho_p \cdot X_0}{4\pi/3 \cdot R_p^3 \cdot \rho_p}. \tag{F.21}$$

On obtient alors :

$$X = \frac{r_h^3}{R_p^3} \cdot X_0. \tag{F.22}$$

Bilan thermique

Le bilan thermique sur la particule s'exprime de la façon suivante :

$$\rho_p \cdot A_p \cdot Cp_{h,p} \cdot \frac{\partial T_p(r,t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2 \cdot \dot{q}(r,t)\right) = \lambda_p \cdot \frac{\partial}{\partial r}\left(r^2 \cdot \frac{\partial T_p(r,t)}{\partial r}\right). \tag{F.23}$$

◇ *Température de la particule non uniforme :*

Dans le cas où, la température de la particule n'est pas considérée uniforme, l'équation présentée ci-dessus est développée par intégration par partie (en introduisant des variables réduites). On obtient alors deux équations, permettant d'évaluer à la fois la température du noyau humide, T_h, mais aussi la température de surface de la particule, T_s :

$$\frac{r_h^3 \cdot Cp_{h,p}}{3} \cdot \frac{dT_h}{dt} = \frac{R^2}{\rho_p} \cdot (T^\infty - T_s) - r_h^2 \cdot \frac{dr_h}{dt}\left(Cp_{h,p} \cdot (T_h - T_{ref}) - X_0 \cdot \Delta H_V\right), \tag{F.24}$$

et,

$$\frac{dT_s}{dt} = \frac{\left(r_h^2 + r_h \cdot Bi_T \cdot (R - r_h)\right) \cdot \frac{dT_h}{dt} + R \cdot Bi_T \cdot (T_h - T^\infty) \cdot \frac{dr_h}{dt}}{\left(r_h + Bi_T \cdot (R - r_h)\right)^2}, \tag{F.25}$$

avec, $Cp_{h,p}$, la chaleur massique de la particule humide, et, Bi_T, le nombre de Biot thermique, défini comme :

$$Bi_T = \frac{h \cdot R}{\lambda_p}, \tag{F.26}$$

et λ_p, la conductivité thermique de la particule,

◇ *Température de la particule uniforme :*

Dans la cas où la température de la particule est uniforme, le bilan thermique sur la particule se simplifie ainsi :

$$\frac{d}{dt}\left(\rho_p \cdot V_p \cdot Cp_{h,p} \cdot T_p\right) = h \cdot 4\pi R_p^2 \cdot (T^\infty - T_p) + m_p^0 \cdot \Delta H_V(T_p) \cdot \frac{dX}{dt}, \tag{F.27}$$

avec $Cp_{h,p}$ la chaleur massique du solide humide, h le coefficient de transfert thermique convectif, et $\Delta H_V(T_p)$ l'entalpie de vaporisation de l'eau à la température de la particule.

Après développement, on obtient :

$$Cp_{h,p} \cdot \frac{dT_p}{dt} = \frac{3 \cdot h}{\rho_p \cdot R_p} \cdot (T^\infty - T_p) + \left(\Delta H_V(Tp) - Cp_{eau}^L \cdot (T_p - T_{ref})\right) \frac{dX}{dt}. \tag{F.28}$$

F.2 Présentation des résultats du modèle à l'échelle du grain.

Les Figures F.3 et F.4 présentent les résultats du modèle en considiérant la température de particule non uniforme. Les paramètres de simulation utilisés sont présentés dans le Tableau F.1.

La Figure F.3 montre l'évolution de l'humidité de la particule et des températures de surface et du noyau humide de la particule. Les résultats montrent que les évolutions des

Tableau F.1 – Paramètres utilisés pour les simulations effectuées avec le modèle à l'échelle d'une particule.

Particule de PVC					
X_0	0,205	kg d'eau / kg de PVC sec	ρ_p	1200	$\mathrm{kg \cdot m^{-3}}$
T_{p_0}	20	°C	Cp_p	1700	$\mathrm{J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}}$
d_p	150	μm	λ_p	0,17	$\mathrm{W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$
Air			Coefficient de transfert		
T^∞	60	°C	k_y	0,01	$\mathrm{kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}}$
Y^∞	0,005	kg d'eau / kg d'air sec	h	100	$\mathrm{W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}}$

températures du noyau humide et de surface sont similaires et que leur différence reste faible. En effet, la différence maximale est $T_s - T_h = 0,5°C$.

Ceci est confirmé par la Figure F.4 qui présente la température de la croûte sèche pour deux temps différents (t_1 = 3,06 et t_2 = 8,16 secondes). En effet, aux deux temps représentés, la température de la croûte sèche peut être considérée constante. Les profils d'humidité de l'air dans les pores de la croûte sèche sont aussi représentés sur cette Figure.

La Figure F.5 compare les résultats de modélisation avec et sans l'hypothèse de température uniforme. Cette Figure confirme que l'hypothèse de température uniforme a peu d'effet sur les résultats du modèle.

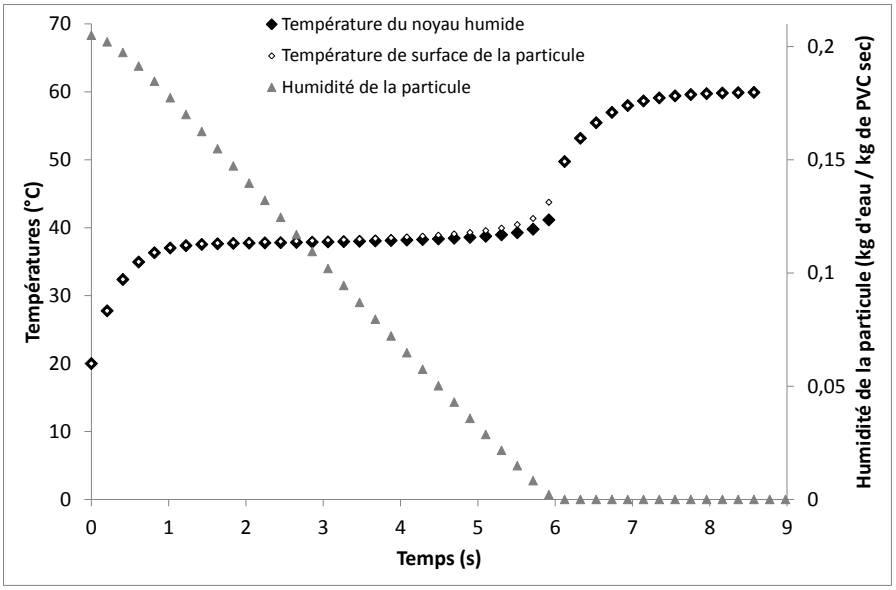


FIGURE F.3 – Résultats du modèle à l'échelle d'une particule en considérant la température de particule non uniforme : évolution de l'humidité et des températures de surface et du noyau humide de la particule.

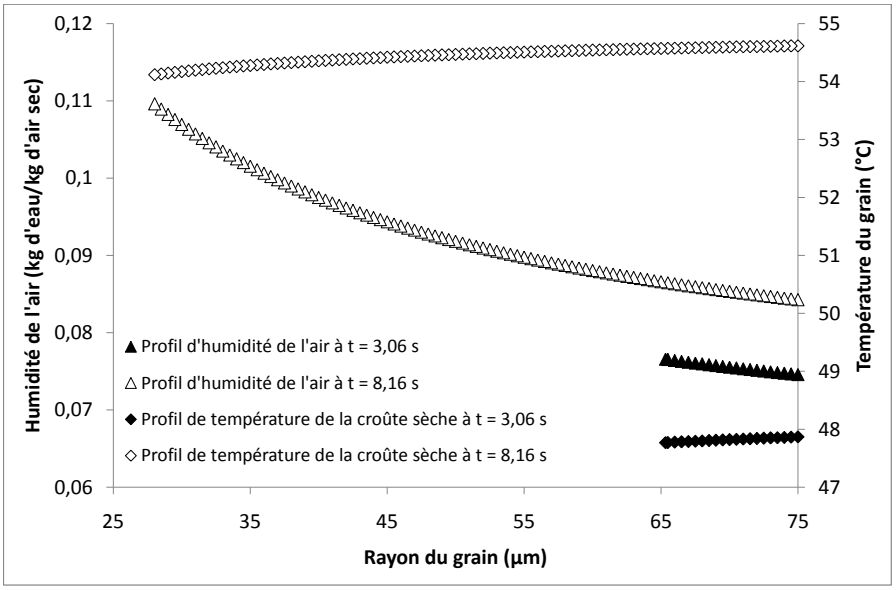


FIGURE F.4 – Résultats du modèle à l'échelle d'une particule en considérant la température de particule non uniforme : profils d'humidité de l'air et de température de la croûte sèche à deux temps.

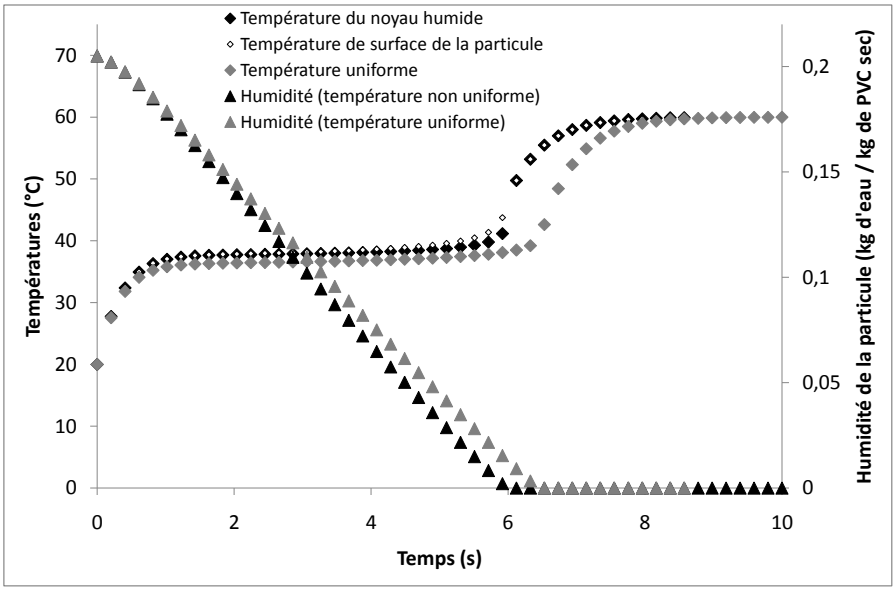


FIGURE F.5 – Comparaison des résultats de modélisation avec et sans l'hypothèse de température uniforme.

Annexe G

Équations régissant le modèle entrée/sortie du procédé industriel de séchage thermique.

Le modèle entrée/sortie est basé sur la résolution simultanée de différentes équations algébriques. Ces équations sont résumées dans cette Annexe et regroupées en fonction des différents séchoirs auxquels elles s'appliquent. Comme le séchoir à lit fluidisé est alimenté en son centre par de l'air chaud, et, en périphérie, par de l'air ambiant, cet équipement a été divisé en plusieurs parties (voir Figure G.1) :

– un séchoir à lit fluidisé alimenté par de l'air chaud (LF 1),
– un séchoir à lit fluidisé alimenté par de l'air ambiant (LF 2),
– et finalement, un mélangeur des deux flux d'air en sortie (ML).

L'humidité absolue de l'air en entrée des différents séchoirs est égale à l'humidité de l'air ambiant Y^{amb}. De même, la température en entrée des différents préchauffeurs est égale à la température de l'air ambiant, T^{amb}. Les équations sont exprimées en fonction des débits massiques des différentes phases porteuses (ou phases sèches), F_k^0. Pour chaque appareil simulé, le débit d'air sec reste constant, tandis que le débit de PVC sec reste constant tout au long du procédé.

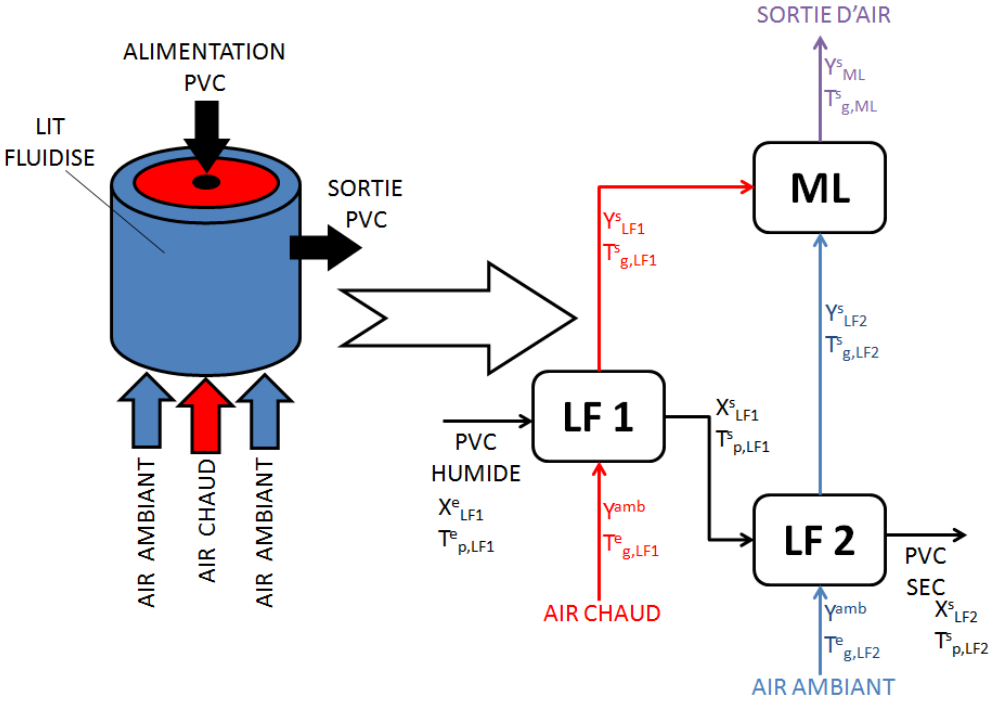


FIGURE G.1 – Modélisation entrée/sortie du lit fluidisé industriel.

G.1 Bilans sur les séchoirs.

◇ *Bilans sur le séchoir pneumatique.*

➢ *Bilan massique :*

$$F_{g_F}^0 \cdot \left(Y_F^s - Y^{amb}\right) = F_p^0 \left(X_F^e - X_F^s\right), \tag{G.1}$$

avec, $F_{g_F}^0$ le débit massique d'air sec, Y^{amb} et Y_F^s les humidités absolue de l'air en entrée et sortie du séchoir pneumatique, et X_F^e et X_F^s les humidités du PVC en entrée et sortie du séchoir pneumatique.

➢ *Bilan thermique :*

$$F_{g_F}^0 \cdot \left(H_{g_F}^s - H_{g_F}^e\right) = F_p^0 \left(H_{p_F}^e - H_{p_F}^s\right) - Qp_F, \tag{G.2}$$

avec, $H_{g_F}^e$ et $H_{g_F}^s$ les enthaplies massiques de l'air en entrée et sortie du séchoir pneumatique, et, $H_{p_F}^e$ et $H_{p_F}^s$ les enthaplies massiques du PVC en entrée et sortie du séchoir pneumatique, et Qp_F, les pertes thermiques du séchoir pneumatique.

Bilan sur le préchauffeur d'air du séchoir pneumatique :

$$Q_{pneum} = F_{g_F}^0 \cdot \left(H_{g_F}^e - H_g^{amb}\right) \tag{G.3}$$

➢ *Conditions de sortie :*

Afin de compléter ces équations bilans, on ajoute une condition arbitraire sur la température de sortie du PVC permetant d'assurer qu'il n'y ait pas de phénomène de condensation en sortie du séchoir :

$$T_{p_F}^s = T^* + 5 \tag{G.4}$$

avec, T*, la température de saturation adiabatique de l'air en sortie du séchoir pnematique, définit par les équations (A.24) et (A.25).

◇ *Bilans sur le séchoir à lit fluidisé.*

➢ *Bilans massiques :*

Les bilan massiques sur les différentes parties du séchoir à lit fluidisé s'écrivent de la manière suivante :

– Partie alimentée par de l'air chaud :

$$F_{g_{LF1}}^0 \cdot \left(Y_{LF1}^s - Y^{amb}\right) = F_p^0 \left(X_{LF1}^e - X_{LF1}^s\right), \tag{G.5}$$

avec $F_{g_{LF1}}^0$, le débit massique d'air chaud alimentant le séchoir à lit fluidisé, (Y_{LF1}^s l'humidité absolue de l'air en sortie, $X_{LF1}^e = X_F^s$ et X_{LF1}^s les humidités respectives du PVC en entrée et sortie.

– Partie alimentée par de l'air ambiant :

$$F_{g_{LF2}}^0 \cdot \left(Y_{LF2}^s - Y^{amb}\right) = F_p^0 \left(X_{LF2}^e - X_{LF2}^s\right), \tag{G.6}$$

avec $F_{g_{LF2}}^0$, le débit massique d'air ambiant alimentant le séchoir à lit fluidisé, (Y_{LF2}^s l'humidité absolue de l'air en sortie, $X_{LF2}^e = X_{LF1}^s$ et X_{LF2}^s les humidités respectives du PVC en entrée et sortie.

– Mélangeur :

$$Y_{ML}^s = \frac{F_{g_{LF1}}^0 \cdot Y_{LF1}^s + F_{g_{LF2}}^0 \cdot Y_{LF2}^s}{F_{g_{LF1}}^0 + F_{g_{LF2}}^0}. \tag{G.7}$$

avec Y_{ML}^s l'humidité absolue de l'air en sortie du lit fluidisé.

➢ *Bilans thermiques :*

Les bilan thermiques sur les différentes parties du séchoir à lit fluidisé s'écrivent de la manière suivante :

– Partie alimentée par de l'air chaud :

$$F^0_{g_{LF1}} \cdot \left(H^s_{g_{LF1}} - H^e_{g_{LF1}}\right) = F^0_p \left(H^e_{p_{LF1}} - H^s_{p_{LF1}}\right) - Qp_{LF1}, \tag{G.8}$$

avec $H^e_{p_{LF1}} = H^s_{p_F}$.
Bilan sur le préchauffeur d'air du séchoir à lit fluidisé :

$$Q_{LF} = F^0_{g_{LF1}} \cdot \left(H^e_{g_{LF1}} - H^{amb}_g\right) \tag{G.9}$$

– Partie alimentée par de l'air ambiant :

$$F^0_{g_{LF2}} \cdot \left(H^s_{g_{LF2}} - H^e_{g_{amb}}\right) = F^0_p \left(H^e_{p_{LF2}} - H^s_{p_{LF2}}\right), \tag{G.10}$$

avec $H^e_{p_{LF2}} = H^s_{p_{LF1}}$.
– Mélangeur :

$$T^s_{g_{ML}} = \frac{F^0_{g_{LF1}} \cdot T^s_{g_{LF1}} + F^0_{g_{LF2}} \cdot T^s_{g_{LF2}}}{F^0_{g_{LF1}} + F^0_{g_{LF2}}}. \tag{G.11}$$

➢ *Conditions de sortie :*

Comme le temps de séjour du PVC dans le séchoir à lit fluidisé est long, on fait l'hypothèse que le PVC et l'air sont à l'équilibre thermique. On obtient alors les deux conditions suivantes :

$$T^s_{p_{LF1}} = T^s_{g_{LF1}} \qquad et \qquad T^s_{p_{LF2}} = T^s_{g_{LF2}}. \tag{G.12}$$

G.2 Méthode de calcul des débits d'utilité.

Ce modèle permet aussi de calculer les débits d'utilité à fournir au préchauffeur du séchoir pneumatique dans les deux configurations existantes.

◇ *Configuration Vapeur :*

En configuration "Vapeur", le préchauffeur se compose d'une batterie d'échangeurs :

– un échangeur alimenté par les eaux de centrifugation,
– un échangeur alimenté par les condensats de la vapeur,
– trois condenseurs, installés en série, qui seront modélisés comme un condenseur unique, alimenté par de la vapeur à 16 bar.

Un schéma de principe de la batterie d'échangeurs est présenté sur la Figure G.2. La nomenclature des températures, utilisées dans les équations ci-dessous, est indiquée sur cette Figure.

Le principe de ce modèle est de calculer le débit massique de vapeur 16 bar nécessaire pour amener l'air à la température souhaitée. Pour ce faire, on considère l'efficacité des

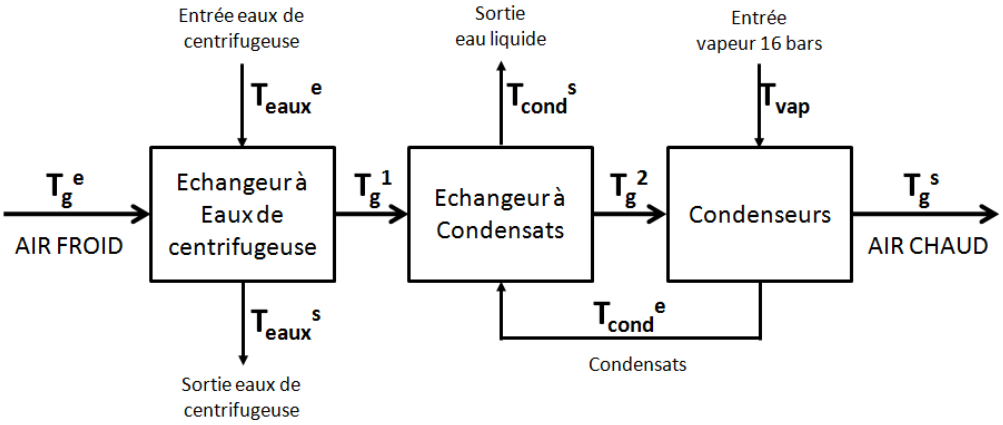


FIGURE G.2 – Représentation du préchauffeur en configuration vapeur.

différents échangeurs égale à 1. On effectue alors le bilan thermique sur chacune des trois parties de la batterie de chauffe :

➢ *Bilan sur l'échangeur à eaux de centrifugation :*

$$F_{eaux} \cdot (H^e_{eaux} - H^s_{eaux}) = F^0_g \cdot (H^1_g - H^e_g), \tag{G.13}$$

avec F_{eaux}, H^e_{eaux}, et H^s_{eaux}, le débit et les enthalpies d'entrée et de sortie des eaux de centrifugation, F^0_g, H^e_g, et H^1_g le débit d'air sec et les enthalpies de l'air en entrée et sortie de l'échangeur à eaux de centrifugation.

➢ *Bilan sur l'échangeur à condensats :*

$$F_{vap} \cdot (H^e_{cond} - H^s_{cond}) = F^0_g \cdot (H^2_g - H^1_g), \tag{G.14}$$

avec F_{vap}, le débit de vapeur 16 bar, H^e_{cond}, et H^s_{cond}, les enthalpies d'entrée et de sortie des condensats, et H^2_g l'enthalpie de l'air en sortie de l'échangeur à condensats .

➢ *Bilan sur les condenseurs :*

$$F_{vap} \cdot (H_{vap} - H^e_{cond}) = F^0_g \cdot (H^s_g - H^2_g), \tag{G.15}$$

avec H^s_{vap}, l'enthalpies de la vapeur 16 bar, et H^s_g l'enthalpie de l'air en sortie des condenseurs, c'est à dire l'enthalpie de l'air en entrée du séchoir pneumatique.

La résolution simultanée de ces différentes équations permet donc de déterminer le débit de vapeur 16 bar nécessaire pour atteindre la température d'air en entrée de séchoir souhaitée.

◇ *Configuration Brûleur :*

En configuration "Brûleur", le préchauffeur se compose d'un brûleur à gaz alimenté par du gaz naturel. Ce préchauffeur est modélisé (voir Figure G.3) en considérant une chambre de combustion alimentée par le gaz et la quantité stoechiométrique d'air nécessaire à la combustion totale du gaz. En sortie de cette chambre de combustion, on obtient alors des

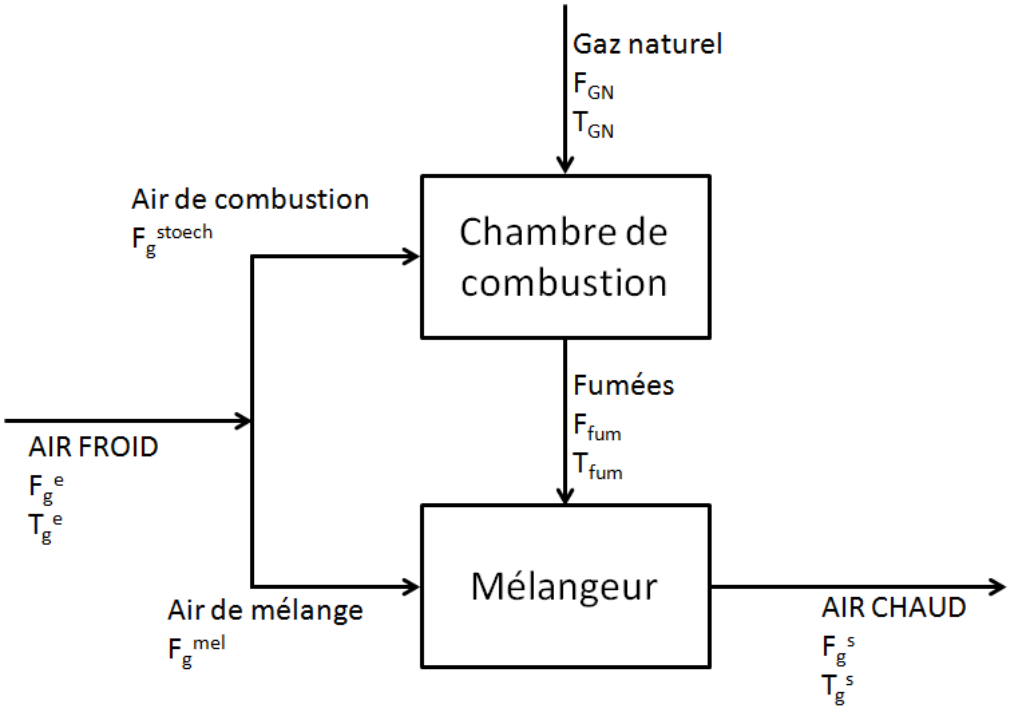


FIGURE G.3 – Représentation du préchauffeur en configuration brûleur.

"fumées" à la température de flamme. Ces fumées sont alors introduites dans un mélangeur, alimenté par le reste d'air sec.

➢ *Calcul des débit d'air de combustion et de mélange :*

On considère que l'air sec est composé à 79% d'azote et 21% d'oxygène, et la réaction de combustion unique :

$$CH_4 + 2O_2 \longrightarrow CO_2 + 2H_2O$$

On peut alors exprimer le débit molaire d'air de combustion, $F_{mol_g}^{stoech}$, en fonction du débit molaire de gaz naturel, $F_{mol_{GN}}$:

$$F_{mol_g}^{stoech} = \frac{F_{mol_{O2}}^{stoech}}{0,21} = \frac{2 \cdot F_{mol_{GN}}^{stoech}}{0,21}, \tag{G.16}$$

avec $F_{mol_{O2}}$, le débit molaire d'oxygène. On obtient alors, pour les débits massiques :

$$F_g^{stoech} = M_g \cdot F_{mol_g}^{stoech} = \frac{2 \cdot M_g}{0,21 \cdot M_{GN}} \cdot F_{GN}, \tag{G.17}$$

avec M_g et M_{GN} les masses molaires de l'air et du gaz naturel.

Le débit d'air de mélange, F_g^{mel}, s'exprime alors :

$$F_g^{mel} = F_g^e - F_g^{stoech} \tag{G.18}$$

➢ *Calcul de la composition et de la température des fumées :*

Les fumées, en sortie de la chambre de combustion, sont composées des produits de la combustion (CO_2 et H_2O) ainsi que de l'azote et l'humidité présent dans l'air en entrée. A l'instar du débit d'air de combustion, leurs débits partiels s'expriment en fonction du débit de gaz naturel :

$$F_{N2}^{fum} = F_{N2}^{stoech} = \frac{2 \cdot 0,79 \cdot M_{N2}}{0,21 \cdot M_{GN}} \cdot F_{GN}, \tag{G.19}$$

$$F_{CO2}^{fum} = \frac{M_{CO2}}{M_{GN}} \cdot F_{GN}, \tag{G.20}$$

$$F_{H2O}^{fum} = \frac{2 \cdot M_{H2O}}{M_{GN}} \cdot F_{GN} + Y_{amb} \cdot F_g^{stoech}, \tag{G.21}$$

avec Y_amb l'humidité de l'air ambiant, et M_{N2}, M_{CO2}, et M_{H2O}, les masses molaires respectives de l'azote, le dioxyde de carbone, et l'eau.

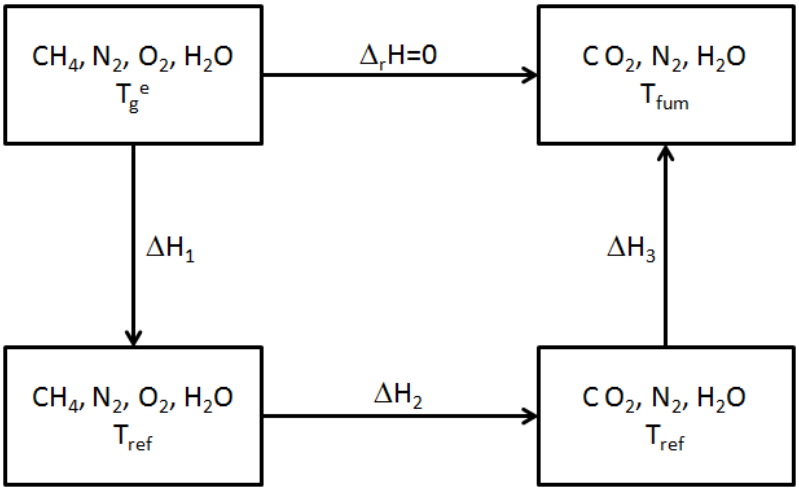


FIGURE G.4 – Cycle thermodynamique permettant de calculer la température de flamme de la combustion.

La température des fumées (température de flamme) se calcule à partir du cycle thermodynamique présenté sur la Figure G.4, avec :

$$\Delta_r H = 0 = \Delta H_1 + \Delta H_2 + \Delta H_3, \tag{G.22}$$

$$\Delta H_1 = \int_{T_g^e}^{T_{ref}} \Big(F_{GN} \cdot Cp_{GN}(T) + F_{N2}^{stoech} \cdot Cp_{N2}(T) + F_{O2}^{stoech} \cdot Cp_{O2}(T) + Y_{amb} \cdot F_g^{stoech} \cdot Cp_{H2O}(T) \Big) \cdot dT, \tag{G.23}$$

$$\Delta H_2 = F_{CO2}^{fum} \cdot \Delta H_f^{CO2} + (F_{H2O}^{fum} - Y_a mb \cdot F_g^{stoech}) \cdot \Delta H_f^{H2O} - F_{GN} \cdot \Delta H_f^{GN}, \tag{G.24}$$

$$\Delta H_3 = \int_{T_{ref}}^{T_{fum}} \Big(F_{CO2}^{fum} \cdot Cp_{CO2}(T) + F_{N2}^{fum} \cdot Cp_{N2}(T) + F_{H2O}^{fum} \cdot Cp_{H2O}(T) \Big) \cdot dT, \tag{G.25}$$

avec Cp_i les capacités calorifiques massiques des différentes espèces, et Δ_f^i, leur enthalpie de formation.

➢ *Bilan thermique sur le mélangeur :*

On considère que l'équilibre thermique entre les fumées du combusteur et l'air de mélange est atteint. On calcule donc la température de sortie du préchauffeur à partir des équations suivantes :

$$\Delta H_{mel} = 0 = \Delta H_4 + \Delta H_5 \tag{G.26}$$

$$\Delta H_4 = \int_{T_g^e}^{T_g^s} \left(F_{N2}^{mel} \cdot Cp_{N2}(T) + F_{O2}^{mel} \cdot Cp_{O2}(T) + Y_{amb} \cdot F_g^{mel} \cdot Cp_{H2O}(T) \right) \cdot dT, \tag{G.27}$$

$$\Delta H_5 = \int_{T_{fum}}^{T_g^s} \left(F_{CO2}^{fum} \cdot Cp_{CO2}(T) + F_{N2}^{fum} \cdot Cp_{N2}(T) + F_{H2O}^{fum} \cdot Cp_{H2O}(T) \right) \cdot dT, \tag{G.28}$$

La résolution simultanée de ces différentes équations permet donc de déterminer le débit de gaz naturel nécessaire pour atteindre la température d'air en entrée de séchoir souhaitée.

Les caractéristiques des différents courants, utilisées pour résoudre les équations présentées ci-dessus, sont résumées dans le Tableau G.1.

Tableau G.1 – Caractérisitiques des courants d'utilité utilisés par le préchauffeur du séchoir pneumatique.

Eaux de centrifugeuse		
Débit	20	t/h
Température d'entrée	55	°C
Température de sortie	44	°C
Vapeur + condensats		
Température de la vapeur	187	°C
Température d'entrée des condensats	184	°C
Température de sortie des condensats	80	°C
Gaz naturel		
Température d'entrée	15	°C