

# Conception d'une colonne de distillation à échanges de chaleur intégrés

---

## Introduction

La comparaison exergetique des colonnes de distillation d'air menée dans le chapitre 1 a montré une réduction des pertes exergetiques de 23 % en passant de la colonne double adiabatique, à la double colonne diabatique.

Plusieurs études, citées dans le chapitre 1, comparent les colonnes de distillation diabatique aux colonnes adiabatiques conventionnelles d'un point de vue exergetique, et des améliorations des rendements exergetiques de l'ordre de 20 à 40 % sont calculées. Ces colonnes sont aussi comparées d'un point de vue énergétique, en comparant les charges au bouilleur et au condenseur dans les deux colonnes. Des réductions des consommations d'énergie de 40 % sont calculées.

Les modèles théoriques et expérimentaux, cités dans la littérature, permettent de comparer différentes géométries de colonnes de distillation diabatique ainsi que de prévoir l'impact des paramètres géométriques et opératoires sur le fonctionnement de la colonne.

Dans ce chapitre, après une explication du concept de la distillation diabatique et des différents phénomènes physiques qui y prennent place, une revue bibliographique des différents types d'échangeurs les plus adaptés à la distillation diabatique de l'air est exposée afin de sélectionner le type d'échangeur.

Dans une deuxième section, la méthode de modélisation de la colonne de distillation diabatique de l'air cryogénique est détaillée. Les mécanismes de transferts sont modélisés et les différentes corrélations relatives aux pertes de pression, aux transferts de chaleur et aux transferts de masse sont choisies.

Le modèle numérique développé permet, dans un premier temps, de définir la configuration d'échanges dans la colonne, et cela en déterminant le niveau de pression dans chaque section. Le modèle développé permet aussi de prévoir l'influence de différents phénomènes physiques sur la performance de la colonne, tels que la distribution des mélanges sur les sections de passage et le mouillage des parois par le liquide.

## 1. Principe de la distillation cryogénique diabatique

Le phénomène de distillation se base sur le principe de différence de volatilités entre les composants du mélange à séparer. Pour la production d'oxygène par séparation des composants de l'air, les températures d'ébullition de l'azote et de l'oxygène étant assez proches (77 K et 90 K respectivement), le processus de séparation nécessite un apport d'énergie significatif et un grand nombre de plateaux. D'où le recours à la distillation diabatique, typique pour les mélanges à faible écart de volatilités des composants [1] et permettant d'effectuer la séparation à moindres consommations énergétiques.

La distillation cryogénique diabatique de l'air (CDA) se fait dans deux colonnes, à deux niveaux de pression, mises en contact pour permettre un transfert de chaleur de la colonne à haute pression (HP) vers la colonne basse pression (BP). La figure 2.1 représente schématiquement le processus. La figure 2.2 représente les écoulements à l'intérieur des deux colonnes haute et basse pressions, ainsi que les phénomènes de transferts.

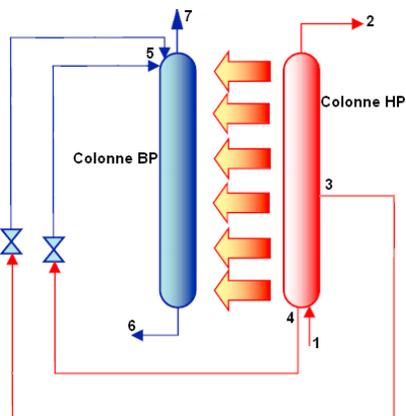


Figure 2.1 : Schéma représentatif de la distillation cryogénique diabatique de l'air (CDA)

Le procédé est alimenté en air comprimé en cuve de la colonne HP (figure 2.1 (1)). Deux phénomènes de transfert ont lieu dans cette colonne HP (figure 2.2).

- Un transfert de chaleur de la colonne HP vers la colonne BP : ce transfert conduit à la condensation de la vapeur ascendante. Le débit de vapeur diminue donc en remontant vers la tête de la colonne et un film liquide se forme, s'écoulant sur les parois de la colonne, avec un débit qui augmente en allant vers la cuve de la colonne (cf. figure 2.13-a).
- Un transfert de matière entre la vapeur ascendante et le liquide descendant : l'azote étant le composé le plus volatil dans le mélange, il reste en phase vapeur. Les transferts de masse se font alors comme suit : un débit d'azote vapeur traverse la surface interfaciale liquide/vapeur du côté liquide vers le côté vapeur et un débit d'oxygène liquide la traverse dans le sens opposé. La vapeur recueillie en tête de la colonne HP (2) présente alors une concentration en azote assez élevée (cf. figure 2.13-b). Le liquide s'enrichit en oxygène lors de son écoulement descendant (cf. figure 2.13-c).

Un débit de liquide soutiré dans la colonne HP (3) et le liquide recueilli en cuve de cette colonne (4) sont détendus et servent d'alimentation en tête de la colonne BP (5). Le liquide recueilli en cuve de la colonne est enrichi en oxygène comparativement au liquide soutiré (cf. figure 2.13-c).

Dans la colonne BP, les phénomènes de transfert de chaleur et de masse s'effectuent comme suit (figure 2.2).

- Un apport de chaleur résulte en une évaporation du liquide descendant. Le débit de liquide diminue donc en descendant vers la cuve de la colonne et un écoulement de vapeur se forme, avec un débit qui augmente en allant vers la tête de la colonne (figure 2.14-a).
- Les transferts de masse résultent en un liquide (6) riche en oxygène en cuve de la colonne (cf. figure 2.14-c) et une vapeur (7) riche en azote en tête (cf. figure 2.14-b).

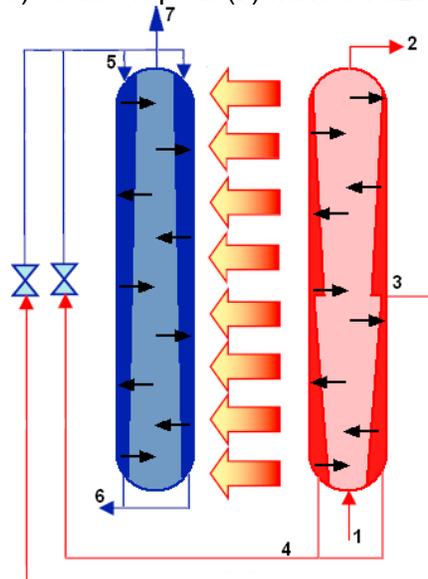


Figure 2.2 : Ecoulements et transferts de masse et de chaleur dans la colonne diabatique

Le point crucial pour la conception des colonnes diabatiques consiste à créer des surfaces de contact suffisantes entre les colonnes pour permettre les transferts de chaleur requis. Dans ce but, les chercheurs se sont intéressés aux différents types d'échangeurs de chaleur et ont étudié la possibilité de les adapter à la distillation diabatique. L'écoulement des fluides, chauds ou froids, d'un côté de l'échangeur, est remplacé par deux écoulements, liquide et vapeur, à contre-courants, à haute ou à basse pression.

## 2. Echangeurs de chaleur adaptés à la distillation diabatique cryogénique de l'air

Les échangeurs de chaleur se classent sous deux grandes catégories : les échangeurs tubulaires et les échangeurs à plaques. Dans les échangeurs tubulaires, on distingue les échangeurs monotube en serpentin, les échangeurs bitubes coaxiaux, les échangeurs tubes-calandre et les échangeurs à tubes ailetés [2]. Les échangeurs à plaques sont soit des échangeurs à plaques et ailettes, soit des échangeurs à plaques ondulées et joints, soit des échangeurs à plaques perforées [2].

Les échangeurs de chaleur adaptés aux applications cryogéniques sont les échangeurs à plaques et ailettes, les échangeurs à plaques perforées, les échangeurs bitubes coaxiaux et les échangeurs tubes-calandre [3,4]. Les caractéristiques de ces échangeurs et leurs éventuelles applications industrielles cryogéniques sont exposées dans la section suivante. Leurs performances en distillation diabatique sont ensuite comparées pour choisir le type d'échangeur à considérer pour la distillation CDA pour la production d'oxygène.

## 2.1. Echangeurs tubulaires

L'échangeur tubulaire le plus simple est constitué de deux tubes coaxiaux (figure 2.3.a [3]) ; un fluide HP s'écoule dans l'un des tubes et un fluide BP dans l'autre. En application cryogénique, l'ensemble est généralement placé dans un réservoir à vide pour limiter les échanges de chaleur avec l'air ambiant [3].

Un échangeur tubulaire est généralement utilisé pour des applications nécessitant de faibles capacités où la surface d'échange requise est de  $50 \text{ m}^2$  au maximum parce que le coût par unité de surface est élevé [5]. Des écoulements à contre-courants des fluides froids et chauds favorisent les échanges de chaleur. Pour augmenter les surfaces de transferts, des ailettes radiales ou longitudinales sont installées dans l'espace annulaire.

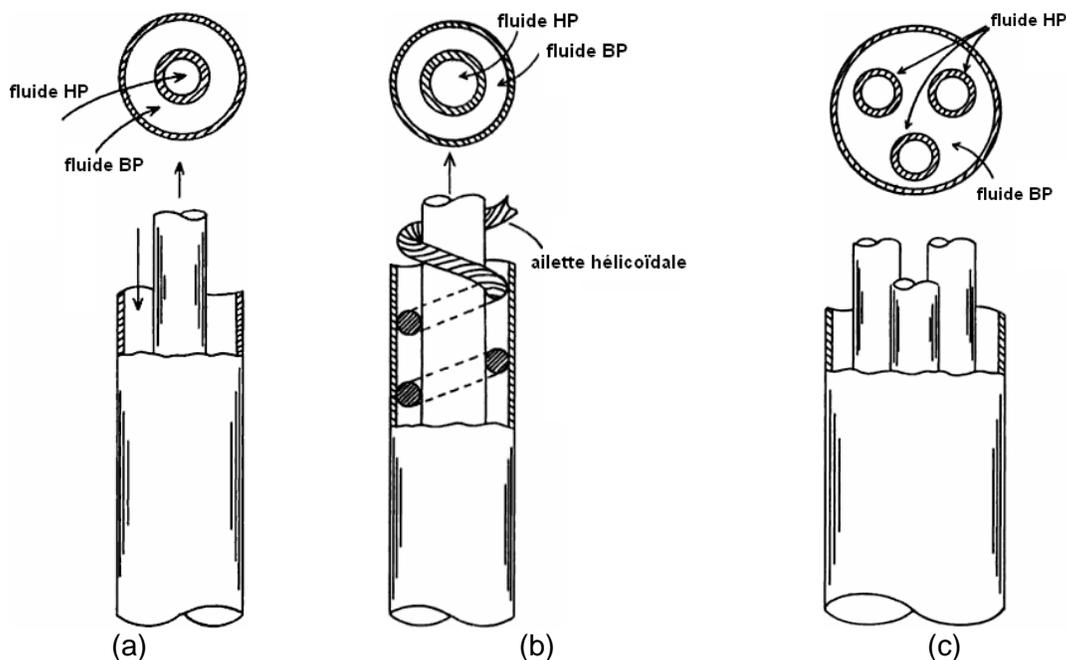


Figure 2.3 : Echangeurs tubulaires, (a) échangeur bitube, (b) échangeur bitube à ailettes, (c) échangeur tubes-calandre

Des ailettes en spirales sont représentées sur la figure 2.3.b [3]. Elles permettent d'une part, de fixer le tube intérieur au tube extérieur et, d'autre part, d'imposer un écoulement hélicoïdal plus long du fluide dans l'espace annulaire. Cette configuration permet d'augmenter le coefficient de transfert de chaleur. Il est à noter que les ailettes introduites dans l'espace annulaire accroissent les pertes de pression.

Un deuxième type d'échangeurs tubulaires utilisé dans des applications cryogéniques est l'échangeur tubes-calandre (figure 2.3.c [3]). C'est le type d'échangeur le plus répandu dans de

nombreuses industries et il est conçu pour supporter de hautes pressions. Les tubes peuvent être lisses, ou ailetés longitudinalement pour augmenter la surface de transfert de chaleur. Ils peuvent être traversant à deux calandres ou mono-calandre avec un faisceau de tubes en U. Des cloisons sont installées pour diriger le flux du fluide qui circule dans la calandre de façon à améliorer les échanges.

Le choix du matériau de construction des tubes doit prendre en compte la nature des deux fluides circulant et les limites de pression et de température [6]. Le matériau choisi doit disposer d'une conductivité assez élevée et résister aux gradients de température et de pression. Les métaux les plus généralement utilisés, sont le cuivre, les aciers alliés, l'aluminium et le titane.

Le coût d'un échangeur tubes-calandre dépend du coût des composants. L'enceinte a le coût le plus élevé pour les enceintes sous pression et respectant donc les codes des appareils à pression ; ce coût croît alors très rapidement avec le diamètre et plus modérément avec la longueur. Un rapport longueur / diamètre de 12 est considéré comme optimal du point de vue des coûts pour de nombreuses applications [6].

En applications cryogéniques, des échangeurs tubulaires sont utilisés pour des systèmes de séparation d'air [7] et de liquéfaction d'hélium [8]. Ils sont aussi utilisés pour la distillation diabatique de mélanges d'hydrocarbures, à températures non cryogéniques.

Une colonne pilote à plateaux, constituée de deux tubes coaxiaux est présentée dans Noda et al. [9]. Le tube interne représente la section de rectification HP et l'anneau extérieur, la section d'épuisement BP (figure 2.4). Le but de l'expérimentation étant de calculer le coefficient de transfert de chaleur inter-colonnes, les colonnes opèrent indépendamment, avec chacune, un condenseur et un rebouilleur, à conditions de reflux total en tête et en cuve.



Figure 2.4 : Colonne de distillation diabatique bitube, (a) section d'épuisement, (b) section de rectification

La colonne est testée avec un mélange de benzène-toluène. Les évolutions des températures, des débits et des compositions molaires des écoulements de la colonne sont mesurées pour différentes valeurs du rapport de pressions  $P_r/P_e$ , considéré comme le paramètre principal de contrôle des transferts de chaleur. Ces mesures permettent de calculer, par un bilan enthalpique, le coefficient de transfert de chaleur en fonction du rapport de pressions entre la section de rectification et la section d'épuisement.

Les résultats d'essais montrent que les transferts de chaleur ont bien lieu dans le sens du transfert naturel de la chaleur du plus chaud vers le plus froid donc du côté haute pression vers le côté basse pression et ce à partir d'un rapport de pression  $P_r/P_e$  de 1,25. Un coefficient de transfert de chaleur global, presque constant sur la longueur de la colonne, est calculé. Sa valeur varie entre 500 et 1 000  $W/m^2K$  en fonction du rapport de pression (et donc de l'écart de températures) entre les colonnes.

Pour augmenter les surfaces de contact entre les écoulements HP et les écoulements BP, un arrangement hexagonal de plusieurs tubes coaxiaux (figure 2.5 [10]), munis de garnissages structurés, est testé pour la séparation d'un mélange benzène-toluène.

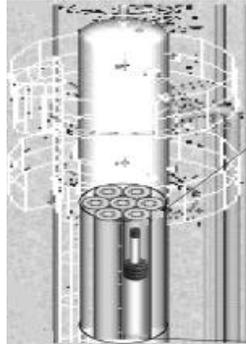


Figure 2.5 : Arrangement hexagonal de tubes coaxiaux pour une distillation diabatique

Sur une hauteur de 13,5 mètres et un diamètre des tubes externes de 40 cm, deux changements de diamètre des tubes internes sont effectués (figure 2.6, gauche) : de la cuve de la colonne, et jusqu'à une hauteur de 3,7 m, le diamètre des tubes internes est de 27 cm. Ensuite, et sur une hauteur de 5 m, le diamètre du tube interne est de 22 cm. Une deuxième réduction de diamètre interne jusqu'à 18 cm est effectuée sur la dernière partie en tête de colonne.

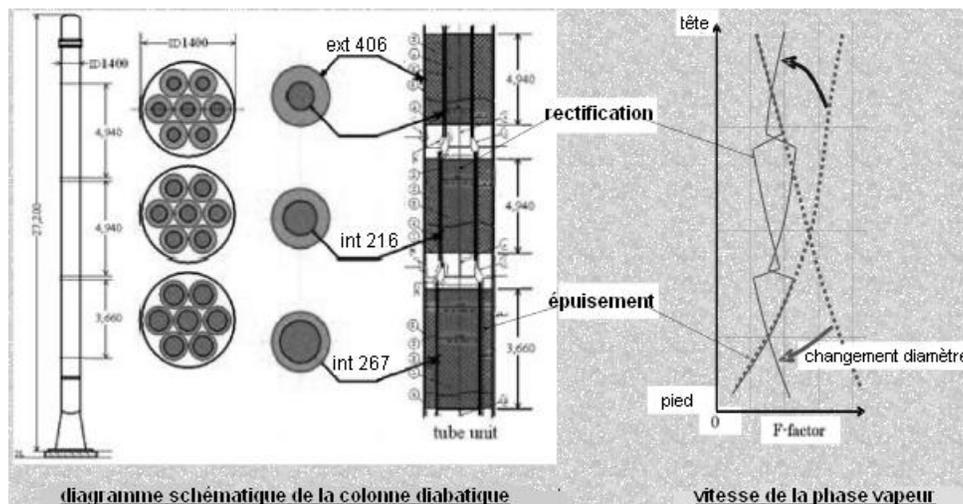


Figure 2.6 : Structure interne du pilote de colonne diabatique

Ce changement de diamètre a pour but de garder une vitesse de la vapeur presque constante dans la colonne. Dans la section interne de rectification à haute pression, de laquelle la chaleur est puisée, la vapeur se condense : le débit de vapeur diminue lors de l'écoulement ascendant. La section des tubes internes est alors diminuée vers la tête de la colonne. Dans la section externe d'épauement, le liquide s'évapore du fait de l'apport de chaleur : le débit de vapeur augmente lors de l'écoulement ascendant et une augmentation de la section de passage assure une vitesse constante (figure 2.6 à droite).

La consommation d'énergie de cette colonne est équivalente à 70 % de la consommation d'une colonne conventionnelle simple avec rebouilleur et condenseur. La même colonne est étudiée dans [11] et la consommation d'énergie de la colonne diabatique est calculée pour deux reflux

différents : elle vaut 60 % de la consommation d'une colonne conventionnelle pour une colonne diabatique idéale (reflux nul) et 62 % pour une colonne à reflux de 0,3 kmol/h.

Pour un design de colonne de distillation d'air, optimal des points de vue énergétique et économique, les remarques suivantes sont à considérer concernant les échangeurs tubulaires :

- la nécessité d'installer des plateaux dans les échangeurs bitubes pour favoriser les transferts de matière entre le liquide et la vapeur de chaque côté ;
- la surface d'échange de chaleur limitée dans le cas d'échangeurs bitubes, nécessite le rajout d'ailettes pour favoriser les échanges de chaleur ;
- le problème de distribution des fluides sur les tubes dans un échangeur multitubulaire.

## 2.2. Echangeurs à plaques

Les échangeurs à plaques les plus utilisés dans les applications industrielles cryogéniques sont les échangeurs à plaques et ailettes en aluminium brasé sous vide. Ces échangeurs sont caractérisés par leur compacité et leur surface spécifique assez élevée [4]. Diverses applications cryogéniques, telles que la séparation des composants de l'air, la liquéfaction du gaz naturel et la production d'éthylène peuvent être réalisées dans ces échangeurs. Des applications non cryogéniques, de distillation diabatique d'hydrocarbures, dans des échangeurs à plaques et ailettes, sont aussi étudiées. D'autres types d'échangeurs à plaques pourraient aussi être considérés : les échangeurs à plaques perforées et les échangeurs à plaques ondulées.

### 2.2.1. Echangeurs à plaques et ailettes

Un échangeur à plaques-ailettes est constitué d'une série de feuilles ondulées (les ailettes) séparées par des plaques métalliques (cf. figure 2.7), généralement en aluminium [13]. Entre les plaques le fluide chaud et le fluide froid circulent alternativement. Les ailettes permettent d'augmenter la surface de transfert de chaleur entre les fluides et d'augmenter aussi la compacité de l'échangeur, le rendant ainsi capable de supporter des pressions élevées. Des écoulements à contre-courants entre le fluide chaud et le fluide froid sont favorisés pour une meilleure performance thermique [3].

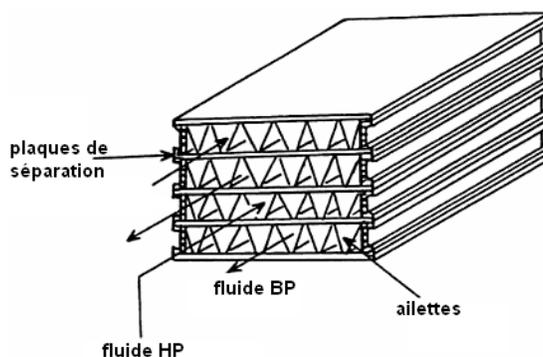


Figure 2.7 : Echangeur à plaques et ailettes

Les échangeurs à plaques et ailettes peuvent être utilisés pour des liquides, des gaz et des fluides diphasiques [5]. Le faible espacement entre les ailettes conduit à des diamètres hydrauliques très petits (de l'ordre de 2 mm), menant à des performances élevées. Dans le cas de fluides diphasiques, ceci pourrait créer des problèmes liés à l'engorgement des passages en liquide [4]. De plus, dans le cas de fluides impurs, des résidus pourront se former entre les ailettes.

Un échangeur à plaques-aillettes est utilisé pour des applications de distillation diabatique d'un mélange propane-propène [12]. Les plaques permettent des écoulements verticaux alternés entre rectification et épuisement. Les ailettes divisent chaque section en un certain nombre de passages parallèles procurant ainsi des surfaces d'échange supplémentaires.

Afin de garder une vitesse de vapeur constante dans les différentes sections, deux options de changement de la section d'écoulement sont possibles :

- variation de l'espacement et de la longueur des ailettes (figure 2.8.a) ; la figure montre deux changements de section sur 3 longueurs différentes
- utilisation de plaques non parallèles avec un espacement constant entre les ailettes (figure 2.8.b).

Des configurations de plaques parallèles et de plaques non parallèles sont modélisées et comparées. En comparant ces colonnes à une colonne conventionnelle de diamètre égal au diamètre hydraulique dans l'échangeur plaques-aillettes, une réduction de 35 % dans le travail de compression est évaluée dans les deux cas. La valeur du coefficient de transfert de chaleur global reste constante sur la longueur de la colonne et vaut 750 kW/K.

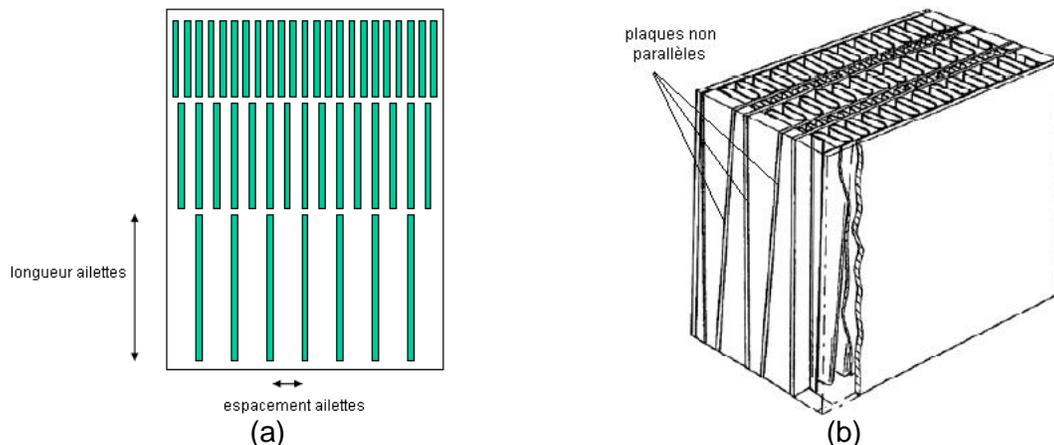


Figure 2.8 : Changement de section dans l'échangeur plaques-aillettes, (a) changement de l'espacement entre les ailettes, (b) plaques non parallèles

L'avantage des plaques non parallèles est une meilleure mouillabilité dans les sections à faibles débits de liquide (en tête de la section de rectification et en cuve de la section d'épuisement). Ceci est dû au fait que les diamètres hydrauliques dans ces sections diminuent avec les débits de liquide correspondant. Un deuxième avantage des plaques non parallèles est d'éviter les problèmes de mal distribution interne observés dans le cas de plaques parallèles lors de la diminution des espacements entre les ailettes.

Les points à considérer dans le cas d'échangeurs à plaques et ailettes utilisés dans une application de distillation d'air sont donc les suivants :

- distribution homogène des fluides entre les sections de passage
- risque d'engorgement liquide.

### 2.2.2. Echangeurs à plaques perforées

Ils sont constitués d'une série de plaques perforées de haute conductivité thermique séparées par des plaques de basse conductivité thermique (figure 2.9). Les fluides chaud et froid circulent à contre-courants, perpendiculairement aux plaques perforées. Les perforations sont de

diamètre assez faibles, ce qui crée des frottements considérables lors du passage du fluide et donc des coefficients de transfert de chaleur plus élevés [3].

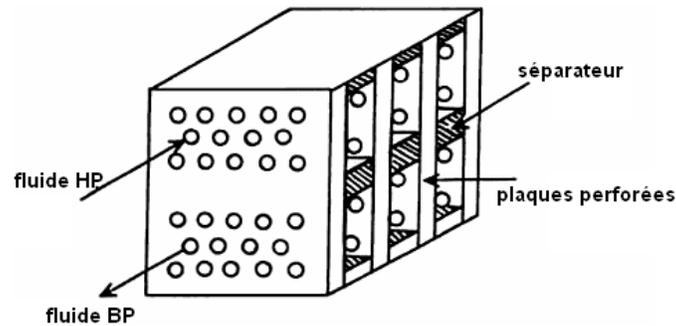


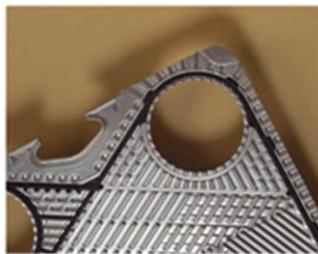
Figure 2.9 : Echangeur à plaques perforées

Dans une application de distillation diabatique de l'air, ce type d'échangeur présente deux problèmes :

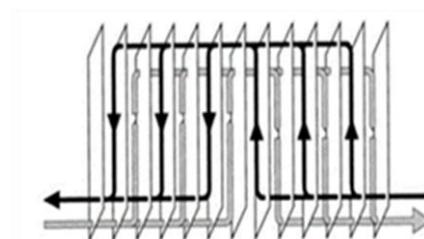
- surface de contact entre les fluides chauds et les fluides froids limitée
- risque d'engorgement liquide au niveau des perforations.

### 2.2.3. Echangeurs à plaques ondulées

Ce type d'échangeur est formé de plaques ondulées (figure 2.10.a) pressées les unes contre les autres dans un cadre métallique. Le matériau principal de construction est l'acier inoxydable. L'assemblage des plaques peut être effectués par brasage, soudage ou par serrage pour des échangeurs à plaque et joints. Les alimentations sont faites de manière à ce que deux fluides se distribuent alternativement entre les passages parallèles des plaques (figure 2.10.b). Cet échangeur présente l'avantage d'organiser les écoulements des deux fluides à contre-courants.



(a)



(b)

Figure 2.10 : Echangeur à plaques ondulées, (a) détail de la plaque, (b), assemblage de plaques

Les échangeurs à plaques fonctionnent pour des températures entre -35 et 200 °C et des pressions pouvant atteindre 2,5 MPa. Les surfaces d'échange varient entre 0,02 et 4,45 m<sup>2</sup> par plaque. Des débits de 3 500 m<sup>3</sup>/h sont possibles dans les unités standards. Ces échangeurs ne peuvent pas être utilisés pour des applications cryogéniques de séparation d'air, en particulier pour des questions de dilatation différentielle.

### 3. Choix du type d'échangeur pour la distillation cryogénique diabatique de l'air

La revue des différents types d'échangeurs utilisables dans les applications cryogéniques, de leurs caractéristiques et de leurs domaines d'utilisation permet d'effectuer le choix de l'échangeur de chaleur potentiellement utilisable pour une application de distillation diabatique cryogénique de l'air. Les critères de choix du type d'échangeur sont les suivants :

- permettre des écoulements verticaux de liquide et de vapeur à contre-courants, à deux niveaux de pression, sans engorgement du liquide dans les sections de passage
- assurer des surfaces de transfert de chaleur suffisantes entre les fluides chauds et froids
- minimiser les problèmes de distribution homogène des fluides dans les différentes sections de passages
- répondre aux contraintes de coût optimal.

Les échangeurs considérés dans la comparaison sont :

- les échangeurs bitubes
- les échangeurs tubes-calandre
- les échangeurs à plaques et ailettes
- les échangeurs à plaques perforées.

L'aptitude de ces types d'échangeurs à répondre aux exigences requises pour la distillation diabatique de l'air est étudiée et les différents échangeurs comparés. Tous ces échangeurs permettent des écoulements verticaux de liquide et de vapeur à contre-courants à deux niveaux de pressions. La contrainte d'engorgement de liquide dans la colonne est à vérifier en fonctions des débits et des sections de passage. Les surfaces disponibles pour le transfert de chaleur entre le fluide chaud et le fluide froid sont aussi calculées pour les différents types d'échangeurs. Les comparaisons quantitatives sont basées sur une simulation d'une colonne de séparation diabatique des composants de l'air effectuée sur HYSYS.

#### 3.1. Résultats de la simulation HYSYS pour la distillation diabatique de l'air

Aspen HYSYS est un outil de calcul pour la conception, l'optimisation et le contrôle des performances des industries de production et de traitement de gaz, du raffinage de pétrole, et les industries de séparation d'air [14]. Dans le but d'obtenir une première estimation des débits et des compositions molaires des mélanges de vapeur et de liquide dans une colonne de distillation diabatique de l'air, un modèle est développé dans HYSYS, comprenant deux colonnes à plateaux, à deux niveaux de pression, avec un échange de chaleur inter-colonnes.

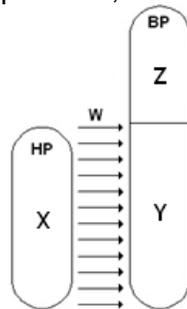


Figure 2.11 : Colonnes simulées sur HYSYS

La figure 2.11 représente les colonnes considérées dans le modèle. La colonne HP, à X plateaux, échange de la chaleur sur toute sa longueur, avec un nombre  $Y = X$  de plateaux de la colonne BP. Dans les Z plateaux supérieurs de la colonne BP, les phénomènes de transferts se réduisent à un transfert de masse entre le liquide descendant et la vapeur ascendante. C'est donc un tronçon de distillation adiabatique. Pour atteindre les puretés désirées des produits, les nombres de plateaux calculés sont :  $X = Y = 31$  plateaux et  $Z = 30$  plateaux.

Les niveaux de pression dans les colonnes sont calculés de sorte à obtenir un écart de températures minimal entre les colonnes de 0,4 K. La valeur de la basse pression est limitée par une valeur minimale de 140 kPa. Cette valeur est calculée de sorte à obtenir une vapeur en tête de la colonne à basse pression, sortant à une pression légèrement supérieure à la pression atmosphérique, tout en tenant compte des pertes de pression dans les tuyauteries et la colonne. Pour un écart de températures minimal de 0,4 K, une pression de 376 kPa est calculée en cuve de la colonne à haute pression.

Le choix du débit d'air à distiller se base sur les besoins en oxygène pur des procédés d'oxycombustion. Pour une centrale électrique de 500 à 800 MW fonctionnant au charbon, il faut 10 000 à 15 000 tonnes d'oxygène par jour [15]. Actuellement, la plus grande unité de distillation construite a une capacité de production légèrement supérieure à 4 000 tonnes d'oxygène par jour. Pour répondre à la demande d'une centrale électrique, 3 unités de distillation d'air, de 4 000 à 5 000 t/j chacune, sont donc considérées [15].

Dans le modèle de distillation diabatique réalisé dans HYSYS, on considère 100 000 Nm<sup>3</sup>/h d'air à distiller. Cela correspond à 1/5 de la production d'oxygène journalière d'une unité de distillation. Ce débit permet d'estimer des premières valeurs des débits et compositions molaires dans la colonne et ensuite de réaliser les comparaisons quantitatives entre les différents types d'échangeurs retenus. L'étude ultérieure d'optimisation des colonnes de distillation diabatique sera réalisée pour la production de 4 000 à 5 000 tonnes d'oxygène par jour.

Le modèle réalisé simplifie le processus de distillation diabatique en découplant les transferts de chaleur et de matière. Les transferts de matière sont calculés sur la base des mélanges de liquide et de vapeur en équilibre à la sortie de chaque plateau. La quantité de chaleur échangée est considérée directement proportionnelle à la différence de températures entre les colonnes. Le facteur de proportionnalité est calculé par itérations successives pour retrouver les bilans énergétiques sur les plateaux des deux colonnes.

Les simulations permettent de calculer les évolutions des débits et des compositions molaires de la vapeur et du liquide dans les deux colonnes. La figure 2.12 représente les caractéristiques des écoulements dans la colonne HP et la figure 2.13 leurs caractéristiques dans la colonne BP.

Les valeurs représentées sur les graphiques des figures 2.12 et 2.13 seront utilisées pour comparer les sections de passage des colonnes à haute et à basse pressions et les vitesses d'écoulement pour répondre aux conditions de non engorgement du liquide dans les différents types d'échangeurs.

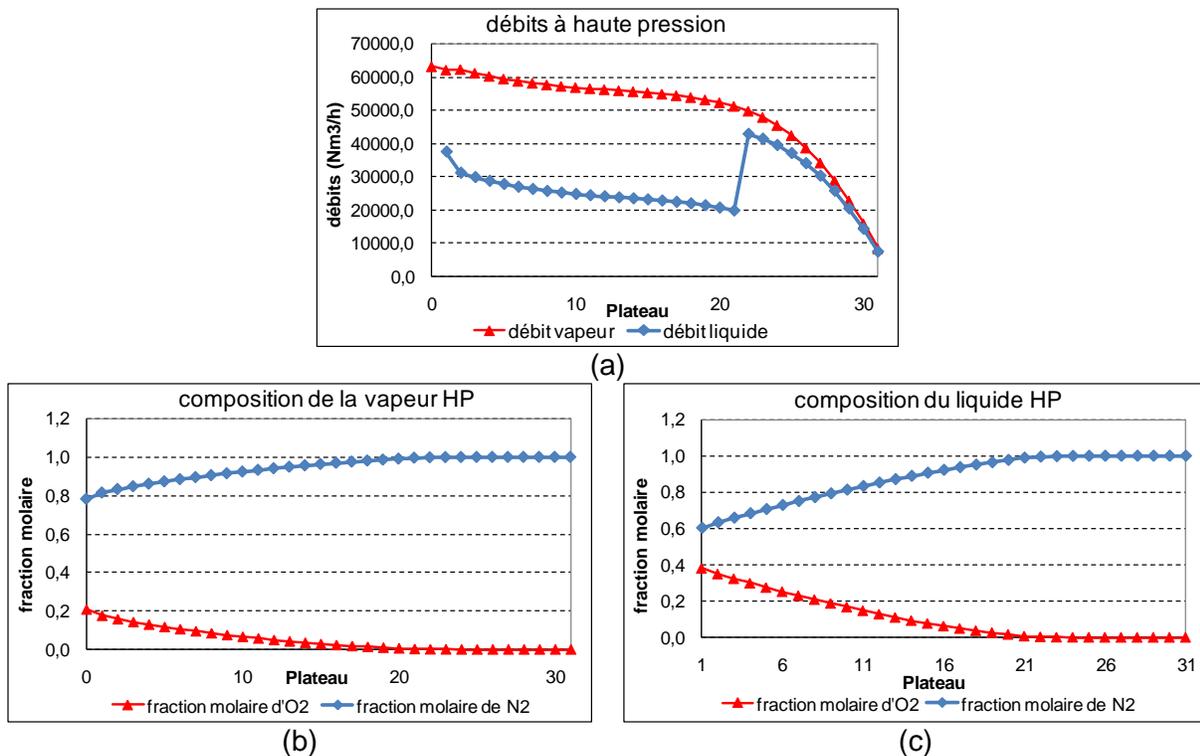


Figure 2.12 : Ecoulements dans la colonne à haute pression, (a) débits de liquide et de vapeur, (b) composition molaire de la vapeur, (c) composition molaire du liquide

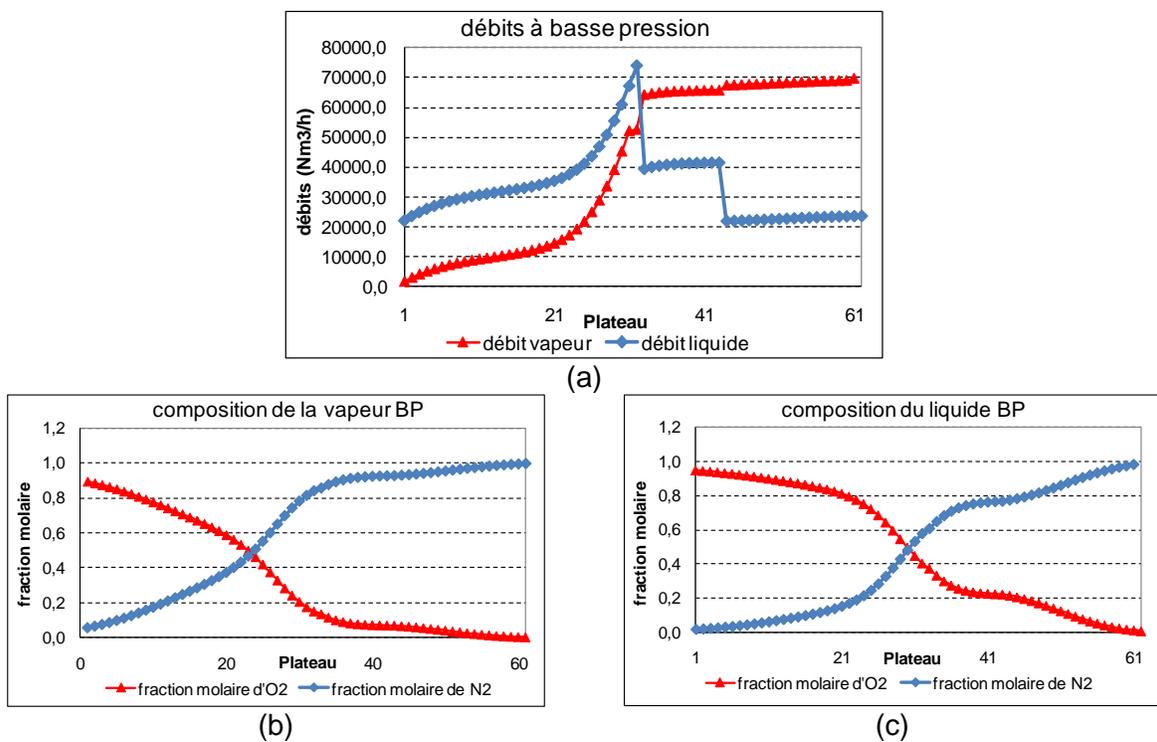


Figure 2.13 : Ecoulements dans la colonne BP, (a) débits de liquide et de vapeur, (b) composition molaire de la vapeur, (c) composition molaire du liquide

### 3.2. Engorgement liquide

Lorsque du liquide et de la vapeur s'écoulent à contre-courant dans une conduite, il existe un risque que le liquide occupe toute la section de passage, empêchant l'écoulement de la vapeur. Ce risque, dit engorgement, a lieu lorsque la vitesse relative du liquide par rapport à la vapeur dépasse une limite définie par la corrélation de Lobo et Sherwood (équation 2.40, paragraphe 4.6). Les valeurs des débits et des compositions molaires sont celles calculées par la simulation HYSYS (figures 2.12 et 2.13).

Dans cette partie, les sections des colonnes de distillation sont considérées constantes sur toute leur longueur. Une valeur minimale de la section de passage de chaque colonne BP et HP, est calculée de sorte à ne pas avoir d'engorgement liquide dans les colonnes, soit alors  $j_L^{*1/2} + j_G^{*1/2} < 0,775$ .

Les calculs montrent que la valeur maximale de la somme  $j_L^{*1/2} + j_G^{*1/2}$  est atteinte en cuve de la colonne HP et en tête de la colonne BP. Ces deux points, les plus critiques du point de vue de l'engorgement du liquide dans les colonnes, correspondent aux débits de liquide maximaux dans chaque colonne. Les sections minimales, calculées d'après les équations 2.36 et 2.37, sont de 0,24 m<sup>2</sup> pour la colonne HP et de 0,3 m<sup>2</sup> pour la colonne BP.

Les sections calculées, supposées constantes le long des colonnes, permettent de déterminer les dimensions de chaque type d'échangeur retenu pour la comparaison. On note que, une fois le choix du type de l'échangeur réalisé, l'échangeur étudié ne sera pas de section constante. Des changements de sections le long de la colonne auront pour but de garder des vitesses d'écoulement de la vapeur presque constantes.

#### 3.2.1. Echangeur bitube

Les dimensions d'un échangeur bitube, supposé sans plateaux d'amplification des transferts de masse, dépendent des niveaux de pression dans chaque section. Pour les sections de passage minimales calculées ci-dessus, les diamètres des tubes, interne et externe, sont comme suit :

- cas où les mélanges BP circulent dans le tube intérieur
  - o diamètre du tube intérieur = 62 cm ;
  - o diamètre du tube extérieur = 83 cm.
- cas où les mélanges HP circulent dans le tube extérieur
  - o diamètre du tube intérieur = 55 cm ;
  - o diamètre du tube extérieur = 83 cm.

Ce type d'échangeur nécessite, par contre, des amplificateurs de transferts de masse (garnissages ou plateaux perforés) pour assurer l'évolution désirée des mélanges dans le procédé de distillation de l'air. Les dimensions de l'échangeur sont donc calculées pour différents diamètres de perforations.

On suppose que les débits de liquide et de vapeur se répartissent sur les perforations d'une manière homogène. Pour chaque diamètre de perforation, le nombre minimal de perforations nécessaires pour le non engorgement du liquide est calculé. Le nombre de perforations, leur diamètre et l'espacement minimal nécessaire entre elles permettent de calculer la section totale de chaque colonne et donc les dimensions de l'échangeur. L'espacement minimal entre deux perforations circulaires est donné par l'équation 2.1 [16].

$$esp = 0,25 * d$$

2.1

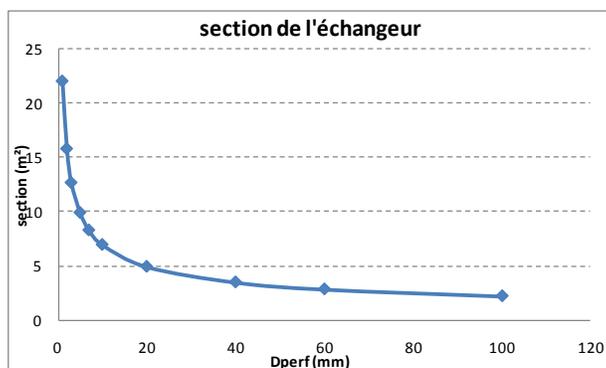


Figure 2.14 : Section de l'échangeur bitube en fonction des diamètres des perforations dans les plateaux

La figure 2.14 représente les sections des échangeurs calculées pour différents diamètres de perforation. En augmentant le diamètre de perforation, des débits de liquide et de vapeur à contre-courants plus élevés s'y écoulent sans engorgement du liquide. Le nombre de perforations dans la section de passage devient donc plus faible. La section de passage croît presque linéairement avec le nombre de perforations ; elle diminue donc quand le diamètre de perforation augmente.

Le diamètre des perforations dans un plateau ne dépasse pas normalement 5 mm. Cela correspond à une section de la colonne de 10 m<sup>2</sup> minimum, soit alors un diamètre extérieur de 3,6 m minimum.

### 3.2.2. Echangeur tubes-calandre

Pour différents diamètres de tubes, le nombre minimal de tubes nécessaires pour éviter l'engorgement de liquide dans les tubes est calculé. Les espacements inter-tubes devraient répondre au minimum imposé par l'équation 2.1 ainsi qu'au minimum imposé par les conditions de non engorgement de liquide dans la calandre. Les diamètres des tubes, leur nombre et les espacements minimaux entre eux, permettent de calculer le diamètre minimal de la calandre.

La figure 2.15 représente les sections de calandre et les nombres de tubes pour les différentes valeurs des diamètres des tubes pour les deux configurations : mélanges BP et mélanges HP dans les tubes. Les débits sont supposés également répartis sur les tubes.

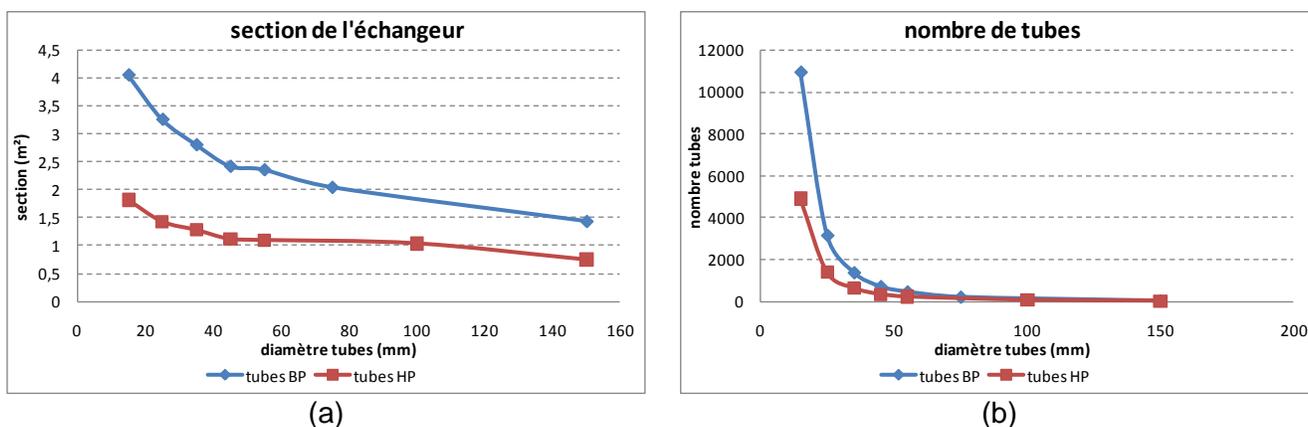


Figure 2.15 : Géométrie de l'échangeur pour différents diamètres de tubes, a) diamètre de la calandre, (b) nombre de tubes

Comme pour l'échangeur bitube à plateaux perforés, la section totale de l'échangeur varie proportionnellement au nombre de tubes, lui-même étant inversement proportionnel au diamètre des tubes (figure 2.16-b). Les sections de l'échangeur décroissent donc avec l'augmentation du diamètre des tubes (figure 2.16-a). Dans les deux configurations d'écoulement des mélanges, la section totale de l'échangeur vaut moins que la moitié de la section de l'échangeur bitube à plateaux perforés.

### 3.2.3. Echangeur à plaques-aillettes

Pour les échangeurs à plaques et ailettes, le nombre minimal de passages des mélanges aux deux niveaux de pression est calculé pour différents espacements inter-plaques et différents pas d'aillettes. Le nombre total de passages, avec les sections de passage, permettent de calculer la section totale de l'échangeur.

La figure 2.16-a représente les sections totales des échangeurs à plaques-aillettes et la figure 2.16-b les diamètres équivalents d'une section de passage, en fonction des espacements entre les ailettes pour différents espacements entre les plaques.

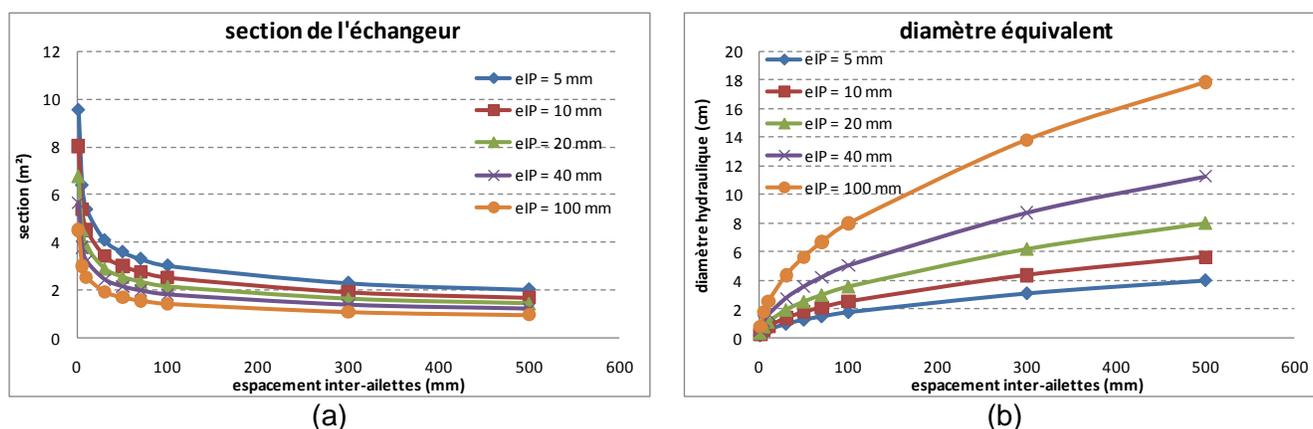


Figure 2.16 : Caractéristiques de l'échangeur à plaques et ailettes, (a) section de l'échangeur, (b) diamètre hydraulique d'une section de passage

Comme dans le cas des échangeurs tubulaires, la section de l'échangeur est d'autant plus petite que le diamètre équivalent d'un passage entre les ondulations des ailettes est grand.

### 3.2.4. Echangeur à plaques perforées

La section de passage d'un échangeur à plaques perforées est identique à celle de l'échangeur bitube muni de plateaux perforés, calculée dans la section 3.2.1 de ce chapitre (figure 2.15).

### 3.2.5. Comparaison des échangeurs

Dans ce paragraphe, sont comparées les sections minimales des différents types d'échangeurs étudiés ci-haut, pour différentes valeurs des diamètres équivalents d'une section de passage élémentaire (figure 2.17). Les sections de passage élémentaires sont les perforations dans le cas des échangeurs bitubes et des échangeurs à plaques perforées, les sections entre les ondulations des ailettes dans un échangeur à plaques et ailettes et les tubes dans le cas d'un échangeur tubes-calandre.

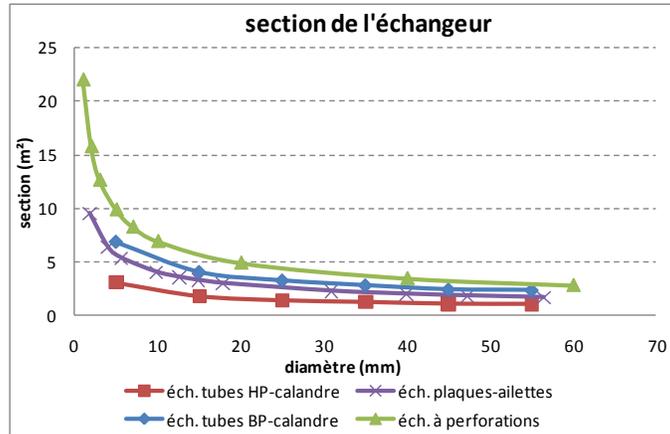


Figure 2.17 : Sections des différents types d'échangeurs

Pour les petits diamètres des sections des passages élémentaires ( $< 10$  mm), les sections des échangeurs à perforations et des échangeurs à plaques et ailettes sont nettement plus grandes que celles des échangeurs tubes-calandre dans les deux configurations des niveaux de pression. Quand les diamètres augmentent, les sections des différents types d'échangeurs deviennent comparables. Mais ceci amène à la réduction de l'avantage des petits diamètres hydrauliques dans les échangeurs à plaques-aillettes. On compare alors les surfaces disponibles à l'échange de chaleur dans les différents types d'échangeurs pour différents diamètres hydrauliques.

### 3.3. Surface disponible pour le transfert de chaleur

Un deuxième critère assez important pour la comparaison des différents types d'échangeurs est la surface disponible pour le transfert de chaleur entre les mélanges HP et les mélanges BP. Pour chaque type d'échangeur, on calcule une surface d'échange par mètre de hauteur en fonction du diamètre d'une section élémentaire de passage des fluides.

#### 3.3.1. Echangeurs bitubes

Dans les échangeurs bitubes, la surface d'échange de chaleur entre les fluides chauds et les fluides froids est la surface du tube intérieur. La figure 2.18 représente l'évolution de cette surface en fonction du diamètre des perforations.

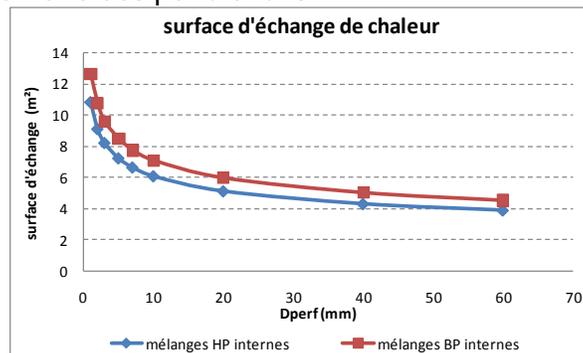


Figure 2.18 : Surface disponible pour le transfert de chaleur en fonction du diamètre des perforations dans les plateaux d'un échangeur bitube

La figure 2.18 montrent que la surface d'échange diminue avec l'augmentation du diamètre des perforations. Les surfaces disponibles pour les transferts de chaleur peuvent atteindre  $12 \text{ m}^2$

pour de petits diamètres des perforations mais ceci résulte aussi en l'augmentation de la surface au sol (figure 2.14).

### 3.3.2. Echangeurs tubes-calandre

Les surfaces d'échange de chaleur dans ce type d'échangeur sont calculées en fonction des diamètres des tubes et de leur nombre correspondant au minimum imposé par les conditions d'engorgement de liquide. La figure 2.19 représente les surfaces d'échange dans les deux configurations de niveaux de pression dans les tubes.

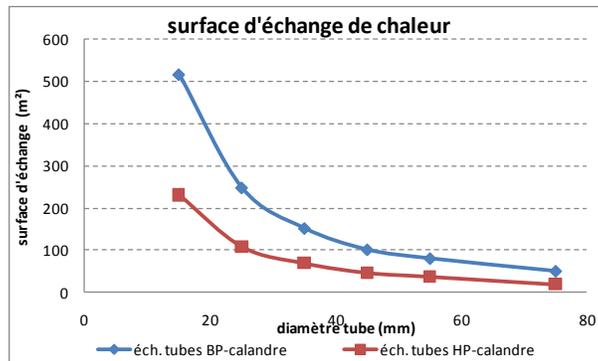


Figure 2.19 : Surface disponible pour le transfert de chaleur en fonction du diamètre des tubes dans les échangeurs tubes-calandre

De même que pour les échangeurs bitubes, l'effet de l'augmentation du diamètre des tubes est négatif sur les surfaces d'échange de chaleur entre les fluides. Mais pour ce type d'échangeurs, les surfaces disponibles pour les transferts de chaleur atteignent des valeurs de 500 m<sup>2</sup> dans la configuration de tubes à basse pression. Les surfaces calculées dans ce cas sont nettement supérieures à celles d'un échangeur bitube.

### 3.3.3. Echangeurs à plaques ailettes

La figure 2.20 représente les surfaces d'échange de chaleur en fonction du pas des ailettes pour différents espacements entre les plaques. En augmentant le diamètre équivalent des sections de passage entre les ondulations des ailettes, les surfaces effectives disponibles pour le transfert de chaleur diminuent.

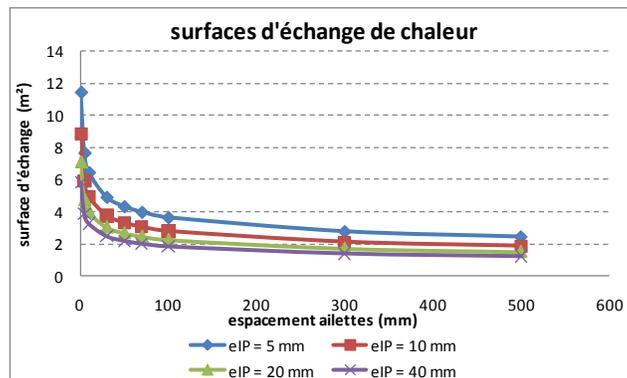


Figure 2.20 : Surfaces disponibles pour l'échange de chaleur dans les différents types d'échangeurs

### 3.3.4. Comparaison des échangeurs

Pour les trois types d'échangeurs qui viennent d'être présentés, l'effet de l'augmentation du diamètre équivalent d'une section de passage s'établit comme suit :

- diminution de la section totale de l'échangeur.
- diminution de la surface disponible pour le transfert de chaleur.

Les surfaces d'échange de chaleur les plus grandes sont calculées pour les échangeurs tubes-calandre. Ces échangeurs présentent en effet le meilleur compromis entre la surface d'échange de chaleur et la section totale.

### **3.4. Distribution des fluides**

Le problème de distribution est seulement observé dans le cas d'échangeurs à plusieurs sections de passage des fluides : les échangeurs tubes-calandre et les échangeurs à plaques-ailettes. Des dispositifs de distribution homogène permettent de faire face à ce problème. Ils seront détaillés dans le chapitre 3 de cette thèse.

### **3.5. Contrainte économique**

Cette contrainte est basée sur le coût de l'échangeur choisi. Les échangeurs qui présentent une contrainte de coût supplémentaire sont l'échangeur bitube et l'échangeur à plaques perforées ; en effet au prix de l'échangeur, s'ajoute le prix des plateaux, des garnissages ou des ailettes pour intensifier les transferts de masse et de chaleur.

### **3.6. Choix du modèle d'échangeur**

Les critères d'engorgement du liquide dans les échangeurs et de la surface d'échange de chaleur, étudiés dans les sections précédentes, conduisent à sélectionner l'échangeur tubes-calandre pour le procédé de distillation diabatique de l'air à température cryogénique. Pour des diamètres de tubes de 20 à 50 mm, les surfaces disponibles pour le transfert de chaleur dépassent 100 m<sup>2</sup>, à comparer à des surfaces de l'ordre de 10 m<sup>2</sup> dans les échangeurs bitubes et les échangeurs à plaques-ailettes. Pour ces mêmes diamètres de tubes, le diamètre de la calandre ne dépasse pas 2,5 m, sans risque d'engorgement de liquide dans les sections de passage.

## **4. Modélisation de l'échangeur tubes-calandre pour la distillation cryogénique de l'air**

Le type d'échangeur adapté à la distillation diabatique cryogénique de l'air étant choisi, la méthode de modélisation de la colonne est maintenant détaillée. Après la définition du cahier des charges à appliquer à l'échangeur tubes-calandre, l'approche de modélisation est choisie. Les phénomènes physiques dont la colonne est le siège sont ensuite mis en équations. Ceci nécessite d'abord le choix des corrélations adéquates pour caractériser les transferts de masse et de chaleur entre les écoulements ainsi que les pertes de pression ayant lieu dans la calandre et dans les tubes.

La modélisation est réalisée par une méthode itérative dans un code numérique développé en C++, couplé à REFPROP 8.0 pour le calcul des propriétés thermodynamiques. Les équations de conservation sont résolues pour calculer des profils de débits et de compositions molaires des liquides et des vapeurs aux deux niveaux de pression. Les étapes de calcul sont exposées dans ce paragraphe, avant de passer à l'optimisation économique de la colonne et à l'étude de l'influence de la répartition des fluides sur le fonctionnement de la colonne.

## 4.1. Cahier des charges de la distillation dans l'échangeur tubes-calandre

Les variables, géométriques et opératoires à prendre en compte pour la modélisation sont listées ci-après.

- Critères géométriques
  - Hauteur de l'échangeur,
  - Diamètre des tubes,
  - Espacement inter-tubes,
  - Nombre de tubes,
  - Diamètre de la calandre,
  - Nombre de changements des sections de passage à haute et à basse pressions le long de la colonne.
- Critères opératoires
  - Pression dans les tubes,
  - Pression dans la calandre.

De plus, des limites et des critères sont définis : critères de pureté des produits et limites pour les conditions opératoires, notamment, les pertes de charge et l'engorgement du liquide dans les sections de passage.

Dans l'échangeur tubes-calandre, les écoulements de liquide aux deux niveaux de pression, se font sous forme de films liquides sur les parois internes et externes des tubes (cf. figure 2.24). La figure 2.24 représente une configuration possible de distribution des mélanges, où les fluides BP s'écoulent dans les tubes et les fluides HP dans la calandre. Le transfert de chaleur se fait donc de la calandre vers les tubes.

Dans cette configuration, le débit d'air comprimé à haute pression, introduit au pied de la calandre, subit lors de son écoulement ascendant une condensation en film sur les parois extérieures des tubes. L'épaisseur du film est croissante lors de son écoulement descendant. Le liquide recueilli au pied de la calandre, est détendu et introduit en tête de la colonne BP dans les tubes. Lors de son écoulement descendant, il s'évapore et son épaisseur diminue. Un écoulement de vapeur, de débit croissant en allant du pied vers la tête de la colonne, se forme.

Les principaux phénomènes à modéliser dans l'échangeur sont donc :

- transfert de masse entre un film liquide descendant et de la vapeur à contre-courant,
- transferts de chaleur entre les deux écoulements diphasiques.

D'autres contraintes sont à prendre en compte dans le dimensionnement de l'échangeur tubes-calandre dans lequel a lieu la distillation de l'air. Elles se résument comme suit :

- pertes de pression dans une conduite mouillée,
- répartition du film liquide sur les parois de tubes,
- distribution homogène de fluides dans un échangeur tubes-calandre,
- engorgement du liquide dans les sections de passage.

Un schéma représentatif de la géométrie de l'échangeur tubes-calandre est présenté sur la figure 2.21-a. Sur la figure, sont représentés, à titre indicatif, deux changements de section. Ces changements ont pour but d'assurer le mouillage homogène des surfaces des tubes, en

diminuant les diamètres lorsque les débits de liquide diminuent, tout en tenant compte des diamètres critiques pour l'engorgement du liquide dans les sections de passage et les pertes de pression dans la colonne.

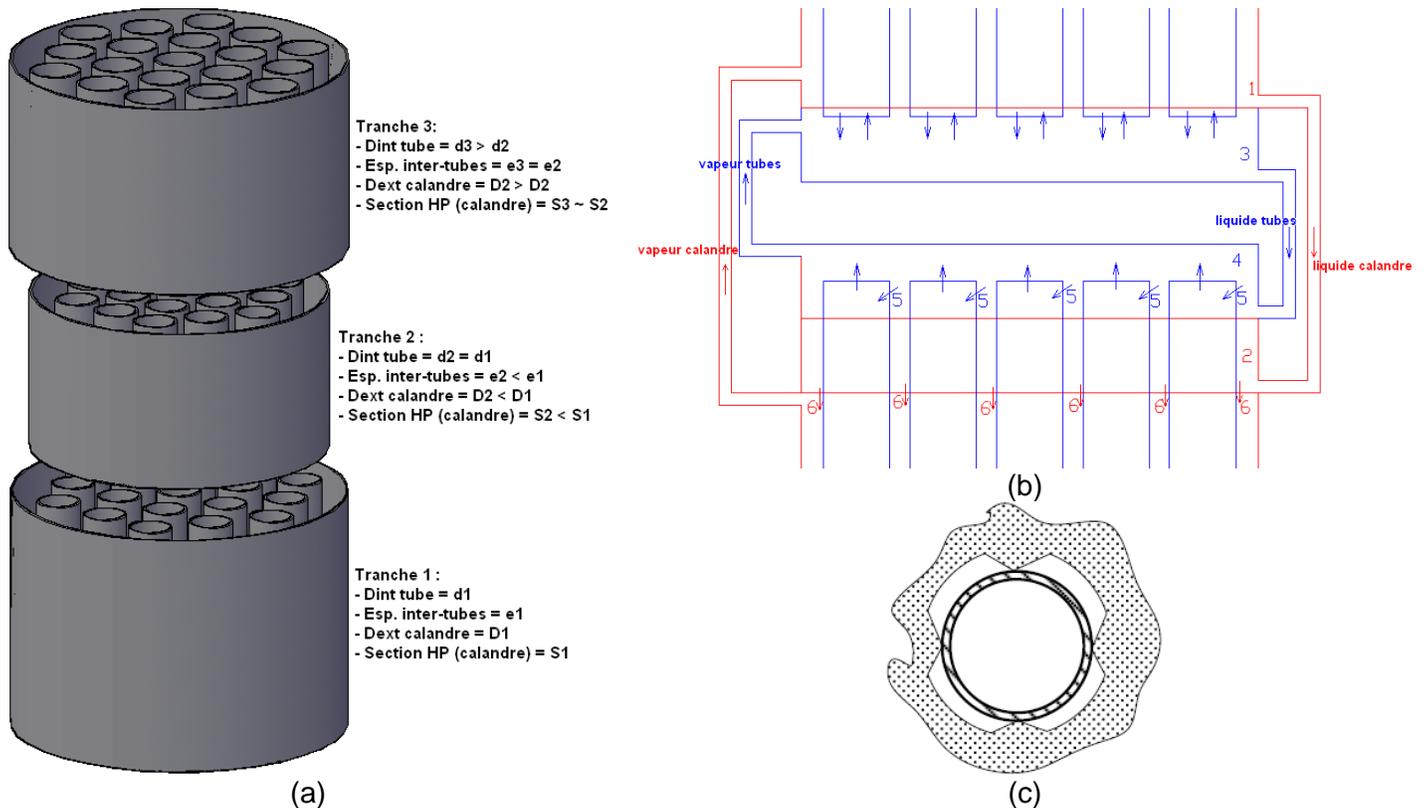


Figure 2.21 : Schémas représentatifs de l'échangeur tubes-calandre pour la distillation diabatique, (a) représentation globale de l'échangeur avec deux changements de sections, (b) dispositif de redistribution, (c) géométrie de soudure des plateaux aux tubes pour la distribution externe des films liquides

En effet, en allant de la cuve de la colonne HP vers sa tête, le débit de liquide diminue (cf. figure 2.12-a). Dans une colonne où les mélanges HP s'écoulent dans la calandre (figure 2.21-a), la section de la calandre diminue en remontant dans la colonne. Ces réductions des sections de passage sont limitées par les conditions d'engorgement du liquide. Les changements de diamètre ont aussi pour conséquence des vitesses de la vapeur presque constantes sur la longueur, car les sections de passage sont plus grandes dans les sections de plus grand débit de vapeur (en cuve de la calandre).

Dans cette même configuration (figure 2.21-a), le diamètre des tubes diminue en descendant dans la colonne, car le débit de liquide diminue. Cela permet aussi d'avoir une vitesse d'écoulement de la vapeur presque constante prenant en compte l'augmentation du débit ascendant (cf. figure 2.13-a).

Dans la configuration où les mélanges BP s'écoulent dans la calandre, le changement des sections de passage dans la calandre et des diamètres des tubes se fait alors dans le sens inverse. La section est plus grande en tête de la calandre et les diamètres de tubes plus grands en cuve.

A chaque changement de section, un dispositif de redistribution des mélanges de liquide et de vapeur est installé (figure 2.21-b). Le liquide dans la calandre est accumulé dans un plateau (1) de la tranche supérieure et transféré dans un plateau (2) de la tranche inférieure. Les tubes sont soudés au plateau (2) comme sur la figure 2.21-c pour assurer des écoulements de films liquides sur les parois externes des tubes. La vapeur dans la calandre est récupérée sous le plateau (2) de la tranche inférieure et introduite sur le plateau (1) de la tranche supérieure.

Du côté des tubes, le liquide est récupéré dans le plateau (3) de la tranche supérieure, puis accumulé dans le plateau (4) de la tranche inférieure. Les extrémités des tubes qui dépassent dans le plateau (4) sont munies de fentes à travers lesquelles s'infiltré le liquide (5) sous forme de film à l'intérieur des tubes. Les formes et les dimensions de ces fentes sont étudiées en détail dans le chapitre 3. La vapeur sortant des tubes de la tranche inférieure est retirée du haut du plateau (4) et introduite dans le plateau (3).

## 4.2. Approches de modélisation des colonnes de distillation

Comme mentionné dans le chapitre 1, les méthodes de modélisation des colonnes de distillation les plus utilisées sont les méthodes graphiques, de Ponchon-Savarit et de McCabe-Thiele. La méthode de Ponchon-Savarit est la plus générale. La méthode de McCabe-Thiele apporte une simplification en considérant des débits de liquide et de vapeur constants dans la colonne [17].

Ces méthodes graphiques se basent sur l'approche des étages théoriques où l'équilibre thermodynamique s'établit entre le liquide et la vapeur sortant de chaque étage [17]. Les droites opératoires du procédé de distillation sont représentées sur le diagramme enthalpie-composition dans la représentation de Ponchon-Savarit, et sur le diagramme d'équilibre des compositions dans la représentation de McCabe-Thiele.

Les méthodes graphiques sont des méthodes de dimensionnement des colonnes. Elles permettent de calculer le nombre de plateaux théoriques dans une colonne à garnissage ainsi que le niveau de l'alimentation, connaissant les compositions molaires de l'alimentation et des produits, ainsi que la chaleur puisée au condenseur et celle fournie au bouilleur [17]. Ayant le nombre de plateaux théoriques, la hauteur équivalente à un plateau théorique (HETP) est calculée par le rapport entre la hauteur de la colonne et le nombre de plateaux.

Dans la colonne diabatique à modéliser, l'évolution des états des mélanges de liquide et de vapeur est déterminée par les transferts de chaleur et de masse qui s'opèrent. Sur le diagramme de McCabe, les droites opératoires des colonnes adiabatiques sont remplacées par une courbe opératoire qui s'approche de la courbe d'équilibre (figure 2.22). Sur le diagramme de Ponchon-Savarit, les pôles opératoires des sections d'épuisement et de rectification,  $\Delta$  et  $\Delta'$  sur la figure 2.23-a) sont remplacés par une série de pôles opératoires pour chaque section, dépendant des quantités de chaleur échangées sur les plateaux (figure 2.23-b) [18].

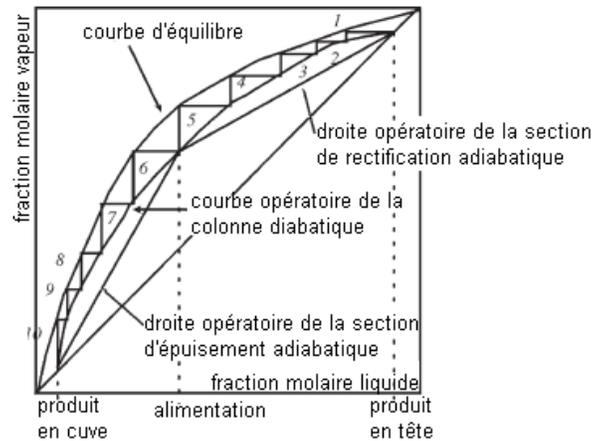


Figure 2.22 : Diagramme de McCabe-Thiele pour les colonnes de distillations adiabatique et diabatique [18].

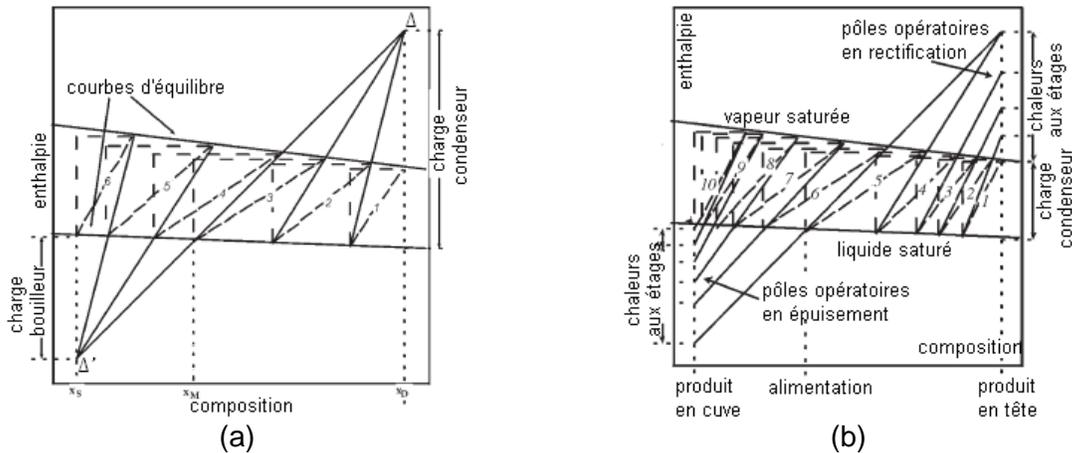


Figure 2.23 : Diagrammes de Ponchon-Savarit, (a) colonne de distillation adiabatique, (b) colonne de distillation diabatique [18]

Ces méthodes graphiques nécessitent donc la connaissance préalable des quantités de chaleur échangées le long de la colonne et des compositions molaires des produits. Leur but est un dimensionnement des colonnes. Elles restent donc inutilisables dans la phase de conception de la colonne diabatique à réaliser dans cette étude. Cette dernière est alors modélisée selon l'approche des volumes finis.

Cette approche consiste à diviser la colonne en  $N$  volumes de faible hauteur et à calculer les débits et les fractions molaires des liquides et des vapeurs dans chaque volume fini en résolvant les équations de conservation de masse et des espèces. Ces équations ont été développées au chapitre 1. Les corrélations relatives aux différents coefficients de transferts, de masse et de chaleur, ainsi que celles relatives aux pertes de charge sont définies dans la section suivante.

### 4.3. Transferts de masse et de chaleur

La figure 2.24 représente les débits de liquide et de vapeur entrant et sortant dans un volume fini, ainsi que les transferts de masse et de chaleur se produisant entre les fluides. Le volume fini représenté est composé d'un tube et de l'espace de la calandre l'entourant. Sur le schéma, on considère que les fluides BP circulent dans le tube ; le film liquide (3) s'évapore en

s'écoulant vers le bas. Dans la calandre, la condensation de la vapeur ascendante crée le film liquide (1) dont l'épaisseur augmente lors de l'écoulement descendant.

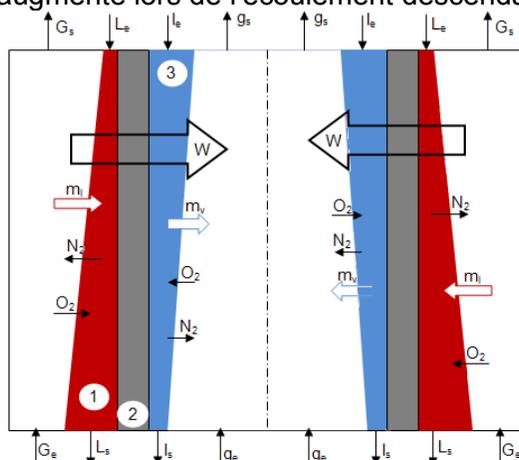


Figure 2.24 : Débits de liquide et de vapeur et transferts de masse et de chaleur sur un volume fini composé d'un tube de l'échangeur

L'écriture des équations de conservation citées dans le chapitre 1 nécessite la connaissance des corrélations permettant le calcul de la quantité de chaleur transférée du côté HP vers le côté BP ( $Q$ ), la quantité de liquide condensée à haute pression, due à ce transfert de chaleur, ( $m_L$ ), la quantité de liquide évaporée à basse pression, ( $m_v$ ) ainsi que les quantités d'azote et d'oxygène transférées entre le liquide et la vapeur de chaque côté, associées au non équilibre des phases.

Les transferts simultanés de masse et de chaleur dans les films liquides verticaux s'effectuent dans de nombreuses applications de distillation. Des études expérimentales sont réalisées pour déterminer les coefficients de transferts de masse et de chaleur entrant en jeu dans les procédés [19-23]. Une première méthode pour calculer ces coefficients serait la méthode de la différence logarithmique moyenne. Elle consiste à découpler les transferts de masse et de chaleur dans le procédé [19] et à calculer le coefficient de transfert de masse par une analogie avec les transferts de chaleur ayant lieu entre deux fluides circulant à contre-courant dans un échangeur [23]. Les équations 2.2 et 2.3 donnent les formulations des coefficients de transfert de chaleur et de masse respectivement.

$$h = \frac{Q}{H \Delta_{lm} T} \quad 2.2$$

$$k_{L,G} = \frac{\Delta m}{H \Delta_{lm} P} \quad 2.3$$

Les coefficients de transferts sont alors calculés grâce aux résultats expérimentaux, où la quantité de chaleur échangée  $Q$ , la masse  $\Delta m$ , condensée ou évaporée, ainsi que les températures et compositions molaires des mélanges à l'entrée et à la sortie de l'échangeur considéré sont mesurées. Les pressions sont les pressions de saturation des mélanges à la température mesurée [23].

Le calcul du coefficient de transfert de masse par la méthode de la différence logarithmique moyenne des pressions est donc possible dans un système à écoulements adiabatiques [23] ou dans un système diabatique où l'on suppose un découplage entre les deux modes de transfert [19].

Des études pour calculer des coefficients de transferts de masse et de chaleur sans l'hypothèse du découplage des deux phénomènes [19-21] sont présentées. La discrétisation des équations de conservation de masse et d'énergie sur des volumes finis permet de calculer ces coefficients à partir des mesures expérimentales sur des bancs d'essais fonctionnant avec des mélanges divers.

Des corrélations pour les nombres de Nusselt et de Sherwood, caractérisant les transferts de chaleur et de masse respectivement, sont présentées par Islam et al. [20] et Miller et Keyhani [22]. Ces corrélations sont données en fonction des débits de fluides transférés, des températures et des compositions des mélanges et des quantités de chaleur échangées.

Les études sur les transferts de masse et de chaleur couplés dans des écoulements verticaux descendants de films liquides, avec un écoulement de vapeur à co- ou à contre-courant sont donc en majorité expérimentales. Un autre point à souligner est le manque d'études sur les fluides cryogéniques. On a recours alors au découplage des deux phénomènes de transferts et à la caractérisation des coefficients de transferts en fonction des nombres adimensionnels entrant en jeu.

Pour corréliser les transferts de chaleur dans l'échangeur tubes-calandre considéré pour la distillation cryogénique de l'air, on calcule alors, sur chaque volume fini, un coefficient d'échange de chaleur global, équivalent au transfert convectif dans un film en condensation (1), au transfert par conduction dans le tube (2) et au transfert convectif dans un film liquide en évaporation (3). Ce coefficient permet de calculer la quantité de chaleur échangée par volume fini et d'en déduire les débits  $m_V$  et  $m_L$ .

Les quantités d'azote et d'oxygène transférées entre le liquide et la vapeur aux deux niveaux de pression sont calculées par la loi de Fick pour les transferts de masse (équation 2.17). Les corrélations des coefficients de transfert de masse dans le liquide et dans la vapeur sont celles présentées dans [24] pour des écoulements à contre-courants de film liquide descendant et de vapeur ascendante. Il est probable que le découplage des phénomènes de transferts mène à une sous-estimation des coefficients de transferts de masse et de chaleur. Une validation expérimentale des choix sur une colonne pilote est étudiée au chapitre 4.

#### 4.3.1. Transferts de chaleur

Pour calculer les quantités de liquide évaporé à basse pression et de vapeur condensée à haute pression, la quantité de chaleur transférée du côté haute pression au côté basse pression est d'abord calculée (équation 2.4). Elle est donnée en fonction de la résistance thermique aux transferts de chaleur et de la différence de températures.

$$Q = \frac{\Delta T}{R_{th}} = \frac{T_{HP} - T_{BP}}{R_{th}} \quad 2.4$$

La résistance thermique aux transferts de chaleur est la somme des résistances convectives dans les films liquides, en évaporation et en condensation, et de la résistance conductive dans le tube (équation 2.5).

$$R_{th} = \frac{1}{h_{\text{évap}} S_{\text{évap}}} + \frac{\ln(r_{\text{ext}}/r_{\text{int}})}{2\pi\lambda_{\text{tube}}H} + \frac{1}{h_{\text{cond}} S_{\text{cond}}} \quad 2.5$$

Les deux phénomènes d'évaporation et de condensation de films liquides sont caractérisés chacun par un coefficient de transfert de chaleur. Ces coefficients sont donnés par les corrélations élaborées pour ces types d'écoulements cryogéniques.

#### 4.3.1.1. Evaporation d'un film liquide tombant

Dans l'échangeur tubes-calandre considéré pour la distillation diabatique, un mélange liquide BP s'écoule, sous l'effet de la gravité, sous forme de films minces sur les parois, soit internes soit externes des tubes. La température des parois étant plus élevée que la température de saturation du liquide, un transfert de chaleur a lieu, par ébullition convective, des parois vers le liquide [25]. En ébullition convective, les échanges thermiques dépendent du phénomène de convection dans le film liquide et du processus d'ébullition nucléée à partir de la paroi chauffée [25].

Etant en présence d'un mélange, la diffusion massique des composants à l'interface liquide/vapeur engendre une résistance supplémentaire au phénomène d'évaporation et par conséquent une réduction de la quantité de chaleur transférée de la paroi vers le liquide [26]. Pour calculer les coefficients de transfert de chaleur par ébullition convective en présence d'une diffusion massique, plusieurs corrélations empiriques sont proposées, basées sur la correction des coefficients de transfert en ébullition convective des corps purs. Les coefficients de transfert de chaleur en ébullition convective dans un écoulement annulaire diphasique de fluides purs sont corrélés en fonction d'un coefficient de transfert par ébullition nucléée et d'un coefficient de transfert par convection dans le liquide. Des modèles asymptotiques et des modèles empiriques sont proposés.

La forme générale des modèles asymptotiques est donnée par l'équation 2.6. Différents modèles sont proposés selon la valeur de n. Pour n = 3, une corrélation pour l'ébullition dans un tube vertical [27] est obtenue et présentée par l'équation 2.7.

$$h_{evap,D} = (h_{en}^n + h_{cl}^n)^{1/n} \quad 2.6$$

$$h_{evap,D} = (h_{en}^3 + F_D h_{cl}^3)^{1/3} \quad 2.7$$

Dans l'équation 2.7,  $F_D$  est le facteur de correction pour les transferts de chaleur dans un écoulement diphasique, corrélé en fonction du titre massique et du rapport des masses volumiques du liquide et de la vapeur (équation 2.8). Le coefficient de transfert de chaleur par ébullition nucléée  $h_{en}$  est donné par la corrélation de Gorenflo et le coefficient de transfert par convection dans le liquide par la corrélation de Gnielinski [27].

$$F_D = \left( (1 - q)^{1,5} + 1,9q^{0,6} \left( \frac{\rho_L}{\rho_G} \right)^{0,35} \right)^{1,1} \quad 2.8$$

Pour n = 1, le modèle asymptotique se réduit à un modèle de superposition. Ce modèle est corrélé d'abord par Chen [26] puis développé par Gungor et al [28] pour différents régimes d'écoulements. Pour l'écoulement vertical, les équations 2.9 sont proposées [28] pour le calcul du coefficient de transfert.

$$h_{evap,D} = E * h_{cl} + S * h_{en} \quad 2.9-a$$

$$E = 1 + 24000Bo^{1,16} + 1,37(1/X_{tt})^{0,86} \quad 2.9-b$$

$$S = (1 + 1,5 * 10^{-6} E^2 Re_L^{1,17})^{-1} \quad 2.9-c$$

$$X_{tt} = \left(\frac{\rho_G}{\rho_L}\right)^{0,5} \left(\frac{\mu_G}{\mu_L}\right)^{0,1} \left(\frac{1-q}{q}\right)^{0,9} \quad 2.9-d$$

Le facteur d'intensification des transferts de chaleur convectifs E est corrélé en fonction du nombre d'ébullition, Bo et du paramètre de Martinelli  $X_{tt}$  donné dans l'équation 2.9-d. Le coefficient de transfert de chaleur par ébullition nucléée est donné par la corrélation de Cooper (équation 2.10-a) et le coefficient de transfert par convection dans le liquide par la corrélation de Dittus-Boelter (équation 2.10-b). Cette corrélation prévoit les résultats expérimentaux avec une déviation moyenne de 21,4 % [26].

$$h_{en} = 55q^{0,67} Pr^{0,12-0,2 \log Pr} (-\log Pr)^{-0,55} M^{-0,5} \quad 2.10-a$$

$$h_{cl} = 0,023 \frac{\lambda}{d} Re^{0,8} Pr^{0,4} \quad 2.10-b$$

Des corrélations empiriques, basées sur des résultats expérimentaux sont aussi proposées. La corrélation de Kandiklar [26] pour des écoulements verticaux et horizontaux estime les coefficients avec des erreurs entre 10 et 20 %. Elle consiste à considérer le coefficient de transfert en diphasique égal au maximum entre le coefficient d'ébullition et le coefficient de convection. Ces derniers sont corrélés en fonction du coefficient de transfert par convection dans le liquide et des nombres adimensionnels d'ébullition et de convection, Bo et Co.

Pour corrélérer les coefficients de transfert de chaleur dans des écoulements de mélanges de liquide en évaporation, les corrélations citées pour les corps purs sont corrigées pour décrire les processus. Les principaux travaux dans ce domaine sont ceux de Jung et al, de Thome et al, de Bivens et al et de Wellsandt [26].

Les corrélations de Jung, de Bivens et de Thome se basent sur un modèle de superposition des coefficients de transfert d'ébullition et de convection et introduisent un facteur de correction lié aux transferts de masse dans les mélanges. La corrélation de Wellsandt se base sur le modèle asymptotique pour  $n = 3$  (équation 2.7).

Une comparaison des différentes corrélations pour le calcul des coefficients de transferts dans les mélanges est réalisée dans [26]. Les travaux de Thome et de Wellsandt donnent des résultats comparables aux résultats expérimentaux en notant la diminution des coefficients de transfert dans les mélanges, comparés à ceux dans les corps purs.

La corrélation de Thome, basée sur les équations de Gungor (équations 2.9), ajoute un facteur de correction au coefficient de transfert par ébullition (équation 2.11). Pour de faibles débits de liquide, comme observés dans l'échangeur tubes-calandre, cette corrélation est la mieux adaptée puisque l'ébullition nucléée est dominante dans ces écoulements.

$$h_{evap,mel} = S * F_C * h_{en} + E * h_{cl} \quad 2.11$$

Le facteur de correction  $F_C$  (équation 2.12) est corrélé en fonction du glissement de température du mélange,  $\Delta\theta$ , du coefficient de transfert de masse dans le liquide et d'un coefficient de transfert de chaleur  $h_{id}$ , égal au coefficient de transfert par ébullition dans un fluide pur équivalent ayant les propriétés thermodynamiques du mélange.

$$F_c = \left[ 1 + \frac{h_{id}}{W} \Delta\theta \left( 1 - \exp \frac{-Bo * W}{\rho_L h_{fg} k_L} \right) \right]^{-1} \quad 2.12$$

#### 4.3.1.2. Condensation d'un mélange de vapeur en film liquide

Similairement à l'évaporation de mélanges liquides, dans la condensation d'un mélange de vapeur, les transferts de masse à l'interface créent une résistance supplémentaire aux transferts de chaleur. Un facteur de correction est alors introduit pour prendre en compte la variation des compositions molaires entre la vapeur et l'interface liquide/vapeur. Le coefficient de transfert est alors donné par l'équation 2.13-a [29].

$$h_{cond,mél} = \frac{1}{\frac{1}{h_{id}} + \frac{Z}{h_{cond,G}}} \quad 2.13-a$$

$$Z = q c_{p,G} \frac{dT}{dh} \quad 2.13-b$$

Dans l'équation 2.13-a,  $h_{id}$  est le coefficient de transfert lors d'une condensation de vapeur pure dans un tube, les caractéristiques de cette vapeur étant celle du mélange. Le coefficient de transfert en condensation de la vapeur dans un tube  $h_{cond,G}$ , est corrélé par l'équation de Dittus-Boelter (équation 2.10-b).  $Z$  est le facteur de correction, donné en fonction du glissement de température du mélange (équation 2.13-b).

Plusieurs corrélations pour le calcul du coefficient de transfert lors de la condensation de la vapeur dans un tube sont comparées pour un faible débit et un débit élevé de vapeur [26]. Les valeurs données par ces corrélations sont assez proches pour des débits élevés. Pour de faibles débits, la corrélation d'Ackers (équation 2.14) donne des valeurs plus élevées que le reste des corrélations. Mais cette corrélation est la seule définie pour deux intervalles du nombre de Reynolds ; elle sera donc utilisée pour les coefficients de transfert lors de la condensation de la vapeur dans un tube.

$$h_{cond,G} = C Re^n Pr^{1/3} \frac{\lambda_L}{d} \quad 2.14$$

$$C = 0,0265, n = 0,8 \text{ si } Re > 5 * 10^4$$

$$C = 5,03, n = \frac{1}{3} \text{ si } Re < 5 * 10^4$$

#### 4.3.1.3. Débits évaporés et condensés

Pour calculer les débits de liquide évaporé et de vapeur condensée, on suppose que les compositions molaires de la vapeur et du liquide formés sont celles en équilibre avec le liquide BP et la vapeur HP desquels ils proviennent respectivement. Les chaleurs latentes d'évaporation et de condensation sont alors calculées selon ces compositions molaires.

Pour chaque volume fini, ayant les pressions et les compositions molaires du liquide BP et de la vapeur HP, REFPROP 8.0 est utilisé pour calculer les fractions molaires de la vapeur et du liquide en équilibre avec le liquide en évaporation et la vapeur en condensation respectivement. La chaleur latente est alors donnée par l'équation 2.15.

$$h_{fg}]_{mél} = \gamma h_{fg}]_{N_2} + (1 - \gamma) h_{fg}]_{O_2} \quad 2.15$$

Dans l'équation 2.15,  $\gamma$  est la composition molaire de la vapeur BP, en équilibre avec le liquide évaporé ou la composition molaire du liquide HP, en équilibre avec la vapeur condensée. Les débits  $m_v$  et  $m_L$  sont alors calculés par un rapport entre Q et  $h_{fg}]_{mél}$ .

#### 4.3.2. Transferts de masse

Les transferts de masse entre le liquide descendant et la vapeur ascendante se font par diffusion à l'interface, comme suit :

- un transfert d'azote du liquide vers la vapeur.
- un transfert d'oxygène de la vapeur vers le liquide.

Un bilan énergétique à l'interface permet de trouver la relation entre les débits transférés (équation 2.16).

$$h_{fg}]_{N_2} * \dot{m}_{N_2} = h_{fg}]_{O_2} * \dot{m}_{O_2} \quad 2.16$$

Pour calculer le débit d'azote transféré du liquide vers la vapeur, la loi de Fick est utilisée. Elle donne le débit molaire d'azote en fonction des compositions molaires du liquide et de la vapeur [30].

$$\frac{dN_{N_2}}{dS_i} = k_G(p_{N_2}^* - p_{N_2}) = k_L(C_{N_2} - C_{N_2}^*) \quad 2.17-a$$

$$\frac{dN_{N_2}}{dS_i} = k_G P(y_{N_2}^* - y_{N_2}) = \frac{k_L}{V_m} (x_{N_2} - x_{N_2}^*) \quad 2.17-b$$

Dans l'équation 2.17,  $k_G$  et  $k_L$  sont les coefficients de transfert de l'azote dans le gaz et le liquide respectivement. Le terme  $p_{N_2}^*$  représente la pression de l'azote dans la vapeur à l'interface liquide/vapeur. Cette pression est liée à la pression totale P par la fraction molaire de l'azote dans la vapeur à l'interface  $y_{N_2}^*$ . Le terme  $C_{N_2}^*$  représente la concentration molaire de l'azote dans le liquide à l'interface. Il est égal au rapport entre la fraction molaire de l'azote dans le liquide à l'interface  $x_{N_2}^*$  et le volume molaire du liquide  $V_m$ .

Les fractions molaires à l'interface sont les fractions d'équilibre des mélanges à la pression P. Elles sont liées par la loi de Henry [30], H étant la constante de Henry.

$$y_{N_2}^* = H x_{N_2}^* \quad 2.18$$

Les coefficients de transfert de masse,  $k_G$  et  $k_L$ , sont évalués par les corrélations présentées dans la littérature pour les écoulements de films liquides descendants en présence d'un écoulement de vapeur à contre-courant.

Dans l'équation 2.17,  $S_i$  est la surface interfaciale entre le liquide et la vapeur, à travers laquelle ont lieu les transferts de masse. Elle est calculée en fonction de l'épaisseur du film liquide.

##### 4.3.2.1. Coefficients de transfert de masse

Pour calculer les coefficients de transfert dans le gaz et le liquide, plusieurs théories existent [30].

- Théorie du double film : cette théorie de Whitman suppose que la résistance au transfert est localisée dans deux films, gaz et liquide, d'épaisseur  $\delta_G$  et  $\delta_L$ , immobiles de part et

d'autre de l'interface. Le transfert de masse dans les films se fait par diffusion moléculaire.

- Théorie de pénétration : cette théorie de Higbie et Fanckwerts suppose un renouvellement des éléments fluides, présents à l'interface à un instant déterminé, par des éléments qui viennent du sein de chaque phase.
- Théorie de la couche limite-pénétration : cette théorie de Torr et Marchello est une synthèse des deux théories précédentes. Une fonction de distribution des temps de séjour des éléments à l'interface "S<sub>i</sub>" est définie, ayant une dimension de l'inverse du temps. Une faible valeur de "S<sub>i</sub>" correspond à des temps de séjour à l'interface élevés en moyenne et cette théorie conduit asymptotiquement à la théorie du double film. Une grande valeur de "S<sub>i</sub>" correspond à des temps de séjour à l'interface faibles en moyenne et cette théorie conduit asymptotiquement à la théorie de pénétration.

Plusieurs corrélations d'estimation des coefficients de transfert de masse dans le gaz et le liquide sont présentes dans la littérature. Elles sont basées sur l'une ou l'autre de ces théories, la plus utilisée étant la théorie du double film.

Pour calculer les coefficients de transfert dans l'échangeur tubes-calandre, où les liquides s'écoulent en films sur les parois intérieures et extérieures des tubes, les corrélations données par Trambouze [24], dans son étude des réacteurs chimiques à film tombant (figure 2.25) sont considérées. Ces corrélations sont données en fonction des nombres adimensionnels régissant les écoulements, selon la théorie du double film. On rappelle que ces coefficients caractérisent les transferts de masse uniquement, supposés découplés des transferts de chaleur.

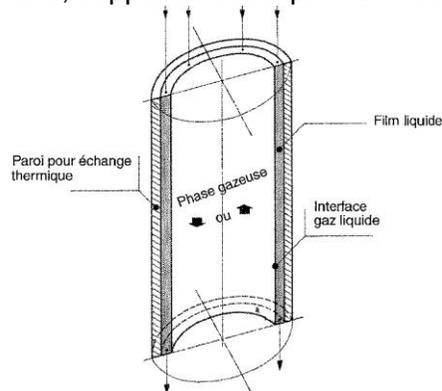


Figure 2.25 : Caractéristiques principales d'un réacteur à film mince [24]

Les nombres adimensionnels mis en jeu dans ce type d'écoulement diphasique sont les suivants.

- Nombres de Reynolds, gaz et liquide, pour caractériser les écoulements :

$$Re_G = \frac{4Q_G \rho_G}{\pi d \mu_G} \quad 2.19-a$$

$$Re_L = \frac{Q_L \rho_L}{\pi d \mu_L} \quad 2.19-b$$

- Nombres de Schmidt, gaz et liquide, pour définir le rapport entre la diffusion de la quantité de mouvement (fonction de la viscosité) et la diffusion de masse (fonction du coefficient de diffusion) :

$$Sc_G = \frac{\mu_G}{\rho_G D_G} \quad 2.19-c$$

$$Sc_L = \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \quad 2.19-d$$

- Nombre de Sherwood gaz, pour déterminer la fraction de contribution de la diffusion dans le transfert de masse global :

$$Sh_G = \frac{k_G d}{D_G} \quad 2.19-e$$

Les coefficients de diffusion dans le liquide et dans la vapeur,  $D_L$  et  $D_G$ , présents dans les nombres de Schmidt et de Sherwood sont fonctions des propriétés thermodynamiques de l'azote et de l'oxygène. Les corrélations de calcul de ces coefficients sont données dans la suite de cette section.

Le coefficient de transfert dans le gaz dépend des vitesses d'écoulement des deux phases, liquide et gaz. Il est calculé d'après le nombre de Sherwood. Dans le cas d'un écoulement à contre-courant de vapeur et de film liquide tombant, le nombre de Sherwood gaz est donné par l'équation 2.20 [24], valable pour un écoulement à contre-courant d'un film liquide descendant et d'un écoulement vapeur ascendant.

$$Sh_G = 0,013 * Re_G^{0,75} Re_L^{0,16} Sc_G^{0,44} \left[ 1 + 5,2 * \left( \frac{H}{d} \right)^{-0,75} \right] \quad 2.20$$

Le coefficient de transfert du côté liquide ne dépend que de la vitesse du liquide. Il est donné par l'équation 2.21 [24].

$$\left( \frac{k_L}{D_L} \right) \left( \frac{\mu_L^2}{\rho_L^2 g} \right)^{0,33} = a Re_L^b Sc_L^{0,5} \quad 2.21$$

Dans l'équation 2.21, le coefficient 'a' et l'exposant 'b' sont des constantes qui dépendent du régime d'écoulement du liquide, donc du nombre de Reynolds. Leurs valeurs sont données dans le tableau 2.7 [24].

Tableau 2.7 : a et b en fonction de  $Re_L$  [24]

	a	b
$Re_L \leq 300$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	0,4
$300 < Re_L \leq 1600$	$3,0 \cdot 10^{-2}$	0,2
$1600 < Re_L \leq 10500$	$9,8 \cdot 10^{-2}$	0,7

#### 4.3.2.1.1. Coefficient de diffusion dans le gaz

La corrélation théorique pour le calcul du coefficient de diffusion dans un mélange binaire de vapeur à basses et moyennes pressions résulte de la résolution de l'équation de Boltzmann [31]. Le résultat, obtenu par Chapman et Enskog, est donné par l'équation 2.22.

$$D_G = \frac{0,00266T^{3/2}}{PM_{AB}^{1/2} \sigma_{AB}^2 \Omega_D} \quad 2.22$$

$M_{AB}$  est une fonction des masses molaires des composants A et B, ayant la dimension d'une masse molaire, et donnée par l'équation 2.23 [31].

$$M_{AB} = 2 * \left( \frac{1}{M_A} + \frac{1}{M_B} \right)^{-1} \quad 2.23$$

$\sigma_{AB}$  est la longueur caractéristique de Lennard-Jones du mélange. Elle est exprimée généralement en fonction de  $\sigma_A$  et  $\sigma_B$ , par l'équation 2.24.

$$\sigma_{AB} = \frac{\sigma_A + \sigma_B}{2} \quad 2.24$$

Les valeurs de  $\sigma$  pour l'azote et l'oxygène sont données par Reid et al. [31]. Elles sont de 3,798 Å et 3,467 Å respectivement.

$\Omega_D$  est l'intégrale de collision. Elle est donnée par la corrélation de Neufield et al en fonction du potentiel de Lennard-Jones  $T^* = kT/\varepsilon$  (équation 2.25),  $\varepsilon$  étant l'énergie caractéristique du mélange et  $k$  la constante de Boltzmann.

$$\Omega_D = \frac{1,06036}{(T^*)^{0,1561}} + \frac{0,193}{e^{0,47635T^*}} + \frac{1,03587}{e^{1,52996T^*}} + \frac{1,76474}{e^{3,89411T^*}} \quad 2.25$$

L'énergie caractéristique du mélange est donnée en fonction des énergies caractéristiques de ces composants selon l'équation 2.26.

$$\varepsilon_{AB} = (\varepsilon_A \varepsilon_B)^{1/2} \quad 2.26$$

Pour les composants de l'air, les valeurs de  $\varepsilon/k$  sont données par Reid et al. [31]. Elles valent 71,4 K et 106,7 K pour l'azote et l'oxygène respectivement.

Plusieurs méthodes pour estimer les coefficients de diffusion se basent sur l'équation 2.22 et calculent les constantes par des tests expérimentaux. Une comparaison entre les différentes corrélations proposées et des résultats expérimentaux sur différents mélanges binaires est effectuée [31]. Pour des mélanges d'azote et d'oxygène, l'écart entre les résultats expérimentaux et l'estimation du coefficient par les équations 2.22 à 2.26 atteint 15 %. Une meilleure approximation est atteinte par la corrélation de Fuller et al ; les écarts avec les résultats expérimentaux ne dépassent pas 5 %. Cette corrélation sera donc utilisée pour calculer les coefficients de diffusion dans la colonne de distillation.

Fuller et al réécrivent l'équation 2.22 comme suit [31] :

$$D_{AB} = \frac{0,00143T^{1,75}}{PM_{AB}^{1/2} \left[ (\Sigma_v)_A^{1/3} + (\Sigma_v)_B^{1/3} \right]^2} \quad 2.27$$

Où :  $D_{AB}$  en  $\text{cm}^2/\text{s}$ ,  $T$  en K et  $P$  en bar.

Dans l'équation 2.27,  $M_{AB}$  est calculé par l'équation 2.23 et les volumes de diffusion atomique  $\Sigma_v$  sont des constantes déterminées expérimentalement pour chaque composant. Pour l'azote et l'oxygène,  $\Sigma_{v,N_2} = 18,5$  et  $\Sigma_{v,O_2} = 16,3$  [31].

#### 4.3.2.1.2. Coefficient de diffusion dans le liquide

Plusieurs corrélations pour le calcul du coefficient de diffusion dans le liquide existent dans la littérature. Une comparaison entre les différentes corrélations et des résultats expérimentaux

montrent que la corrélation de Tyn et Calus, donnée par l'équation 2.28, estime les coefficients avec le minimum d'erreur. Les erreurs entre cette corrélation et les données expérimentales ne dépassent pas 10 % [31].

$$D_{AB} = 8,93 * 10^{-8} \left( \frac{V_A}{V_B^2} \right)^{1/6} \left( \frac{p_B}{p_A} \right)^{0,6} \frac{T}{\mu_B} \quad 2.28$$

Où : V en cm<sup>3</sup>/mol et μ en cP.

p est le parachor des composants A et B, donné en fonction du volume molaire et de la tension superficielle du liquide (équation 2.29).

$$p = V_S^{1/4} \quad 2.29$$

Où : V en cm<sup>3</sup>/mol et s en g/s<sup>2</sup>.

La combinaison des équations 2.28 et 2.29 donne l'expression du coefficient de diffusion dans le liquide en fonction des volumes molaires et des tensions superficielles des composants dans le liquide (équation 2.30 [31]).

$$D_{AB,L} = 8,93 * 10^{-8} \frac{V_B^{0,267}}{V_A^{0,433}} \frac{T}{\mu_B} \left( \frac{S_B}{S_A} \right)^{0,15} \quad 2.30$$

Les valeurs des volumes molaires et des tensions superficielles sont calculées à la température d'ébullition T<sub>b</sub>. Aux températures d'ébullition, le rapport des tensions superficielles s'approche de 1. Elevé à la puissance 0,15, ce ratio peut être estimé à 1 et la corrélation du coefficient de diffusion se réduit à l'équation 2.31 [31].

$$D_{AB,L} = 8,93 * 10^{-8} \frac{V_B^{0,267}}{V_A^{0,433}} \frac{T}{\mu_B} \quad 2.31$$

Les résultats obtenus par la corrélation de l'équation 2.31 sont assez similaires à ceux obtenus par l'équation 2.28 [31]. Cette corrélation sera donc utilisée pour les coefficients de diffusion dans les films liquides de la colonne de distillation diabatique cryogénique de l'air.

#### 4.3.2.2. Surface interfaciale

Pour les appareils à film mince, l'épaisseur du film liquide δ est souvent fluctuante compte tenu de la présence de rides ou de vagues formant des ondulations à la surface. Une valeur moyenne est alors calculée, traduisant l'effet des propriétés du système et de la vitesse d'écoulement liquide (équation 2.32 [24]).

$$\delta_L = A \left( \frac{3\mu_L^2}{g\rho_L} \right)^{0,33} Re_L^B \quad 2.32$$

Les coefficients A et B de l'équation 2.32 sont fonction du nombre de Reynolds liquide. Leurs valeurs sont données dans le tableau 2.8 [24].

Tableau 2.8 : A et B en fonction de  $Re_L$

	A	B
$Re_L < 100$	1	1/3
$100 < Re_L < 420$	0,93	1/3
$Re_L > 420$	0,37	1/2

La surface interfaciale est alors donnée en fonction de l'épaisseur de film moyenne par l'équation 2.33.

$$S_i = \pi(d - 2\delta)H \quad 2.33$$

#### 4.4. Pertes de pression

Les corrélations présentées dans la littérature pour le calcul des pertes de pression dans un écoulement annulaire diphasique, où le film liquide et la vapeur s'écoulent à contre-courant, sont généralement issues de mesures réalisées sur des bancs d'essais fonctionnant avec des fluides divers [32-37]. Ces pertes de pression sont exprimées sous la forme de pertes de pression linéaires dans un canal vertical sec et les corrections sont apportées au facteur de frottement et à la vitesse de la vapeur (équation 2.34).

$$\frac{\Delta P}{\Delta H} = \frac{f_{corr} \rho_G v_{G,corr}^2}{d \cdot 2} \quad 2.34$$

##### 4.4.1. Correction sur la vitesse de la vapeur

Deux corrections sont à effectuer sur la vitesse de la vapeur, une correction statique et une correction dynamique [37]. Du point de vue statique, l'existence du film liquide diminue les sections de passage ; ceci se traduit par une augmentation de la vitesse de la vapeur. La nouvelle valeur de la vitesse est alors donnée par l'équation 2.35-a.

$$v_{G,corrstat} = \frac{G/\rho_G}{\pi \frac{(d - 2\delta)^2}{4}} \quad 2.35-a$$

Du point de vue dynamique, le film liquide descendant entraîne la vapeur à l'interface liquide/vapeur dans un écoulement descendant [37]. La valeur effective de la vitesse de la vapeur est donc la somme de la vitesse  $v_{G, corr stat}$  et de la vitesse interfaciale  $v_{if}$ . La vitesse interfaciale est fonction des masses volumiques du liquide et de la vapeur et de la viscosité du liquide, selon l'équation 2.35-b [33].

$$v_{if} = - \left[ \theta^2 \ln(\theta) + \frac{1 - \theta^2}{2} \right] \left( \Delta \rho g + \frac{\Delta P}{\Delta H} \right) \frac{r^2}{2\mu_L} \quad 2.35-b$$

Dans l'équation 2.35-b,  $\theta$  est le rapport du rayon de la section de passage de la vapeur au rayon du tube, soit alors  $(r - \delta)/r$ ,  $\delta$  étant l'épaisseur du film liquide. Le signe négatif est utilisé pour indiquer que la vitesse interfaciale est descendante. On remarque que la vitesse interfaciale est corrélée en fonction des pertes de pression. Ceci implique que la procédure de calcul des pertes de pression est itérative ; à partir de pertes de pression calculées dans le tube sec, une première approximation de la vitesse interfaciale est effectuée. Les pertes de pression dans le tube avec écoulement de film liquide sont alors calculées et la vitesse interfaciale

corrigée. Les itérations sont répétées jusqu'à ce que les valeurs calculées des pertes de pression soient conformes à celles de l'itération antérieure [33].

Des simulations CFD sont effectuées par Fernandes et al pour comparer les pertes de pression obtenues par correction statique de la vitesse (équation 2.35-a) à celles obtenues par double correction de la vitesse dans un tube de diamètre 24 mm muni d'un garnissage structuré [37]. Pour simplifier le modèle, la vitesse interfaciale est supposée être égale à la vitesse du liquide descendant. Les résultats montrent que la correction statique de la vitesse de la vapeur présente l'effet majeur sur les pertes de pression. En l'absence de comparaison des pertes de pression dans un tube sans garnissage selon le mode de correction de la vitesse de la vapeur, elle sera corrigée statiquement et dynamiquement (équation 2.35-c). Les pertes de pression sont alors calculées par itérations successives.

$$v_{G,corr} = \frac{G/\rho_G}{\pi(d-2\delta)^2} + \left[ \theta^2 \ln(\theta) + \frac{1-\theta^2}{2} \right] \left( \Delta\rho g + \frac{\Delta P}{\Delta H} \right) \frac{r^2}{2\mu_L} \quad 2.35-c$$

#### 4.4.2. Correction du facteur de frottement

Dans une conduite cylindrique sèche, le facteur de frottement est donné par la corrélation de Colebrook [38], présentée dans l'équation 2.36.

$$\frac{1}{\sqrt{f}} = -2 \log \left( \frac{e}{3,7d} + \frac{2,51}{Re_G \sqrt{f}} \right) \quad 2.36$$

En présence d'un film liquide descendant, ce facteur est corrigé par un paramètre décrivant l'interaction liquide/vapeur. Ce paramètre est corrélé dans [33] à partir d'une base de données regroupant les résultats, théoriques et expérimentaux, de plusieurs études antérieures. Il est calculé (équation 2.37) en fonction des nombres de Reynolds des écoulements du liquide et de la vapeur, du rapport des masses volumiques et des viscosités, du liquide et de la vapeur, et du nombre de Galilée du système. Le nombre de Galilée est donné par l'équation 2.38 [33].

$$\Psi_{G-L} = \sinh \left[ \frac{34 * 10^{-5} (1 - \theta^2)^7}{Re_L^2 Ga^{-2}} Re_L Re_G^{1,5} \frac{\rho_L \mu_L}{\rho_G \mu_G} \right] \quad 2.37$$

$$Ga = \frac{\Delta\rho g \rho_L r^3}{6\mu_L^2} \quad 2.38$$

Les pertes de pression dans un écoulement annulaire à contre-courant dans un canal vertical sont alors données par l'équation 2.39 [33].

$$\frac{\Delta P}{\Delta H} = \frac{f(1 + \Psi_{G-L}) \rho v_{G,corr}^2}{d} \frac{2}{2} \quad 2.39$$

### 4.5. Distributions, globale et locale, des fluides

La distribution des fluides, liquide et gaz, dans un échangeur tubes-calandre pour la distillation adiabatique joue un rôle important dans son fonctionnement. Deux types de distribution sont à considérer :

- répartition homogène des fluides dans les tubes et dans la calandre.
- répartition homogène des films liquides sur les parois des tubes.

Du côté haute pression, un débit de vapeur est à introduire en cuve de la colonne. Dans les tubes ou dans la calandre, une répartition homogène du gaz sur toute la section de passage est nécessaire pour que les processus de transferts soient identiques sur tous les tubes.

Le liquide recueilli en cuve du côté de la colonne HP est à introduire en tête de la colonne du côté basse pression. Les deux cas de distribution cités ci-dessus sont à prendre en considération : le débit de liquide à introduire devrait être également réparti sur tous les tubes, en écoulement interne ou externe. De plus, un écoulement de film bien réparti sur les parois des tubes doit être assuré.

Du côté haute pression, la condensation de la vapeur sur les parois se fait naturellement sous forme de film, vu que les fluides cryogéniques condensés mouillent facilement les surfaces solides [39].

Les effets d'une mal distribution de la vapeur HP ou du liquide BP sur les sections de passage de la colonne et les effets de films liquides qui ne mouillent pas la totalité des surfaces des tubes sont étudiés dans la section 6 de ce chapitre.

#### 4.6. Engorgement liquide

L'engorgement liquide en écoulement vertical descendant est l'un des points les plus critiques dans le fonctionnement d'une colonne de distillation. Il a lieu quand le liquide, s'écoulant dans une section étroite, occupe toute la section et empêche un écoulement à contre-courant de la vapeur.

La possibilité d'engorgement est testée par la corrélation de Lobo et Sherwood [40]. Un engorgement aura lieu si :

$$j_L^{*1/2} + j_G^{*1/2} > 0,775 \quad 2.40$$

Les vitesses adimensionnelles du liquide et de la vapeur  $j_L^*$  et  $j_G^*$  sont données par les équations 2.41-a et 2.41-b respectivement.

$$j_L^* = j_L \rho_L^{1/2} [gd(\rho_L - \rho_G)]^{-1/2} \quad 2.41-a$$

$$j_G^* = j_G \rho_G^{1/2} [gd(\rho_L - \rho_G)]^{-1/2} \quad 2.41-b$$

De même que pour les pertes de charge, le diamètre hydraulique est utilisé dans les équations 2.41 pour les écoulements dans la calandre.

#### 4.7. Modèle numérique

Après le choix des corrélations de calcul des différents coefficients de transferts et des pertes de pression dans l'échangeur tubes-calandre adapté à la distillation cryogénique de l'air, la méthode de calcul des différents paramètres sur les volumes finis est maintenant expliquée. On note que le code de calcul développé suppose que la distribution est homogène dans la

colonne. Les écoulements sont donc identiques dans tous les tubes. On limite alors le calcul à un seul tube, entouré d'un espace annulaire. Le diamètre du tube et le diamètre hydraulique de l'anneau sont optimisés en tenant compte des diamètres minimaux imposés par la condition d'engorgement et des diamètres maximaux imposés par la condition de mouillage des surfaces. Ces hypothèses réduisent les paramètres à optimiser aux suivants :

- diamètre du tube ;
- diamètre hydraulique côté calandre ;
- hauteur de la colonne ;
- nombre de changements des diamètres ;
- pressions des deux côtés.

Une fois ces paramètres calculés, la géométrie globale de l'échangeur en est déduite comme suit :

- le nombre de tubes est calculé en divisant le débit total de produit liquide désiré (5 000 t/j) par le débit unitaire calculé par les simulations
- le diamètre du tube, le diamètre hydraulique du côté de la calandre et le nombre de tubes permettent de calculer le diamètre extérieur de la calandre.

La simulation du fonctionnement de la colonne commence par une étape d'initialisation des paramètres. Les entrées du code numérique sont :

- débit de vapeur HP à l'entrée en cuve ;
- haute pression ;
- basse pression ;
- hauteur de la colonne.

Des variations linéaires des débits et des compositions molaires du liquide et de la vapeur aux deux niveaux de pressions sont d'abord initialisées. Les pressions sont supposées constantes sur la hauteur de la colonne.

Les débits minimaux de liquide de chaque côté de l'échangeur sont ensuite utilisés pour calculer le diamètre maximal d'un tube qui puisse être parfaitement mouillé. Ce diamètre est évalué par les corrélations issues de la littérature. En effet, plusieurs études expérimentales [41-43] sur différents fluides ont permis de calculer les débits minimaux par périmètre mouillé des tubes. Ces débits sont calculés en fonction des propriétés thermodynamiques des fluides, notamment la masse volumique, la viscosité et la tension superficielle et correspondent à des écoulements de films sur les parois internes ou externes des tubes. Les valeurs des débits calculés par les différentes corrélations pour le mélange azote-vapeur aux conditions cryogéniques présentent de faibles écarts. On utilise alors la corrélation de Morison et al [42], donnée par l'équation 2.42 pour le calcul du débit minimal par périmètre mouillé.

$$\Gamma_{min} = 0,13[s(1 - \cos\theta)]^{0,764} \rho^{0,255} \mu^{-0,018} \quad 2.42$$

Dans l'équation 2.38,  $\Gamma_{min}$  est le débit de liquide par périmètre, interne ou externe, du tube. Cette équation permet de calculer un diamètre interne maximal et un diamètre externe maximal du tube, basés sur les débits de liquide minimaux, du côté haute pression (en tête) et du côté basse pression (en cuve). La valeur la plus faible définit alors le diamètre du tube considéré pour débiter la simulation de la colonne. Cette valeur du diamètre, avec l'espacement inter-tubes minimal calculé par l'équation 2.1, permettent de calculer le diamètre hydraulique de la section annulaire.

Une première estimation de l'évolution des pressions dans la colonne est calculée par les corrélations des équations 2.34 à 2.39, les propriétés thermodynamiques étant calculées pour les profils de compositions molaires et les pressions initialisées. Les pressions calculées permettent de réévaluer les propriétés thermodynamiques des mélanges aux deux niveaux de pression.

Dans une deuxième étape, les coefficients de transferts de chaleur et de masse sont calculés. Les températures à chaque volume fini sont les températures de saturation des mélanges liquides aux pressions calculées. Ces températures, avec le coefficient d'échange de chaleur global, permettent de calculer les quantités de chaleur échangée sur chaque volume fini.

Les pressions, les températures et les quantités de chaleur étant calculées, les inconnues sont réduites aux débits et compositions molaires des mélanges et aux compositions molaires en équilibre sur l'interface liquide/vapeur, soit alors 12 inconnues sur chaque volume fini, 6 à chaque niveau de pression. La quantité de chaleur étant calculée, chaque niveau de pression peut alors être simulé, indépendamment de l'autre.

A chaque niveau de pression, les 6 équations permettant de calculer les 6 inconnues à chaque volume fini, sont les suivantes (cf. section 4.2.1 du chapitre 1) :

- une équation de conservation de la masse totale,
- une équation de bilan de l'azote dans le liquide,
- une équation de bilan de l'azote dans la vapeur,
- une équation de bilan de masse liquide,
- une équation de bilan de masse vapeur,
- une équation de Henry.

La colonne HP est d'abord simulée en résolvant un système de 6N équations à 6N inconnues. Les débits et compositions molaires du liquide sortant en cuve sont aussi ceux du liquide introduit en tête de la colonne à basse pression. Ces valeurs permettent alors de simuler la colonne BP en résolvant les 6N équations correspondantes.

Les nouveaux profils de débits et de compositions molaires permettent de calculer de nouveaux profils de pressions et de températures de saturation, de nouveaux profils de propriétés thermodynamiques des fluides et donc de nouvelles valeurs des coefficients de transferts de masse et de chaleur et des quantités de chaleur échangées.

Deux nouveaux systèmes d'équations sont alors résolus pour les deux colonnes. Les résultats de ceux-ci sont comparés avec ceux des deux systèmes antérieurs. Un écart relatif maximal de  $10^{-4}$  est recherché ; les itérations continuent jusqu'à atteindre cet écart.

Une fois la convergence atteinte, le code numérique vérifie le mouillage des tubes, l'engorgement du liquide dans les tubes et la calandre, et les pertes de pression totale dans la colonne avec les valeurs de débits et de compositions molaires calculées.

La vérification du mouillage des tubes par le liquide se fait dans le sens du débit décroissant de chaque côté ; soit alors de la tête vers la cuve du côté basse pression et de la cuve vers la tête du côté haute pression. Au premier volume fini où le mouillage n'est pas assuré, un changement de section est défini et une plus petite valeur du diamètre du passage est calculée par l'équation 2.42 pour le débit de liquide minimal dans la colonne (volume fini 1 en basse

pression et volume fini N en haute pression). Cette valeur reste alors constante jusqu'en cuve dans la colonne basse pression et jusqu'en tête dans la colonne haute pression.

L'engorgement du liquide dans les sections de passage est vérifié dans le sens des débits de liquide croissants dans la colonne. Un changement de section est défini au volume fini où la condition d'engorgement (équation 2.40) n'est pas vérifiée. Un diamètre plus grand du passage est alors défini jusqu'en tête de la colonne BP et jusqu'en cuve du côté haute pression.

Un troisième critère à prendre en compte dans les changements des sections de passage est les pertes de pression dans les colonnes. Les pertes de pression dans une colonne adiabatique à garnissage sont de 100 Pa par plateau théorique [44], soit alors près de 500 Pa par mètre. On suppose alors que les pertes de pression maximales admises sont de 500 Pa par mètre de l'échangeur tubes-calandre, à chaque niveau de pression. Le diamètre des passages est donc augmenté de sorte à ne pas dépasser ces pertes de pression.

Une fois ces changements de section définis, le fonctionnement de la nouvelle colonne est simulé et les profils de débits et de compositions molaires des mélanges de chaque côté sont calculés. Si l'une des conditions de mouillage, d'engorgement liquide ou de pertes de pression n'est pas vérifiée, de nouveaux changements de sections sont définis. Sinon, le code calcule le nombre de tubes dans la colonne et les diamètres de la calandre sur les différentes sections.

## 5. Choix de la configuration des pressions dans l'échangeur

Deux configurations des niveaux de pression dans l'échangeur tubes-calandre sont possibles : écoulements HP dans la calandre et écoulements BP dans les tubes (configuration A) ou écoulements HP dans les tubes et écoulements BP dans la calandre (configuration B). Le choix de l'une ou de l'autre des configurations dépend des contraintes sur le fonctionnement de la colonne.

La configuration A présente le problème de la distribution homogène de l'air comprimé autour des tubes à l'entrée au pied de la colonne. Ce problème est étudié en détails dans le chapitre 3 et des dispositifs de distribution homogène sont proposés. D'autre part, pour l'entrée du liquide BP en tête de la colonne, deux conditions sont à vérifier : distribution homogène du débit sur les tubes et écoulements en films bien répartis sur les parois, internes ou externes, des tubes. Des dispositifs de distribution du liquide en forme de film à l'intérieur des tubes sont présentés dans la littérature ; ils consistent soit en un plateau de distribution muni de fentes qui délivrent le liquide autour des tubes (figure 2.26-a [42]), soit en un plateau de distribution dans lequel les extrémités des tubes, munis de fentes, créent un écoulement de film autour des tubes de l'échangeur (figure 2.26-b [45]).

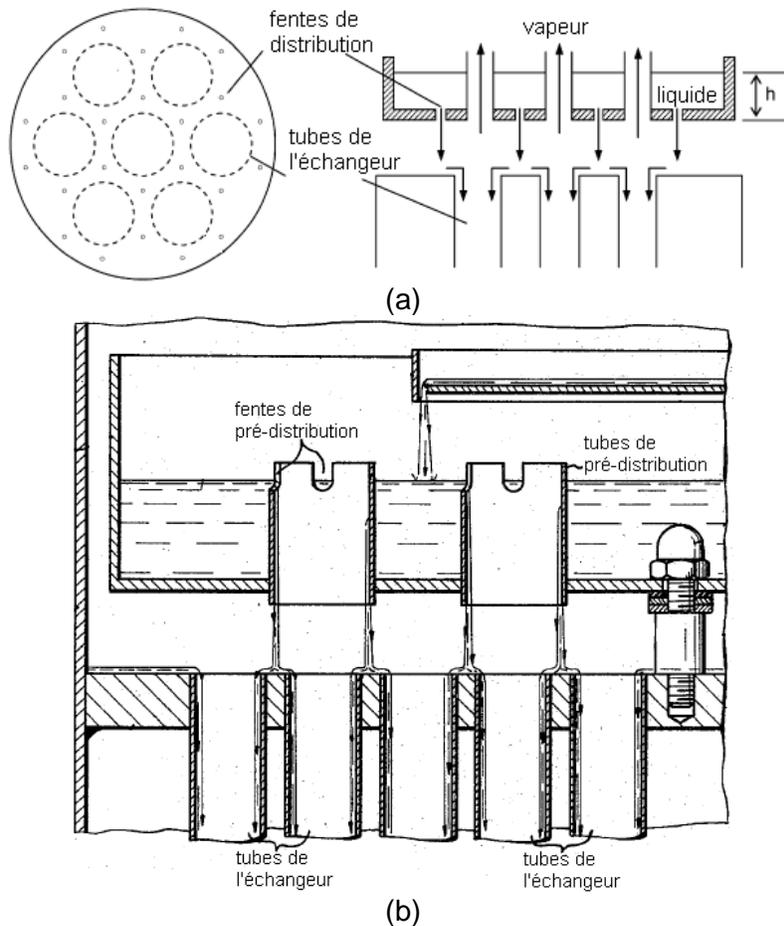


Figure 2.26 : Dispositifs de distribution du liquide sous forme de films à l'intérieur des tubes, (a) par fentes de distribution [42], (b) par distribution double étage [45]

Dans la configuration B, le plateau de distribution du liquide en tête de colonne devrait être soudé aux tubes comme sur la figure 2.21-c. La forme et la géométrie des espaces destinés à l'écoulement du film autour des tubes doivent assurer l'homogénéité des écoulements.

Les contraintes de distribution de la vapeur HP en cuve et du liquide BP en tête de l'échangeur favorisent, a priori, la configuration A. Ce critère étant pour l'instant qualitatif, on compare le fonctionnement de la colonne dans les deux configurations. Comme entrées du code, les pressions sont celles issues de la simulation HYSYS (paragraphe 3.1), soit alors une basse pression de 140 kPa et une haute pression de 376 kPa. Pour la comparaison, on considère un débit d'air comprimé à l'entrée de la colonne HP de 0,1 kg/s par tube. Ce débit est à distiller dans un échangeur tubes-calandre de hauteur 20 m.

### 5.1. Résultats dans le cas de la configuration A

Le code de calcul simule le fonctionnement d'un échangeur monotube avec un écoulement à l'entrée de l'espace annulaire en cuve de 0,1 kg/s d'air comprimé à 376 kPa. Le diamètre du tube interne BP et celui du tube externe sont calculés de sorte à répondre aux conditions de mouillage des tubes, aux conditions d'engorgement du liquide et au maximum de pertes de pression imposé.

Une fois la géométrie définie pour un échangeur monotube, le nombre de tubes est calculé pour que le débit du produit liquide soit égal à 5 000 tonnes/jour. Pour cette configuration, la géométrie de l'échangeur est calculée comme suit :

- 16 551 tubes de diamètre interne de 35,7 mm
- espacement inter-tubes de 26 mm, soit alors un diamètre hydraulique du côté calandre de 55,4 mm.
- diamètre de la calandre de 9,5 m
- aucun changement de section.

Un débit total d'air comprimé de 1 655 kg/s est à distiller dans le but de récupérer 5 000 tonnes/jour de produit liquide à basse pression. La pureté du produit dans ce cas de configuration est de 99 % en oxygène.

Les évolutions des débits et des compositions molaires des mélanges à haute et à basse pressions sont comparées avec celles calculées dans le cas de la configuration B. Les résultats sont présentés dans la section 5.3.

## 5.2. Résultats de la configuration B

Dans cette configuration, la géométrie de l'échangeur est comme suit :

- un changement de section à une hauteur de 18,2 m
- tranche inférieure :
  - o 17 101 tubes de diamètre interne de 56 cm.
  - o espacement inter-tubes de 14 mm, soit alors un diamètre hydraulique du côté calandre de 49,3 mm.
  - o diamètre de la calandre de 11 m.
- Tranche supérieure :
  - o 17 101 tubes de diamètre interne 51,5 cm.
  - o espacement inter-tubes de 13 mm, soit un diamètre hydraulique du côté calandre de 45,5 mm.
  - o diamètre de la calandre de 10 m.

A l'entrée des tubes, un débit d'air comprimé de 1 710 kg/s est à introduire, pour un produit liquide de 5 000 tonnes/jour de pureté en oxygène de 99 %.

## 5.3. Comparaison du fonctionnement de la colonne dans les deux configurations

Les graphiques des figures 2.27 et 2.28 représentent les débits et les compositions molaires des mélanges de vapeur et de liquide à basse et à haute pressions dans les deux cas de configurations d'échanges : tubes BP / calandre HP et tubes HP / calandre BP.

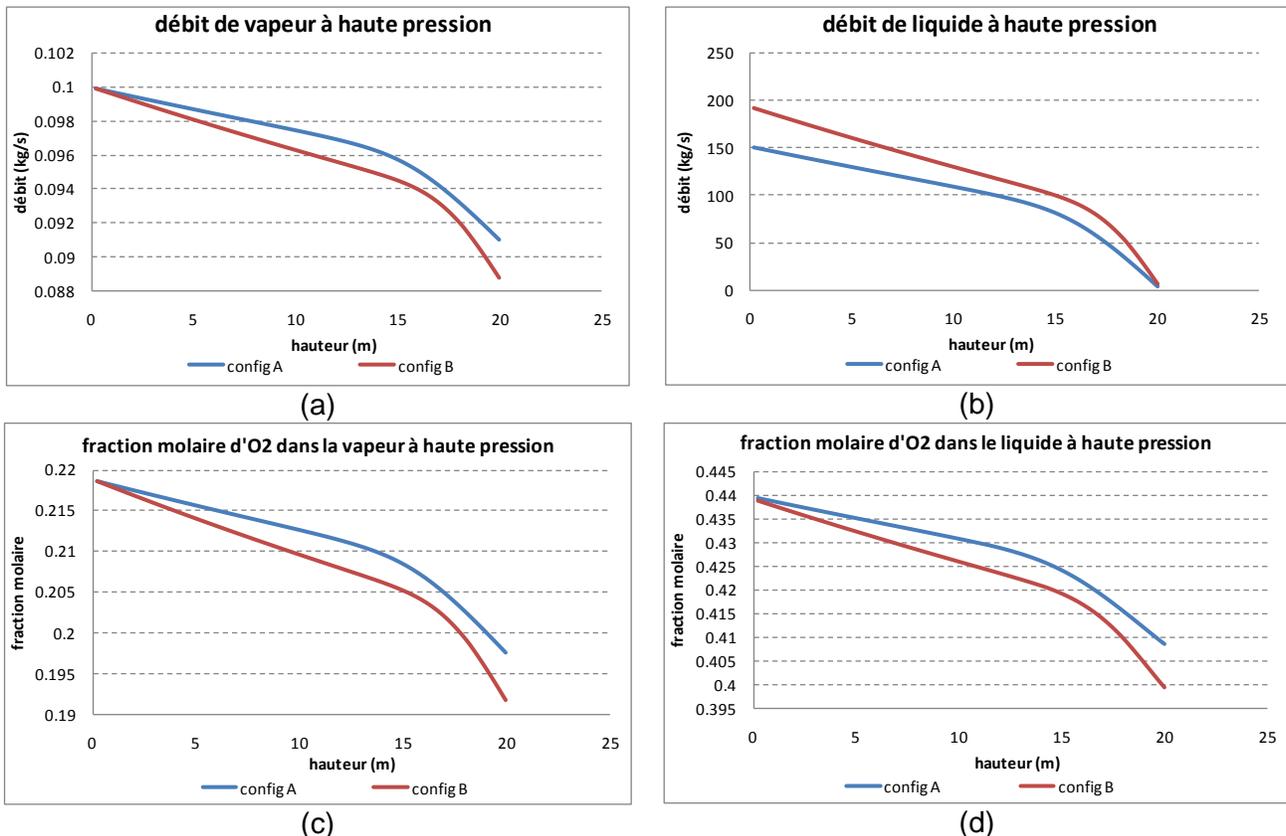


Figure 2.27 : Débits et compositions molaires des mélanges à haute pression dans les deux cas de configuration, (a) débit de vapeur, (b) débit de liquide, (c) fraction molaire d'O<sub>2</sub> dans la vapeur, (d) fraction molaire d'O<sub>2</sub> dans le liquide

Dans la configuration B, le diamètre des tubes étant plus grand, la surface d'échange de chaleur des tubes vers la calandre est plus grande. La quantité de chaleur transférée vaut alors 1,28 fois la quantité échangée dans le cas de la configuration A. La quantité de liquide condensée à haute pression est donc plus élevée de 25 % (figure 2.27-b).

Les écarts entre les fractions molaires d'oxygène dans le liquide et la vapeur HP dans les deux configurations d'échange sont limités. Un écart de 3 % est calculé entre les compositions molaires d'O<sub>2</sub> dans la vapeur à la sortie en tête (figure 2.27-c), et un écart de 2 % entre les compositions molaires d'O<sub>2</sub> dans le liquide à la sortie en cuve (figure 2.27-d). En effet, pour le calcul des transferts de masse, le diamètre hydraulique est utilisé pour le côté calandre. Ce diamètre, dans la configuration A, diffère peu du diamètre des tubes dans la configuration B. Les coefficients de transfert de masse et les surfaces inter-faciales varient donc peu avec le changement de configuration.

Du côté basse pression, pour la configuration B, la quantité de liquide introduite en tête est plus élevée du fait d'une condensation d'un débit de liquide plus élevé du côté haute pression, figure 2.28-b). Les transferts de chaleur par tube étant plus élevés dans la configuration B, le liquide sortant en cuve de la calandre dans une configuration montubulaire de ce type est plus faible que celui sortant en cuve d'un tube de la configuration A. Un nombre de tubes plus grand est alors nécessaire pour obtenir le même débit de produit liquide (5 000 tonnes/jour) dans les deux configurations.

Le débit de vapeur BP sortant en tête de la colonne est plus élevé dans la configuration B du fait d'un taux d'évaporation plus élevé (figure 2.28-a). Mais cette vapeur étant un produit rejeté, un débit plus faible est requis.

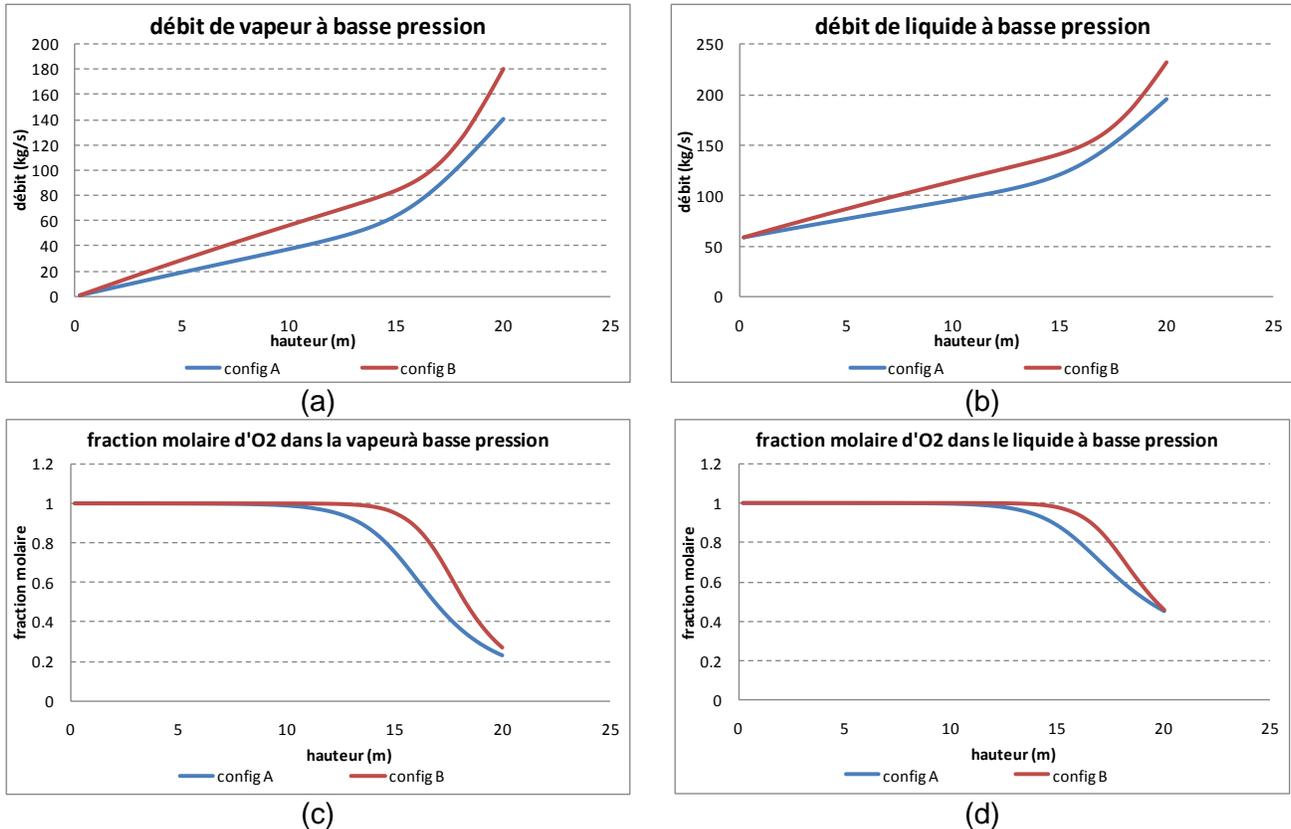


Figure 2.28 : Débits et compositions molaires des mélanges BP dans les deux cas de configuration, (a) débit de vapeur, (b) débit de liquide, (c) fraction molaire d'O<sub>2</sub> dans la vapeur, (d) fraction molaire d'O<sub>2</sub> dans le liquide

Les compositions molaires des mélanges de vapeur et de liquide BP sont presque identiques à l'entrée et à la sortie pour les deux configurations. Des écarts sont pourtant calculés dans l'évolution des fractions molaires d'oxygène le long de la colonne. Un écart relatif maximal de 54,7 % entre les fractions molaires de l'oxygène dans la vapeur est calculé (figure 2.28-c) à la hauteur de 18 m. A cette même hauteur, l'écart maximal entre les fractions molaires de l'oxygène dans le liquide est calculé et vaut 22,3 % (figure 2.27-d).

En effet, les diamètres hydrauliques, utilisés pour le calcul des coefficients de transfert de masse BP dans la configuration B, sont nettement supérieurs aux diamètres des tubes dans la configuration A. Les transferts de masse sont donc favorisés du côté basse pression dans la configuration B. En conséquence, la pureté de 99 % est atteinte sur une hauteur de 8 m à partir de la tête dans la configuration B et sur une hauteur de 12,6 m à partir de la tête dans la configuration A.

## 5.4. Choix de la configuration d'échanges

La comparaison, qualitative et quantitative, des configurations d'échanges possibles dans l'échangeur, montre les avantages suivants de la configuration A par rapport à la configuration B :

- distribution plus facile des mélanges de vapeur HP à l'entrée en cuve et de liquide BP à l'entrée en tête.
- surface au sol de l'échangeur plus faible (diamètre de la calandre plus faible).
- débit d'azote vapeur BP rejeté plus faible.

Pour ces raisons, la configuration A est retenue pour l'échangeur tubes-calandre, modélisé pour la distillation cryogénique de l'air, les mélanges BP s'écoulant dans les tubes et les mélanges HP dans la calandre. Les transferts de chaleur se font donc de la calandre vers les tubes.

## 6. Effets d'une mal distribution sur le fonctionnement de la colonne

Les résultats présentés dans la section 5 de ce chapitre supposent les conditions de répartition homogène vérifiées des deux côtés, tubes et calandre. Dans la calandre, la vapeur HP se répartit de façon homogène entre les tubes ; les films de condensats sont donc identiques sur toutes les parois extérieures des tubes. Ils sont supposés mouiller parfaitement ces parois. Du côté basse pression, la quantité de liquide introduite en tête est également distribuée sur tous les tubes. Le liquide s'écoule en film liquide en étant bien réparti sur toute la paroi intérieure. La quantité de vapeur recueillie en tête est identique dans tous les tubes.

Les différents cas de mal distribution dans l'échangeur tubes-calandre sont les suivants :

- mal distribution de la vapeur HP autour des tubes
- mal distribution du liquide BP sur les tubes
- mal distribution du film liquide HP sur la paroi externe d'un tube
- mal distribution du film liquide BP sur la paroi interne d'un tube.

Dans ce paragraphe, les effets de ces différents cas de mal distribution sur le fonctionnement de la colonne de distillation sont calculés. Pour étudier ces effets, on compare les efficacités des colonnes, selon le critère de la hauteur équivalente à un plateau théorique (HETP). Pour chaque colonne étudiée, on trace la courbe opératoire sur le diagramme des compositions molaires, ainsi que la courbe d'équilibre des compositions (représentation de McCabe-Thiele). On déduit graphiquement le nombre de plateaux théoriques et par suite la HETP. La colonne ayant la HETP la plus faible est la plus efficace ; sa courbe opératoire est la plus proche de la courbe d'équilibre.

Pour la comparaison, les données de calcul du paragraphe 5 sont considérées : 0,1 kg/s/tube d'air HP à l'entrée en cuve, une haute pression de 378 kPa et une basse pression de 140 kPa. La hauteur de l'échangeur est de 5 m ; cela permet d'éviter la condensation totale de la vapeur HP ou l'évaporation totale du liquide à basse pression, lorsque le débit correspondant est très faible. On rappelle que ces paramètres sont juste considérés pour une comparaison quantitative des colonnes.

La géométrie de la colonne calculée dans la section 5.1 (configuration d'écoulements BP dans les tubes et d'écoulements HP dans la calandre) est considérée pour les calculs, soit alors un

diamètre de tube de 35,7 mm et un espacement inter-tubulaires de 26 mm. Le nombre de tubes et le diamètre de la calandre sont calculés selon le fonctionnement de la colonne.

### 6.1. Mal distribution de la vapeur dans la calandre

Pour étudier l'effet d'une mal distribution du débit de vapeur autour des tubes, on considère deux tubes. Le débit de vapeur à l'entrée est donc de 0,2 kg/s. Les hauteurs équivalentes à un plateau théorique sont comparées pour différents cas de distribution du débit total :

- 10 % du débit autour de l'un, 90 % autour de l'autre, soit alors 0,02 kg/s autour de l'un et 0,18 kg/s autour de l'autre
- 25 % du débit autour de l'un, 75 % autour de l'autre, soit alors 0,05 kg/s autour de l'un et 0,15 kg/s autour de l'autre
- 40 % du débit autour de l'un, 60 % autour de l'autre, soit alors 0,08 kg/s autour de l'un et 0,12 kg/s autour de l'autre
- débit également réparti, soit alors 0,1 kg/s autour de chacun des tubes.

Dans un premier temps, on calcule les évolutions des débits et des compositions molaires des mélanges dans des échangeurs mono-tubulaires, de géométrie définie dans la section 5.1, avec les débits de vapeur à l'entrée cités ci-haut (0,02 kg/s, 0,05 kg/s, 0,08 kg/s, 0,12 kg/s, 0,15 kg/s, 0,18 kg/s). Puis, pour chaque couple de tubes, on calcule l'évolution des débits et fractions molaires globales dans les deux tubes.

Pour comparer les efficacités des colonnes, on calcule la HETP du côté haute pression et du côté basse pression pour chaque profil de distribution considéré. La figure 2.29 représente un exemple de calcul du nombre de plateaux théoriques dans la colonne où une distribution (10 % - 90 %) de la vapeur HP autour des deux tubes est considérée. Une courbe en escalier est tracée entre l'entrée et la sortie de la colonne (extrémités de la courbe opératoire). Le nombre de paliers est le nombre de plateaux théoriques, soit alors 10 plateaux dans ce cas. Une hauteur équivalente, égale au ratio de la hauteur de la colonne au nombre de plateaux, est calculée. Elle vaut 50 cm.

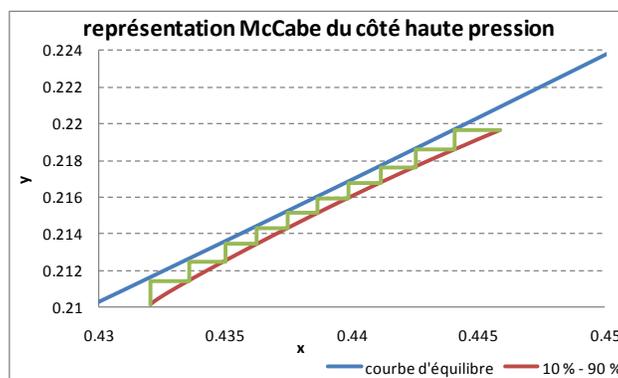


Figure 2.29 : Représentation McCabe du côté haute pression pour un cas de distribution (10 % - 90 %) de la vapeur autour des tubes

Les HETP aux deux niveaux de pression sont calculées graphiquement pour tous les profils de distribution considérés et données dans le tableau 2.9.

Tableau 2.9 : HETP (cm) pour les différents profils de distribution de la vapeur HP

Profil de distribution	Côté haute pression	Côté basse pression
10% - 90 %	50	100
25 % - 75 %	45,5	45,5
40 % - 60 %	42	23,8
50 % - 50 %	29	20,8

Une nette diminution de la HETP (42 % du côté haute pression et 79,2 % du côté basse pression) est observée quand la distribution du débit de vapeur s'approche de la distribution homogène. La colonne où la distribution de la vapeur se fait également autour des deux tubes est donc la plus efficace.

On note aussi qu'une différence de 8,5 % est calculée entre la pureté en oxygène des produits liquides BP entre la configuration de répartition homogène et la configuration de répartition (10 % - 90 %).

## 6.2. Mal distribution du liquide sur les tubes

Deux tubes sont aussi considérés pour étudier l'effet d'une distribution non égale d'un débit de liquide en tête de l'échangeur du côté basse pression. Autour des tubes, la répartition de la vapeur est homogène ; un débit liquide  $L_1$  à haute pression, égal à deux fois le débit par tube, est donc recueilli en cuve. Plusieurs profils de distribution de ce débit  $L_1$  à l'entrée des deux tubes en tête sont étudiés :

- 10 % de  $L_1$  dans l'un, 90 % dans l'autre
- 25 % de  $L_1$  dans l'un, 75 % dans l'autre
- 40 % de  $L_1$  dans l'un, 60 % dans l'autre
- débit également réparti, soit alors 50 % de  $L_1$  dans chacun des tubes.

On calcule aussi pour chaque couple de tubes, l'évolution des compositions molaires et on trace la courbe opératoire pour en déduire la HETP. Le tableau 2.10 représente les valeurs de ces hauteurs aux deux niveaux de pression pour les différents cas de répartition.

Tableau 2.10 : HETP (cm) pour les différents profils de distribution du liquide BP

Profil de distribution	Côté haute pression	Côté basse pression
10% - 90 %	250	250
25 % - 75 %	167,7	100
40 % - 60 %	167,7	50
50 % - 50 %	125	25

La diminution de la valeur de la HETP (50 % du côté haute pression et 90 % du côté basse pression) tout en s'approchant de l'égalité de la distribution du débit sur les tubes implique l'augmentation de l'efficacité de la séparation dans les colonnes à distribution égale du liquide à l'entrée. Une augmentation de 2 % de la pureté en oxygène du produit liquide est aussi notée en passant d'une distribution (10 % - 90 %) de  $L_1$  sur les deux tubes à une distribution égale (50 % - 50 %) de  $L_2$  sur les tubes.

## 6.3. Mal distribution du film liquide sur la paroi externe d'un tube

Dans les calculs précédents, les films liquides sont considérés bien répartis sur les parois des tubes, même dans le cas d'une mal distribution des fluides, où de faibles débits de liquide

s'écoulent sur les parois des tubes. Une épaisseur moyenne du film liquide est alors calculée et utilisée pour le calcul de la surface interfaciale. Dans le cas d'une mal distribution du film liquide, une partie de la surface du tube reste sèche. La surface interfaciale vapeur/liquide est donc réduite.

$S_i$ , dans le cas d'un film bien réparti sur la surface du tube, la surface interfaciale vaut  $S_i$ , quand le film ne mouille pas la surface totale du tube, la surface interfaciale est égale à une fraction de  $S_i$ . Les calculs montrent les effets d'une mal distribution d'un film liquide HP sur la paroi externe d'un tube sur les processus de transferts de masse et de chaleur, et cela en comparant les HETP dans les différents cas de répartition du film (tableau 2.11).

Tableau 2.11 : HETP (cm) pour les différents profils de répartition du film liquide HP

Profil de distribution	Côté haute pression	Côté basse pression
25 % de $S_i$	167	45,5
40 % de $S_i$	100	41,7
50 % de $S_i$	83,3	33,3
60 % de $S_i$	71,4	33,3
75 % de $S_i$	50	31,2
90 % de $S_i$	35,7	29,4
$S_i$	27,8	25

Un débit liquide provoquant une rupture des films liquides sur les parois externes des tubes, et donc une réduction des surfaces interfaciales liquide/vapeur à haute pression, présente des effets négatifs sur le fonctionnement de la colonne. D'une part, les HETP augmentent des deux côtés (500 % du côté haute pression et 82 % du côté basse pression), ce qui implique une moindre efficacité des colonnes. D'autre part, une diminution de 31,6 % de la pureté en oxygène du produit liquide BP est notée dans le cas d'une surface interfaciale égale à 25 % de  $S_i$ .

#### 6.4. Mal distribution du film liquide sur la paroi interne d'un tube

Une dernière forme de mal distribution de fluides pouvant avoir lieu dans l'échangeur tubes-calandre est la mal distribution du film liquide BP sur les parois internes des tubes. Ce paragraphe représente les effets éventuels d'une telle mal distribution sur le fonctionnement de la colonne de distillation.

Tableau 2.12 : HETP (cm) pour les différents profils de répartition du film liquide BP

Profil de distribution	Côté haute pression	Côté basse pression
25 % de $S_i$	167	41,7
40 % de $S_i$	125	33,3
50 % de $S_i$	83,3	29,4
60 % de $S_i$	62,5	25
75 % de $S_i$	45,5	23,8
90 % de $S_i$	35,7	22,7
$S_i$	22,7	18,5

Les effets de la mal distribution du film liquide BP sur les parois internes des tubes apparaissent aussi bien sur la diminution de l'efficacité de la colonne que sur la pureté du produit liquide. Pour un cas de mouillage où la surface interfaciale vaut 0,25  $S_i$ , des HETP égale à 7,4 fois et à 2,3 fois celles calculées dans le cas d'un tube bien mouillé des côtés haute pression et basse

pression respectivement sont calculées. Une diminution de la pureté en oxygène du produit liquide de 30 % est aussi calculée.

## 6.5. Conclusions

Les problèmes de distribution pouvant apparaître dans l'échangeur tubes-calandre entraînent donc une diminution de l'efficacité de la colonne de distillation et un produit liquide moins riche en oxygène en cuve de la colonne à basse pression.

Des dispositifs de distribution adéquats, comme ceux présentés à la figure 2.26 pour le liquide en tête des tubes, sont à définir. Ces dispositifs sont étudiés et détaillés dans le chapitre 3 et comprennent des dispositifs de distribution homogène de liquide sur les tubes en tête de la colonne, des géométries et des débits de liquide minimaux pour assurer des films mouillant la totalité des tubes des deux côtés, haute et basse pressions, ainsi que des moyens d'introduction de la vapeur HP dans la calandre pour assurer des flux homogènes autour de tous les tubes.

## Conclusions et perspectives

Après une revue bibliographique des types d'échangeurs utilisés pour des applications cryogéniques et de leurs caractéristiques, l'échangeur tubes-calandre est choisi pour une application de distillation cryogénique diabatique de l'air.

Ce chapitre explique d'abord les phénomènes principaux de ce type de distillation : les transferts de masse et les transferts de chaleur. Les transferts de masse se font entre un film liquide et un écoulement de vapeur à contre-courant par diffusion. Les corrélations donnant les coefficients de diffusion et les coefficients globaux de transfert de masse sont sélectionnées. Pour les transferts de chaleur, les phénomènes d'évaporation d'un film liquide et de condensation en film liquide d'un écoulement de vapeur sont décrits et les équations adéquates exposées.

La démarche suivie pour modéliser l'échangeur tubes-calandre est ensuite expliquée. Un outil de calcul développé dans ce but est utilisé pour choisir les niveaux de pression dans les tubes et dans la calandre et pour vérifier les conditions de non engorgement dans les différentes géométries d'échangeur considérées.

Un point important dans le fonctionnement de la colonne de distillation conçue est la distribution des fluides. Les effets de la mal distribution des fluides sur ou entre les tubes ainsi que ceux d'une mal distribution des films liquides sur les parois internes et externes des tubes sont étudiés. Toute répartition non homogène résulte en une diminution de l'efficacité de distillation de la colonne et une diminution de la pureté en oxygène du produit liquide à basse pression. Le chapitre 3 de cette thèse recherche les solutions aux problèmes de distribution.

Ce chapitre détaille l'étude théorique de la distillation diabatique de l'air cryogénique dans un échangeur tubes-calandre. Une validation expérimentale s'avère indispensable. Le chapitre 4 de cette thèse présente le dimensionnement d'une colonne pilote sur laquelle les mesures expérimentales permettront de valider les choix des corrélations réalisés dans ce chapitre.

Enfin, le modèle développé dans ce chapitre permettra d'optimiser la colonne conçue selon les critères de coûts minimaux. Des fonctions coûts pour les différents composants sont à rechercher et à intégrer dans le modèle pour calculer les dimensions optimales de l'échangeur.

## REFERENCES

- [1] A. Olujic, F. Fakhri, A. De Rijke, J. De Graauw, P.J. Jansens, Internal heat integration – the key to an energy-conserving distillation column, *Journal of Chemical Technology and Biotechnology* 78, 2003, 241-248
- [2] A. Bontemps, A. Garrigue, C. Goubier, J. Huetz, C. Marvillet, P. Mercier, R. Vidil, *Echangeurs de chaleur – Description des échangeurs*, Techniques de l'Ingénieur, B2341
- [3] R.F. Barron, *Cryogenic Heat Transfer*, Series in Chemical Mechanical Engineering, Copyright © 1999 Taylor & Francis
- [4] P. Petit, *Liquéfaction du gaz naturel*, Techniques de l'Ingénieur, J3601
- [5] R.K. Shah, D.P. Sekulic, *Fundamentals of heat exchanger design*, 2003
- [6] *Wolverine tube heat transfer data book*, Ch. I.4: Construction of shell and tube heat exchangers
- [7] C. Linde, *Device for production of oxygen-rich air*, German Patent No. 88824, 1885
- [8] R.B. Scott, *Cryogenic Engineering*, Princeton, N.J : D. Van Nostrand, 1959
- [9] Noda H., Mukaida T., Kaneda M., Kataoka K., Nakaiwa M., *Internal column-to-column heat transfer characteristics for energy-saving distillation system*, Symposium Series No. 152
- [10] Nakanishi T., Aso K., Takamatsu T., Matsuda K., Nakaiwa M., Hasebe S., *Method of design for packed column type HiDiC*, Symposium Series No. 152
- [11] Naito K., Nakaiwa M., Huang K., Endo A., Aso K., Nakanishi T., Nakamura T., Noda H., Takamatsu T., *Operation of a bench-scale heat integrated distillation column(HiDiC): an experimental study*, *Computers & Chemical Engineering*, Volume 24, 15 July 2000, pp. 495-499
- [12] Hugill J.A., van Dorst E.M., *Design of a heat-integrated distillation column based on a plate-fin heat exchanger*, *Proceedings of Sustainable Biochemical Process Technology, incorporating the 6<sup>th</sup> International Conference on Process Intensification*, Delft, The Netherlands, 27-29 September 2005, Eds. P. Jansens, A. Stankiewicz and A. Green, BHR Group Ltd, Cranfield, U.K)
- [13] *Guide to compact heat exchanger types*, Module 2.1: plate heat exchangers type - Société APV
- [14] *Brochure Aspen HYSYS*, Compagnie AspenTech, 2008
- [15] *Appel à projet ANR, Captage et stockage de CO<sub>2</sub>*, 2007, Formulaire de soumission, Document B, Contenu scientifique et technique
- [16] *Communication personnelle avec C. Marvillet*, CIAT

- [17] J.P. Moulin, D. Pareau, M. Rakib, M. Srmbouli, A. Isambert, Transfert de matière - Distillation compartimenté idéale, Techniques de l'ingénieur J1072-1
- [18] Rivero R., Exergy simulation and optimization of adiabatic and diabatic binary distillation, Energy, Vol 26, 2001, 561-593
- [19] Md. R. Islam, N.E. Wijeysondera, J.C. Ho, Evaluation of heat and mass transfer coefficients for falling-films on tubular absorbers, International Journal of Refrigeration, Vol 26, 2003, 197-204
- [20] Md. R. Islam, N.E. Wijeysondera, J.C. Ho, Simplified models for coupled heat and mass transfer in falling-film absorbers, International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol 47, 2004, 395-406
- [21] M.K. Le Groff, S.J. Ormiston, H.M. Soliman, Numerical solution of film condensation from turbulent flow of vapor-gas mixtures in vertical tubes, International Journal of Mass and Heat Transfer, Vol 50, 2007, 3899-3912
- [22] W.A. Miller, M. Keyhani, The correlation of coupled heat and mass transfer experimental data for vertical falling film absorption, Proc. ASME Advanced Energy Systems Division 1999, 39, 177-187
- [23] I. Fujita, E. Hihara, Heat and mass transfer coefficients of falling-film absorption process, International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol 48, 2005, 2779-2786
- [24] P. Trambouze, J.P. Euzen, Les réacteurs chimiques: de la conception à la mise en œuvre, Chapitre 4.6, pp. 267-279
- [25] M. Lallemand, Transferts en changement de phase – Ebullition convective, Techniques de l'Ingénieur, BE8236
- [26] M. Hamdar, Design and optimization of an efficient indirect air-conditioning system for train carriages, Thèse de Mines-ParisTech, 2008
- [27] D. Steiner, J. Taborek, Flow boiling heat transfer in vertical tubes correlated by an asymptotic model, Heat Transfer Engineering, Vol 13, 1992, 43-67
- [28] K.E. Gungor, R.H. Winterton, A general correlation for flow boiling in tubes and annuli, International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol 29, 1986, 351-358
- [29] K.J. Bell, M.A. Ghaly, An approximate generalized design method for multi-component partial condensers, AIChE Symposium Series, Vol 69, 1973, 72-79
- [30] P. Copigneaux, Distillation. Absorption – Colonnes garnies, Techniques de l'Ingénieur, J2626
- [31] R.C. Reid, J.M. Prausnitz, B.E. Poling, The properties of gases and liquids, Fourth Edition, Chapter 11, pp. 577-631

- [32] A. Zapke, D.G. Kröger, Countercurrent gas-liquid flow in inclined and vertical ducts – I: Flow patterns, pressure drop characteristics and flooding, *International Journal of Multiphase Flow*, Vol 26, 2000, 1439-1455
- [33] G.F. Woerlee, J. Berends, Z. Olujic, J. de Graauw, A comprehensive model for the pressure drop in vertical pipes and packed columns, *Chemical Engineering Journal*, Vol 84, 2001, 367-379
- [34] M. Vijayan, S. Jayanti, A.R. Balakrishnan, Experimental study of air-water countercurrent annular flow under post-flooding conditions, *International Journal of Miltiphase Flow*, Vol 28, 2002, 51-67
- [35] J.R. Thome, G. Ribatski, State-of-the-art of two phase flow and flow boiling heat transfer and pressure drop of CO<sub>2</sub> in macro- and micro-channels, *International Journal of Refrigeration*, Vol 28, 2005, 1149-1168
- [36] L. Raynal, A. Royon-Lebeaud, A multi-scale approach for CFD calculations of gas-liquid flow within large size column equipped with structured packing, *Chemical Engineering Science*, Vol 62, 2007, 7196-7204
- [37] J. Fernandes, P. F. Lisboa, P. C. Simões, J. P.B. Mota, E. Saatchian, Application of CFD in the study of supercritical fluid extraction with structured packing: wet pressure drop calculations, *The Journal of Supercritical Fluids*, Vol 50, 2009, 61-68
- [38] [http://www.thermexcel.com/french/ressourc/pdc\\_line.htm](http://www.thermexcel.com/french/ressourc/pdc_line.htm)
- [39] A. Bontemps, Condensation de mélanges de vapeurs – Transfert de chaleur et de masse, *Techniques de l'Ingénieur*, BE9910
- [40] G.B. Wallis, One-dimensional two-phase flow, McGraw-Hill Book Company, 1969
- [41] D.T. Hughes, T.R. Bott, Minimum thickness of a liquid film flowing down a vertical tube, *Internation Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol 41, 1998, 253-260
- [42] K.R. Morison, Q.A.G. Worth, N.P. O'DEA, Minimum wetting and distribution rates in falling film evaporators, *Trans IChemE*, December 2006
- [43] M.S. El-Genk, H.H. Saber, Minimum thickness of a flowing down liquid film on a vertical surface, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol 44, 2001, 2809-2825
- [44] Rapport interne Air Liquide, Juillet 2008
- [45] Kessler et al, Falling Film Evaporator, United States Patent, November 1974

