



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

NANCY UNIVERSITÉ
INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Ecole doctorale RP2E
Laboratoire de Réaction et Génie des Procédés

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 26 mars 2010
pour l'obtention du grade de
Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine
Spécialité
Génie des Procédés et des Produits

par

Shahid AYOUB

**Simulation et optimisation de procédés d'adsorption
modulée en pression - Formulation et résolution à
l'aide de l'optimisation dynamique hybride**

Composition du Jury :

Rapporteurs

G. FRANÇOIS, Research Associate & Lecturer, EPFL/STI/LA, Lausanne, Suisse
H. HAMMOURI, Professeur, LAGEP-CPE, Villeurbanne

Examineurs

J.P. CORRIOU, Professeur, LRGP, CNRS-ENSIC, INPL Nancy *Président du jury*
M.A. LATIFI, Professeur, LRGP, CNRS-ENSIC, INPL Nancy, *Directeur de thèse*

Invité

D. TONDEUR, Directeur de Recherches Émérite, LRGP, CNRS-ENSIC, INPL Nancy

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sien du Laboratoire des Sciences du Génie Chimique (LSGC) à l'Ecole Nationale des Sciences de Industrie Chimique (ENSIC) à Nancy. Je tiens à remercier Monsieur M. Sardin, l'ancien directeur du LSGC de m'avoir accueilli au sien du laboratoire.

Mes remerciements respectueux s'adresse à mon directeur de thèse Monsieur M.A. LATIFI, de m'avoir accueilli au sien de l'équipe Génie des Systèmes Polyphasiques (SysPol) qui était une entité propre du Laboratoire des Sciences du Génie Chimique (LSGC) pour réaliser ce travail. Je lui témoigne ma profonde gratitude pour le soin qu'il a apporté à la direction de ce travail, son encouragement, ses précieux conseils, l'apport scientifique et humain et pour la confiance qu'il a su manifester à mon égard.

Je remercie également Monsieur D. Tondeur pour son intérêt, ses fructueuses discussions et la pertinence de ces conseils.

Je remercie Monsieur G. FRANCOIS, Chercheur Associé a EPFL et Monsieur H. HAMMOURI, Professeur, LAGEP-CPE, Villeurbanne d'avoir pris le temps de juger et rapporter ce travail. Je remercie également Monsieur J.P. CORRIOU d'avoir bien voulu présider le jury de cette thèse.

Un grand merci a Mademoiselle N. ADOUANI, Monsieur F. LESAGE et Monsieur M. DAROUX pour leur amitié, l'esprit de coopération dont ils ont toujours fait preuve et leur bonne humeur. Je leur adresse ma sincère reconnaissance de m'avoir encouragé et d'avoir été la quand j'avais besoin d'aide et de conseils.

Je ne pourrai certainement pas oublier de remercier mes collègues D. SALHI, N. DE-JARDIN, A. GHARDASHI, D. THIBAUT, J.F. PORTHA, S. MICHAL, S. QUINIOU, B. BENYAHIA, R. PAULEN, A. ASSAF, T. BENALI pour leur amitié, bonne humeur

REMERCIEMENTS

et leurs blagues pendant les pauses café.

Cette thèse a été financée par le Gouvernement pakistanais et je remercie l'organisme pakistanais Higher Education Commission (HEC) pour la bourse.

Je souhaiterais remercier mes parents et mes beaux-parents pour leur soutien, leur patience et leur réconfort dans les moments de découragements et de doutes.

C'est avec plaisir que je remercie très profondément Aisha, ma femme et ma meilleure amie, d'avoir supporté mon stress et mes coups de colère toute au long de ce périple avec patience. Je n'oublierais jamais de remercier ma fille Aamna, mon bonheur, d'avoir rendu ma vie plus belle.

Table des matières

Remerciements	i
Introduction	1
1 Généralités sur les procédés d'adsorption modulée en pression	5
1.1 Introduction	5
1.2 Aspects thermodynamiques des procédés PSA	6
1.3 Cycles de PSA	7
1.3.1 Cycle de Skarstrom	7
1.3.2 Cycle d'Air Liquide	11
1.3.3 Autres cycles de PSA	11
1.4 Conditions opératoires	12
1.4.1 Pression basse	12
1.4.2 Pression haute	12
1.4.3 Température de travail	13
1.4.4 Vitesse d'écoulement	13
1.5 Applications des procédés PSA	14
1.6 Conclusion	15
2 Modélisation de procédés d'adsorption	17
2.1 Introduction	17
2.2 Adsorption	17
2.2.1 Adsorbants	18
2.2.2 Equilibres d'adsorption	19
2.2.3 Cinétique de transfert de matière	22
2.3 Modélisation d'un lit d'adsorption	25
2.3.1 Hypothèses simplificatrices	25
2.3.2 Système isotherme	26
2.3.3 Système non isotherme	28

2.4	Modélisation d'un procédé d'adsorption modulée en pression	31
2.4.1	Modèle isotherme avec états gelés	31
2.4.2	Modèle non isotherme avec états gelés	33
2.4.3	Modèle non isotherme sans états gelés	34
2.5	Adimensionnalisation du modèle	35
2.6	Conclusion	36
3	Méthode des lignes	37
3.1	Introduction	37
3.2	Résolution d'un système à paramètres distribués	38
3.3	Méthodes de discrétisation spatiale	40
3.3.1	Méthode des différences finies	41
3.3.2	Méthode des collocations orthogonales	42
3.3.3	Méthode des volumes finis	43
3.4	Application de la méthode des lignes aux procédés PSA	46
3.4.1	Discrétisation spatiale par collocations orthogonales	46
3.4.2	Discrétisation spatiale par volumes finis	48
3.5	Formulation hybride des modèles de PSA	50
3.5.1	Modèle isotherme avec états gelés	51
3.5.2	Modèle non isotherme avec états gelés	52
3.5.3	Modèle non isotherme sans états gelés	53
3.6	Conclusion	54
4	Optimisation dynamique des procédés hybrides	55
4.1	Introduction	55
4.2	Optimisation dynamique	55
4.2.1	Problème d'optimisation	55
4.2.2	Conditions nécessaires d'optimalité	57
4.3	Problème d'optimisation sous contraintes	59
4.4	Optimisation dynamique hybride	62
4.4.1	Position du problème	62
4.4.2	Conditions d'optimalité	63
4.4.3	Contraintes	67
4.5	Méthodes de résolution	67
4.5.1	Méthodes indirectes	68
4.5.2	Méthodes directes	69
4.6	Conclusion	75

5	Simulation basée sur l'optimisation de procédés PSA	77
5.1	Introduction	77
5.2	Etude bibliographique	77
5.2.1	Méthode de substitutions successives	78
5.2.2	Méthodes de détermination directe	79
5.2.3	Simulation basée sur l'optimisation	81
5.3	Approche proposée	82
5.4	Problèmes traités	87
5.4.1	Collocations orthogonales	87
5.4.2	Volumes finis	97
5.5	Conclusions	114
6	Optimisation des procédés PSA	115
6.1	Introduction	115
6.2	Etude bibliographique	115
6.3	Critères de performance et contraintes	117
6.3.1	Critères de performance	117
6.3.2	Contraintes	118
6.4	Quelques problèmes d'optimisation	118
6.5	Approche proposée	119
6.5.1	Principales nouveautés	119
6.5.2	Définition du problème d'optimisation	119
6.5.3	Méthode de résolution	121
6.6	Problèmes traités	123
6.6.1	Modèle isotherme avec états gelés	125
6.6.2	Modèle non isotherme avec états gelés	143
6.6.3	Modèle non isotherme sans états gelés	151
6.7	Conclusion	187
7	Optimisation paramétrée des procédés PSA	189
7.1	Introduction	189
7.2	Paramétrisation des valeurs initiales du vecteur d'état	190
7.3	Identification des paramètres des fonctions polynomiales	191
7.3.1	Procédure	191
7.3.2	Résultats	191
7.4	Formulation du problème d'optimisation énergétique de procédés PSA . . .	194
7.5	Méthode de calcul	195

TABLE DES MATIÈRES

7.6	Résultats et discussion	195
7.7	Conclusion	200
Conclusions et Perspectives		205
Annexes		209
A	Adimensionnalisation	211
A.1	Modèle isotherme avec états gelés	211
A.2	Modèle non isotherme avec états gelés	212
A.3	Modèle non isotherme sans états gelés	213
B	Programmation Quadratique Successive	215
Références		219

Liste des figures

1.1	Représentation des isothermes d'adsorption	6
1.2	Cycle de Skarstrom: étapes de cycle et variations de pression	8
1.3	Cycle de Skarstrom: fonctionnement de deux colonnes en parallèle	9
1.4	Cycle de Skarstrom avec l'étape d'équilibrage des pressions	11
1.5	Cycle d'Air Liquide	12
2.1	Classification des isothermes par Brunauer	21
2.2	Bilan de matière sur une tranche de garnissage	26
3.1	Discrétisation totale d'un système à paramètres distribués	39
3.2	Schéma de discrétisation par la méthode des lignes	40
3.3	Les deux familles de résolution de PDE	41
3.4	Discrétisation monodimensionnelle par la méthode des volumes finis	44
3.5	Représentation hybride du procédé PSA avec états gelés	52
3.6	Représentation hybride du procédé PSA sans états gelés	53
5.1	Approche de résolution	83
5.2	Intégration du modèle et du système adjoint	85
5.3	Algorithme de résolution	86
5.4	Évolution itérative du critère de performance (I-EG-CO)	92
5.5	Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne (I-EG-CO)	92
5.6	Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (I-EG-CO)	93
5.7	Évolution itérative du critère de performance (NI-EG-CO)	95
5.8	Profil de concentration dans le gaz le long de la colonne (NI-EG-CO)	96
5.9	Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (NI-EG-CO)	96
5.10	Profils de température le long de la colonne (NI-EG-CO)	97
5.11	Évolution itérative du critère de performance (I-EG-VF)	99
5.12	Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne (I-EG-VF)	99
5.13	Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (I-EG-VF)	100

5.14	Évolution itérative du critère de performance (NI-EG-VF)	101
5.15	Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne (NI-EG-VF) . . .	102
5.16	Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (NI-EG-VF) . .	103
5.17	Profils de température le long de la colonne (NI-EG-VF)	103
5.18	Évolution itérative du critère de performance (NI-FV)	107
5.19	Évolution itérative du critère de performance (agrandissement) (NI-FV) . .	107
5.20	Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne (NI-FV)	108
5.21	Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (NI-FV)	108
5.22	Profils de température le long de la colonne (NI-FV)	109
5.23	Profils de vitesse le long de la colonne (NI-FV)	109
5.24	Profils temporels des variables d'état pour l'étape de compression au CSS .	110
5.25	Profils temporels des variables d'état pour l'étape d'adsorption au CSS . .	111
5.26	Profils temporels des variables d'état pour l'étape de décompression au CSS	112
5.27	Profils temporels des variables d'état pour l'étape de purge au CSS	113
6.1	Algorithme de résolution	122
6.2	Évolution itérative du critère de performance (I-EG-P)	131
6.3	Évolution itérative de la contrainte du CSS (I-EG-P)	132
6.4	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (I-EG-P) . .	132
6.5	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (I-EG-P)	133
6.6	Évolution itérative du critère de performance (I-EG-R)	136
6.7	Évolution itérative de la contrainte du CSS (I-EG-R)	136
6.8	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (I-EG-R) . .	137
6.9	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (I-EG-R)	137
6.10	Évolution itérative du critère de performance (I-EG-R(P))	140
6.11	Évolution itérative de la contrainte du CSS (I-EG-R(P))	141
6.12	Évolution itérative de la contrainte d'impureté moyenne (I-EG-R(P)) . . .	141
6.13	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (I-EG-R(P))	142
6.14	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (I-EG-R(P)) . .	142
6.15	Évolution itérative du critère de performance (NI-EG-P)	146
6.16	Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-EG-P)	146
6.17	Profils spatiaux de concentration pour l'étape d'adsorption (NI-EG-P) . . .	147
6.18	Profils spatiaux de concentration pour l'étape de purge (NI-EG-P)	147
6.19	Profils spatiaux de la température (NI-EG-P)	148
6.20	Évolution itérative du critère de performance (NI-EG-R)	150
6.21	Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-EG-R)	151
6.22	Profils spatiaux de concentration pour l'étape d'adsorption (NI-EG-R) . .	152

6.23	Profils spatiaux de concentration pour l'étape de purge (NI-EG-R)	152
6.24	Profils spatiaux de la température (NI-EG-R)	153
6.25	Évolution itérative du critère de performance (NI-E)	158
6.26	Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-E)	159
6.27	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-E) . .	160
6.28	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-E) . . .	161
6.29	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de décompression (NI-E) .	162
6.30	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-E)	163
6.31	Évolution itérative du critère de performance (NI-P)	166
6.32	Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-P)	166
6.33	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-P) . .	167
6.34	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-P) . . .	168
6.35	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de décompression (NI-P) .	169
6.36	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-P)	170
6.37	Évolution itérative du critère de performance (NI-R)	173
6.38	Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-R)	174
6.39	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-R) . .	175
6.40	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-R) . . .	176
6.41	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de décompression (NI-R) .	177
6.42	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-R)	178
6.43	Évolution itérative du critère de performance (NI-E(P))	181
6.44	Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-E(P))	182
6.45	Évolution itérative de la contrainte sur l'impureté (NI-E(P))	182
6.46	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-E(P))	183
6.47	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-E(P)) . .	184
6.48	Profils spatiaux des variables d'état pour la décompression (NI-E(P)) . . .	185
6.49	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-E(P))	186
7.1	Profils spatiaux de concentration dans le gaz (NI-Par)	192
7.2	Profils spatiaux de concentration dans le solide (NI-Par)	193
7.3	Profils spatiaux de température (NI-Par)	193
7.4	Évolution itérative du critère de performance (NI-Par)	199
7.5	Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-Par)	200
7.6	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-Par) .	201
7.7	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-Par) . .	202
7.8	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de décompression (NI-Par)	203
7.9	Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-Par)	204

Liste des tableaux

2.1	Conditions initiales et aux limites	32
2.2	Conditions initiales et aux limites	33
2.3	Conditions initiales et aux limites	35
3.1	Conditions initiales et aux limites (I-EG-CO)	47
3.2	Conditions initiales et aux limites (NI-EG-CO)	47
3.3	Conditions initiales et aux limites (I-EG-VF)	48
3.4	Conditions initiales et aux limites (NI-EG-VF)	49
3.5	Conditions initiales et aux limites (NI-VF)	50
5.1	Paramètres pour la simulation du procédé de Chihara et Suzuki (1983a) . .	90
5.2	Résultats de l'optimisation du modèle isotherme (I-EG-CO)	91
5.3	Résultats de l'optimisation du modèle non isotherme (NI-EG-CO)	94
5.4	Résultat de l'optimisation du modèle isotherme (I-EG-VF)	98
5.5	Résultats de l'optimisation du modèle non isotherme (NI-EG-VF)	101
5.6	Paramètres pour la simulation du modèle de Liu et Ritter (1996)	105
5.7	Résultats de l'optimisation du modèle non isotherme (NI-VF)	106
6.1	Paramètres du modèle (États gelés)	128
6.2	Paramètres de calcul (I-EG-P)	128
6.3	Valeurs optimales et bornes des variables de décision (I-EG-P)	130
6.4	Résultats de l'optimisation (I-EG-P)	130
6.5	Paramètres de calcul (I-EG-R)	134
6.6	Valeurs optimales et bornes des variables de décision (I-EG-R)	135
6.7	Résultats de l'optimisation (I-EG-R)	135
6.8	Paramètres de calcul (I-R(P))	139
6.9	Valeurs optimales et bornes des variables de décision (I-EG-R(P))	139
6.10	Résultats de l'optimisation (I-EG-R(P))	140
6.11	Comparaison des résultats des trois problèmes d'optimisation (I-EG-P) . .	143

6.12 Paramètres de calcul (NI-EG-P)	144
6.13 Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-EG-P)	145
6.14 Résultats de l'optimisation (NI-EG-P)	145
6.15 Paramètres de calcul (NI-EG-R)	149
6.16 Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-EG-R)	150
6.17 Résultats de l'optimisation (NI-EG-R)	150
6.18 Paramètres du modèle non isotherme	155
6.19 Paramètres de calcul (NI-E)	155
6.20 Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-E)	157
6.21 Résultats de l'optimisation (NI-E)	157
6.22 Paramètres de calcul (NI-P)	164
6.23 Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-P)	165
6.24 Résultats de l'optimisation (NI-P)	165
6.25 Paramètres de calcul (NI-R)	171
6.26 Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-R)	172
6.27 Résultats de l'optimisation (NI-R)	173
6.28 Paramètres de calcul (NI-E(P))	179
6.29 Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-E(P))	180
6.30 Résultats de l'optimisation (NI-E(P))	180
7.1 Valeurs des paramètres pour différents cycles de simulation	194
7.2 Paramètres du modèle (NI-Par)	196
7.3 Paramètres de calcul (NI-Par)	197
7.4 Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-Par)	198
7.5 Résultats de l'optimisation du modèle non isotherme (NI-Par)	198
A.1 Conditions initiales et aux limites sous forme adimensionnelles (I-EG) . . .	212
A.2 Conditions initiales et aux limites sous forme adimensionnelles (NI-EG) . .	213
A.3 Conditions initiales et aux limites sous forme adimensionnelles (NI) . . .	214

Nomenclature

Abréviations

ADIFOR	Automatic differentiation of Fortran codes
BCF	Bed capacity factor
BCI	Boundary Condition Iteration
BDF	Backward differentiation formula
CMS	Carbon molecular sieves
CSS	Cyclic steady state
CVI	Control Vector Iteration
CVP	Control Vector Parametrization
DAE	Differential algebraic equations
DASSL	Differential algebraic system solver
IVP	Initial value problem
LDF	Linear driving force
MOL	Method of lines
NLP	Non linear Programming
OC	Orthogonal collocation
ODE	Ordinary differential equations
PDAE	Partial differential algebraic equations
PDE	Partial differential equations
PSA	Pressure swing adsorption
SQP	Sequential quadratic programming
SVR	Solvent vapour recovery
TPBVP	Two points boundary value problem
TSA	Temperature Swing Adsorption
VODE	Variable co-efficient ODE Solver

Symboles

$\bar{c}$	Concentration dans le gaz adimensionnelle	—
$\bar{P}$	Pression adimensionnelle	—
$\bar{q}$	Quantité adsorbée adimensionnelle	—
$\bar{T}$	Température adimensionnelle	—
$\bar{t}$	Temps adimensionnelle	—
$\bar{u}$	Vitesse interstitielle adimensionnelle	—
$\bar{y}$	Fraction molaire adimensionnelle	—
c	Concentration dans gaz	$mol.m^{-3}$
C_{pa}^i	Capacité calorifique du constituant gazeux adsorbé	$J.mol^{-1}.K^{-1}$
C_{pg}^i	Capacité calorifique du constituant gazeux	$J.mol^{-1}.K^{-1}$
C_{ps}	Capacité calorifique du solide	$J.mol^{-1}.K^{-1}$
D_k	Coefficients de diffusion de Knudsen	$m^2.s^{-1}$
D_m	Coefficients de diffusion moléculaire	$m^2.s^{-1}$
D_p	Diffusivité dans pores	$m^2.s^{-1}$
De	Coefficient de diffusion effective	$m^2.s^{-1}$
H	Fonction hamiltonien	—
H_a^i	Enthalpie du constituant gazeux adsorbé	$J.kg^{-1}$
H_g^i	Enthalpie du constituant gazeux	$J.kg^{-1}$
H_s	Enthalpie de la phase solide	$J.kg^{-1}$
k_i	Coefficient de L.D.F. du constituant i	$m.s^{-1}$
K_{sa_v}	Coefficient de transfert de matière total	$kg.m^{-3}.s^{-1}$
k_{ez}	Conductivité thermique effective axiale	$J.s^{-1}.m^{-1}.K^{-1}$
L	Longueur de colonne	m
M_i	Masse molaire du composé	$kg.mol^{-1}$
P	Pression	Pa
p	paramètres du système	—
p_i	Pression partielle du constituant i	Pa
q	Concentration en phase adsorbée	mol/kg
q^*	Concentration de la phase adsorbée à l'équilibre	$mol.kg^{-1}$
q_s	Concentration de la phase adsorbée à saturation	mol/kg
R	Constante de gaz parfaits	$J.mol^{-1}.K^{-1}$
r	Rayon de colonne	m
r_p	Rayon des pore	m
T	Température	K

t	Temps	s
T_0	Température à l'extérieur de la colonne	K
T_f	Température d'alimentation	K
u	Vitesse interstitielle	$m.s^{-1}$
u_L	Vitesse interstitielle à basse pression	$m.s^{-1}$
u_L	Vitesse interstitielle à haute pression	$m.s^{-1}$
V_f	Débit d'alimentation	$m^3.s^{-1}$
x	Variables différentielles d'état	—
y	fraction molaire	—
z	Position axiale	m

Indices

0	initial
ads	adsorption
B	bas
$comp$	compression
dec	décompression
g	gaz
H	haut
III	Troisième étape
II	Deuxième étape
IV	Quatrième étape
I	Première étape
moy	moyen
pur	purge
s	solide

Lettres Grecques

α	Rapport des pressions (P_H/P_L)	—
ΔH	Energie d'adsorption	$J.mol^{-1}$
ϵ	Porosité de lit	—
ϵ_{grain}	Porosité du grain	—
γ	Taux de reflux	—
λ	Variable adjointe	—

LISTE DES TABLEAUX

Ω	Section interne de la colonne	m^2
Ω_D	Paramètre de Lennard-Jonnes	—
ρ_g	Densité du gaz	$kg.m^{-3}$
ρ_s	Densité de la particule d'adsorbant	$kg.m^{-3}$
σ_{AB}	diamètre de collision	$\text{\AA}$
τ	Durée d'étape	s
τ_c	Durée de cycle	s
τ_p	Tortuosité des pores	—
τ_{sej}	Temps du séjour	s

Introduction

L'adsorption est un phénomène au cours duquel un ou plusieurs constituants (les adsorbats) d'un mélange (gazeux dans notre cas) se fixent sur une surface de solide (l'adsorbant).

Réaliser une séparation à partir de ce phénomène, implique d'utiliser les différences "d'adsorptivité" des différents constituants du mélange, autrement dit, les différences d'affinité de ces constituants pour l'adsorbant. Ces différences résultent de deux mécanismes : la cinétique de l'adsorption d'une part, et d'autre part, la thermodynamique des équilibres d'adsorption, liée aux énergies de liaison des adsorbats avec l'adsorbant. Ces deux mécanismes interviennent simultanément, mais généralement en pratique l'un des deux est le mécanisme déterminant la séparation. Dans la plupart des procédés PSA, et pour les cas qui nous occupent, c'est l'équilibre thermodynamique qui est déterminant, ce qui ne signifie nullement que l'on puisse ignorer la cinétique dans la modélisation.

L'adsorption étant un phénomène de surface, il est nécessaire de disposer de grande surfaces spécifiques (surface d'adsorption par unité de masse ou de volume), ce qui conduit à mettre en oeuvre des adsorbants microporeux, classiquement texturés sous forme de grains que l'on peut charger dans une colonne, formant ainsi un "lit fixe". Bien entendu, les propriétés physico-chimiques de ces matériaux (polarité, fonctions chimiques de surface) jouent un rôle déterminant dans les énergies de liaison avec les adsorbats.

Pour mettre en oeuvre ces mécanismes dans un procédé d'adsorption dans un tel lit fixe et réaliser une séparation, il faut dans une première phase créer un écoulement, une percolation du mélange à travers le lit. Les constituants les plus fortement adsorbés sont alors ralentis dans la percolation et émergent du lit plus tard que les constituants moins adsorbés, ou sont mêmes entièrement retenus dans le lit. Après cette première phase, dite d'adsorption, au cours de laquelle les constituants émergeant du lit constituent l'un des produits, il sera nécessaire d'effectuer une phase de désorption ou régénération, au cours de laquelle les constituants fortement adsorbés seront évacués de l'adsorbant, formant ainsi

un deuxième produit ou un déchet. Cette désorption est obtenue en modifiant certaines conditions opératoires par rapport à la phase d'adsorption, par exemple la composition du gaz percolant, la température, la pression la vitesse, la durée. Il en résulte que les procédés d'adsorption en lit fixe sont des procédés cycliques, constitués d'une succession temporelle de phases ou d'étapes avec des conditions opératoires différentes.

Lorsque le jeu de conditions opératoires imposées (niveaux de pression, débit et durées des étapes) est invariable d'un cycle à l'autre, le procédé va tendre, après une phase transitoire, vers un régime périodique ou cyclique stationnaire (l'état stationnaire cyclique ou "Cyclic steady state (CSS)"), dans lequel les valeurs des variables (leurs profils temporels et spatiaux) se reproduisent à l'identique d'un cycle à l'autre. Ce régime périodique correspond au fonctionnement "nominal" du procédé, pour lequel il est en principe dimensionné et optimisé. Nous verrons que la prédiction, le calcul a priori de ce régime à partir de conditions initiales données n'est pas évidente.

Tous les aspects évoqués ci-dessus (physico-chimie et thermodynamique interfaciales, mécanismes de transfert, conception de matériaux microporeux à grande surface spécifique, mise en oeuvre de procédés cyclique en lit fixe) sont ensemble constitutifs de la science des procédés d'adsorption, et ont fait l'objet d'un très grand nombre de travaux et de publications (Ruthven (1984), Yang (1987)...). Nous nous contenterons dans la partie introductive de rappeler quelques éléments qui permettent de situer le contexte de nos travaux ou qui sont nécessaires à leur développement.

Le coeur du présent travail se situe en aval des aspects précédents et porte sur la modélisation, la simulation et l'optimisation des procédés d'adsorption, et plus particulièrement des procédés d'adsorption modulée en pression ou "Pressure Swing Adsorption (PSA)".

Ce mémoire de thèse s'articule autour des chapitres suivantes :

Dans le premier chapitre, nous allons introduire quelques notions de base sur les procédés PSA, les différents cycles de ces procédés ainsi que quelques unes de leurs applications.

Le deuxième chapitre est consacré à la modélisation de procédés d'adsorption et plus particulièrement de procédés PSA. Dans ce chapitre, nous allons établir différents modèles

de procédé PSA pour la simulation et l'optimisation dans les chapitres suivants.

Les modèles mathématiques établis dans le deuxième chapitre sont, décrits à l'aide de systèmes d'équations algébro-différentielles partielles. Afin de pouvoir simuler, analyser et optimiser ces modèles, nous présenterons les méthodes de leur résolution dans le troisième chapitre. La méthode des lignes est l'approche bien établie pour résoudre numériquement ces systèmes d'équations. Nous allons voir les différentes méthodes pour réaliser la discrétisation spatiale à l'aide de la méthode des lignes. Les différents modèles de PSA seront formulés sous forme hybride une fois que nous les aurons discrétisés par les méthodes des collocations orthogonales et des volumes finis.

Dans le chapitre quatre, nous allons établir les conditions d'optimalité pour les modèles hybrides afin de pouvoir calculer les gradients à fournir au solveur de programmation non linéaire (NLP). Les différentes méthodes pour la résolution de problèmes d'optimisation seront également présentées.

Les trois derniers chapitres sont consacrés à la simulation et à l'optimisation des procédés PSA. Dans le cinquième chapitre, nous allons présenter l'approche de simulation basée sur l'optimisation pour déterminer l'état stationnaire cyclique (CSS) des procédés PSA.

Le problème d'optimisation des procédés PSA pour la conception et l'opération optimales est traité dans le sixième chapitre. Nous avons optimisé les différents critères de performance (consommation d'énergie, pureté du produit, rendement) sous des contraintes (modèles du procédé,...). Il est important de remarquer que la condition d'état stationnaire cyclique est considérée comme une contrainte pour le problème d'optimisation, et par conséquent, les valeurs optimales des variables de décision respectent bien l'état stationnaire cyclique.

Enfin, dans le septième chapitre, nous nous intéresserons à l'approche paramétrée de l'optimisation des PSA. En fait, la plupart des variables de décision dans le problème d'optimisation des procédés PSA sont liées aux profils initiaux des variables d'état. Si on veut améliorer la précision des résultats en discrétisant l'espace finement, le nombre des variables de décision devient très grand. L'application de cette approche va nous permettre de réduire considérablement le nombre des variables de décision.

Chapitre 1

Généralités sur les procédés d'adsorption modulée en pression

1.1 Introduction

Les procédés d'adsorption modulée en pression sont plus connus sous leur dénomination anglaise, c'est-à-dire les procédés PSA ou "Pressure Swing Adsorption". C'est par conséquent l'acronyme PSA qui va être utilisé tout au long de ce manuscrit pour les désigner. De la même manière, l'acronyme TSA (Temperature Swing Adsorption) est utilisé pour désigner les procédés d'adsorption modulée en température.

Le procédé PSA a été présenté comme une alternative au procédé TSA sous les noms d'adsorption isotherme et "heatless" adsorption par de Montgareuil et Domine (1957) en France et Skarstrom (1957) aux Etats-Unis (USA). Le principe de fonctionnement d'un PSA peut être trouvé dans les articles de Kahle (1953), Kahle (1954) et dans les brevets de Finlayson et Sharp (1930), Hasche et Dargan (1931) et Perley (1933).

Les procédés PSA sont principalement utilisés en séparation de mélanges gazeux comme alternatives aux procédés de séparation traditionnels comme la distillation et l'absorption. Le terme PSA se réfère à l'ensemble des procédés d'adsorption où l'adsorption est effectuée à haute pression tandis que la régénération de l'adsorbant est effectuée à basse pression.

Les procédés PSA ont connu un développement important depuis leur création. Des nouveaux domaines d'application sont apparus avec des configurations de plus en plus complexes (Doong et Yang (1987)). Parmi les nombreuses applications de PSA pour la

séparation et la purification de gaz, les trois principaux domaines d'application sont le séchage de l'air, la séparation des constituants de l'air et la purification de l'hydrogène (Skarstrom (1972)).

1.2 Aspects thermodynamiques des procédés PSA

Si on considère le procédé PSA comme isotherme (ce qui est en général une approximation assez grossière), on peut le représenter à l'aide d'isothermes d'équilibre d'adsorption. Par souci de simplification, on considère un seul composé adsorbable. La figure (1.1.a) (Tondeur *et al.* (1985)) montre que pour une température T constante et à l'équilibre, la quantité adsorbée q augmente avec la pression partielle du constituant adsorbé, d'une manière non linéaire en général, sauf pour les faibles pressions partielles. Par conséquent, un même Δp produit un Δq différent selon que la pression partielle est faible ou élevée. La figure (1.1.b) est une autre représentation de l'équilibre où la quantité adsorbée q est représentée en fonction de la fraction molaire y pour différentes pressions totales P .

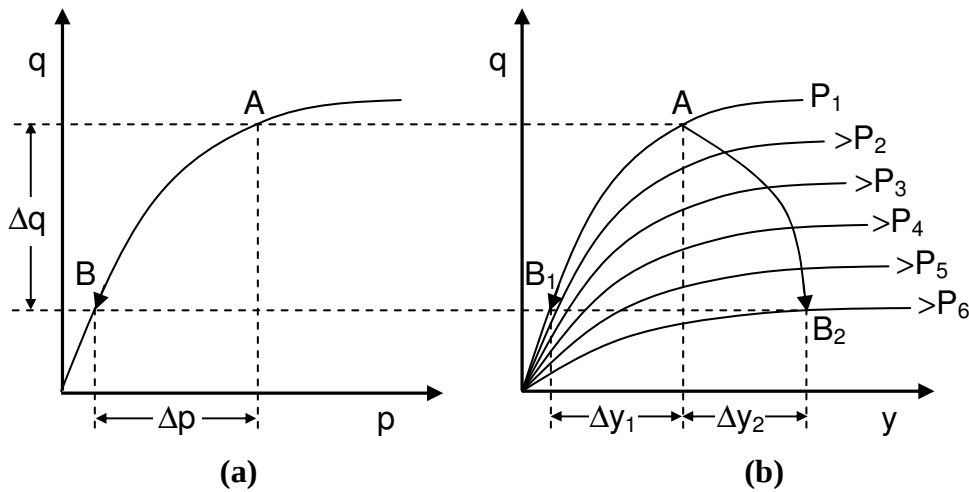


Figure 1.1: Représentation des isothermes d'adsorption
(a): quantité adsorbée en fonction de la pression partielle,
(b): quantité adsorbée en fonction de la fraction molaire
dans le gaz pour différentes pressions totales

Il est important de remarquer que la pression partielle, et par conséquent la quantité adsorbée q , peuvent donc être modulées grâce à deux techniques :

- la modulation de la composition du gaz à pression totale constante (trajet AB_1);

- la modulation de la pression totale à y constant (trajet AB_2).

Ces deux méthodes combinées sont la base du fonctionnement des procédés d'adsorption modulée en pression.

1.3 Cycles de PSA

Un procédé PSA est constitué de deux étapes principales : adsorption et régénération. Au cours de l'étape d'adsorption, et en raisonnant sur un mélange binaire, le composé le plus favorablement adsorbé reste sur l'adsorbant tandis que l'autre sort de la colonne comme produit. Du fait de la saturation du lit d'adsorbant au cours de l'étape d'adsorption, il est nécessaire de régénérer la colonne. C'est pourquoi les procédés d'adsorption fonctionnent de manière cyclique.

Les différents cycles des procédés PSA sont discutés ci-dessous.

1.3.1 Cycle de Skarstrom

Contrairement à un procédé d'adsorption où la pression est constante, un procédé PSA est caractérisé par l'évolution de la pression durant le cycle : lors de l'étape d'adsorption la pression est maintenue à une valeur élevée (P_H) pour favoriser l'adsorption, alors qu'une pression faible (P_B) est maintenue lors de la régénération (ou purge) afin de favoriser la désorption. Étant donné que l'étape d'adsorption se fait à une pression plus importante que la pression de l'étape de purge, on a des étapes intermédiaires : (i) étape de compression afin de passer d'une pression basse à une pression haute à la fin de l'étape de purge, et (ii) étape de décompression afin de passer d'une pression haute à une pression basse à la fin de l'étape d'adsorption. Ces quatre étapes élémentaires constituent un cycle de base appelée cycle de Skarstrom (Skarstrom (1957)). Les étapes du cycle de Skarstrom et la variation de pression dans la colonne au cours des différentes étapes sont représentées sur la figure (1.2).

Tout procédé PSA est constitué d'au moins deux colonnes de séparation pour assurer une production continue. Au cours d'un cycle, l'une des colonnes est régénérée alors que le mélange est séparé dans l'autre colonne. Les deux lits subissent les mêmes quatre étapes mais avec un déphasage dans le temps qui conduit à un fonctionnement cyclique du procédé PSA. La figure (1.3) montre une configuration de cycle de Skarstrom avec le fonctionnement de deux colonnes en parallèle. Afin de simplifier la description des

différentes étapes des cycles de PSA, on suppose que le mélange gazeux contient deux constituants A et B. A est le constituant le plus adsorbé et B est le constituant le moins adsorbé. Le détail des étapes est ci-dessous.

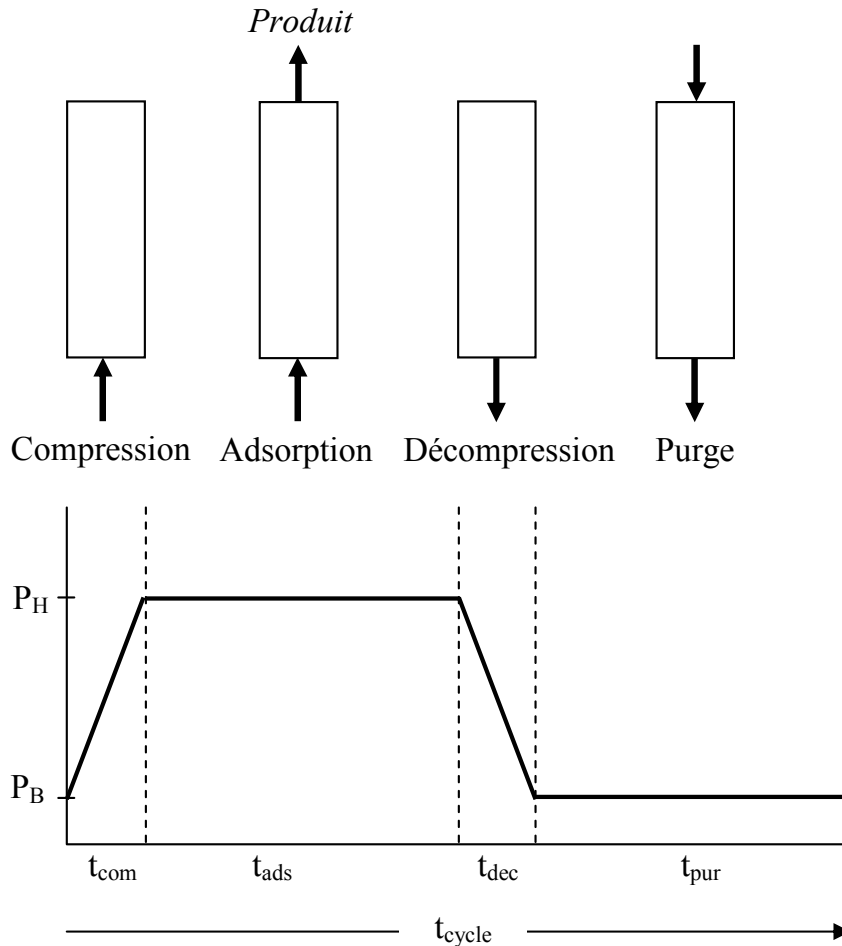


Figure 1.2: Cycle de Skarstrom: étapes de cycle et variations de pression dans la colonne

1.3.1.1 Compression

La colonne étant propre au début du procédé, ou régénérée à la fin de cycle, est à basse pression P_B . L'une des extrémités de la colonne est alimentée par le mélange à traiter sous pression, tandis que l'autre est fermée. La pression dans la colonne s'élève alors de P_B à P_H . Le constituant A est adsorbé sur l'adsorbant et un front de concentration se forme, s'amplifie et se propage dans la colonne. Une fois la pression haute P_H est atteinte, on passe à l'étape d'adsorption.

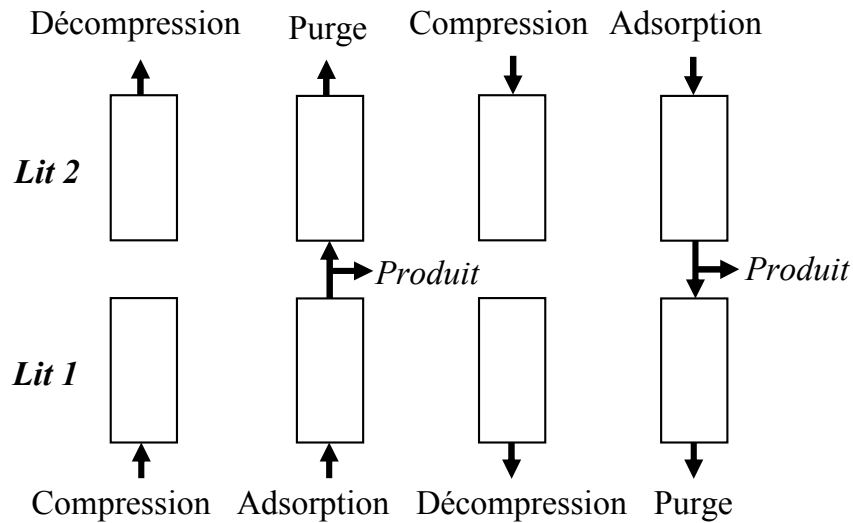


Figure 1.3: Cycle de Skarstrom: fonctionnement de deux colonnes en parallèle

1.3.1.2 Adsorption

Au cours de cette étape, la pression dans la colonne est maintenue à une valeur haute P_H . Le gaz à traiter (A/B) est introduit en entrée de colonne et on obtient en sortie un gaz enrichi en constituant B . Le passage du flux gazeux le long de la colonne permet l'adsorption du constituant A , cela génère un front de concentration qui se déplace à travers le lit jusqu'à la percée qui détermine la fin de l'étape. La percée est définie comme le moment où la concentration du constituant A commence à croître dans l'effluent (Tondeur *et al.* (1985)).

1.3.1.3 Décompression

L'étape de décompression constitue l'une des étapes de régénération qui débute par l'abaissement de la pression dans la colonne de P_H à P_B . Elle peut être effectuée à co-courant mais souvent à contre-courant par rapport à l'étape d'adsorption pour assurer le recul du front du constituant A . Pour cela on ferme l'une des deux extrémités de la colonne et on ouvre l'autre. Le constituant A est alors désorbé et le flux gazeux sortant de la colonne est enrichi en constituant A . L'effluent de cette étape est un déchet.

1.3.1.4 Purge

Lors de l'étape de désorption ou purge, un gaz appauvri en A - le plus souvent le gaz produit pendant l'étape d'adsorption - traverse la colonne. On régénère alors la colonne par élimination de la quantité du constituant A qui reste dans la colonne après l'étape de décompression. Le gaz de sortie est donc enrichi en A . La purge est généralement effectuée

à contre-courant de l'étape d'adsorption de façon à régénérer complètement l'extrémité par laquelle émergera le corps B. Par contre, si la régénération est effectuée à co-courant, le front du constituant A se déplace vers l'extrémité de production et par conséquent la pureté du produit baisse. Le sens relatif de l'écoulement dans les différentes étapes a donc une importance primordiale en PSA du fait du déplacement et de la déformation des fronts de composition dans les lits adsorbants (Tondeur *et al.* (1985)).

Si l'étape de purge est effectuée en utilisant le gaz produit pendant l'étape d'adsorption, le taux de reflux - le rapport de la quantité refluée à la quantité nette produite - devient un paramètre de décision très important. En effet, un reflux élevé conduit à une régénération parfaite du lit et par conséquent la pureté du produit sera grande (Yang et Doong (1985)). Toutefois, le rendement sera médiocre et vice-versa. Donc, il y a un optimum à atteindre comme pour la distillation où on définit un taux de reflux minimum en-dessous duquel la séparation avec une pureté spécifiée est impossible. La règle courante en PSA est de prendre un taux de reflux molaire égal au rapport (Tondeur *et al.* (1985)) :

$$\tau_{ref} = \frac{V_B}{V_H} = \frac{P_B}{P_H} \quad (1.1)$$

où V_B et V_H sont les flux molaires de purge et de production respectivement.

Améliorations dans le cycle de Skarstrom

Suite à différentes recherches sur le dimensionnement des cycles de PSA et par souci d'augmentation de rendement en différents composés, des changements ont été incorporés dans le cycle de Skarstrom. Au cours de l'étape de compression, le gaz d'alimentation est généralement le mélange des gaz à séparer dans le cycle classique de Skarstrom, mais un gaz pur peut être également introduit par l'extrémité de production. Dans ce cas, le front de concentration du composé adsorbé est redressé et facilitant ainsi la séparation en augmentant la pureté et le rendement du produit (Doong et Yang (1987), Kvamsdal et Hertzberg (1996)). L'effluent de l'étape de décompression considéré comme un déchet dans le cycle classique de Skarstrom peut être récupéré soit comme un produit - cas des procédés "Solvent Vapour Recovery (SVR)" (Liu et Ritter (1996))- , soit comme un produit recyclable.

Le cycle classique de Skarstrom peut être amélioré en introduisant une étape d'équilibrage des pressions proposée par Berlin (1966) (Matz et Knaebel (1988), Waldron et Sircar (2000)). Au lieu de basculer directement de l'étape d'adsorption à haute pression à l'étape de décompression, on baisse la pression dans la colonne tout en augmentant celle de la colonne à basse pression en connectant les deux lits (Figure

1.4). Ceci permet d'économiser une partie de l'énergie nécessaire pour comprimer le gaz. L'effluent étant encore riche en constituant B , cette opération n'introduit pas d'effets sur la qualité du produit. Par contre, l'étape d'équilibrage améliore le rendement. Cet équilibrage peut être fait soit avec une colonne remplie d'adsorbant, soit avec un réservoir vide.

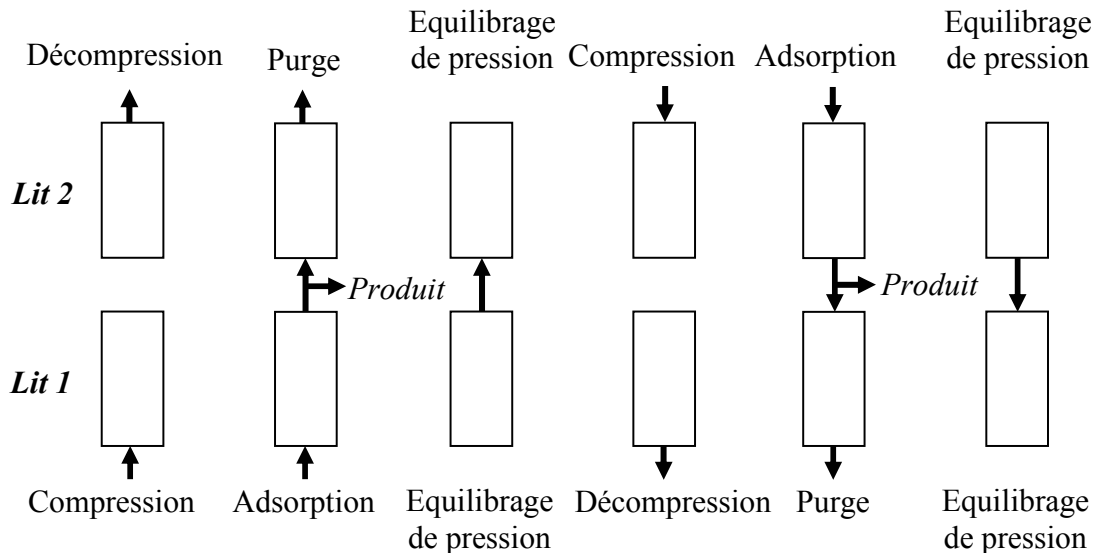


Figure 1.4: Cycle de Skarstrom avec l'étape d'équilibrage des pressions

1.3.2 Cycle d'Air Liquide

Contrairement au cycle de Skarstrom où la régénération est faite à basse pression, le cycle d'Air Liquide emploie l'étape de désorption sous vide, appelée couramment Vacuum Swing Adsorption (VSA) (Figure 1.5). La pureté du produit ainsi obtenu est très élevée par rapport au cycle de Skarstrom. Par contre, l'inclusion de l'étape de désorption sous vide engendre un surcoût d'investissement (pompe à vide) et allonge la durée du cycle. D'autre part, on peut utiliser l'étape de purge sous vide pour améliorer la régénération du lit d'adsorbant pour des adsorbats difficiles à faire partir.

1.3.3 Autres cycles de PSA

On trouve une grande variété des cycles de procédé PSA avec des configurations très complexes. Il y a des cycles simples composés de deux étapes avec une configuration à une colonne (Configuration KADLEC avec gradient de pression) ainsi que des cycles très complexes composés de huit étapes avec une configuration à quatre colonnes (Configuration Wagner Union Carbide). Une description détaillée des différents schémas de procédés PSA peut être trouvée dans Ruthven *et al.* (1994) et Tondeur *et al.* (1985).

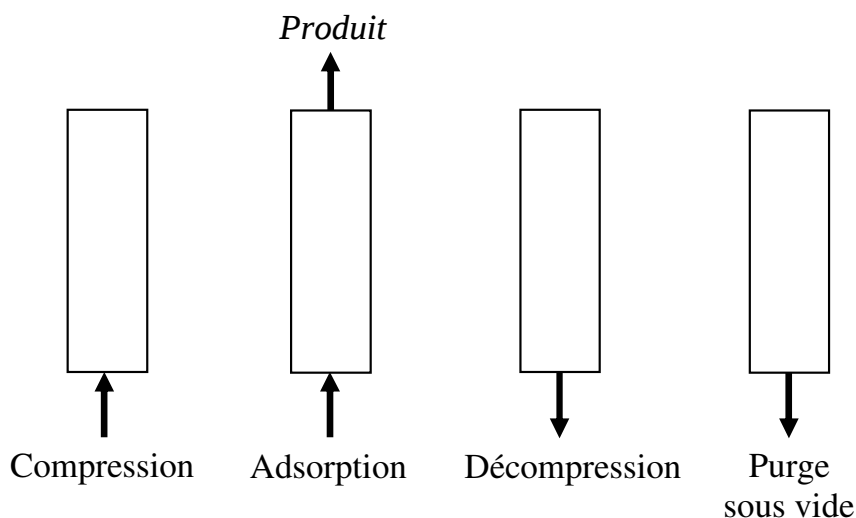


Figure 1.5: Cycle d'Air Liquide

1.4 Conditions opératoires

1.4.1 Pression basse

La plupart des procédés PSA ont la pression atmosphérique comme pression basse. Si on utilise une valeur élevée de pression basse, la pureté du produit va diminuer (Doong et Yang (1988)). Pour certains procédés, des pressions plus basses que la pression atmosphérique (tirage sous vide) sont utilisées et l'étape de purge n'existe pas. L'utilisation du vide lors de la désorption n'est pas nécessaire, si on n'a pas une espèce fortement adsorbée. La mise en oeuvre de l'étape de tirage sous vide rend nécessaire une pompe à vide. De plus, la durée de cycle devient plus importante parce que la réalisation d'un vide prend un temps assez long dans une colonne industrielle.

1.4.2 Pression haute

Le choix de la pression haute dépend essentiellement de la pureté du produit et du taux de récupération à obtenir et éventuellement de la pression d'utilisation ou des disponibilités des gaz. En effet, l'augmentation de la pression haute améliore la pureté du produit jusqu'à l'atteinte d'une valeur maximale au dessus de laquelle l'augmentation de la pression n'a pas d'effet notable sur la séparation (Waldron et Sircar (2000)). Aussi, l'augmentation de ce paramètre permettra de réduire le taux de reflux en moles et par conséquent, d'accroître le taux de récupération. La réduction de la pression d'adsorption augmente la longueur nécessaire de la colonne (Kvamsdal et Hertzberg (1996)).

1.4.3 Température de travail

La température de travail est un paramètre très important. Elle détermine à la fois la capacité d'adsorption et la sélectivité entre plusieurs constituants. Une température assez élevée peut rendre presque nulle l'adsorption de l'un des constituants d'un mélange binaire à séparer, ce qui rend la purification plus aisée. En même temps, la désorption du constituant adsorbable peut être facilitée. À l'inverse, en abaissant la température de colonne, la productivité du cycle et la capacité utile de l'adsorbant peuvent être augmentées. La température de travail pour un procédé PSA est donc choisie de sorte qu'elle facilite la séparation tout en assurant une productivité raisonnable.

La plupart des procédés PSA fonctionnent à température ambiante sauf les procédés d'adsorption des gaz rares qui fonctionnent à très basse température. Les procédés d'adsorption des gaz comme Ar , O_2 , N_2 , Kr fonctionnent en petite cryogénie (Tondeur *et al.* (1985)).

Cependant, en pratique, la température n'est jamais constante; elle varie plus ou moins en fonction de la valeur de la chaleur de sorption des constituants adsorbés et de leurs concentrations, mais aussi du fait de la variation de la pression totale. Ces éléments sont importants pour la modélisation. L'isothermicité n'est approchée que dans les cas d'adsorption des constituants à faible concentration et de rapport des pressions modéré (par exemple, pour la dépollution de l'air).

1.4.4 Vitesse d'écoulement

Les vitesses d'écoulement pendant les étapes isobares ont des effets importants sur le rendement du procédé et la pureté du produit (Yang et Doong (1985)), (Kvamsdal et Hertzberg (1996)). Celles utilisées en adsorption de gaz, sont en général comprises entre 0.01 et 0.5 m/s^{-1} . Ces vitesses sont fonction de la perte de charge admissible et de la concentration en constituant à adsorber. La vitesse est choisie en tenant compte d'un temps caractéristique de transfert, soit entre la phase gazeuse et l'adsorbant, soit à l'intérieur de l'adsorbant. Le temps de passage du gaz dans la colonne est généralement supérieur à ce temps caractéristique, sauf dans le cas où la séparation est basée sur une différence de diffusivité ou encore dans des opérations où la pureté requise est faible.

À côté de ces variables opératoires importantes, d'autres grandeurs peuvent influencer

le fonctionnement des procédés PSA. Il s'agit notamment du taux de reflux et de la durée des étapes.

1.5 Applications des procédés PSA

On trouve de nombreuses applications des procédés PSA dans les domaines assez divers ainsi qu'à des échelles assez variées. À petite échelle, les procédés PSA sont mis en oeuvre afin de produire l'oxygène ou l'azote principalement à partir de l'air. L'application du procédé PSA pour produire l'oxygène à cette échelle pour l'usage médical est très importante grâce à la simplicité et à la fiabilité du procédé. La production domestique d'oxygène par un procédé PSA basé sur le cycle classique de Skarstrom est réalisée surtout dans les régions éloignées ou difficilement accessibles où la production de l'oxygène à l'échelle industrielle n'est pas possible.

À l'échelle industrielle, les procédés les plus utilisés sont ceux qui ont besoin de moins d'investissement et qui rendent le produit moins cher pour qu'il reste économiquement compétitif sur le marché. Les facteurs déterminants pour le choix d'un procédé industriel sont le coût d'investissement, le coût d'opération et la qualité du produit. Parmi les procédés concurrents pour la séparation des mélanges de gaz, la distillation cryogénique et les procédés à membranes sont aussi des procédés efficaces. Le coût d'investissement d'un procédé PSA est un des facteurs favorables pour leur application dans l'industrie tandis que les améliorations comme l'inclusion d'étape d'équilibrage des pressions dans un cycle classique de Skarstrom rend les procédés PSA plus favorables du point de vue coût opératoire.

Les procédés PSA sont largement utilisés dans l'industrie. L'application principale en volume et en nombre des procédés PSA concerne la séparation du mélange CO_2/H_2 afin de purifier l'hydrogène destiné aux raffineries ou à la synthèse de l'ammoniac. Parmi les nombreuses autres applications, on peut citer la production d'azote ou d'oxygène à partir de l'air, le séchage et la purification d'air, la production et la purification d'hélium etc. Le mélange binaire H_2S/H_2 est généralement séparé à l'aide de procédés PSA pour les raffineries. Ces procédés sont également utilisés pour séparer le dioxyde de carbone du biogaz afin d'augmenter la qualité de ce dernier.

Les procédés PSA trouvent également une place prépondérante dans la préservation de l'environnement. Le problème d'émission des gaz à effets de serre est un défi important

et les réglementations en vigueur sont de plus en plus strictes pour réduire les émissions de ces gaz. La recherche actuelle sur l'adsorption de grandes quantités de CO_2 provenant des centrales énergétiques fonctionnant au charbon, constitue une étape importante pour relever le défi de réduction de gaz à effet de serre (Park *et al.* (2002), Ko *et al.* (2003), Ko *et al.* (2005)).

De nouvelles applications sont en cours de développement, notamment la séparation de l'oxygène du CO_2 et la vapeur d'eau pour les astronautes (Alptekin (2005)). Le procédé actuel récupère le dioxyde de carbone grâce à des colonnes de $LiOH$. Ces colonnes sont saturées au bout de 8 heures et ne sont pas régénérables.

1.6 Conclusion

Cette introduction générale montre que les procédés PSA sont complexes et opèrent en régime stationnaire cyclique. S'ils sont largement utilisés dans l'industrie; leur dimensionnement et la maîtrise de leur fonctionnement posent encore des problèmes, notamment à cause de la complexité des phénomènes mis en jeux.

Dans ce travail, nous allons nous intéresser à certains de ces problèmes à travers la simulation et l'optimisation de procédés PSA.

Chapitre 2

Modélisation de procédés d'adsorption

2.1 Introduction

Le modèle mathématique d'un procédé est établi en vue de sa simulation afin d'analyser le comportement du procédé vis-à-vis du changement de certaines variables ou paramètres pour améliorer son fonctionnement. Ce chapitre est consacré à la modélisation de procédés d'adsorption et plus particulièrement de procédés d'adsorption modulée en pression. On va d'abord traiter les bases d'adsorption avant d'envisager la modélisation d'une colonne d'adsorption et enfin la modélisation de procédés PSA.

2.2 Adsorption

L'adsorption est un phénomène au cours duquel un ou plusieurs constituants (adsorbat) d'un mélange gazeux s'adsorbent sur la surface d'un solide (adsorbant). Du fait de la différence de la vitesse d'adsorption et de la proportion de l'adsorption de différents constituants du mélange, un phénomène de séparation est effectué.

Avant d'établir un modèle dynamique du procédé d'adsorption, un savoir-faire fondamental est important. Les principaux adsorbants, le choix d'adsorbants, l'équilibre et la cinétique d'adsorption sont discutés ci-dessous.

2.2.1 Adsorbants

Le phénomène d'adsorption est issu de l'attraction exercée par la surface du solide sur toutes les molécules situées dans la structure poreuse de l'adsorbant. Un adsorbant doit avoir une grande capacité d'adsorption, afin d'adsorber une quantité raisonnable d'adsorbats avant saturation. Cette capacité est déterminée par la surface interne, c'est pourquoi tous les adsorbants sont généralement des matériaux poreux.

Les principaux adsorbants sont présentés ci-dessous (Ruthven *et al.* (1994)).

Le charbon actif

Le charbon actif est obtenu par décomposition thermique de différents matériaux carbonés, suivie d'une étape d'activation. Il possède une distribution assez large de dimensions de pores et la surface interne est plutôt non-polaire. Les conditions de production déterminent la taille des pores et leur distribution. Il est utilisé pour la purification des gaz ainsi que pour l'adsorption des constituants organiques.

Les tamis moléculaires carbonés (CMS)

Les tamis moléculaires carbonés sont des solides carbonés obtenus par quasiment le même processus que le charbon actif, mais ils possèdent une distribution très fine de taille de pores due au traitement thermique de surface. Ils possèdent une sélectivité cinétique, notamment pour le mélange oxygène/azote.

Le gel de silice

Le gel de silice est un adsorbant de composition chimique $SiO_2.nH_2O$. La surface interne est relativement polaire et c'est un adsorbant qui a une distribution assez large de dimensions de pores. Le gel de silice est utilisé pour le séchage des gaz.

Les zéolithes

Tous les adsorbants présentés ci-dessus sont amorphes, par contre les zéolithes sont cristallines. Si le type de préparation détermine la taille des pores dans les adsorbants amorphes, la taille des pores dans les zéolithes est déterminée quant à elle par la structure cristalline. La taille de pores est très régulière et la distribution des tailles des micropores est quasiment nulle. Du fait de la dimension uniforme de pores, les zéolithes possèdent des propriétés de sélectivité stérique d'adsorption. Elles sont utilisées pour l'élimination

de H_2O , CO_2 et SO_2 des gisements de gaz naturel ainsi que pour les autres séparations comme celles des gaz nobles, de l'azote etc.

Alumines activées

Les alumines activées sont obtenues par déshydratation thermique et cristallisation du trihydrate d'alumine ($Al_2O_3 \cdot 3H_2O$) ou du monohydrate d'alumine ($Al_2O_3 \cdot H_2O$). Les alumines activées sont très hydrophiles et plus polaires que le gel de silice (Ruthven (1984)). Elles sont couramment utilisées pour le séchage et la séparation des composés aromatiques.

Le choix de l'adsorbant est gouverné par sa capacité et sa sélectivité vis-à-vis des corps à séparer. La sélectivité d'un adsorbant est la conséquence de différences d'équilibre de sorption des différents adsorbats dans le cas de la séparation thermodynamique ou la conséquence de la différence de cinétique de transfert de matière dans le cas de la séparation cinétique. Le facteur de séparation "pratique" est défini par :

$$\alpha_{i,j} = \frac{q_i/q_j}{y_i/y_j} \quad (2.1)$$

où q_i et y_i sont les titres respectifs dans le solide et dans le gaz pour un constituant i .

Les facteurs qui influent énormément sur la séparation sont les suivants (Leinekugel-Le-Cocq (2004)):

- Equilibre d'adsorption;
- Cinétique de transfert de matière.

Ces deux facteurs sont traités dans les sections suivantes.

2.2.2 Equilibres d'adsorption

L'adsorption est le processus au cours duquel des molécules d'un adsorbat viennent se fixer sur la surface d'un adsorbant. Il existe deux types de processus d'adsorption : adsorption physique ou physisorption et adsorption chimique ou chimisorption. Dans le cas de l'adsorption physique, la fixation des molécules d'adsorbat sur la surface d'adsorbant se fait essentiellement par les forces de Van der Waals et les forces dues aux interactions électrostatiques (interactions dipôle et quadrupôle). L'adsorption physique se produit sans modification de la structure moléculaire et est parfaitement réversible, c'est-à-dire que les molécules adsorbées peuvent être facilement désorbées en diminuant la pression

ou en augmentant la température (Ruthven *et al.* (1994)).

Les capacités des adsorbants à adsorber les différents constituants d'un mélange constituent le facteur le plus déterminant pour les performances de la majorité des procédés d'adsorption. Il est par conséquent essentiel de bien connaître les propriétés d'équilibre adsorbat-adsorbant pour pouvoir concevoir et dimensionner correctement les procédés d'adsorption.

La quantité de matière adsorbée en fonction de la concentration des corps en phase fluide à la température d'adsorbant caractérise le type d'adsorption. Les isothermes d'adsorption relient la quantité adsorbée à la concentration côté fluide pour une température constante.

Classification de Brunauer

La classification des différentes isothermes par Brunauer (Ruthven *et al.* (1994)) décrit les cinq types (figure 2.1) ci-dessous :

- Les isothermes de type I représentent une adsorption sur une seule couche. Elles sont caractéristiques des adsorbants microporeux, dans lesquels le dépôt d'une monocouche d'adsorbat suffit à saturer l'adsorbant.
- Les isothermes de type II représentent une adsorption multicouches dans des adsorbants avec une structure poreuse dispersée.
- Les isothermes de type III représentent une adsorption multicouches dans des adsorbants avec interactions adsorbat/adsorbant moins fortes, et interactions entre adsorbats plus fortes.
- Les isothermes de type IV représentent une adsorption à deux couches, soit sur une surface plane, soit sur les parois des pores de diamètre élevé par rapport au diamètre moléculaire.
- Les isothermes de type V représentent une adsorption sur une seule couche comme les isothermes de type I, avec les phénomènes d'attraction entre adsorbats plus importants.

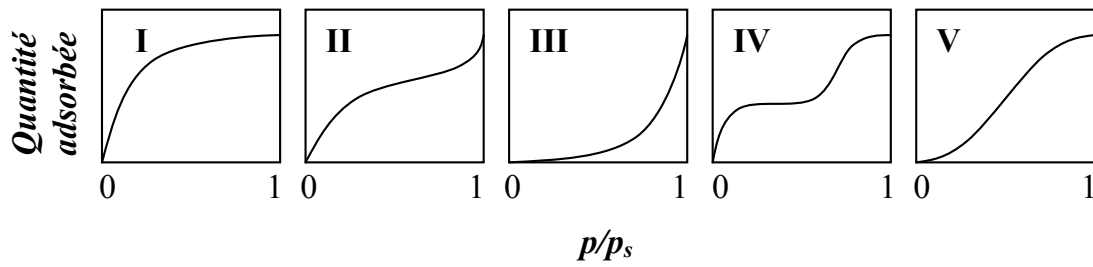


Figure 2.1: Classification des isothermes par Brunauer

Approche thermodynamique d'équilibre d'adsorption

L'approche thermodynamique d'équilibre d'adsorption suppose que la couche adsorbée est une phase distincte au sens thermodynamique. La couche de surface constituée de la phase adsorbée et de l'adsorbant peut être considérée comme une phase unique qui possède les propriétés d'une solution, mais dans la plupart des cas, l'adsorbant est considéré inerte et ses propriétés thermodynamiques et géométriques sont indépendantes de la température et de la pression. Par conséquent, la phase adsorbée est une phase distincte dans laquelle l'adsorbant impose un champ des forces d'interaction (Ruthven *et al.* (1994)).

Loi de Henry

Cette loi concerne l'adsorption sur une surface uniforme à faible concentration où les molécules d'adsorbat sont isolées de leurs voisines. A l'opposé de l'adsorption à forte concentration qui se comporte comme un liquide, l'adsorption à faible concentration se comporte comme un gaz bidimensionnel (Talu et Myers (1988)). La relation d'équilibre entre la phase adsorbée et la phase fluide est linéaire et peut être exprimée par :

$$q = Kc \quad (2.2)$$

où q est la concentration en phase adsorbée, c la concentration en phase fluide et K la constante de Henry.

Isotherme de Langmuir

Lorsque l'adsorption se produit en une seule couche, dans des sites d'adsorption énergétiquement équivalents qui ne peuvent contenir qu'une seule molécule par site, et qu'il n'y pas d'interactions entre les molécules adsorbées, nous avons l'un des modèles d'isotherme les plus connus, celui de Langmuir qui décrit les isothermes d'adsorption de type I :

$$\frac{q}{q_s} = \frac{bp}{1 + bp} \quad (2.3)$$

où q est la concentration en phase adsorbée, q_s la concentration de la phase adsorbée à saturation, p la pression partielle d'adsorbat en phase fluide et b la constante d'équilibre de Langmuir.

Dans le cas d'un mélange de n constituants, on peut utiliser le modèle de Langmuir étendu :

$$\frac{q_i}{q_{si}} = \frac{b_i p_i}{1 + \sum_{i=1}^n b_i p_i} \quad (2.4)$$

Autres isotherme

L'isotherme de Freundlich représente l'adsorption sur les surfaces irrégulières d'adsorbant. Cette isotherme d'adsorption de type I s'écrit (Ruthven (1984)) :

$$q = bc^{\frac{1}{n}}; \quad n > 1 \quad (2.5)$$

L'isotherme Langmuir-Freundlich combine les isothermes de Langmuir et celle de Freundlich (Ruthven (1984)) :

$$\frac{q}{q_s} = \frac{bc^{\frac{1}{n}}}{1 + bc^{\frac{1}{n}}} \quad (2.6)$$

L'isotherme de Toth est une autre représentation de l'adsorption sur les surfaces irrégulières d'adsorbant (Leinekugel-Le-Cocq (2004)) :

$$\frac{q}{q_s} = \frac{p}{(b + p^\alpha)^{\frac{1}{\alpha}}} \quad (2.7)$$

Parmi les autres isothermes classiques, celle de Drachsel peut être exprimée par (Matt et Gilbert (1981)) :

$$\frac{q}{q_s} = \frac{bc^k}{1 + bc^k}; \quad 0 > k > \infty \quad (2.8)$$

Une description détaillée des différentes isothermes d'adsorption est présentée dans Ruthven (1984) et Ruthven *et al.* (1994).

2.2.3 Cinétique de transfert de matière

Les impacts des cinétiques de transfert de matière sur les performances des procédés d'adsorption sont généralement moins importants que ceux des propriétés thermodynamiques, sauf dans le cas des procédés basés sur des sélectivités cinétiques. Il reste cependant nécessaire de bien connaître les cinétiques d'adsorption quand on cherche à prédire correctement les performances des procédés.

La cinétique de transfert de matière dans un milieu poreux fait intervenir trois étapes principales :

- Le transfert de matière externe, impliquant la diffusion des molécules de l'adsorbat vers la surface de la particule d'adsorbant;
- Le transfert de matière interne où les molécules diffusent dans les macropores, mésopores et micropores;
- L'adsorption des molécules à la surface de l'adsorbant.

La résistance au transfert de matière externe est généralement négligeable tandis que l'étape d'adsorption est considérée comme extrêmement rapide. Le transfert de matière interne est l'étape la plus lente qui impose la cinétique d'adsorption. On va donc s'intéresser au transport dans un milieu poreux.

Diffusion interne dans un milieu poreux

Le grain d'adsorbant peut être considéré comme un milieu pseudo-homogène à travers lequel les molécules de gaz diffusent. Le transport intra particulaire est alors assimilé à un phénomène de diffusion décrit par la première loi de Fick comme suit :

$$\vec{J} = -D_e \vec{\nabla} c \quad (2.9)$$

où $\vec{J}$ est le flux de matière entrant dans le grain, D_e est le coefficient de diffusion effectif et c est la concentration. Le coefficient de diffusion effectif D_e regroupe l'ensemble des phénomènes de transport gazeux. En effet, la diffusion interne d'une molécule dans un milieu résulte de quatre mécanismes principaux :

- La diffusion moléculaire, due aux collisions inter-moléculaires qui prédominent lorsque le diamètre des pores est très supérieur à la taille des molécules et la concentration est élevée.
- La diffusion de Knudsen, issue des collisions entre molécules de gaz et les parois des pores qui sont plus fréquentes que les collisions inter-moléculaires, lorsque le diamètre des pores est du même ordre de grandeur que la taille des molécules ou que la pression est faible.
- La diffusion de surface, un mécanisme activé où des molécules adsorbées sur un site d'adsorption (région de faible énergie) se déplacent à un site voisin (Ruthven *et al.* (1994), Krishna et Wesselingh (1997)).
- L'écoulement de Poiseuille pour flux convectif où les molécules se déplacent sous l'effet d'un gradient de pression (Ruthven (1984)).

La diffusivité effective D_e est reliée à la diffusivité dans les pores D_p par :

$$D_e = \frac{\epsilon_{grain} D_p}{\tau_p} \quad (2.10)$$

où ϵ_{grain} et τ_p sont respectivement la porosité interne du grain et la tortuosité des pores. La tortuosité - un facteur d'ajustement - dépend de la particule d'adsorbant et elle a généralement des valeurs comprises entre 4 et 6 pour des charbons actifs.

Le terme de diffusion dans un pore D_p peut être exprimé en fonction des coefficients de diffusion en régime de Knudsen D_k et du coefficient de diffusion moléculaire D_m selon la formule de Bosanquet (Ruthven *et al.* (1994)) :

$$\frac{1}{D_p} = \frac{1}{D_k} + \frac{1}{D_m} \quad (2.11)$$

Cette expression a été établie dans le cas d'une contre diffusion équimolaire, mais peut être utilisée dans d'autres cas avec une bonne approximation. La diffusivité de Knudsen du constituant i (D_{k_i}) peut être calculée à l'aide de l'expression suivante (Mason et Malinauskas (1983), Karger et Ruthven (1992)) :

$$D_{k_i} = \frac{\epsilon}{\tau} \frac{2r_p}{3} \sqrt{\frac{8RT}{\pi M_i}} \quad (2.12)$$

où ϵ/τ est le facteur porosité tortuosité, r_p le rayon du pore, T la température et M_i la masse molaire du composé considéré.

Pour un mélange binaire gazeux (A/B), le coefficient de diffusion moléculaire D_m^{AB} peut être calculé par l'équation de Chapman-Enskog (Leinekugel-Le-Cocq (2004)):

$$D_m^{AB} = CT^{3/2} \frac{\sqrt{\frac{M_A + M_B}{M_A M_B}}}{P \sigma_{AB}^2 \Omega_D} \quad (2.13)$$

où $C = 1,8583 \times 10^{-3}$ d'après Bird *et al.* (2002), T est la température en Kelvin, P la pression totale (atm), M_A et M_B les masses molaires des composants A et B ($\frac{g}{mol}$), $\sigma_{AB} = \frac{1}{2}(\sigma_A + \sigma_B)$ le diamètre de collision (Å) et Ω_D le paramètre de Lennard-Jonnes (-) (Bird *et al.* (2002)).

Modèle LDF(Linear Driving Force)

Nous avons vu précédemment qu'en milieu poreux, il y a quatre principaux mécanismes de transfert de matière : trois phénomènes de diffusion - la diffusion moléculaire, la diffusion de Knudsen, la diffusion de surface - et l'écoulement de Poiseuille. Il y a plusieurs

modèles détaillés de transfert de matière qui combinent les effets de ces mécanismes, mais n'admettent généralement pas de solutions analytiques (Leinekugel-Le-Cocq (2004)).

Pour des particules sphériques immergées dans un fluide subissant des variations de concentration, Glueckauf a déduit l'expression suivante du modèle LDF (Glueckauf (1955)):

$$\frac{\partial q_i}{\partial t} = k_i(q_i^* - q_i) \quad (2.14)$$

avec $k_i = \frac{15De}{r_p^2}$.

Développée à l'origine pour les équilibres linéaires, l'approximation LDF reste applicable pour des systèmes non linéaires pour lesquels le transfert externe est limitant ainsi que dans le cas de diffusion poreuse ou de surface. La simplicité du modèle LDF fait qu'il reste le plus utilisé pour la représentation et la modélisation cinétique de l'adsorption.

2.3 Modélisation d'un lit d'adsorption

Le but d'établir pour un modèle d'un procédé d'adsorption est de décrire son comportement à l'aide d'équations en vue de sa simulation et pour son optimisation. Nous allons présenter la modélisation d'un système isotherme, puis son extension à un modèle non isotherme.

2.3.1 Hypothèses simplificatrices

Pour simplifier le modèle mathématique du procédé, nous avons introduit les hypothèses suivantes :

- H1.** L'écoulement est de type piston; une formulation mono-dimensionnelle du problème est par conséquent considérée;
- H2.** La perte de charge est négligeable dans la colonne, ce qui implique que la colonne est isobare.
- H3.** La dispersion axiale est négligeable;
- H4.** Le mélange gazeux est parfait.
- H5.** Les particules ne sont pas poreuses.
- H6.** Le gaz et le solide sont en équilibre thermique.

2.3.2 Système isotherme

Dans un premier temps, on considère un système isotherme d'adsorption.

2.3.2.1 Bilan matière partiel

On considère une tranche de garnissage d'épaisseur dz et de section Ω , représentée sur la figure (2.2)

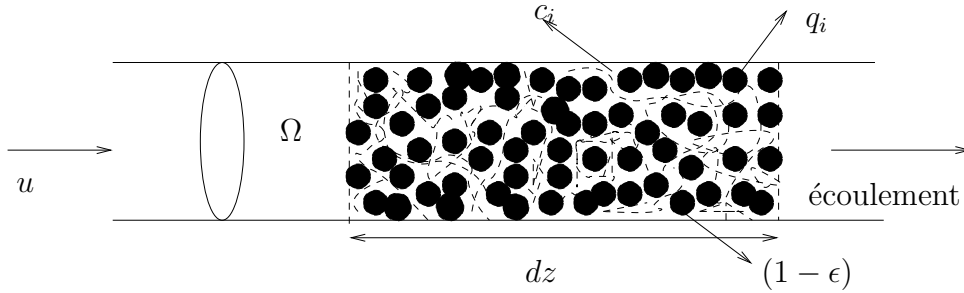


Figure 2.2: Bilan de matière sur une tranche de garnissage

où u est la vitesse interstitielle du gaz, c_i est la concentration du composé i dans le gaz, q_i est la quantité du composé i adsorbée et ϵ la porosité du lit.

Le volume occupé par le fluide est $\epsilon\Omega dz$ et le volume occupé par le solide est $(1 - \epsilon)\Omega dz$.

Le bilan de matière entre l'instant t et l'instant $t + dt$ sur la tranche dz peut être exprimé par :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} [c_i \epsilon \Omega dz + \rho_s q_i (1 - \epsilon) \Omega dz] &= u c_i \epsilon \Omega|_z - u c_i \epsilon \Omega|_{z+dz} \\ &= -\frac{\partial}{\partial z} [u c_i \epsilon \Omega] dz \end{aligned} \quad (2.15)$$

Soit

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \rho_s \frac{\partial q_i}{\partial t} + \frac{\partial u c_i}{\partial z} = 0 \quad (2.16)$$

2.3.2.2 Bilan Global

Le bilan de matière global fait intervenir toutes les espèces présentes dans le mélange gazeux. Il s'exprime comme suit :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \rho_s \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} + \frac{\partial u c}{\partial z} = \frac{\partial c}{\partial t} + \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \rho_s \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} + u \frac{\partial c}{\partial z} + c \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (2.17)$$

où

$$c = \sum_{i=1}^N c_i$$

N est le nombre de constituants du mélange gazeux.

On suppose que le mélange gazeux est parfait :

$$c = \frac{P}{RT} \quad (2.18)$$

où P est la pression totale, R la constante des gaz parfaits et T la température.

Puisque le système est isotherme, on peut donc écrire :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{1}{RT} \frac{\partial P}{\partial t} \quad (2.19)$$

On a supposé que la perte de charge est négligeable dans la colonne, la relation suivante en découle :

$$\frac{\partial c}{\partial z} = \frac{1}{RT} \frac{\partial P}{\partial z} = 0 \quad (2.20)$$

Le bilan global s'écrit alors :

$$\frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial t} + \frac{RT}{P} \frac{(1-\epsilon)}{\epsilon} \rho_s \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} + \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (2.21)$$

Soit

$$\frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial t} - \frac{RT}{P} \frac{(1-\epsilon)}{\epsilon} \rho_s \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} \quad (2.22)$$

Ce bilan permet donc de relier les variations spatiales de la vitesse d'écoulement aux variations temporelles de la pression et des quantités adsorbées.

2.3.2.3 Expression du bilan partiel à l'aide de la fraction molaire

La concentration d'un constituant c_i peut être exprimée à l'aide de la fraction molaire y_i par :

$$c_i = y_i c \quad (2.23)$$

En remplaçant c_i par $y_i c$ dans l'équation (2.16), on obtient :

$$\frac{\partial y_i c}{\partial t} + \frac{(1-\epsilon)}{\epsilon} \rho_s \frac{\partial q_i}{\partial t} + \frac{\partial u y_i c}{\partial z} = \frac{\partial y_i c}{\partial t} + \frac{(1-\epsilon)}{\epsilon} \rho_s \frac{\partial q_i}{\partial t} + c \frac{\partial u y_i}{\partial z} = 0 \quad (2.24)$$

ou

$$c \frac{\partial y_i}{\partial t} + y_i \frac{\partial c}{\partial t} + \frac{(1-\epsilon)}{\epsilon} \rho_s \frac{\partial q_i}{\partial t} + c u \frac{\partial y_i}{\partial z} + c y_i \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (2.25)$$

En remplaçant $\frac{\partial u}{\partial z}$ par son expression du bilan global (2.22), on obtient :

$$\frac{\partial y_i}{\partial t} + u \frac{\partial y_i}{\partial z} + \frac{RT}{P} \frac{(1-\epsilon)}{\epsilon} \rho_s \left[\frac{\partial q_i}{\partial t} - y_i \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} \right] = 0 \quad (2.26)$$

Si un seul constituant est adsorbé ($N=1$), on peut remplacer y_i et q_i par y et q :

$$\frac{\partial y}{\partial t} + u \frac{\partial y}{\partial z} + (1 - y) \frac{RT}{P} \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} = 0 \quad (2.27)$$

Le bilan global avec un seul constituant adsorbé se réduit à :

$$\frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial t} - \frac{RT}{P} \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} \quad (2.28)$$

2.3.3 Système non isotherme

On s'intéresse à la modélisation d'un système non isotherme d'adsorption.

2.3.3.1 Bilan matière partiel

Les bilans de matière ici sont les mêmes que dans le cas isotherme.

2.3.3.2 Bilan Global

Pour le système non isotherme, on a :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{1}{RT} \frac{\partial P}{\partial t} - \frac{P}{RT^2} \frac{\partial T}{\partial t} \quad (2.29)$$

La perte de charge est négligeable dans la colonne, donc :

$$\frac{\partial c}{\partial z} = -\frac{P}{RT^2} \frac{\partial T}{\partial z} \quad (2.30)$$

Le bilan global s'écrit alors :

$$\frac{1}{RT} \frac{\partial P}{\partial t} - \frac{P}{RT^2} \frac{\partial T}{\partial t} + \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \rho_s \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} - u \frac{P}{RT^2} \frac{\partial T}{\partial z} + c \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (2.31)$$

Soit

$$\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial t} - \frac{1}{T} \frac{\partial T}{\partial t} - \frac{u}{T} \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \frac{RT}{P} \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} = 0 \quad (2.32)$$

On voit que le gradient de vitesse dépend cette fois, non seulement les variations temporelles de la pression et des quantités adsorbées, mais également des gradients temporel et spatial de la température.

2.3.3.3 Bilan Enthalpique

L'enthalpie de la phase gazeuse peut être exprimée comme :

$$\sum_{i=1}^N M_i c_i H_g^i \quad (2.33)$$

où M_i est la masse molaire du constituant i et H_g^i l'enthalpie du constituant gazeux (J/kg)
: $dH_g^i = C_{pg}^i dT$

Les différents termes du bilan thermique s'écrivent :

- Accumulation dans la phase fluide :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\sum_{i=1}^N M_i c_i H_g^i \epsilon \Omega dz \right)$$

- Accumulation dans la phase solide :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\rho_s H_s (1 - \epsilon) \Omega dz \right)$$

- Accumulation dans la phase adsorbée :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\rho_s \sum_{i=1}^N M_i q_i H_g^i (1 - \epsilon) \Omega dz \right)$$

- Terme du transfert convectif :

$$\epsilon \Omega u \sum_{i=1}^N M_i c_i H_g^i$$

- Terme du transfert dispersif :

$$\epsilon \Omega k_{ez} \frac{\partial T}{\partial z}$$

- Terme dû à la chaleur d'adsorption :

$$\rho_s \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} \Delta H_i (1 - \epsilon)$$

- Terme d'échange avec l'extérieur :

$$\frac{2h}{r} (T - T_0)$$

Le bilan enthalpique s'écrit :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} \left[\sum_{i=1}^N M_i c_i H_g^i \epsilon \Omega dz + \rho_s H_s (1 - \epsilon) \Omega dz + \rho_s \sum_{i=1}^N M_i q_i H_g^i (1 - \epsilon) \Omega dz \right] \\ & + \frac{\partial}{\partial z} \left[\epsilon \Omega u \sum_{i=1}^N M_i c_i H_g^i \right] dz - \frac{\partial}{\partial z} \left[\epsilon \Omega k_{ez} \frac{\partial T}{\partial z} \right] dz = \\ & \rho_s \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} \Delta H_i (1 - \epsilon) \Omega dz - \frac{2h}{r} (T - T_0) \Omega dz \end{aligned} \quad (2.34)$$

où

H_s : enthalpie de la phase solide (J/kg) : $dH_s = C_{ps}dT$

T_0 : température à l'extérieur de la colonne K

ρ_g : densité du gaz (kg/m^3)

ρ_s : densité de la particule d'adsorbant (kg/m^3)

r : rayon du lit d'adsorbant (m)

k_{ez} : conductivité thermique effective axiale ($J/s.m.K$) (Yagi *et al.* (1961))

ΔH : l'enthalpie d'adsorption du constituant i

Développons la somme des deux termes suivants :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left[\sum_{i=1}^N M_i c_i H_g^i \right] dz + \frac{\partial}{\partial z} \left[\sum_{i=1}^N M_i c_i u H_g^i \right] dz = \\ \sum_{i=1}^N \left[M_i c_i \left(\frac{\partial H_g^i}{\partial t} + u \frac{\partial H_g^i}{\partial z} \right) + M_i H_g^i \left(\frac{\partial c_i}{\partial t} + \frac{\partial u c_i}{\partial z} \right) \right] \end{aligned} \quad (2.35)$$

En utilisant l'équation de bilan partiel (2.16), on obtient :

$$\begin{aligned} \sum_{i=1}^N \left[M_i c_i \left(\frac{\partial H_g^i}{\partial t} + u \frac{\partial H_g^i}{\partial z} \right) + M_i H_g^i \left(\frac{\partial c_i}{\partial t} + \frac{\partial u c_i}{\partial z} \right) \right] = \\ \sum_{i=1}^N \left[M_i c_i \left(\frac{\partial H_g^i}{\partial t} + u \frac{\partial H_g^i}{\partial z} \right) - \frac{1-\epsilon}{\epsilon} \rho_s M_i \frac{\partial q_i}{\partial t} H_g^i \right] \end{aligned} \quad (2.36)$$

Le bilan d'enthalpie s'écrit par conséquent :

$$\begin{aligned} \sum_{i=1}^N M_i c_i \frac{\partial H_g^i}{\partial t} + \sum_{i=1}^N M_i c_i u \frac{\partial H_g^i}{\partial z} + \frac{1-\epsilon}{\epsilon} \rho_s \sum_{i=1}^N M_i H_g^i \frac{\partial q_i}{\partial t} + \frac{1-\epsilon}{\epsilon} \rho_s \frac{\partial H_s}{\partial t} \\ - k_{ez} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} = \frac{1-\epsilon}{\epsilon} \rho_s \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} \Delta H_i - \frac{2h}{\epsilon r} (T - T_0) \end{aligned} \quad (2.37)$$

En supposant que l'enthalpie des constituants adsorbés est négligeable devant l'enthalpie du solide et en conséquence, et en posant $\rho_i = M_i c_i$, on obtient :

$$\begin{aligned} \left(\sum_{i=1}^N \epsilon \rho_i C_{pg}^i + (1-\epsilon) \rho_s C_{ps} \right) \frac{\partial T}{\partial t} + u \sum_{i=1}^N \epsilon \rho_i C_{pg}^i \frac{\partial T}{\partial z} - \epsilon k_{ez} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} - \\ (1-\epsilon) \rho_s \sum_{i=1}^N \frac{\partial q_i}{\partial t} \Delta H_i + \frac{2h}{r} (T - T_0) = 0 \end{aligned} \quad (2.38)$$

Le bilan enthalpique avec un seul constituant adsorbé s'écrit :

$$\begin{aligned} (\epsilon \rho_g C_{pg} + (1-\epsilon) \rho_s C_{ps}) \frac{\partial T}{\partial t} + u \epsilon \rho_g C_{pg} \frac{\partial T}{\partial z} - \epsilon k_{ez} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} - \\ (1-\epsilon) \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} \Delta H + \frac{2h}{r} (T - T_0) = 0 \end{aligned} \quad (2.39)$$

2.4 Modélisation d'un procédé d'adsorption modulée en pression

Dans cette étude, nous allons considérer un procédé PSA simple. Le procédé choisi, de type Skarstrom, est un procédé fréquemment rencontré dans la littérature. Il se compose de quatre étapes comme le montre la figure (1.3):

1. Compression
2. Adsorption
3. Décompression
4. Purge

2.4.1 Modèle isotherme avec états gelés

On s'intéresse ici au modèle isotherme d'un procédé PSA utilisé pour l'adsorption de vapeur d'eau sur du gel de silice pour le séchage d'air (Chihara et Suzuki (1983b)). Pour la modélisation du procédé, on a recours à l'hypothèse "d'états gelés" (Frozen states) pour les étapes non isobares (Shendalman et Mitchell (1972)). On considère que le changement de pression au cours des étapes de compression et de décompression est très rapide; qu'il n'y a donc pas de transfert de matière entre les phases fluide et solide. Par conséquent, on va développer le modèle mathématique que pour les étapes d'adsorption et purge.

Le modèle est basé sur les hypothèses simplificatrices :

- H1.** L'écoulement est du type piston; une formulation mono-dimensionnelle du problème est par conséquent considérée;
- H2.** La perte de charge est négligeable dans la colonne;
- H3.** La vitesse du gaz le long du lit est constante au cours des étapes d'adsorption et de purge (ce qui revient à supposer que les quantités adsorbées ou désorbées sont suffisamment faibles pour ne pas modifier significativement les débits);
- H4.** La dispersion axiale est négligeable;
- H5.** Le mélange gazeux est parfait;
- H6.** La cinétique d'adsorption est exprimée à l'aide du modèle LDF (Linear Driving Force).

La particule d'adsorbant est considérée comme une sphère homogène autour de laquelle circule un gaz de concentration c . La molécule diffuse rapidement à travers la couche limite, entre en contact avec l'adsorbant puis diffuse à l'intérieur de la particule. L'équation

cinétique est donnée par la relation suivante (Chihara et Suzuki (1983b)) :

$$\frac{\partial q}{\partial t} = \frac{K_s a_v}{(1 - \epsilon)\rho_s} (q^* - q) \quad (2.40)$$

où $K_s a_v$ est un coefficient qui caractérise le transfert de matière (kg/m^3s).

L'équilibre d'adsorption est exprimé par une isotherme linéaire :

$$q^* = k.c \quad (2.41)$$

Le modèle isotherme du procédé s'écrit comme suit :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} + u \frac{\partial c}{\partial z} = 0 \quad (2.42)$$

$$\frac{\partial q}{\partial t} = \frac{K_s a_v}{(1 - \epsilon)\rho_s} (q^* - q) \quad (2.43)$$

$$q^* = k.c \quad (2.44)$$

Conditions initiales et aux limites

Les conditions initiales sont triviales. En effet, pour le premier cycle et pour la première étape, la colonne contient initialement l'adsorbant en équilibre avec de l'air à pression atmosphérique.

Pour l'étape d'adsorption, l'état initial est en fait l'état final de l'étape de purge. Pour l'étape de purge, la concentration dans la phase fluide à la fin de l'étape d'adsorption est réduite en proportion du rapport P_H/P_B .

Les conditions initiales et aux limites pour chaque étape sont explicitées dans le tableau (2.1).

Adsorption	Purge
$P = P_H$	$P = P_B$
$u = u_H$	$u = -u_L = -\gamma u_H$
$t = 0; \forall z : c = c_{II}; q = q_{II}$	$t = 0; \forall z : c = c_I \frac{P_B}{P_H}; q = q_I$
$z = 0; \forall t : c = c_o$	$z = L; \forall t : c(t) = \frac{P_B}{P_H} c_I(t)$

Tableau 2.1: Conditions initiales et aux limites

Le modèle isotherme du procédé est un système d'équations algébro-différentielles partielles.

2.4.2 Modèle non isotherme avec états gelés

On s'intéresse maintenant au modèle non isotherme du procédé PSA considéré ci-dessus. L'hypothèse d'états gelés pour les étapes non isobares est toujours appliquée (Shendalman et Mitchell (1972)).

Pour simplifier la modélisation, les hypothèses sont les mêmes que dans le cas isotherme, sauf :

- H4.** La dispersion axiale n'est pas prise en compte dans le bilan de matière;
- H7.** L'isotherme d'adsorption est linéaire et le coefficient d'équilibre d'adsorption dépend de la température.

Les bilans de matière et la cinétique d'adsorption sont les mêmes que dans le cas isotherme avec états gelés.

Le bilan enthalpique est exprimé par :

$$\begin{aligned} &(\epsilon\rho_g C_{pg} + (1 - \epsilon)\rho_s C_{ps}) \frac{\partial T}{\partial t} + u\epsilon\rho_g C_{pg} \frac{\partial T}{\partial z} - \epsilon k_{ez} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} - \\ &(1 - \epsilon)\rho_s \frac{\partial q}{\partial t} \Delta H + \frac{2h}{r}(T - T_0) = 0 \end{aligned} \quad (2.45)$$

Le coefficient d'équilibre d'adsorption est lié à la température par :

$$\ln \frac{k}{k_o} = \frac{\Delta H}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_o} \right) \quad (2.46)$$

où k_o est le coefficient de l'équilibre d'adsorption à T_o .

Conditions initiales et aux limites

Elles sont les mêmes que pour le cas isotherme. La seule différence se situe au niveau de la température. Les conditions initiales et aux limites pour la température sont données dans le tableau (2.2).

Adsorption	Purge
$t = 0; \forall z : T = T_{II}$	$t = 0; \forall z : T = T_I$
$z = 0; \forall t : T = T_o$	$z = L; \forall t : T = T_o$
$z = L; \forall t : \frac{\partial T}{\partial z} = 0$	$z = 0; \forall t : \frac{\partial T}{\partial z} = 0$

Tableau 2.2: Conditions initiales et aux limites

Le modèle du procédé est également un système d'équations algébro-différentielles partielles.

2.4.3 Modèle non isotherme sans états gelés

On s'intéresse cette fois au modèle non isotherme d'un procédé PSA utilisé pour la séparation d'un mélange gazeux de benzène et d'azote sur charbon actif (Liu et Ritter (1996)). Le constituant adsorbé est le benzène. L'hypothèse d'états gelés n'est pas considérée et on va donc modéliser les quatre étapes du cycle de Skarstrom.

Afin de simplifier la modélisation, les hypothèses sont les mêmes que dans le cas isotherme sauf :

H7. La cinétique d'adsorption est exprimée à l'aide du modèle LDF et le coefficient d'équilibre d'adsorption dépend de la température.

Basée sur ces hypothèses, le modèle est constitué des équations suivantes :

Bilan partiel sur le benzène :

$$\frac{\partial y}{\partial t} + u \frac{\partial y}{\partial z} + (1 - y) \frac{RT}{P} \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} = 0 \quad (2.47)$$

Bilan global :

$$\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial t} - \frac{1}{T} \frac{\partial T}{\partial t} - \frac{u}{T} \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \frac{RT}{P} \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} = 0 \quad (2.48)$$

Bilan enthalpique :

$$\begin{aligned} & (\epsilon \rho_g C_{pg} + (1 - \epsilon) \rho_s C_{ps}) \frac{\partial T}{\partial t} + u \epsilon \rho_g C_{pg} \frac{\partial T}{\partial z} - \\ & (1 - \epsilon) \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} \Delta H + \frac{2h}{r} (T - T_0) = 0 \end{aligned} \quad (2.49)$$

Équation cinétique :

$$\frac{\partial q}{\partial t} = k(q^* - q) \quad (2.50)$$

Équilibre d'adsorption :

$$q^* = \frac{q_s b P y}{1 + b P y} \quad (2.51)$$

avec :

$$b = \frac{b_o}{R \sqrt{T}} \exp \left[\frac{\Delta H}{RT} \right] \quad (2.52)$$

où q_s est la quantité adsorbée à la saturation et b_o est le paramètre de l'isotherme à T_0 .

Conditions initiales et aux limites

Les conditions initiales et aux limites pour chaque étape sont données dans le tableau (2.3). Elles expriment le fait que les conditions à la fin d'une étape constituent les conditions initiales de l'étape suivante pour les concentration et la température. Kapoor et Yang (1989) proposent une fonction quadratique pour la variation temporelle de la pression au cours des étapes non isobares. Toutefois, nous avons utilisé les profils linéaires de pression au cours des étapes de compression et de purge comme utilisés dans Liu et Ritter (1996).

Compression	Adsorption
$P = P_H + (P_H - P_B) \left[\frac{t}{\tau_{comp}} - 1 \right]$ $t = 0; \forall z : y = y_{IV}; q = q_{IV}; T = T_{IV}$ $z = 0; \forall t : y = y_f; T = T_f$ $z = L; \forall t : u = 0$	$P = P_H$ $t = 0; \forall z : y = y_I; q = q_I; T = T_I$ $z = 0; \forall t : y = y_f; T = T_f; u = u_f$
Décompression	Purge
$P = P_B + (P_B - P_H) \left[\frac{t}{\tau_{dec}} - 1 \right]$ $t = 0; \forall z : y = y_{II}; q = q_{II}; T = T_{II}$ $z = L; \forall t : \frac{\partial y}{\partial z} = 0; T = T_{II}; u = 0$	$P = P_B$ $t = 0; \forall z : y = y_{III}; q = q_{III}; T = T_{III}$ $z = L; \forall t : y(t) = y_{II}(t); T(t) = T_{II}(t); u = u_p$

Tableau 2.3: Conditions initiales et aux limites

Le modèle non isotherme du procédé est aussi un système d'équations algébro-différentielles partielles.

2.5 Adimensionnalisation du modèle

Les modèles de procédés PSA sont distribués par nature avec des variations temporelles et spatiales décrites à l'aide d'équations aux dérivées partielles et algébriques. En régime périodique la variable de temps varie dans le domaine $t \in [0, t_{cycle}]$ tandis que la variable d'espace varie dans le domaine $z \in [0, L]$. Afin d'analyser facilement les variations des variables d'état et pour que toutes les variables soient à peu près du même ordre de grandeur, on a recours à l'adimensionnalisation suivante du système :

$$\bar{t} = \frac{t}{\tau_{ads}} ; \bar{z} = \frac{z}{L} ; \bar{y} = \frac{y}{y_f} ; \bar{q} = \frac{q}{q_s} ; \bar{u} = \frac{u}{u_f} ; \bar{P} = \frac{P}{P_H} ; \bar{T} = \frac{T}{T_f}$$

Les variables dimensionnelles peuvent être remplacées par des nouvelles variables adimensionnelles pour le temps et l'espace qui varient dans les domaines normés $\bar{t} \in [0, 1]$ et

2.6. CONCLUSION

$\bar{z} \in [0, 1]$. Les variables d'état sont également exprimées à l'aide de nouvelles variables adimensionnelles qui varient dans les domaines $\bar{x} \in [0, 1]$, $\bar{y} \in [0, 1]$.

Les variables indépendantes (temps et espace) et les variables dépendantes (concentrations et température) varient entre 0 et 1.

Par exemple, l'équation dimensionnelle du bilan de matière décrite par l'équation (2.53)

$$\frac{\partial y}{\partial t} + u \frac{\partial y}{\partial z} + (1 - y) \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \frac{RT}{P} \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} = 0 \quad (2.53)$$

peut être exprimé sous la forme adimensionnelle comme suit :

$$\frac{\partial \bar{y}}{\partial \bar{t}} + \frac{\tau_{\text{ads}} u_f}{L} \bar{u} \frac{\partial \bar{y}}{\partial \bar{z}} + \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \frac{R \rho_s T_f q_s}{P_H} \left(\frac{1}{y_f} - \bar{y} \right) \frac{\bar{T}}{\bar{P}} \frac{\partial \bar{q}}{\partial \bar{t}} = 0 \quad (2.54)$$

De la même façon, les conditions initiales et aux limites et le critère de performance sont transformés des formes dimensionnelles aux formes adimensionnelles.

Les modèles isotherme avec états gelés, non isotherme avec états gelés et non isotherme sans états gelés sont présentés sous la forme adimensionnelle en Annexe (A).

2.6 Conclusion

Nous disposons de modèles algébro-différentiels partiels pour les procédés PSA considérés. Avant de les optimiser, il faut d'abord pouvoir les simuler. Etant donnée la complexité des équations mises en jeu dans les modèles, seules les solutions numériques sont envisagées. Pour ce faire, nous allons commencer par discrétiser la variable spatiale à l'aide de la méthode des lignes. C'est l'objectif du chapitre suivant.

Chapitre 3

Méthode des lignes

3.1 Introduction

La modélisation mathématique des systèmes physiques et chimiques est largement utilisée dans la science, l'ingénierie et les mathématiques appliquées. Ces modèles mathématiques sont ensuite résolus dans le but d'analyser, d'améliorer et d'optimiser ces systèmes. À cause de la complexité ou de la dimension, ces modèles sont en général résolus à l'aide de méthodes numériques.

Les plupart des systèmes sont caractérisés par des variables évoluant dans le temps et l'espace. Ces systèmes appelés systèmes à paramètres distribués, sont décrits par une ou plusieurs équations aux dérivées partielles. Au cours de la modélisation des procédés d'adsorption modulée en pression présentée dans le chapitre précédent, on a remarqué que ce sont également des systèmes à paramètres distribués et par conséquent leurs modèles mathématiques sont constitués par des équations (algébro) différentielles partielles.

Dans ce chapitre, nous discuterons de la résolution de ces équations. Nous allons présenter la philosophie, la méthodologie et l'application de la méthode des lignes, une procédure numérique bien établie pour toutes les grandes catégories des équations aux dérivées partielles (Partial differential equations - PDE) et des équations algébro-différentielles partielles (Partial differential algebraic equations - PDAE).

On présente d'abord quelques généralités sur les méthodes de résolution des systèmes à paramètres distribués. Les méthodes d'approximation sont ensuite détaillées. Enfin, on va détailler l'application de la méthode des lignes aux modèles de procédés PSA considérés.

3.2 Résolution d'un système à paramètres distribués

Le but de la résolution d'un système est de trouver une fonction telle que toutes les équations seront satisfaites simultanément si la fonction est substituée dans les équations aux dérivées partielles et dans toutes les conditions auxiliaires.

La résolution d'un système peut aboutir soit à une solution analytique, soit à une solution numérique. La solution analytique d'un système est une fonction mathématique exacte; elle est souvent préférée aux solutions numériques. Il est toutefois important de remarquer que la solution analytique d'un système est généralement très difficile, voire impossible à obtenir pour tous types des modèles mathématiques sauf pour les systèmes simples.

Du fait de l'impossibilité de trouver une solution analytique pour la majorité des systèmes, on a recourt à la résolution numérique qui est une approximation discrète de la solution analytique. Les moyens actuels de calcul nous permettent de trouver généralement les solutions numériques de problèmes très complexes avec une grande précision.

Les modèles mathématiques de procédés à paramètres distribués sont constitués par des équations aux dérivées partielles ou par des systèmes d'équations algébro-différentielles partielles. Ces systèmes d'équations sont généralement résolus à l'aide de méthodes numériques. Pour ce faire, on peut utiliser les deux méthodes d'approximation suivantes :

- Méthode de discrétisation totale,
- Méthode des lignes

Conformément à la méthode de discrétisation totale, le domaine spatial et le domaine temporel sont approximés. Les dérivées des fonctions par rapport au temps et à l'espace sont remplacées par leurs approximations. Ainsi les équations aux dérivées partielles sont transformées en équations algébriques. De cette façon, nous pouvons obtenir les valeurs de la fonction inconnue dans des points prédéfinis. Afin de représenter la méthode de discrétisation totale, un maillage avec les points équidistants est montré sur la figure (3.1) pour le domaine spatial et temporel.

Il est important de remarquer que pour chaque variable d'état, nous avons n équations algébriques spatiales à chaque pas de temps. La dimension du problème approximé par

cette méthode est $m \times n$ équations algébriques où m est le nombre de points de discrétisation du temps. Comme la précision est une fonction du pas de maillage, atteindre une précision satisfaisante requiert en général un nombre important de mailles. Cela implique que la dimension d'un problème approximé par la méthode de discrétisation totale est souvent assez importante. La résolution de ce type de problème pose généralement des problèmes de convergence. Toutefois, même s'il n'y a pas de problèmes de convergence, la solution peut ne pas être assez précise à cause des erreurs d'approximation liées à la méthode et au type d'approximation choisi, de l'erreur de troncature liée à la machine et de l'accumulation éventuelle d'erreurs issue de leur propagation.

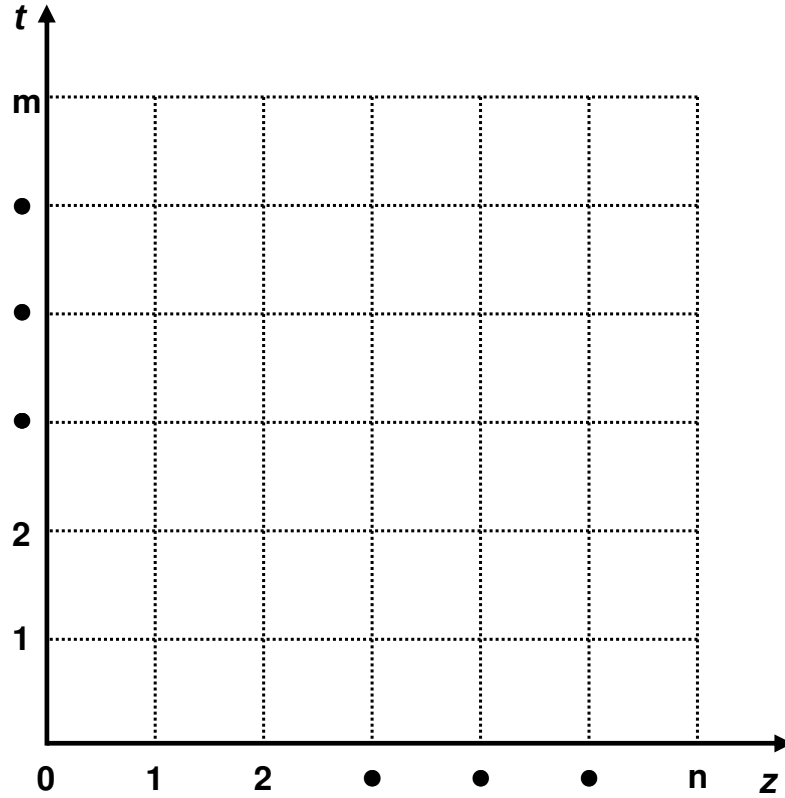


Figure 3.1: Discretisation totale d'un système à paramètres distribués

La méthode des lignes (Schiesser (1991), Schiesser (1994)) est une technique bien établie pour la résolution des problèmes à paramètres distribués où l'une des variables indépendantes est le temps. Conformément à cette méthode, la variable avec les conditions aux limites est approximée et les dérivées par rapport à cette variable sont remplacées par leurs approximations. La discrétisation d'un système à paramètres distribués selon la méthode des lignes est représentée sur la figure (3.2). La variation de la variable dépendante est décrite à chaque point d'approximation par une équation différentielle et par conséquent nous avons n équations différentielles pour chaque variable dépendante.

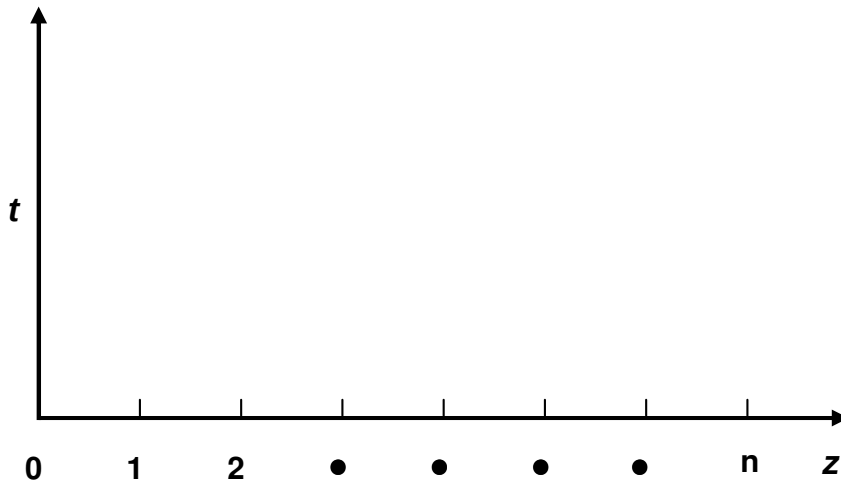


Figure 3.2: Schéma de discrétisation par la méthode des lignes

Le système à paramètres distribués exprimé à l'aide des équations aux dérivées partielles (algébriques) est ainsi transformé en un système d'équations différentielles (algébriques). Le problème originel à valeurs initiales et aux limites est ainsi transformé en un problème à valeurs initiales (Initial value problem - IVP) qui peut être résolu à l'aide d'un intégrateur numérique. La résolution d'un problème à paramètres distribués par la méthode des lignes donne des résultats beaucoup plus précis que par la méthode de discrétisation totale (Lee et Schiesser (2004)).

Nous avons choisi d'appliquer la méthode des lignes pour la résolution des modèles mathématiques des procédés PSA. Les méthodes d'approximation spatiale généralement utilisées dans les méthodes des lignes sont discutées dans la section suivante.

3.3 Méthodes de discrétisation spatiale

Conformément à la méthode des lignes, le domaine spatial est discrétisé et les dérivées spatiales sont remplacées par leurs approximations afin de transformer un système d'équations aux dérivées partielles (algébriques) en un système d'équations différentielles (algébriques). Les trois méthodes utilisées pour la discrétisation spatiale sont les suivantes :

- Méthode des différences finies
- Méthode des collocations orthogonales
- Méthode des volumes finis

Les méthodes de résolution des systèmes d'équations aux dérivées partielles (algébriques) sont divisées en deux familles : méthodes d'approximation des équations et méthodes d'approximation de solutions (Le Pourhiet (1988)). Ces deux familles de méthodes sont montrées sur la figure (3.3). Les méthodes de différences finies et de volumes finis sont des méthodes d'approximation des équations tandis que la méthode de collocations orthogonales est une méthode d'approximation de solutions.

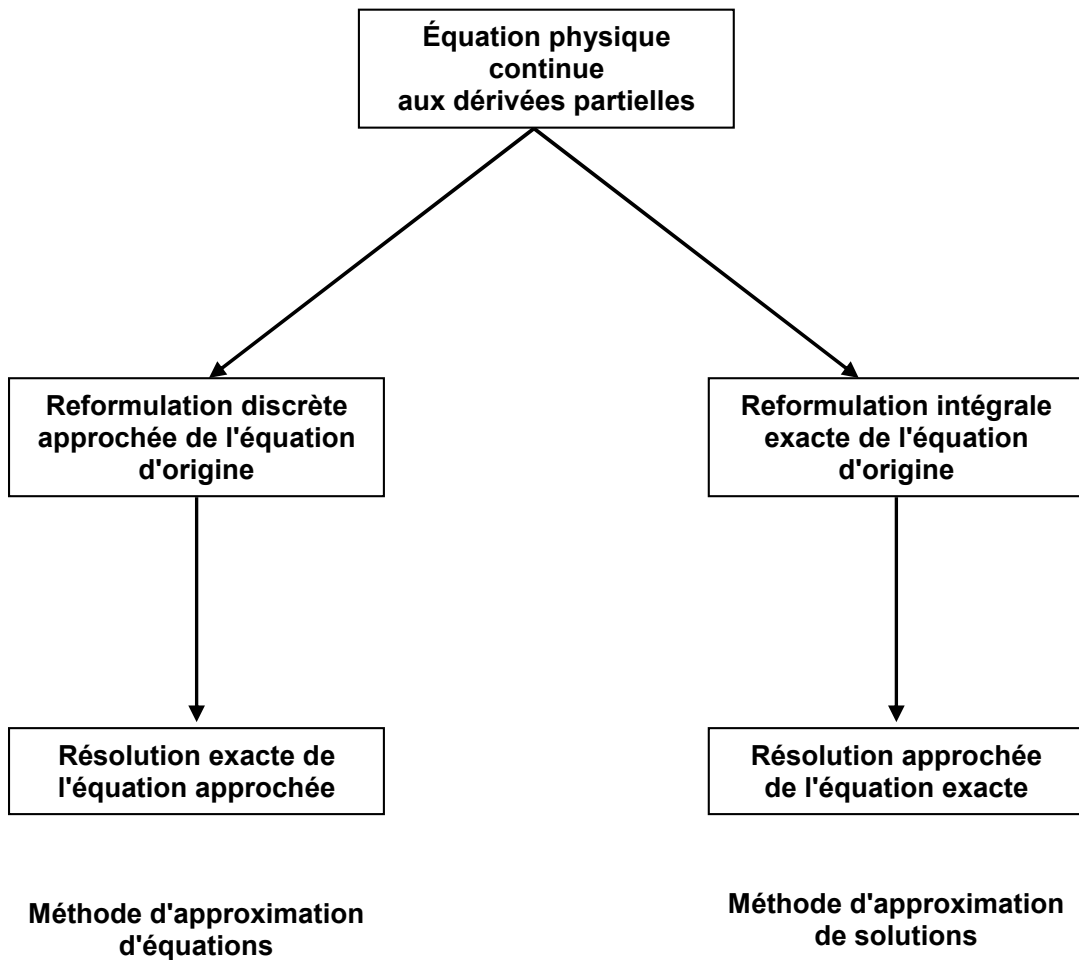


Figure 3.3: Les deux familles de résolution de PDE

Ces méthodes d'approximation pour les procédés PSA sont discutées ci-dessous :

3.3.1 Méthode des différences finies

La méthode des différences finies est la plus facile à mettre en oeuvre parmi les trois méthodes de discrétisation appliquées aux modèles de procédés PSA pour l'approximation des variables à valeurs aux limites. Afin de discrétiser le domaine spatial par cette méthode, on le divise en un nombre fini d'intervalles généralement de longueur identique. Par ex-

emple, si le domaine spatial est divisé en N intervalles, le nombre de noeuds pour lesquels les valeurs de nos variables seront recherchées est $N + 1$. Chaque équation aux dérivées partielles (PDE) est ainsi approximée par un système couplé de N équations différentielles ordinaires (Ordinary differential equations - ODE).

La dérivée spatiale d'une variable $V(t, z)$ peut être écrite en terme de différence de valeurs entre deux noeuds comme suit :

- Approximation selon un schéma de différentiation arrière/avant

$$\left(\frac{\partial V}{\partial z}\right)_{z=k} \approx \frac{V_k - V_{k-1}}{\Delta z} \text{ ou } \left(\frac{\partial V}{\partial z}\right)_{z=k} \approx \frac{V_{k+1} - V_k}{\Delta z} \quad (3.1)$$

Il est important de remarquer que ces approximations sont précises à l'ordre 1.

- Approximation selon un schéma de différentiation centrée

$$\left(\frac{\partial V}{\partial z}\right)_{z=k} \approx \frac{V_{k+1} - V_{k-1}}{2(\Delta z)} \quad (3.2)$$

Cette approximation est précise à l'ordre 2.

- Approximation en 3 points de la dérivée seconde

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial z^2}\right)_{z=k} \approx \frac{V_{k+1} - 2V_k + V_{k-1}}{(\Delta z)^2} \quad (3.3)$$

Cette approximation est précise à l'ordre 2.

3.3.2 Méthode des collocations orthogonales

La méthode des collocations orthogonales nous permet de représenter les variables d'état et leurs dérivées au moyen d'approximations polynomiales et ainsi de transformer le système d'équations algébro-différentielles partielles (PDAE) en un système d'équations algébro-différentielles (Differential algebraic equations - DAE). Les polynômes de Lagrange sont les plus réponsus pour l'approximation.

L'approximation spatiale d'une variable $V(t, z)$ par la méthode des collocations orthogonales s'écrit comme suit :

$$V(t, z) \approx \sum_{i=0}^{N+1} v_i(t) l_i(z) \quad (3.4)$$

où

$$l_i(z) = \prod_{j=0, i}^{N+1} \frac{z - z_j}{z_i - z_j}$$

sont les polynômes de Lagrange et $j = 0, i$ signifie que j prend toutes les valeurs entre 0 et $N + 1$ sauf i .

Nous avons donc $N + 2$ points de collocations : N points intérieurs et 2 extrémités (z_0 et z_L). Les points de collocations sont généralement les racines décalées du polynôme de Legendre.

On notera que :

$$\bullet \quad l_i(z_j) = \begin{cases} 1; & i = j \\ 0; & i \neq j \end{cases}$$

Par conséquent :

- $V(t, z_j) \approx \sum_{i=0}^{N+1} v_i(t) l_i(z_j) = V_j(t)$
 - V_i a la même unité que V ;
 - V_i est du même ordre de grandeur que V .

Raghavan et al. (1985) ont comparé l'efficacité de la méthode des collocations orthogonales avec celle de la méthode des différences finies. Pour cela, ils ont simulé un procédé PSA avec chacune des deux méthodes. Ils n'ont utilisé que quinze points de collocations, alors qu'ils ont dû diviser l'espace en trente intervalles pour les différences finies, pour une précision comparable. Ils en ont conclu que la méthode des collocations orthogonales est plus efficace que celle des différences finies dans leur cas. Cette méthode est utilisée par Hassan *et al.* (1987) et Latifi *et al.* (2008) pour l'approximation du domaine spatial des modèles du procédé PSA.

3.3.3 Méthode des volumes finis

La méthode des volumes finis développée par Patankar (1980) est bien adaptée pour la modélisation des lois de conservation hyperbolique étant donné leurs propriétés de conservation inhérente (Leonard (1979)). Par conséquent, elle est largement utilisée dans plusieurs domaines de l'ingénierie comme la mécanique des fluides ou les transferts de chaleur et de matière. L'application de cette méthode pour la discrétisation spatiale nous

3.3. MÉTHODES DE DISCRÉTISATION SPATIALE

permet de transformer un système d'équations algébro-différentielles partielles (PDAE) en un système d'équations algébro-différentielles (DAE) tout en satisfaisant les principes de conservation de la matière, de quantité de mouvement et d'énergie. La caractéristique la plus importante de cette méthode de discrétisation est la conservation locale du flux : le flux d'extensité est conservé d'un volume de discrétisation à ses voisins. Grâce à cette caractéristique, la méthode des volumes finis est très importante pour discrétiser des problèmes pour lesquels le flux est d'importance.

Contrairement à la méthode des différences finies où la valeur d'une variable est approximée sur chaque noeud, cette méthode consiste à approximer la valeur intégrale moyenne sur un petit volume dit volume de contrôle. Le domaine spatial est divisé en un nombre fini de volumes et les équations aux dérivées partielles sont intégrées sur chaque volume i :

$$\int_{z_{i-1/2}}^{z_{i+1/2}} f(z) dz = \Delta_i \bar{f}_i \quad (3.5)$$

où Δ_i est la longueur spatiale d'un volume i et $\bar{f}_i$ est la moyenne de f dans le volume i . Nous supposons que $\bar{f}_i = f_i$ où f_i est la valeur de f au centre de volume i .

Le schéma de discrétisation spatiale d'un procédé PSA pour un modèle monodimensionnel est montré sur la figure (3.4).

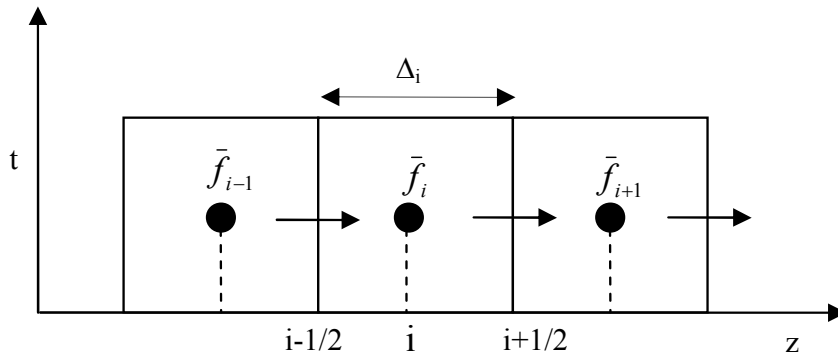


Figure 3.4: Discrétisation monodimensionnelle par la méthode des volumes finis

Cette méthode nous permet ainsi d'assurer que le système discrétisé vérifie le principe de conservation sur chaque volume de contrôle et ainsi sur le domaine complet de la discrétisation. L'autre caractéristique importante de la méthode des volumes finis est qu'elle peut être utilisée sur des géométries arbitraires avec des mailles structurées ou non structurées.

Il est important de remarquer que le choix du maillage peut être important pour les modèles qui mettent en jeu différentes variables (concentration, pression, vitesse et température etc.). Dans la plupart des cas, un arrangement colloqué des noeuds est utilisé où les mêmes noeuds sont utilisés pour différents variables. Au contraire, un arrangement décalé des noeuds est également possible où les noeuds considérés pour une variable sont décalés par rapport aux noeuds d'une autre variable.

Nous avons constaté que la discrétisation spatiale par cette méthode est réalisée en considérant la valeur d'une variable au centre des volumes de contrôle, tandis que les conditions aux limites sont exprimées sur les faces des volumes. Les flux de convection aussi ont besoin des valeurs aux faces. Elles sont approximées à l'aide de plusieurs schémas d'interpolations présentés ci-dessous.

Schéma linéaire

L'approximation linéaire est la solution la plus simple pour interpoler les valeurs aux centres et faces des volumes de contrôle. Pour un maillage uniforme, les valeurs sur les faces peuvent être calculées par :

$$\bar{f}_{i-\frac{1}{2}} = \frac{\bar{f}_{i-1} + \bar{f}_i}{2} \quad (3.6)$$

Ce schéma est inadapté aux transferts dominés par la convection (donc à la plupart des écoulements).

Schéma upwind

Ce schéma décentré consiste à prendre en compte l'effet du sens de l'écoulement dans le transfert d'une extensité. Le schéma upwind d'ordre 1 peut être exprimé par :

$$\bar{f}_{i-\frac{1}{2}} = \begin{cases} \bar{f}_{i-1} & \text{si vitesse} > 0 \\ \bar{f}_i & \text{si vitesse} < 0 \end{cases} \quad (3.7)$$

Un autre schéma appelé hybride, combine l'avantage des schémas linéaire et upwind. Parmi les autres schémas d'interpolation, on peut citer le schéma exact, le schéma puissance, le schéma Quick, etc...

Webley et He (2000) ont montré l'application de la méthode des volumes finis sur les procédés cycliques d'adsorption avec les schémas d'interpolation qui prennent en compte les différentes conditions aux limites.

Nous avons utilisé le schéma upwind afin de prendre en compte l'effet du sens de l'écoulement dans les transferts de matière et de chaleur.

3.4 Application de la méthode des lignes aux procédés PSA

Afin de discrétiser le domaine spatial, les méthodes des collocations orthogonales et des volumes finis sont appliquées aux modèles de procédés PSA établis dans le chapitre précédent. Nous allons d'abord mettre en oeuvre la discrétisation spatiale sur les différents modèles par la méthode des collocations orthogonales et ensuite par la méthode des volumes finis.

3.4.1 Discrétisation spatiale par collocations orthogonales

3.4.1.1 Modèle isotherme avec états gelés (I-EG-CO)

Dans un premier temps, on applique la méthode des collocation orthogonales au modèle isotherme avec états gelés du procédé PSA de Chihara et Suzuki (1983b) (voir Annexe A).

Les approximations suivantes sont utilisées :

$$\bar{c}(\bar{t}, \bar{z}) \approx \sum_{i=1}^{N+2} \bar{c}_i(t) l_i(\bar{z}) \quad (3.8)$$

$$\bar{q}(\bar{t}, \bar{z}) \approx \sum_{i=1}^{N+2} \bar{q}_i(t) l_i(\bar{z}) \quad (3.9)$$

Le modèle discrétisé résultant peut être exprimé à l'aide des équations algébro-différentielles (DAE) suivantes :

$$\frac{d\bar{c}_i}{dt} + \tau_a \left[\sum_{j=1}^{N+2} \bar{c}_j(\bar{t}) \dot{l}_j(\bar{z}_i) \right] + \tau_b \frac{d\bar{q}_i}{dt} = 0 \quad (3.10)$$

$$\frac{d\bar{q}_i}{dt} = \tau_f (\bar{q}_i^* - \bar{q}_i) \quad (3.11)$$

$$\bar{q}_i^* = K \bar{c}_i \quad (3.12)$$

où $i = 1, 2, \dots, N$.

Les conditions initiales et aux limites pour chaque étape sont données dans le tableau (3.1).

Adsorption	Purge
$P = P_H$	$P = P_B$
$u = u_H$	$u = -u_L = -\gamma u_H$
$\bar{t} = 0 : \bar{c}_i = \bar{c}_{II}; \bar{q}_i = \bar{q}_{II}; i = 1, \dots, N + 2$	$\bar{t} = 0: \bar{c}_i = \bar{c}_I \frac{P_B}{P_H}; \bar{q}_i = \bar{q}_I; i = 1, \dots, N + 2$
$\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \bar{c}_1 = 1$	$\bar{z} = 1; \forall t : \bar{c}_{N+2} = \bar{c}_I \frac{P_B}{P_H}$

Tableau 3.1: Conditions initiales et aux limites (I-EG-CO)

3.4.1.2 Modèle non isotherme avec états gelés (NI-EG-CO)

Par rapport au modèle précédent, ici on prend en compte la température en plus (voir Annexe A).

L'approximation suivante de la température est utilisée :

$$\bar{T}(\bar{t}, \bar{z}) \approx \sum_{i=1}^{N+2} \bar{T}_j(t) l_j(\bar{z}) \quad (3.13)$$

Les équations suivantes sont rajoutées aux équations du modèle isotherme précédent pour obtenir les équations discrétisées du modèle non isotherme.

$$K_i = \exp\left(-\frac{\Delta H}{RT_o} \left(\frac{\bar{T}_i}{\bar{T}_i + 1}\right)\right) \quad (3.14)$$

$$\frac{d\bar{T}_i}{d\bar{t}} + \tau_H \left[\sum_{j=1}^{N+2} \bar{T}_j(\bar{t}) \dot{l}_j(\bar{z}_i) \right] - \tau_L \left[\sum_{j=1}^{N+2} \bar{T}_j(\bar{t}) \ddot{l}_j(\bar{z}_i) \right] + \tau_W \bar{T}_i - \beta \frac{d\bar{q}_i}{d\bar{t}} = 0 \quad (3.15)$$

où $i = 1, 2, \dots, N$.

En plus des conditions initiales et aux limites du tableau (3.1), celles qui portent sur la température sont prises en compte. Elles sont explicitées dans le tableau (3.2).

Adsorption	Purge
$\bar{t} = 0 : \bar{T}_i = \bar{T}_{II}$	$\bar{t} = 0: \bar{T}_i = \bar{T}_I$
$\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \bar{T}_1 = 1$	$\bar{z} = 1; \forall t : \bar{T}_{N+2} = 1$
$\forall \bar{t} : \sum_{i=1}^{N+2} \bar{T}_i \dot{l}_i(z_{N+2}) = 0$	$\forall \bar{t} : \sum_{i=1}^{N+2} \bar{T}_i \dot{l}_i(z_1) = 0$
$i = 1, \dots, N + 2$	$i = 1, \dots, N + 2$

Tableau 3.2: Conditions initiales et aux limites (NI-EG-CO)

3.4.2 Discrétisation spatiale par volumes finis

3.4.2.1 Modèle isotherme avec états gelés (I-EG-VF)

Le modèle adimensionnel du procédé est discrétisé à l'aide du schéma upwind. Les équations algébro-différentielles (DAE) résultantes sont données par :

$$\frac{d\bar{c}_i}{d\bar{t}} + \tau_a \frac{\bar{c}_{i+\frac{1}{2}} - \bar{c}_{i-\frac{1}{2}}}{\Delta\bar{z}} + \tau_b \frac{d\bar{q}_i}{d\bar{t}} = 0 \quad (3.16)$$

$$\frac{d\bar{q}_i}{d\bar{t}} = \tau_f (\bar{q}_i^* - \bar{q}_i) \quad (3.17)$$

$$\bar{q}_i^* = K\bar{c}_i \quad (3.18)$$

où $i = 1, 2, \dots, N$.

Les conditions initiales et aux limites pour chaque étape sont données dans le tableau (3.3).

Adsorption	Purge
$P = P_H$	$P = P_B$
$u = u_H$	$u = -u_L = -\gamma u_H$
$\bar{t} = 0 : \bar{c}_i = \bar{c}_{II}; \bar{q}_i = \bar{q}_{II}; i = 1, \dots, N$	$\bar{t} = 0 : \bar{c}_i = \bar{c}_I \frac{P_B}{P_H}; \bar{q}_i = \bar{q}_I; i = 1, \dots, N$
$\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \bar{c}_1 = 1$	$\bar{z} = 1; \forall t : \bar{c}_N = \bar{c}_I \frac{P_B}{P_H}$

Tableau 3.3: Conditions initiales et aux limites (I-EG-VF)

3.4.2.2 Modèle non isotherme avec états gelés (NI-EG-VF)

Par rapport au modèle isotherme, seule la température est discrétisée ici. Les équations suivantes sont rajoutées aux équations du modèle isotherme pour obtenir les équations discrétisées du modèle non isotherme.

$$K = \exp\left(-\frac{\Delta H}{RT_o} \left(\frac{\bar{T}_i}{\bar{T}_i + 1}\right)\right) \quad (3.19)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\bar{T}_i}{d\bar{t}} + \tau_H \frac{\bar{T}_{i+\frac{1}{2}} - \bar{T}_{i-\frac{1}{2}}}{\Delta\bar{z}} - \tau_L \frac{(\frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{z}})_{i+\frac{1}{2}} - (\frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{z}})_{i-\frac{1}{2}}}{\Delta\bar{z}} \\ + \tau_W (\bar{T}_i - 1) - \beta \frac{d\bar{q}_i}{d\bar{t}} = 0 \end{aligned} \quad (3.20)$$

où $i = 1, 2, \dots, N$.

De la même manière que pour la méthode des collocations orthogonales, seules les conditions initiales et aux limites sur la température sont données dans le tableau (3.4).

Adsorption	Purge
$\bar{t} = 0 : \bar{T}_i = \bar{T}_{II}$	$\bar{t} = 0 : \bar{T}_i = \bar{T}_I$
$\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \bar{T}_1 = 1$	$\bar{z} = 1; \forall \bar{t} : \bar{T}_N = 1$
$\bar{z} = 1 : \bar{T}_{N+\frac{1}{2}} - \bar{T}_{N-\frac{1}{2}} = 0$	$\bar{z} = 0 : \bar{T}_{1+\frac{1}{2}} - \bar{T}_{1-\frac{1}{2}} = 0$
$i = 1, \dots, N$	$i = 1, \dots, N$

Tableau 3.4: Conditions initiales et aux limites (NI-EG-VF)

Ces conditions sont rajoutées à celles du tableau (3.3) pour tenir compte du caractère non isotherme du procédé.

3.4.2.3 Modèle non isotherme (NI-VF)

La discrétisation du modèle non isotherme sans états gelés (voir Annexe A) à l'aide de la méthode des volumes finis basée sur le schéma upwind conduit aux équations suivantes :
Bilan de matière :

$$\frac{\partial \bar{y}_i}{\partial \bar{t}} + cst_1 \bar{u}_i \frac{\bar{y}_{i+\frac{1}{2}} - \bar{y}_{i-\frac{1}{2}}}{\Delta \bar{z}} + \left(\frac{1}{cst_{15}} - \bar{y}_i \right) cst_2 \frac{\bar{T}_i}{\bar{P}_i} \frac{\partial \bar{q}_i}{\partial \bar{t}} = 0 \quad (3.21)$$

Bilan de matière global :

$$\frac{\bar{u}_{i+\frac{1}{2}} - \bar{u}_{i-\frac{1}{2}}}{\Delta \bar{z}} - \frac{cst_3}{\bar{T}_i} \frac{\partial \bar{T}_i}{\partial \bar{t}} + \frac{cst_4}{\bar{P}} \frac{\partial \bar{P}}{\partial \bar{t}} - \frac{\bar{u}_i}{\bar{T}_i} \frac{\bar{T}_{i+\frac{1}{2}} - \bar{T}_{i-\frac{1}{2}}}{\Delta \bar{z}} + cst_5 \frac{\bar{T}_i}{\bar{P}} \frac{\partial \bar{q}_i}{\partial \bar{t}} = 0 \quad (3.22)$$

Équation cinétique :

$$\frac{\partial \bar{q}_i}{\partial \bar{t}} = cst_6 (\bar{q}_i^* - \bar{q}_i) \quad (3.23)$$

Équilibre d'adsorption :

$$\bar{q}_i^* = \frac{cst_{11} b \bar{P} \bar{y}_i}{1 + cst_{12} b \bar{P} \bar{y}_i} \quad (3.24)$$

où

$$b_i = \frac{cst_{13}}{R \sqrt{\bar{T}_i}} \exp\left[-\frac{cst_{14}}{\bar{T}_i}\right] \quad (3.25)$$

Bilan d'énergie :

$$cst_7 \frac{\partial \bar{T}_i}{\partial \bar{t}} + cst_8 \left(\bar{u}_i \frac{\bar{T}_{i+\frac{1}{2}} - \bar{T}_{i-\frac{1}{2}}}{\Delta \bar{z}} + \bar{T}_i \frac{\bar{u}_{i+\frac{1}{2}} - \bar{u}_{i-\frac{1}{2}}}{\Delta \bar{z}} \right) + cst_9 \frac{\partial \bar{q}_i}{\partial \bar{t}} + cst_{10} (\bar{T}_i - 1) = 0 \quad (3.26)$$

3.5. FORMULATION HYBRIDE DES MODÈLES DE PSA

où $i = 1, 2, \dots, N$. N est le nombre de noeuds.

Les conditions initiales et aux limites pour chaque étape sont données dans le tableau (3.5).

Compression	Adsorption
$\bar{P} = 1 + (1 - \alpha) [\bar{t} - 1]$ $\bar{t} = 0 : \bar{y}_i = \bar{y}_{IV}; \bar{T}_i = \bar{T}_{IV}; \bar{q}_i = \bar{q}_{IV}$ $\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \bar{y}_1 = 1; \bar{T}_1 = 1$ $\bar{z} = 1; \forall \bar{t} : \bar{u}_N = 0$ $i = 1, \dots, N$	$\bar{P} = 1$ $\bar{t} = 0 : \bar{y}_i = \bar{y}_I; \bar{T}_i = \bar{T}_I; \bar{q}_i = \bar{q}_I$ $\bar{z} = 0; \forall t : \bar{y}_1 = 1; \bar{T}_1 = 1; \bar{u}_1 = 1$ $i = 1, \dots, N$
Décompression	Purge
$\bar{P} = \frac{1}{\alpha} + (\frac{1}{\alpha} - 1) [\bar{t} - 1]$ $\bar{t} = 0 : \bar{y}_i = \bar{y}_{II}; \bar{T}_i = \bar{T}_{II}; \bar{q}_i = \bar{q}_{II}$ $\bar{z} = 1 : \bar{y}_{N+\frac{1}{2}} - \bar{y}_{N-\frac{1}{2}} = 0; \bar{T}_N = \bar{T}_{II}; \bar{u}_N = 0$ $i = 1, \dots, N$	$\bar{P} = \frac{P_B}{P_H}$ $\bar{t} = 0 : \bar{y}_i = \bar{y}_{III}; \bar{T}_i = \bar{T}_{III}; \bar{q}_i = \bar{q}_{III}$ $\bar{z} = 1 : \bar{y}_N = \bar{y}_{II} \frac{P_B}{P_H}; \bar{T}_N = \bar{T}_{II}; \bar{u}_N = \frac{u_L}{u_f}$ $i = 1, \dots, N$

Tableau 3.5: Conditions initiales et aux limites (NI-VF)

3.5 Formulation hybride des modèles de PSA

Contrairement au procédé classique avec un seul modèle dynamique, le procédé PSA basé sur le cycle de Skarstrom (Skarstrom (1957)) emploie quatre différents modèles dynamiques pour un cycle. Pour la simulation et optimisation des procédés PSA, on considère un cycle comme un système et chaque étape comme un mode. Pour les commutations entre les différentes étapes, on utilise un ensemble de transitions. Afin de modéliser le système hybride pour le procédé d'adsorption modulée en pression, on a recours au formalisme développé par Galàn *et al.* (1999) et Ruban (1997).

On considère que le système S est exprimé comme suit :

$$S = \bigcup_k S^k \quad (3.27)$$

où chaque mode S_k est caractérisé par :

- Un ensemble de variables $\{\dot{x}^{(k)}, x^{(k)}, y^{(k)}, p\}$ où $x^{(k)}(p, t)$ sont des variables différentielles d'état, $y^{(k)}(p, t)$ les variables algébriques d'état, p les paramètres du système et t le temps qui varie entre $t_o^{(k)}$ et $t_f^{(k)}$.

- Un ensemble d'équations $\{f^{(k)}(\dot{x}^{(k)}, x^{(k)}, y^{(k)}, p) = 0\}$, généralement un système couplé d'équations différentielles et algébriques.
- Un ensemble de transitions aux autres modes. Les transitions sont constituées de :
 1. Conditions de transition : ces conditions $L_j^{(k)}(\dot{x}^{(k)}, x^{(k)}, y^{(k)}, t_f^{(k)}, p) = 0$, $j = 1, 2, \dots, NS$ déterminent les instants de commutation (switch) du mode k au mode j .
 2. Fonctions de transition : ces fonctions $x^{(k+1)} = x^{(k)} + \Delta_j^{(k)}(x^{(k)}, t_f^{(k)}, p)$ relient les variables du mode S_k aux variables du mode S_j aux instants de transition $t_f^{(k)}$. Les conditions initiales sont traitées comme un cas spécial des transitions pour le mode initial S_1 .

Nous allons utiliser ce formalisme pour la formulation hybride des différents modèles de procédés PSA.

3.5.1 Modèle isotherme avec états gelés

Le modèle isotherme avec états gelés du procédé PSA représenté par la figure (3.5) peut être écrit sous la forme hybride comme suit :

$$\dot{x}^{(k)} = f^{(k)}(x^{(k)}, p), \quad k = 1, 2 \quad (3.28)$$

Les conditions de transition sont :

$$L_j^{(k)} = t - t_f^{(k)} = 0, \quad k = 1, 2, \quad j = 2, 1 \quad (3.29)$$

Les fonctions de transition liées à ces conditions de transition sont :

Pour la concentration dans le gaz

$$\begin{aligned} x^{(2)}(t_0^{(2)}) &= x^{(1)}(t_0^{(1)}) \frac{P_L}{P_H} \\ x^{(1)}(t_0^{(1)}) &= x^{(2)}(t_0^{(2)}) \end{aligned} \quad (3.30)$$

Pour la concentration dans le solide

$$\begin{aligned} x^{(2)}(t_0^{(2)}) &= x^{(1)}(t_0^{(1)}) \\ x^{(1)}(t_0^{(1)}) &= x^{(2)}(t_0^{(2)}) \end{aligned} \quad (3.31)$$

Les conditions initiales pour l'étape de compression (mode S_1), considérées comme un cas spécial de fonctions de transition, s'écrivent :

$$\Delta_1^{(0)} = x^{(1)}(t_0^{(1)}) - x_0^{(1)} = 0 \quad (3.32)$$

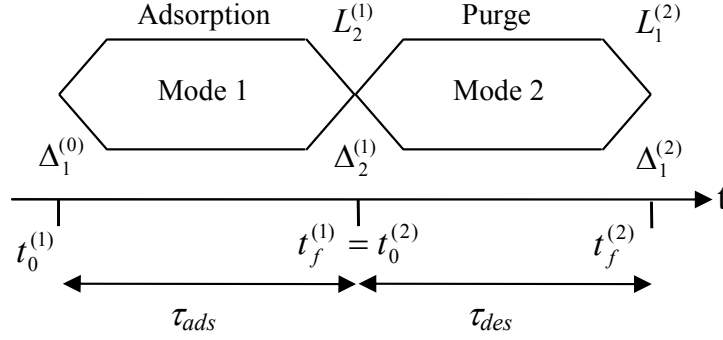


Figure 3.5: Représentation hybride du procédé PSA avec états gelés

Le vecteur des variables d'état est :

$$x^{(k),T} = \left(\bar{c}_0^{(k)}, \bar{c}_1^{(k)}, \dots, \bar{c}_{N+1}^{(k)}, \bar{q}_0^{(k)}, \bar{q}_1^{(k)}, \dots, \bar{q}_{N+1}^{(k)} \right) \quad (3.33)$$

Le vecteur des variables d'état initiales s'écrit :

$$x_0^{(1),T} = \left(\bar{c}_0^{(1),0}, \bar{c}_1^{(1),0}, \dots, \bar{c}_{N+1}^{(1),0}, \bar{q}_0^{(1),0}, \bar{q}_1^{(1),0}, \dots, \bar{q}_{N+1}^{(1),0} \right) \quad (3.34)$$

En outre, les instants de transition sont fournis par les durées des étapes du procédé τ_{ads}, τ_{pur} comme suit :

$$t_f^{(1)} = \tau_{ads} \quad (3.35)$$

$$t_f^{(2)} = \tau_{ads} + \tau_{des} \quad (3.36)$$

Le dernier instant de transition est la durée de cycle du procédé PSA.

3.5.2 Modèle non isotherme avec états gelés

Le modèle non isotherme avec états gelés du procédé PSA peut être également représenté par la figure (3.5). Sa forme hybride est exactement la même que pour le modèle isotherme avec la température en plus. Ainsi les équations s'écrivent :

$$\dot{x}^{(k)} = f^{(k)}(x^{(k)}, p), \quad k = 1, 2 \quad (3.37)$$

Les conditions de transition sont :

$$L_j^{(k)} = t - t_f^{(k)} = 0, \quad k = 1, 2, \quad j = 2, 1 \quad (3.38)$$

Les fonctions de transition liées à ces conditions de transition sont :

Pour la concentration dans le gaz

$$\begin{aligned} x^{(2)}(t_0^{(2)}) &= x^{(1)}(t_0^{(1)}) \frac{P_L}{P_H} \\ x^{(1)}(t_0^{(1)}) &= x^{(2)}(t_0^{(2)}) \end{aligned} \quad (3.39)$$

Pour la concentration dans le solide et la température

$$\begin{aligned} x^{(2)}(t_0^{(2)}) &= x^{(1)}(t_0^{(1)}) \\ x^{(1)}(t_0^{(1)}) &= x^{(2)}(t_0^{(2)}) \end{aligned} \quad (3.40)$$

Les conditions initiales pour l'étape de compression du premier cycle (mode S_1), considéré comme un cas spécial des fonction de transitions, sont :

$$\Delta_1^{(0)} = x^{(1)}(t_0^{(1)}) - x_0^{(1)} = 0 \quad (3.41)$$

Le vecteur des variables d'état est ici donné par :

$$x^{(k),T} = (\bar{c}_0^{(k)}, \bar{c}_1^{(k)}, \dots, \bar{c}_{N+1}^{(k)}, \bar{q}_0^{(k)}, \bar{q}_1^{(k)}, \dots, \bar{q}_{N+1}^{(k)}, \bar{T}_0^{(k)}, \bar{T}_1^{(k)}, \dots, \bar{T}_{N+1}^{(k)}) \quad (3.42)$$

Le vecteur initial des variables d'état s'écrit :

$$x_0^{(1),T} = (\bar{c}_0^{(1),0}, \bar{c}_1^{(1),0}, \dots, \bar{c}_{N+1}^{(1),0}, \bar{q}_0^{(1),0}, \bar{q}_1^{(1),0}, \dots, \bar{q}_{N+1}^{(1),0}, \bar{T}_0^{(1),0}, \bar{T}_1^{(1),0}, \dots, \bar{T}_{N+1}^{(1),0}) \quad (3.43)$$

Les instants de transition sont fournis par les durées des étapes du procédé τ_{ads}, τ_{pur} comme suit :

$$t_f^{(1)} = \tau_{ads} \quad (3.44)$$

$$t_f^{(2)} = \tau_{ads} + \tau_{des} \quad (3.45)$$

Le dernier instant de transition est la durée de cycle du procédé PSA.

3.5.3 Modèle non isotherme sans états gelés

Le modèle non isotherme du procédé PSA représenté par la figure (3.6) peut être écrit sous la forme hybride suivante :

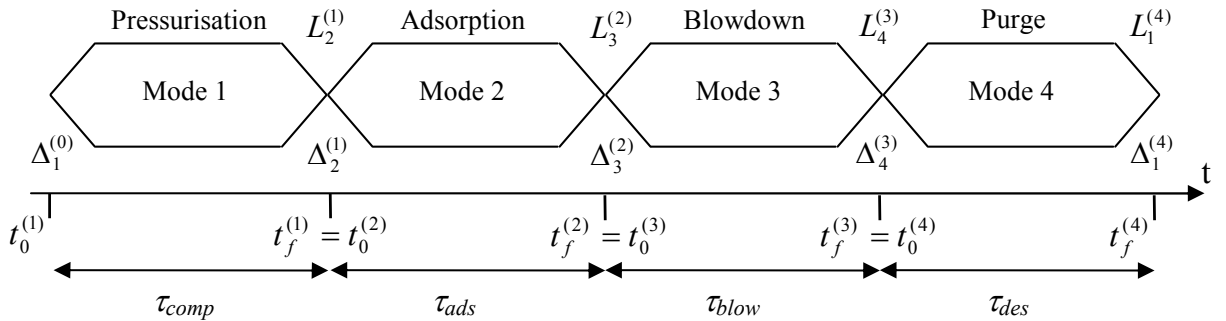


Figure 3.6: Représentation hybride du procédé PSA sans états gelés

$$\begin{aligned} \dot{x}^{(k)} &= f^{(k)}(x^{(k)}, y^{(k)}, p) \\ 0 &= g^{(k)}(x^{(k)}, y^{(k)}, p) \end{aligned} \quad (3.46)$$

3.6. CONCLUSION

Les conditions de transition sont :

$$L_j^{(k)} = t - t_f^{(k)} = 0 \quad (3.47)$$

Les fonctions de transition liées à ces conditions de transition sont :

$$x^{(k+1)}(t_0^{(k+1)}) = x^{(k)}(t_0^{(k)}) \quad (\text{c-à-d : } \Delta_j^{(k)} = 0) \quad (3.48)$$

où $k = 1, 2, 3, 4$ et $j = k + 1$

Les conditions initiales pour l'étape de compression (mode S_1) considérées comme un cas special des fonctions de transition sont :

$$\Delta_1^{(0)} = x^{(1)}(t_0^{(1)}) \quad (3.49)$$

Le vecteur des variables différentielles d'état est :

$$x^{(k),T} = (\bar{y}_1^{(k)}, \bar{y}_2^{(k)}, \dots, \bar{y}_N^{(k)}, \bar{q}_1^{(k)}, \bar{q}_2^{(k)}, \dots, \bar{q}_N^{(k)}, \bar{T}_1^{(k)}, \bar{T}_2^{(k)}, \dots, \bar{T}_N^{(k)}) \quad (3.50)$$

Le vecteur des variables algébriques d'état est :

$$y^{(k),T} = (\bar{u}_1^{(k)}, \bar{u}_2^{(k)}, \dots, \bar{u}_N^{(k)}) \quad (3.51)$$

Le vecteur initial des variables différentielles d'état s'écrit :

$$x_0^{(1),T} = (\bar{y}_1^{(1),0}, \bar{y}_2^{(1),0}, \dots, \bar{y}_N^{(1),0}, \bar{q}_1^{(1),0}, \bar{q}_2^{(1),0}, \dots, \bar{q}_N^{(1),0}, \bar{T}_1^{(1),0}, \bar{T}_2^{(1),0}, \dots, \bar{T}_N^{(1),0}) \quad (3.52)$$

En outre, les instants de transition sont fournis par les durées des quatre étapes du procédé $\tau_{comp}, \tau_{ads}, \tau_{dec}, \tau_{pur}$ comme suit :

$$t_f^{(1)} = \tau_{comp} \quad (3.53)$$

$$t_f^{(2)} = \tau_{comp} + \tau_{ads} \quad (3.54)$$

$$t_f^{(3)} = \tau_{comp} + \tau_{ads} + \tau_{dec} \quad (3.55)$$

$$t_f^{(4)} = \tau_{comp} + \tau_{ads} + \tau_{dec} + \tau_{pur} \quad (3.56)$$

Le dernier instant de transition est la durée du cycle du procédé PSA.

3.6 Conclusion

Les différentes méthodes de résolution d'un système à paramètres distribués ont été présentées dans ce chapitre. Nous avons choisi de résoudre les modèles des procédés PSA par la méthode des lignes. La discrétisation spatiale de différents modèles de procédés a été réalisée par les méthodes des collocations orthogonales et des volumes finis. Les modèles de procédés PSA sont formulés à l'aide de l'approche des systèmes hybrides. Nous allons utiliser ces modèles pour l'optimisation de ces procédés dans les chapitres suivants.

Chapitre 4

Optimisation dynamique des procédés hybrides

4.1 Introduction

Nous avons vu précédemment que les procédés PSA sont décrits par des modèles mathématiques dynamiques et hybrides caractérisés par des modes, des modèles, des fonctions et conditions de transition. L'optimisation de ces procédés doit par conséquent tenir compte de leur caractère hybride. Nous allons dans un premier temps présenter les conditions d'optimalité d'un système dynamique simple. Ensuite, nous établirons les conditions d'optimalité pour un système hybride.

4.2 Optimisation dynamique

4.2.1 Problème d'optimisation

On considère un système décrit par un ensemble d'équations différentielles ordinaires (ODE) de la forme :

$$\begin{aligned}\dot{x} &= f(x(t), u(t), p), \quad t \in [t_0, t_f] \\ x(t_0) &= x_0\end{aligned}\tag{4.1}$$

où $x(t)$ sont les variables d'état, $u(t)$ les variables de décision et p les paramètres.

L'objectif de l'optimisation est de déterminer le profil des variables de décision $u(t)$ et/ou les valeurs des paramètres qui optimisent un critère d'optimisation exprimé sous la

forme générale du type Bolza suivante :

$$J(u(t), p) = G(x(t_f, p)) + \int_{t_0}^{t_f} F(x(t), u(t), p, t) dt \quad (4.2)$$

où $G(x(t_f, p))$ est l'objectif à atteindre et le terme intégral $\int_{t_0}^{t_f} F(x(t), u(t), p, t) dt$ représente les moyens mis en oeuvre pour y parvenir.

Le critère de Lagrange peut être utilisé comme une alternative pour exprimer le critère de performance comme suit :

$$J(u(t), p) = \int_{t_0}^{t_f} F(x(t), u(t), p, t) dt \quad (4.3)$$

Une autre façon d'exprimer le critère de performance est le critère de Meyer :

$$J(u(t), p) = G(x(t_f, p)) \quad (4.4)$$

Il est important de noter que tous les critères peuvent se ramener au critère de Lagrange.

Le problème d'optimisation dynamique sans contrainte se résume ainsi :

$$\begin{aligned} \min_{u(t), p} J &= G(x(t_f), p) + \int_{t_0}^{t_f} F(x(t), u(t), p, t) dt \\ \text{soumis à } \dot{x} &= f(x(t), u(t), p) \quad t_0 \leq t \leq t_f \\ x(t_0) &= x_0 \end{aligned} \quad (4.5)$$

Il existe des méthodes qui permettent de résoudre ce type de problème, on cite :

- Principe de Bellman (Bellman (1957))
- Principe du maximum de Pontryagin (Pontryagin *et al.* (1964))
- Méthodes variationnelles (Smith (1974), Bryson et Ho (1975))

Le Principe de Bellman possède des fondements théoriques sensiblement différents par rapport aux deux dernières méthodes. En revanche, les résultats des méthodes variationnelles et ceux du Principe du Maximum reposent sur des bases théoriques similaires. Néanmoins, il est possible de passer d'une méthode à l'autre. Le choix de la méthode de résolution dépend de considérations techniques (moyens de calcul) et théoriques (nature et dimension du problème, non linéarités, contraintes).

Il est important de noter que ces méthodes ne nous permettent d'obtenir que les conditions nécessaires d'optimalité et par conséquent, pour les problèmes non convexes, le caractère global de la solution n'est pas garanti. Les conditions nécessaires d'optimalité pour ce système seront déterminées dans la section suivante.

4.2.2 Conditions nécessaires d'optimalité

Nous allons utiliser l'approche variationnelle dans l'intention de définir les conditions nécessaires d'optimalité (du premier ordre). Ceci permet d'expliquer l'origine des variables introduites et la manière dont sont traitées les différentes formes que peuvent prendre les problèmes d'optimisation.

Pour déterminer les conditions d'optimalité, on forme un critère d'optimisation augmenté en agrégeant le critère et le modèle du procédé :

$$\bar{J} = G(x(t_f), p) + \int_{t_0}^{t_f} [F(x, u, p) + \lambda^T \{f(x, u, p, t) - \dot{x}\}] dt \quad (4.6)$$

où $\lambda \in R^n$ désigne les variables adjointes du problème.

Cette définition nous permet de transformer le problème d'optimisation (4.5) soumis à la contrainte du modèle du procédé en un problème sans contrainte.

Par souci de simplification on pose

$$H(x, \lambda, u, p) = F(x, u, p) + \lambda^T f(x, u, p) \quad (4.7)$$

H est appelée Hamiltonien. En utilisant cette fonctionnelle, il est possible de réécrire le critère sous la forme :

$$\bar{J} = G(x(t_f), p) + \int_{t_0}^{t_f} [H(x, \lambda, u, p) - \lambda^T \dot{x}] dt \quad (4.8)$$

Des variations $\delta \bar{J}$, induites par les variations du vecteur de décision δu et du vecteur des paramètres δp , sont exprimées comme suit:

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} = & \left[\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x \right]_{t_f} + \frac{\partial G}{\partial p^T} \delta p + \int_{t_0}^{t_f} \left(\frac{\partial H}{\partial x^T} \delta x + \frac{\partial H}{\partial \lambda^T} \delta \lambda + \frac{\partial H}{\partial u^T} \delta u + \frac{\partial H}{\partial p^T} \delta p \right) dt \\ & + \int_{t_0}^{t_f} (-\delta \lambda^T \dot{x} - \lambda^T \delta \dot{x}) dt \end{aligned} \quad (4.9)$$

Le réarrangement de l'équation (4.9) donne:

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} = & \left[\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x \right]_{t_f} + \frac{\partial G}{\partial p^T} \delta p + \int_{t_0}^{t_f} \left(\frac{\partial H}{\partial x^T} \delta x - \lambda^T \delta \dot{x} \right) dt \\ & + \int_{t_0}^{t_f} \delta \lambda^T \left(\frac{\partial H}{\partial \lambda} - f \right) dt + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u^T} \delta u dt + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial H}{\partial p^T} \delta p dt \end{aligned} \quad (4.10)$$

Le choix du multiplicateur λ se fait de manière à ce qu'il nous permette de supprimer la variation δx de l'équation (4.10), ainsi on pose :

$$\dot{\lambda} = -\frac{\partial H}{\partial x} \quad (4.11)$$

Sachant que l'intégration par parties du terme

$$\int_{t_0}^{t_f} \lambda^T \delta \dot{x} dt = [\lambda^T \delta x]_{t_0}^{t_f} - \int_{t_0}^{t_f} \dot{\lambda}^T \delta x dt \quad (4.12)$$

et la prise en compte de l'équation (4.12) dans l'équation (4.10) nous donne :

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} = & \left[\left(\frac{\partial G}{\partial x^T} - \lambda^T \right) \delta x \right]_{t_f} + [\lambda^T \delta x]_{t_0} + \frac{\partial G}{\partial p^T} \delta p \\ & + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u^T} \delta u dt + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial H}{\partial p^T} \delta p dt \end{aligned} \quad (4.13)$$

Comme c'est souvent le cas dans les systèmes physiques, on suppose que les conditions initiales sont fixées ($\delta x_0 = 0$), les variations du critère s'écrivent finalement:

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} = & \left[\left(\frac{\partial G}{\partial x^T} - \lambda^T \right) \delta x \right]_{t_f} + \frac{\partial G}{\partial p^T} \delta p \\ & + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u^T} \delta u dt + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial H}{\partial p^T} \delta p dt \end{aligned} \quad (4.14)$$

Quand la variation $\delta \bar{J}$ est nulle quelles que soient les variations du vecteur de décision $u(t)$ et du vecteur de paramètres p , alors on dit que les conditions nécessaires de premier ordre sont satisfaites. Ainsi ces conditions seront décrites comme suit:

- la condition d'optimalité pour les variables de décision :

$$\frac{\partial H}{\partial u} = 0, \quad \forall t \in [t_0, t_f] \quad (4.15)$$

- la condition d'optimalité pour les paramètres:

$$\frac{\partial G}{\partial p} + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial H}{\partial p} dt = 0 \quad (4.16)$$

- la définition des variables adjointes :

$$\dot{\lambda} = -\frac{\partial H}{\partial x}, \quad \forall t \in [t_0, t_f] \quad (4.17)$$

- les conditions terminales pour les variables adjointes :

$$\lambda(t_f) = \frac{\partial G}{\partial x} \Big|_{t_f} \quad (4.18)$$

Il en résulte ainsi, un problème aux conditions aux limites partagées (Two point boundary value problem - TPBVP) de dimension $(2n + m + l)$. Ce système d'équations est composé de n équations d'état, de n équations adjointes, de m équations pour l'optimalité des variables de décision et de l équations pour l'optimalité des paramètres.

4.3 Problème d'optimisation sous contraintes

Les problèmes d'optimisation sous contraintes sont souvent rencontrés en génie des procédés. Les contraintes sont souvent utilisées pour prendre en compte les aspects liés à l'économie, la sécurité, l'environnement etc.

Elles peuvent être classées selon leur forme de la façon suivante (Goh et Teo (1988), Chen et Hwang (1990)):

1. Contrainte d'égalité de dimension infinie :

$$\phi(x, u, p, t) = 0 \quad t \in [0, \tau], \quad \tau \leq t_f \quad (4.19)$$

2. Contrainte d'inégalité de dimension infinie :

$$\phi(x, u, p, t) \geq 0 \quad t \in [0, \tau], \quad \tau \leq t_f \quad (4.20)$$

3. Contrainte d'égalité intérieure :

$$\phi(x, u, p, \tau) = 0, \quad \tau \in [0, t_f] \quad (4.21)$$

4. Contrainte d'inégalité intérieure :

$$\phi(x, u, p, \tau) \geq 0, \quad \tau \in [0, t_f] \quad (4.22)$$

5. Contrainte d'égalité terminale :

$$\phi(x, u, p, t_f) = 0 \quad (4.23)$$

6. Contrainte d'inégalité terminale :

$$\phi(x, u, p, t_f) \geq 0 \quad (4.24)$$

Ces contraintes peuvent être représentées sous une forme canonique équivalente à la forme générale du critère d'optimisation :

$$J_i = G_i(x(t_f), p) + \int_{t_0}^{t_f} F_i(x(t), u(t), p, t) dt = 0 \quad (4.25)$$

où $i = 1, 2, \dots, r$. r est le nombre de contraintes.

Les formes canoniques des différents types de contraintes sont présentées ci-dessous :

1. Contrainte d'égalité de dimension infinie :

$$G_i = 0; \quad F_i = \omega [\phi(x, u, p, t)]^2; \quad J_i = 0 \quad (4.26)$$

où ω est un facteur de pondération positif.

2. Contrainte d'inégalité de dimension infinie :

$$G_i = 0; \quad F_i = \omega \min [0, \phi(x, u, p, t)]^N; \quad J_i = 0 \quad (4.27)$$

où $N : entier > 1$.

3. Contrainte d'égalité intérieure :

$$G_i = \phi(x, u, p, \tau); \quad F_i = 0; \quad J_i = 0 \quad (4.28)$$

4. Contrainte d'inégalité intérieure :

$$G_i = \phi(x, u, p, \tau); \quad F_i = 0; \quad J_i \geq 0 \quad (4.29)$$

5. Contrainte d'égalité terminale :

$$G_i = \phi(x, u, p, t_f); \quad F_i = 0; \quad J_i = 0 \quad (4.30)$$

6. Contrainte d'inégalité terminale :

$$G_i = \phi(x, u, p, t_f); \quad F_i = 0; \quad J_i \geq 0 \quad (4.31)$$

Les différents types de contraintes sont pris en compte en introduisant pour chacune un hamiltonien H_i et un vecteur adjoint λ_i :

- Pour les types de contrainte (1), (2), (3) et (4) :

$$\begin{aligned} H_i(x, \lambda, u, p) &= F_i(x, u, p) + \lambda_i^T f(x, u, p) \\ \dot{\lambda}_i &= -\frac{\partial H_i}{\partial x} \\ \lambda_i(t_f) &= 0 \end{aligned} \quad (4.32)$$

- Pour les types de contrainte (5) et (6) :

$$\begin{aligned} H_i(x, \lambda, u, p) &= F_i(x, u, p) + \lambda_i^T f(x, u, p) \\ \dot{\lambda}_i &= -\frac{\partial H_i}{\partial x} \\ \lambda_i(t_f) &= \left. \frac{\partial G_i}{\partial x} \right|_{t_f} \end{aligned} \quad (4.33)$$

Inclure les contraintes dans le problème d'optimisation dynamique revient à augmenter le critère initial par chacune des contraintes pondérées :

$$\bar{J} = J_0 + \sum_{i=1}^r \nu_i J_i \quad (4.34)$$

où r correspond au nombre de contraintes et ν au vecteur des multiplicateurs de Lagrange.

La variation de $\bar{J}$, provoquée par la variation du vecteur de variables de décision u et du vecteur de paramètres p , donne une forme identique à l'expression (4.14) :

$$\delta \bar{J} = \left[\left(\frac{\partial \bar{G}}{\partial x^T} - \bar{\lambda}^T \right) \delta x \right]_{t_f} + \frac{\partial \bar{G}}{\partial p^T} \delta p + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial \bar{H}}{\partial u^T} \delta u \, dt + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial \bar{H}}{\partial p^T} \delta p \, dt \quad (4.35)$$

où le vecteur adjoint augmenté $\bar{\lambda}$, et les fonctionnelles augmentées $\bar{H}$ et $\bar{G}$ sont définies comme suit :

$$\bar{\lambda} = \lambda_0 + \sum_{i=1}^r \nu_i \lambda_i \quad (4.36)$$

$$\bar{H} = H_0 + \sum_{i=1}^r \nu_i H_i \quad (4.37)$$

$$\bar{G} = G_0 + \sum_{i=1}^r \nu_i G_i \quad (4.38)$$

Les conditions d'optimalité sont décrites comme suit:

- la condition d'optimalité de commande :

$$\frac{\partial \bar{H}}{\partial u} = 0, \quad \forall t \in [t_0, t_f] \quad (4.39)$$

- la condition d'optimalité des paramètres:

$$\frac{\partial \bar{G}}{\partial p} + \int_{t_0}^{t_f} \frac{\partial \bar{H}}{\partial p} dt = 0 \quad (4.40)$$

- la définition des variables adjointes :

$$\dot{\lambda}_i = -\frac{\partial H_i}{\partial x}; \quad i = 0, \dots, r; \quad \forall t \in [t_0, t_f] \quad (4.41)$$

- les conditions terminales adjointes :

$$\lambda_i(t_f) = \left. \frac{\partial G_i}{\partial x} \right|_{t_f}; \quad i = 0, \dots, r \quad (4.42)$$

Nous avons donc un problème aux conditions aux limites partagées (TPBVP) composé de n équations d'état, de n équations adjointes, de m équations pour l'optimalité des variables de décision, de l équations pour l'optimalité des paramètres et de n équations adjointes pour chaque contrainte.

4.4 Optimisation dynamique hybride

4.4.1 Position du problème

Contrairement à un système dynamique continu classique avec un seul modèle dynamique discuté précédemment, un système hybride est constitué par plusieurs modèles de procédés chacun valable dans un domaine particulier de temps. Les commutations entre les domaines sont assurées par un ensemble de transitions qui contient à la fois les conditions et les fonctions de transition.

Comme exemples de procédés hybrides, on peut citer les stations d'épuration (Chachuat *et al.* (2001)), les réacteurs à inversion de flux (Eigenberger et Nieken (1988)), les procédés de polymérisation en émulsion (Salhi *et al.* (2004)) et les procédés d'adsorption modulée en pression (Nilchan et Pantelides (1998)). On peut classer les systèmes hybrides en quatre types :

1. les systèmes ayant une séquence de modes fixée et dont les variables d'états sont continues aux instants de transition.
2. les systèmes où la séquence de modes est fixée mais dont les variables d'états sont discontinues aux instants de transition.

3. les systèmes dont la séquence de modes est déterminée par un ensemble de conditions de transition et les états sont continus aux instants de transitions.
4. les systèmes dont la séquence de modes est déterminée par un ensemble de conditions de transition et les états sont discontinus aux instants de transitions.

Les différentes étapes (compression, adsorption, décompression et purge) sont mises en oeuvre dans la même séquence pour les procédés PSA étudiés. Les variables d'états présentent des discontinuités (sauts) aux instants de commutation pour les modèles isotherme et non isotherme avec états gelés (système hybride de type 2). Dans le cas du modèle non isotherme sans états gelés les sauts de l'état n'existent pas (système hybride de type 1). Les conditions nécessaires d'optimalité pour ces systèmes seront déterminées dans la prochaine partie.

La formulation hybride des procédés PSA à été présentée dans la section (3.5) du chapitre précédent.

4.4.2 Conditions d'optimalité

L'approche variationnelle pour déterminer les conditions nécessaires d'optimalité pour un système discontinu sans contrainte est utilisée.

Le critère d'optimisation est exprimé sous une autre forme plus appropriée pour déterminer les conditions d'optimalité :

$$\min_{u(t), p} J = G(x(t_f), p) + \int_{t_0}^{t_f} F(x(t), u(t), p, t) dt \quad (4.43)$$

Le système dynamique hybride s'écrit :

$$\begin{aligned} \dot{x}(t) &= f_i(x(t), u(t), p), \quad \forall t \in [t_{i-1}^+, t_i^-] \\ x^+(t_o) &= x_o(t_o, p), \quad i = 1, \dots, n_s \end{aligned} \quad (4.44)$$

Les instant de commutations $t_1, t_2, \dots, t_n = t_f$ sont décrits par les conditions de transitions :

$$\begin{aligned} L_i(x_i^-, t_i, p) &= 0, \quad t_i \in [t_0, t_f], \quad i = 1, 2, \dots, n_s \\ t_o &= t_o(p) \end{aligned} \quad (4.45)$$

Les fonctions de transition sont définies comme :

$$\begin{aligned} x_i^+ &= x_i^- + \Delta_i(x_i^-, t_i, p), \quad i = 1, 2, \dots, n_s \\ x_0^+ &= x_0(t_0, p) \end{aligned} \quad (4.46)$$

Les hamiltoniens sont définies par :

$$H_i(x, \lambda, u, p) = F(x, u, p) + \lambda_i^T f_i(x, u, p), \quad i = 1, 2, \dots, n_s \quad (4.47)$$

Le problème d'optimisation sous contrainte peut être exprimé comme un problème d'optimisation sans contrainte par :

$$\bar{J} = G(x(t_f), p) + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} [H_i(x, \lambda, u, p) - \lambda_i^T \dot{x}] dt + \lambda^T(t_o) [x_o(t_o, p) - x^+(t_o)] \quad (4.48)$$

L'intégration du terme $\int_{t_o}^{t_f} \lambda^T \dot{x} dt$ par partie nous donne :

$$\begin{aligned} - \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \lambda_i^T \dot{x} dt &= - \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \dot{\lambda}_i^T x dt + \lambda^T(t_o^+) x(t_o^+) - \lambda^T(t_f^-) x(t_f^-) \\ &\quad + \sum_{i=1}^{n_s-1} [\lambda_i^T(t_i^+) x(t_i^+) - \lambda_i^T(t_i^-) x(t_i^-)] \end{aligned} \quad (4.49)$$

Par la substitution de l'équation (4.49) dans l'équation (4.48), on obtient :

$$\begin{aligned} \bar{J} &= G(x(t_f), p) + \lambda^T(t_o) x_o(t_o, p) - \lambda(t_f) x(t_f) + \\ &\quad \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} [H_i(x, \lambda, u, p) + \dot{\lambda}_i^T x] dt + \sum_{i=1}^{n_s-1} [\lambda_i^T(t_i^+) x(t_i^+) - \lambda_i^T(t_i^-) x(t_i^-)] \end{aligned} \quad (4.50)$$

La variation de la dernière somme s'écrit :

$$\begin{aligned} \delta \left[\sum_{i=1}^{n_s-1} (\lambda_i^T(t_i^+) x(t_i^+) - \lambda_i^T(t_i^-) x(t_i^-)) \right] \\ &= \sum_{i=1}^{n_s-1} (\lambda_i^T(t_i^+) \delta x(t_i^+) - \lambda_i^T(t_i^-) \delta x(t_i^-)) + \sum_{i=1}^{n_s-1} (\dot{\lambda}_i^T(t_i^+) x(t_i^+) - \dot{\lambda}_i^T(t_i^-) x(t_i^-)) \delta t_i \\ &= \sum_{i=1}^{n_s-1} \left[\lambda_i^T(t_i^+) \left(I + \frac{\partial \Delta_i}{\partial x_i^-} \right) - \lambda_i^T(t_i^-) \right] \delta x(t_i^-) + \sum_{i=1}^{n_s-1} \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial t_i} \delta t_i \\ &\quad + \sum_{i=1}^{n_s-1} \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial p} \delta p + \sum_{i=1}^{n_s-1} (\dot{\lambda}_i^T(t_i^+) x(t_i^+) - \dot{\lambda}_i^T(t_i^-) x(t_i^-)) \delta t_i, \quad i = 1, \dots, n_s - 1 \end{aligned} \quad (4.51)$$

où le lien entre $\delta x(t_i^+)$ et $\delta x(t_i^-)$ est déduit de l'équation (4.46) comme suit :

$$\delta x(t_i^+) = \delta x(t_i^-) + \frac{\partial \Delta_i(x_i^-, t_i, p)}{\partial x_i^-} \delta x(t_i^-) + \frac{\partial \Delta_i(x_i^-, t_i, p)}{\partial t_i^-} \delta t_i + \frac{\partial \Delta_i(x_i^-, t_i, p)}{\partial p} \delta p \quad (4.52)$$

La variation du terme intégral par rapport aux instants de discontinuité s'écrit :

$$\begin{aligned} \delta \left[\sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} (H_i(x, \lambda_i, u, p) + \dot{\lambda}_i^T x) dt \right] &= \\ \sum_{i=1}^{n_s-1} [H_i(t_i^-) + \dot{\lambda}_i^T(t_i^-) x(t_i^-) - H_{i+1}(t_i^+) - \dot{\lambda}_i^T(t_i^+) x(t_i^+)] \delta t_i \end{aligned} \quad (4.53)$$

Les variations des instants de commutation par rapport aux variations des variables $\delta x(t_i^-)$ et des paramètres δp calculées à partir des fonctions de transitions (4.45) s'écrivent :

$$\begin{aligned}\delta t_i &= a_i \delta x(t_i^-) + b_i \delta p \\ a_i &= - \left(\frac{\partial L_i(\cdot)}{\partial t_i} \right)^{-1} \frac{\partial L_i(\cdot)}{\partial x_i^-} \\ b_i &= - \left(\frac{\partial L_i(\cdot)}{\partial t_i} \right)^{-1} \frac{\partial L_i(\cdot)}{\partial p}\end{aligned}$$

Naturellement, ces expressions ne sont valables que si la matrice $\left(\frac{\partial L_i(\cdot)}{\partial t_i} \right)^{-1}$ existe, c'est-à-dire que $\frac{\partial L_i(\cdot)}{\partial t_i}$ est inversible.

La variation du critère de performance J peut être exprimée par :

$$\begin{aligned}\delta \bar{J} &= \left(\frac{\partial G}{\partial x(t_f)} - \lambda^T(t_f) \right) \delta x(t_f) + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \left(\frac{\partial H_i}{\partial x} + \dot{\lambda}^T \right) \delta x dt + \\ &\quad \sum_{i=1}^{n_s-1} \left[\left(\lambda_i^T(t_i^+) \left(I + \frac{\partial \Delta_i}{\partial x_i^-} \right) - \lambda_i^T(t_i^-) \right) + \right. \\ &\quad \left. \left(H_i(t_i^-) - H_{i+1}(t_i^+) + \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial t_i^-} \right) a_i \right] \delta x(t_i^-) \\ &\quad \left[\left(\lambda(t_o) \frac{\partial x_o(t_o, p)}{\partial t_o} - H(t_o) \right) \frac{dt_o}{dp} + \lambda^T(t_o) \frac{\partial x_o}{\partial p} + \right. \\ &\quad \left. \left(\frac{\partial G}{\partial t_f} + H(t_f) \right) \frac{dt_f}{dp} + \frac{\partial G}{\partial p} + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \left(\frac{\partial H_i}{\partial p} \right) dt + \right. \\ &\quad \left. \sum_{i=1}^{n_s-1} \left(\left(H_i(t_i^-) - H_{i+1}(t_i^+) + \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial t_i^-} \right) b_i + \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial p} \right) \right] \delta p \\ &\quad + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \left(\frac{\partial H_i}{\partial u} \right) dt \delta u\end{aligned}$$

Si le coefficient de $\delta x(t)$ dans l'équation de variation de $\bar{J}$ est égal à zéro, on obtient :

- les relations pour les variables adjointes :

$$\dot{\lambda}_i^T = - \frac{\partial H_i}{\partial x}, \quad i = 1, \dots, n_s \quad (4.54)$$

- les conditions aux limites des variables adjointes :

$$\lambda^T(t_{n_s}) = \frac{\partial G}{\partial x} \Big|_{t_{n_s}^-} \quad (4.55)$$

- les fonctions de commutation :

$$\lambda_i^T(t_i^-) = \left[\lambda_i^T(t_i^+) \left\{ I + \frac{\partial \Delta_i}{\partial x_i} + \left(\frac{\partial \Delta_i}{\partial t_i} - f_{i+1}(t_i^+) \right) a_i \right\} + \{ F(t_i^-) - F(t_i^+) \} a_i \right] (I - f_i(t_i^-) a_i)^{-1} \quad i = 1, \dots, n_s - 1$$

Dans le cas où les instants t_0 et t_f ne dépendent pas de p (ce qui correspond à la plupart des cas), alors on obtient :

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} = & \left[\lambda^T(t_0) \frac{\partial x_o}{\partial p} + \frac{\partial G}{\partial p} + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \left(\frac{\partial H_i}{\partial p} \right) dt + \right. \\ & \left. \sum_{i=1}^{n_s-1} \left(\left(H_i(t_i^-) - H_{i+1}(t_i^+) + \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial t_i} \right) b_i + \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial p} \right) \right] \delta p \\ & + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \left(\frac{\partial H_i}{\partial u} \right) dt \delta u \end{aligned}$$

Si en plus, les instants de commutation (t_i) sont connus a priori $a_i = b_i = 0$:

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} = & \left[\lambda^T(t_0) \frac{\partial x_o}{\partial p} + \frac{\partial G}{\partial p} + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \left(\frac{\partial H_i}{\partial p} \right) dt + \sum_{i=1}^{n_s-1} \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial p} \right] \delta p \\ & + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \left(\frac{\partial H_i}{\partial u} \right) dt \delta u \end{aligned} \quad (4.56)$$

Les conditions nécessaires d'optimalité pour le système dynamique hybride sont alors données par :

- la condition d'optimalité pour les variables de décision :

$$\frac{\partial H_i}{\partial u} = 0, \quad \forall t \in [t_{i-1}^+, t_i^-] \quad i = 1, \dots, n_s \quad (4.57)$$

- la condition d'optimalité pour les paramètres:

$$\lambda^T(t_0) \frac{\partial x_o}{\partial p} + \frac{\partial G}{\partial p} + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \left(\frac{\partial H_i}{\partial p} \right) dt + \sum_{i=1}^{n_s-1} \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial p} = 0 \quad (4.58)$$

- les relations pour les variables adjointes :

$$\dot{\lambda}_i^T = -\frac{\partial H_i}{\partial x}, \quad \forall t \in [t_{i-1}^+, t_i^-] \quad i = 1, \dots, n_s \quad (4.59)$$

- les conditions aux limites des variables adjointes :

$$\lambda^T(t_{n_s}) = \frac{\partial G}{\partial x} \Big|_{t_{n_s}^-} \quad (4.60)$$

- les fonctions de transition des variables adjointes :

$$\lambda_i^T(t_i^-) = \lambda_i^T(t_i^+) + \lambda_i^T(t_i^+) \frac{\partial \Delta_i}{\partial x_i^-}; \quad i = 1, \dots, n_s - 1 \quad (4.61)$$

Il en résulte ainsi un problème aux conditions aux limites partagées (Two point boundary value problem - TPBVP) de dimension $n_s \times (2n + m) + l$. Ce système d'équations est composé de $n_s \times n$ équations d'état, de $n_s \times n$ équations adjointes, de $n_s \times m$ équations pour l'optimalité des variables de décision et de l équations pour l'optimalité des paramètres.

4.4.3 Contraintes

Nous avons présenté les conditions d'optimalité pour un problème d'optimisation continu sous contraintes dans la section (4.3). Les conditions d'optimalité pour un système discontinu sous contraintes peuvent être obtenu de la même manière.

4.5 Méthodes de résolution

Nous avons présenté les conditions d'optimalité pour les systèmes continus et pour les systèmes hybrides dans la partie précédente. Nous avons constaté que ces conditions constituent des problèmes aux limites partagées (TPBVP) décrit à l'aide d'un système d'équations algébro-différentielles. C'est un problème bien posé mathématiquement, mais difficile à résoudre numériquement. La résolution de ces problèmes pose de nombreux problèmes. En fait, l'intégration du modèle du procédé et du système adjoint correspondant dans le sens contraire à leurs conditions aux limites naturelles peuvent être à l'origine d'instabilités (Ray et Szekely (1973)). Il est important de remarquer que l'intégration du modèle est stable dans le sens direct (t_0 à t_f) tandis que l'intégration du système adjoint est stable dans le sens inverse (t_f à t_0).

Il y a plusieurs méthodes qui nous permettent de résoudre les problèmes aux limites partagées linéaires. Par contre, ces méthodes ne sont plus adaptées pour la résolution des problèmes aux limites partagées non linéaires. Par conséquent, les méthodes itératives sont utilisées pour la résolution de ces problèmes. La convergence des méthodes itératives pour la résolutions de ces problèmes n'est pas garantie et est souvent lente (Cash et Wright (1990)). La résolution des problèmes TPBVP non linéaires par les méthodes itératives nous donne ainsi des solutions approximatives.

Nous allons présenter les différents les différents méthodes pour la résolution des problèmes TPBVP non linéaires. Nous commencerons par un bref aperçu des méthodes indirectes (basées sur le principe de Maximum). Ensuite les méthodes directes seront détaillées.

4.5.1 Méthodes indirectes

La résolution d'un problème TPBVP par les méthodes indirectes consiste à trouver une solution qui satisfait les conditions d'optimalité. Les principales méthodes indirectes pour la résolution de ces problèmes sont présentées ci-dessous (Bryson et Ho (1975) et Lee (1968)) :

4.5.1.1 La méthode de l'immersion invariante (Invariant Imbedding)

On trouve de nombreuses applications de cette méthode pour la résolution des problèmes aux limites partagées. Dans les plupart des cas, cette méthode est utilisée pour la résolution des TPBVP linéaires. Il est également possible de résoudre les problèmes TPBVP non linéaires par cette méthode. La résolution consiste à transformer en le problème TPBVP en un problème aux conditions initiales (Initial value problem - IVP). Le problème ainsi transformé peut être résolu numériquement.

4.5.1.2 Méthode BCI

La méthode BCI (Boundary Condition Iteration) consiste à rechercher les conditions initiales du système adjoint de sorte que les variables adjointes optimales soient égales, à l'instant final, aux conditions terminales adjointes optimales. À chaque itération, les équations d'état et adjointes sont ainsi intégrées dans le sens direct (de t_o à t_f). Les principaux inconvénients de cette méthode sont le temps de calcul et le risque d'instabilités dû à l'intégration directe du système adjoint. Le temps de calcul est important parce que les valeurs initiales des variables adjointes $\lambda(0)$ sont fixées arbitrairement et il est souvent difficile de prévoir le comportement d'une extrémité en fonction de l'autre.

4.5.1.3 Méthode CVI

La méthode CVI (Control Vector Iteration) consiste à estimer un profil initial de vecteur des variables de décision $u(t)$, ce qui permet d'intégrer les équations d'état de t_o à t_f et les équations adjointes de t_f à t_o . Le profil de commande $u(t)$ et les valeurs des paramètres p sont corrigés de façon que les conditions d'optimalité soient vérifiées. Il n'y a pas de risque

d'instabilité car le système adjoint est intégré dans le sens naturel : cette méthode est de type stable. Le temps de calcul en revanche est assez important, c'est l'inconvénient de la méthode.

4.5.2 Méthodes directes

La résolution d'un problème aux limites partagées par les méthodes directes consiste à transformer le problème d'optimisation dynamique de dimension infinie en un problème d'optimisation finie qui est résolu par les méthodes de programmation non linéaire (NLP). Les deux principales approches pour la résolution de TPBVP sont présentées ci-dessous :

4.5.2.1 Approche séquentielle

L'approche séquentielle (Goh et Teo (1988), Chen et Hwang (1990)) ou la méthode d'approximation du vecteur de commande (Control Vector Parametrization - CVP) consiste à approximer les variables de décision; l'état du système en revanche n'est pas paramétré. La paramétrisation de vecteur des variables de décision est réalisée plus souvent au moyen de polynômes (par exemple polynôme de Lagrange). Parmi les autres moyens d'approximation, on peut citer les fonctions de type spline d'ordre 0, c'est-à-dire constantes par morceaux (Piecewise constant functions). Si les fonctions polynomiales sont utilisées pour l'approximation des variables de décision, les coefficients des polynômes et la taille de différents éléments sont optimisés. L'état du système n'est pas paramétré, il est donc nécessaire de l'intégrer pour le calcul du critère et des contraintes du problème.

Dans le but de transformer un problème d'optimisation dynamique de dimension infinie en un problème de dimension finie, l'approximation des variables de décision est réalisée par des fonctions de la forme :

$$u = f(\bar{u}, t); \quad k = 1, \dots, m \quad (4.62)$$

où $\bar{u}$ est un vecteur de paramètres.

Il est important de remarquer que ces simplifications pour la méthode CVP nous conduisent aux solutions sous optimales par rapport à celles de la résolution analytique des problèmes aux limites partagées. Toutefois, la pratique montre que les solutions ainsi obtenues sont, en général, proches de celles de la résolution exacte. Par exemple on peut aussi approximer les variables de décision à l'aide d'un polynôme de Lagrange d'ordre N , sur l'intervalle de la forme $[t_{i-1}^+, t_i^-]$ comme suit :

$$\begin{aligned}
 u(t) &\approx \sum_{j=0}^N \bar{u}_{ij} \cdot \phi_j^{(N)}(\tau^{(i)}), \quad \forall t \in [t_{i-1}^+, t_i^-], \quad i = 1, \dots, n_s \\
 \text{avec } \phi_j^{(N)}(\tau^{(i)}) &= \begin{cases} 1; & \text{si } N = 0 \\ \prod_{l=0, j}^N \frac{(\tau^{(i)} - \tau_l)}{(\tau_j - \tau_l)}; & \text{si } N > 0 \end{cases} \\
 \tau^{(i)} &= \frac{t - t_{i-1}}{t_i - t_{i-1}} \\
 0 &= \tau_0 < \tau_1 < \dots < \tau_N < 1
 \end{aligned} \tag{4.63}$$

L'avantage de cette approximation est que :

$$u(t) = \bar{u}_{ij} \quad \text{si } \tau^{(i)} = \tau_j, \quad j = 0, \dots, N \tag{4.64}$$

Ce qui veut dire que les coefficients du polynôme sont du même ordre de grandeur que les variables de décision. Les N points de collocations sont, en général, les racines décalées du polynôme de Legendre.

Dans ce cas, le vecteur des variables de décision s'écrit :

$$\theta^T = (p^T, \bar{u}^T) \tag{4.65}$$

De la même façon, on peut exprimer les problèmes sous contraintes paramétrés en utilisant les formes canoniques précédemment présentées.

L'algorithme de résolution d'un problème d'optimisation paramétrée se décompose en deux sous problèmes : le sous problème relatif au calcul des valeurs du critère, des contraintes et leurs gradients par rapport aux variables de décision, et le sous problème relatif à la résolution du problème non linéaire résultant.

Le problème résultant peut être résolu soit par des méthodes directes (méthode stochastiques) qui ne nécessitent pas le calcul des gradients du critère et des contraintes, soit par des méthodes de gradient e.g. programmation quadratique successive (SQP). Nous avons choisi de résoudre le problème d'optimisation des procédés PSA à l'aide des méthodes de gradient. Il est pertinent de remarquer que la précision d'une méthode de gradient dépend fortement de la précision avec laquelle les gradients du problème sont calculés. Les méthodes du calcul des gradients sont :

- Méthode des différences finies

- Méthode des sensibilités
- Méthode de l'adjoint

Méthode des différences finies

Cette méthode est la plus simple à mettre en oeuvre et par conséquent la plus utilisée. L'approximation du gradient du critère de performance J par rapport à un paramètre θ_i par la méthode des différences finies centrée consiste à perturber J par une quantité finie $\Delta\theta_i$ de θ_i comme suit :

$$\nabla_{\theta} J \approx \frac{J(\theta + \delta\theta) - J(\theta)}{\delta\theta} \quad (4.66)$$

L'algorithme de calcul par la méthode de différences finies est comme suit :

1. Estimation de vecteur de paramètres θ ;
2. Intégration du système de l'état ;
3. Calcul des gradients du critère et des contraintes par (4.66);
4. Estimation des nouveaux vecteurs de paramètres θ à l'aide d'une méthode d'optimisation non linéaire (SQP), et recommencement à l'étape (2) jusqu'à convergence.

Méthode des sensibilités

Cette méthode consiste à intégrer les équations de sensibilité de l'état pour la calcul des gradients. Les équations de sensibilité sont obtenues comme suit :

$$\begin{aligned} \dot{s}_{\theta_k} &= \frac{d}{dt} \left[\frac{\partial x}{\partial \theta_k} \right] = \frac{\partial f^{(i)}}{\partial \theta_k} \cdot \phi_j^{(N)}(\tau^{(i)}) + \frac{\partial f^{(i)}}{\partial x} \cdot s_{\theta_k}; \quad k = 1, \dots, n_u \\ \dot{s}_{\theta_k} &= \frac{d}{dt} \left[\frac{\partial x}{\partial \theta_k} \right] = \frac{\partial f^{(i)}}{\partial \theta_k} + \frac{\partial f^{(i)}}{\partial x} \cdot s_{\theta_k}; \quad k = n_u + 1, \dots, n_p \end{aligned} \quad (4.67)$$

où $\theta^T = \left(\underbrace{\bar{u}^T}_{n_u}, \underbrace{p^T}_{n_p} \right)$

et $n_{\theta} = n_u + n_p$

Les discontinuités (saut) aux moments de commutations peuvent être prise en compte pour le calcul des gradients. Les relations sont obtenues par la différentiation des conditions de continuité de l'état à l'instant de commutation.

Les gradients sont calculées comme suit :

$$\nabla_{\theta_k} J \approx \int_{t_o}^{t_{ns}} \left(\frac{\partial F^{(i)}}{\partial \theta_k} \cdot \phi_j^{(N)}(\tau^{(i)}) + \frac{\partial F^{(i)}}{\partial x} \cdot s_{\theta_k} \right) dt; \quad k = 1, \dots, n_u \quad (4.68)$$

$$\nabla_{\theta_k} J \approx \frac{\partial G}{\partial \theta_k} + \int_{t_o}^{t_{ns}} \left(\frac{\partial F^{(i)}}{\partial \theta_k} + \frac{\partial F^{(i)}}{\partial x} \cdot s_{\theta_k} \right) dt; \quad k = n_u + 1, \dots, n_p \quad (4.69)$$

Les dérivées de G, F et f par rapports à x et θ peuvent être calculées soit numériquement soit analytiquement. Si les dérivées sont calculées numériquement par exemple grâce au code *DASPK* (Brown *et al.* (1994); Li et Petzold (1999)), les sensibilités sont connues comme sensibilités numériques. En revanche, si les dérivées sont calculées analytiquement par exemple à l'aide de *ADIFOR* (Bischof *et al.* (1992)), on obtient les sensibilités analytiques.

L'algorithme de calcul par la méthode des sensibilités est comme suit :

1. Estimation de vecteur des paramètres $\bar{u}$ et p .
2. Intégration du système d'état et des équations des sensibilités de t_0 à t_f .
3. Calcul des gradients du critère et des contraintes.
4. Estimation d'un nouveau vecteur de paramètres θ à l'aide d'une méthode d'optimisation non linéaire (SQP) et recommencement à l'étape (2) jusqu'à convergence.

Méthode du système adjoint

Cette méthode de résolution exploite les conditions d'optimalité basées sur l'approche variationnelle discutées précédemment. Le gradient de J par rapport à θ pour un système dynamique discontinu avec les durées des modes fixées et les variables d'états continues (sans sauts) aux instants de transition peut être écrit comme suit :

$$\nabla_{\theta_k} J \approx \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \frac{\partial H^{(i)}}{\partial \theta_k} \cdot \phi_j^{(N)}(\tau^{(i)}) dt; \quad k = 1, \dots, n_u \quad (4.70)$$

$$\nabla_{\theta_k} J \approx \left[\lambda^T(t_o) \frac{\partial x_o}{\partial \theta_k} + \frac{\partial G}{\partial \theta_k} + \sum_{i=1}^{n_s} \int_{t_{i-1}}^{t_i} \frac{\partial H^{(i)}}{\partial \theta_k} dt \right]; \quad k = n_u + 1, \dots, n_p \quad (4.71)$$

Les variables adjointes sont calculées par :

$$\dot{\lambda}^{(i)T} = -\frac{\partial H^{(i)}}{\partial x}, \quad \forall t \in [t_{i-1}^+, t_i^-] \quad i = 1, \dots, n_s \quad (4.72)$$

Les conditions aux limites des variables adjointes sont données par :

$$\lambda^T(t_{n_s}) = \frac{\partial G}{\partial x} \Big|_{t_{n_s}^-} \quad (4.73)$$

Les fonctions de transition de variables sont simples et exprimées par :

$$\lambda^{(i)T}(t_i^-) = \lambda^{(i)T}(t_i^+); \quad i = 1, \dots, n_s - 1 \quad (4.74)$$

L'algorithme de résolution est comme suit:

1. Estimation de vecteur de paramètres θ .
2. Intégration du système de l'état de t_0 à t_f .
3. Intégration du système adjoint, à rebours, de t_f à t_0 .
4. Calcul des gradients du critère et des contraintes.
5. Calcul d'un nouveau vecteur de paramètres θ à l'aide d'un solveur d'optimisation non linéaire (SQP) et recommencement à l'étape (2) jusqu'à convergence.

Il est pertinent de remarquer que cette méthode est de type faisable. Par ailleurs, elle est plus rapide que les méthodes BCI et CVI. Le seul inconvénient de cette méthode est l'intégration de l'état et du système adjoint à chaque itération.

4.5.2.2 Approche simultanée ou discrétisation totale

L'approche simultanée (Biegler (1984), Cuthrell et Biegler (1987), Logsdon et Biegler (1992)) ou la méthode paramétrée/paramétrée consiste à discrétiser le vecteur d'état en des variables de décision. Ainsi on évite la phase d'intégration pour la résolution du problème et par conséquent, le temps de calcul est significativement réduit. Toutefois, la dimension du problème issu de la discrétisation est importante.

La discrétisation de l'état peut être réalisée par les mêmes moyens que pour la discrétisation des variables de décision. Contrairement aux variables de décision, l'état est soumis à des contraintes différentielles d'égalité strictes et par conséquent, la méthode d'approximation doit être choisie de sorte que ces contraintes soient respectées. Pour les problèmes d'optimisation sous contraintes, l'état est discrétisé, en général, par des fonctions polynomiales et plus particulièrement par des polynômes de Lagrange (Cuthrell et Biegler (1987), Logsdon et Biegler (1992)).

4.5. MÉTHODES DE RÉOLUTION

L'approximation du vecteur d'état pour le problème d'optimisation discontinu peut être réalisée par un polynôme de Lagrange sur l'intervalle $[t_{i-1}^+, t_i^-]$ comme suit :

$$\begin{aligned}
 x(t) &\approx \sum_{j=0}^{N+1} \bar{x}_{ij} \cdot \psi_j^{(N+1)}(\tau^{(i)}), \quad \forall t \in [t_{i-1}^+, t_i^-], \quad i = 1, \dots, n_s \\
 \text{avec } \psi_j^{(N+1)}(\tau^{(i)}) &= \prod_{l=0, j}^{N+1} \frac{(\tau^{(i)} - \tau_l)}{(\tau_j - \tau_l)} \\
 \tau^{(i)} &= \frac{t - t_{i-1}}{t_i - t_{i-1}} \\
 0 &= \tau_0 < \tau_1 < \dots < \tau_N < \tau_{N+1} < 1
 \end{aligned} \tag{4.75}$$

L'approximation des variables de décision est identique à celle exprimé par l'équation (4.63). On remarque que $u = \sum_{j=0}^N$ et non $N + 1$. La différence de degré est justifiée par la prise en compte de la condition initiale de x .

L'erreur d'approximation peut être exprimée par l'équation des résidus comme suit :

$$r(t) = \sum_{j=0}^{N+1} \bar{x}_{ij} \cdot \dot{\psi}_j(\tau^{(i)}) - f^{(i)}(x_{N+1}(t), u_N(t), p) \quad \forall t \in [t_{i-1}^+, t_i^-], \quad i = 1, \dots, n_s \tag{4.76}$$

Cette équation est discrétisée à l'aide d'une méthode de collocation orthogonale :

$$\int_{t_{i-1}^-}^{t_i^+} r(t) \delta(\tau^{(i)} - \tau_l) dt = 0; \quad i = 1, \dots, n_s; l = 1, \dots, N + 1 \tag{4.77}$$

où δ est la fonction de Dirac. Les points de collocation τ_l sont les racines d'un polynôme de Legendre.

Le problème d'optimisation résultant est :

$$\begin{aligned}
 \min_{\bar{x}, \bar{u}, p} J &= G(x_{n+1}(t_f), p) + \int_{t_{i-1}^+}^{t_i^-} F(x_{N+1}, u_N, p) dt \\
 0 &= \sum_{j=0}^{N+1} \bar{x}_{ij} \cdot \dot{\psi}_j(\tau^{(i)}) - f^{(i)}(x_{N+1}(t), u_N(t), p) \\
 \forall t &\in [t_{i-1}^+, t_i^-], \quad i = 1, \dots, n_s, \quad l = 0, \dots, N + 1 \\
 \bar{x}_{1,0} &= x_0 \\
 \bar{x}_{i+1,0} &= \bar{x}_{i,n_s} \quad i = n_s - 1
 \end{aligned} \tag{4.78}$$

De la même façon, on peut obtenir la forme paramétrée-paramétrée pour les problèmes d'optimisation sous contraintes en considérant les contraintes sous la forme canonique

précédemment présentée. Le problème d'optimisation non linéaire ainsi obtenu est résolu à l'aide d'une méthode de programmation non linéaire.

Les principaux inconvénients de cette méthode sont l'augmentation de la dimension du problème d'optimisation et, en cas de non convergence, on n'a pas de solution. Il s'agit d'une méthode de type non faisable; la solution n'est pas obtenue que si le processus d'optimisation converge.

4.6 Conclusion

Les méthodes de résolution les plus répandues sont les méthodes de discrétisation totale et CVP. Dans ce travail, nous avons choisi d'utiliser la méthode CVP pour son avantage d'être du type faisable. Les gradients du critère d'optimisation et des contraintes par rapport aux variables de décision, nécessaires pour le solveur NLP utilisé, i.e. SQP, seront calculés à l'aide de la méthode du système adjoint.

Chapitre 5

Simulation basée sur l'optimisation de procédés PSA

5.1 Introduction

Nous avons vu dans les chapitres précédents que les procédés d'adsorption modulée en pression (PSA) sont des procédés hybrides qui utilisent plusieurs étapes pour chaque cycle. Après un certain temps de mise en oeuvre, un procédé PSA arrive à un état stationnaire cyclique (Cyclic Steady State - CSS) où les profils des variables d'état au début d'un cycle sont identiques aux profils à la fin du cycle. Leur simulation consiste par conséquent à déterminer cet état stationnaire cyclique (CSS). En outre, le CSS est très important du point de vue de l'analyse, de la conception et de l'optimisation des procédés.

Ce chapitre est consacré à la simulation des procédés PSA. Les différentes méthodes pour la détermination de l'état stationnaire cyclique sont d'abord présentées. Ensuite, l'approche de simulation basée sur l'optimisation est proposée. Dans la dernière partie, les différents problèmes traités à l'aide de cette approche sont présentés.

5.2 Etude bibliographique

Pour arriver à l'état stationnaire cyclique, les procédés PSA prennent un temps généralement assez important. Ce temps dépend des propriétés du mélange gazeux à séparer, des paramètres du procédé, des conditions opératoires, de la cinétique d'adsorption etc. Par conséquent, il n'est ni facile et ni pratique d'analyser le comportement d'un lit depuis le démarrage jusqu'au moment où le profil du lit est établi. L'approche traditionnelle pour trouver l'état stationnaire cyclique est basée sur la simulation dynamique. La plupart

des recherches présentées dans la littérature sur la simulation de procédés PSA est donc dédiée à la recherche de l'état stationnaire cyclique.

L'état stationnaire cyclique peut être représentée mathématiquement par :

$$x(z, 0) = x(z, t_c) \quad \forall z \in (0, L). \quad (5.1)$$

où x est le vecteur des variables d'état, z la position axiale, t_c la durée du cycle et L la longueur du colonne.

Cela signifie que l'état stationnaire cyclique est établi une fois que les variables d'état x ne changent plus d'un cycle à l'autre tout le long de la colonne.

Dans ce qui suit, nous allons présenter les différentes méthodes utilisées pour la détermination de l'état stationnaire cyclique des procédés PSA disponibles dans la littérature.

5.2.1 Méthode de substitutions successives

L'approche traditionnelle pour la détermination de l'état stationnaire cyclique des procédés PSA est connue sous le nom de méthode de substitutions successives (Oliver et Westerberg (1992), Kvamsdal et Hertzberg (1997), Nilchan et Pantelides (1998), Ding et LeVan (2001), Todd *et al.* (2001), Jiang *et al.* (2003)). Pour cela, les différentes étapes d'un cycle sont simulées successivement de la même façon que le fonctionnement physique d'un procédé. Le modèle mathématique est généralement résolu à l'aide de la méthode des lignes qui consiste à transformer le système d'équations algèbro-différentielles partielles en un système algèbro-différentielles. Le système ainsi obtenu est résolu à l'aide d'intégrateurs numériques pour les systèmes à conditions initiales (Initial value problem - IVP).

L'intégration du modèle mathématique du procédé à partir du profil spatial des variables différentielles x au début du cycle nous donne le profil de ces variables à la fin du cycle :

$$x(z, t_c) = \mathcal{F}[x(z, 0)] \quad \forall z \in (0, L) \quad (5.2)$$

Le profil des variables d'état à la fin d'un cycle ainsi obtenu est utilisé pour initialiser le cycle suivant et le processus est répété. Après un nombre généralement important de cycles, le lit s'approche de l'état stationnaire cyclique dans lequel les conditions à la fin

du cycle sont identiques à celles du cycle.

On peut considérer cette approche comme une tentative d'imposer la condition de périodicité (5.1) à travers un arrangement de substitutions successives comme suit :

$$x^{j+1}(z, 0) = \mathcal{F} [x^j(z, 0)] , \forall z \in (0, L) \quad (5.3)$$

où $j = 1, 2, 3, \dots, N$. N est le nombre de cycles.

L'avantage de cette méthode est qu'elle se comporte d'une façon très proche du comportement physique du procédé quand il s'approche des conditions de CSS. En outre, cette méthode est facile à appliquer mathématiquement et par conséquent elle est largement utilisée dans l'industrie. Cependant, il est important de noter que cette méthode converge linéairement du point de vue numérique; donc le temps de calcul peut être important pour les procédés pour lesquels l'état stationnaire est établi après plusieurs milliers de cycles.

Todd *et al.* (2001) proposent l'approche de raffinement des noeuds afin d'accélérer la convergence vers le CSS. Pour cela, le nombre de noeuds choisis au début est petit pour éviter le problème de non convergence. Une fois que l'état stationnaire cyclique est connu, les noeuds sont raffinés, c'est-à-dire que le schéma avec les noeuds fins est appliqué, et le problème est résolu à nouveau pour déterminer l'état stationnaire cyclique. Cette approche est efficace, mais difficile à appliquer du point de vue de l'optimisation et de la commande des procédés PSA (Jiang *et al.* (2003)).

5.2.2 Méthodes de détermination directe

Du fait de la convergence assez lente de la méthode de substitutions successives, de nouvelles méthodes ont été proposées pour accélérer la convergence vers le CSS. Ces méthodes connues sous le nom de méthodes de détermination directe sont discutées ci-dessous.

5.2.2.1 Méthodes de Quasi-Newton

Smith IV et Westerberg (1991) proposent d'utiliser la méthode de Quasi-Newton pour résoudre le problème de détermination de l'état stationnaire cyclique défini par :

$$x(z, 0) - \mathcal{F} [x(z, 0)] = 0 \quad (5.4)$$

La méthode de Smith et Westerberg est une méthode itérative. Conformément à cette méthode, l'approximation diagonale de la matrice jacobienne du système est construite à l'aide de l'intégration des trois premiers cycles du procédé par la méthode de substitutions successives. L'inverse de cette matrice est mise à jour à chaque itération. La vitesse de convergence de ces méthodes est super linéaire. Toutefois, l'approximation précise de la matrice jacobienne pose des problèmes liés à la dimension du procédé (Paloschi (1982), Nilchan et Pantelides (1998)). En outre, le temps de calcul de l'approximation du jacobien est important. L'efficacité de cette méthode n'est par conséquent pas garantie (Nilchan et Pantelides (1998)).

5.2.2.2 Méthodes de Newton

Pour éviter le problème d'estimation numérique de la jacobienne, Croft et LeVan (1994) proposent le calcul des sensibilités. Les équations des sensibilités sont intégrées simultanément avec le modèle du procédé sur le domaine temporel $t \in [0, t_c]$. Les sensibilités ainsi calculées nous permettent d'estimer les conditions initiales à l'aide d'algorithmes de Newton. Ces valeurs initiales sont utilisées pour intégrer le cycle suivant et ce processus est répétée jusqu'à la détermination de l'état stationnaire cyclique.

Cette méthode nécessite moins d'itérations par rapport aux méthodes de substitutions successives et de Quasi-Newton. Elle garantit une vitesse de convergence quadratique. Toutefois, le temps de calcul augmente rapidement à cause de la dimension du problème, et du caractère non creux de la matrice des sensibilités (Nilchan et Pantelides (1998), Jiang *et al.* (2003)).

Afin de simplifier le calcul de la matrice jacobienne, Oliver et Westerberg (1992) utilisent la méthode de Broyden tandis que Kvamsdal et Hertzberg (1997) utilisent la méthode de Broyden avec la formule de mise à jour de Muller. Néanmoins, l'approximation de la matrice jacobienne ainsi calculée n'est pas précise et empêche la convergence (Ding et LeVan (2001)).

Ding et LeVan (2001) proposent un schéma d'interpolation des sensibilités afin d'éviter le problème de non convergence. Selon ce schéma, le nombre de sensibilités mis en oeuvre au début est petit, mais ce nombre est augmenté en cas de problème de non convergence. Cette approche est assez efficace pour les systèmes simples; cependant, les problèmes fortement non linéaires et mal conditionnés issus de modèles complexes ne peuvent pas être traités (Jiang *et al.* (2003)).

5.2.3 Simulation basée sur l'optimisation

L'utilisation de méthodes d'optimisation pour la détermination du CSS est assez récente. L'approche consiste à formuler le problème de simulation comme un problème d'optimisation dynamique où le critère d'optimisation est l'état stationnaire cyclique, les variables de décision sont les variables d'état au début du cycle et les contraintes sont fournies par le modèle du procédé avec les conditions initiales associées.

Peu d'articles concernant cette approche sont publiés dans la littérature (Nilchan et Pantelides (1998), Jiang *et al.* (2003), Ko *et al.* (2003), Ko *et al.* (2005), Latifi *et al.* (2008)). Les principales différences entre ces travaux résident dans la méthode de discrétisation du système d'équations algébro-différentielles partielles (aussi bien discrétisation de l'espace seul que la discrétisation de l'espace et du temps) et de la méthode de calcul des gradients pour le solveur NLP.

Nilchan et Pantelides (1998) et Ko *et al.* (2003) appliquent la technique de discrétisation totale. Cette méthode consiste à discrétiser le domaine spatial et temporel par la méthode des différences finies ou la méthode des volumes finis. Par conséquent, le modèle mathématique d'un procédé PSA est transformé en un système d'équations algébriques. Le système d'équations ainsi obtenu est résolu à l'aide du code gPROMS basé sur les sensibilités. Il est important de noter que la dimension d'un problème approximé par la méthode de discrétisation totale doit souvent être assez importante pour atteindre une précision satisfaisante. Cette approche est efficace pour les systèmes simples, mais pour les systèmes complexes, le solveur n'aboutit pas à cause de l'accumulation des erreurs (Jiang *et al.* (2003)).

Ko *et al.* (2003), Jiang *et al.* (2003) et Ko *et al.* (2005) résolvent le problème d'optimisation à l'aide de la méthode des lignes et donc les variations spatiales sont remplacées par leurs approximations. Ko *et al.* (2003) et Ko *et al.* (2005) mettent en oeuvre les méthodes de différences finies centrées pour la discrétisation du domaine spatial tandis que Jiang *et al.* (2003) utilisent la méthode des volumes finis. La méthode des sensibilités est utilisée dans ces travaux et le problème est résolu par le code gPROMS. Rappelons que le nombre de variables de décision issu de la discrétisation spatiale est assez grand. En outre, l'application de la méthode de sensibilités pour le calcul des gradients conduit à un système d'équations algébro-différentielles assez important et par conséquent, à un temps de calcul important.

Notons par ailleurs que le nombre des contraintes est petit pour le problème de simulation basée sur l'optimisation des procédés PSA. Par conséquent, l'application de la méthode du système adjoint pour le calcul des gradients peut être intéressante. Latifi *et al.* (2008) utilisent la méthode des collocations orthogonales pour la discrétisation spatiale et les gradients sont calculés par la méthode du système adjoint. Ils montrent que la vitesse de convergence en utilisant la méthode du système adjoint est plus élevée par rapport aux méthodes de différences finies, de sensibilités numériques et de sensibilités analytiques.

5.3 Approche proposée

Dans ce travail, le problème de la simulation de procédés PSA pour la détermination de l'état stationnaire cyclique est traité comme un problème d'optimisation dynamique hybride. Le caractère hybride est dû à la nature du modèle du procédé décrit dans le chapitre (2). Pour la résolution des modèles mathématiques décrits à l'aide de système d'équations algébro-différentielles partielles, la méthode des lignes est utilisée. Le problème d'optimisation résultant est résolu à l'aide d'un solveur de programmation non linéaire (NLP) basé sur les gradients. Les gradients sont calculés à l'aide de la méthode du système adjoint. La représentation générale de la méthode de résolution par cette approche est montrée sur la figure (5.1).

La condition du CSS est considérée comme le critère du problème d'optimisation. En considérant la formulation hybride du procédé, on peut l'exprimer comme :

$$x^{(1)}(t_o^{(1)}) = x^{(4)}(t_f^{(4)}) \quad (5.5)$$

Le vecteur de variables de décision est composé de valeurs initiales des variables d'état.

Le vecteur initial des variables d'état peut être exprimé par :

$$x_0^{(1),T} = \left(y_1^{(1),0}, y_2^{(1),0}, \dots, y_N^{(1),0}, q_1^{(1),0}, q_2^{(1),0}, \dots, q_N^{(1),0}, T_1^{(1),0}, T_2^{(1),0}, \dots, T_N^{(1),0} \right) \quad (5.6)$$

Les variables de décision varient entre des limites inférieures et supérieures comme suit :

$$p_{min} \leq p \leq p_{max} \quad (5.7)$$

Le problème d'optimisation peut-être exprimé par :

$$\min_p J = G[x(t_f), p, t_f] + \int_{t_0}^{t_f} F[x, p, t] dt \quad (5.8)$$

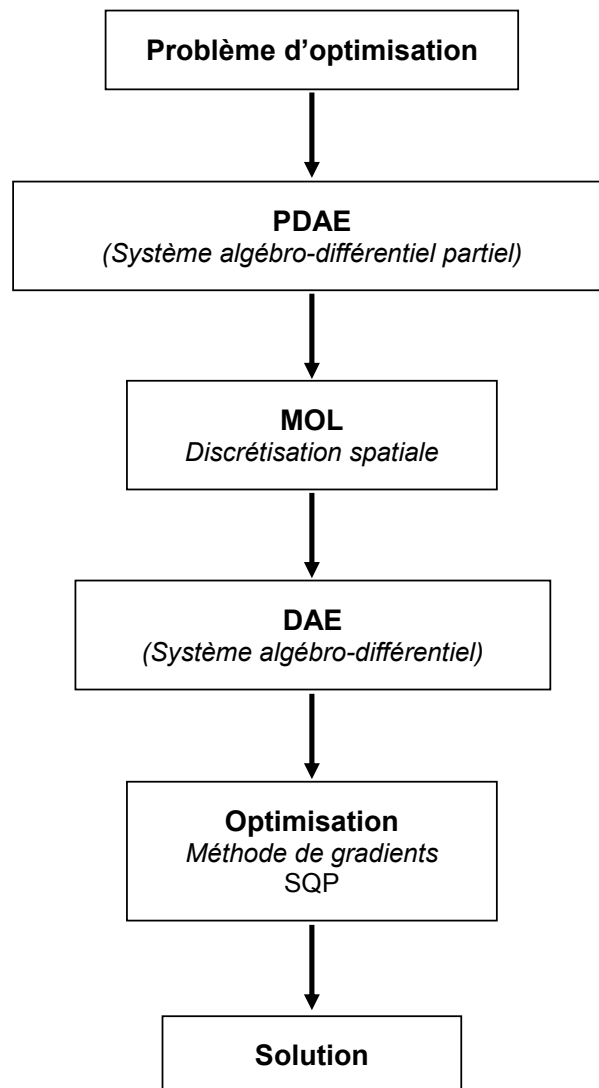


Figure 5.1: Approche de résolution

soumis au modèle du procédé et aux bornes des variables.

Les conditions nécessaires d'optimalité pour les systèmes hybrides sont développées dans la section (4.4.2). Les gradients du critère de performance par rapport aux paramètres p selon cette méthode peuvent être exprimés par :

$$\frac{\partial J}{\partial p} = \lambda^1(t_o^{(1)}) \frac{\partial x^{(1)}(t_o^{(1)})}{\partial p} + \frac{\partial G}{\partial p} \quad (5.9)$$

Le hamiltonien du critère de performance pour chaque mode s'exprime :

$$H^{(k)} = F(x, \theta) + \lambda^T f^{(k)}(x, \theta) \quad (5.10)$$

Le vecteur des variables adjointes est défini par :

$$\dot{\lambda}^{(k)} = - \frac{\partial H^{(k)}}{\partial x^{(k)}} \quad (5.11)$$

avec les conditions aux limites :

$$\lambda(t_f^{(4)}) = \frac{\partial G}{\partial x} \Big|_{t=t_f^{(4)}} \quad (5.12)$$

Rappelons que le procédé PSA est hybride et qu'il utilise plusieurs opérations (compression, adsorption, décompression, purge) pour former un cycle. Par conséquent, le système adjoint correspondant utilisé pour le calcul des gradients est également hybride. Un modèle hybride du procédé PSA basé sur le cycle de Skarstrom avec les sens d'intégration du modèle des procédé et du système adjoint est présenté sur la figure (5.2).

Comme dans le cas de l'intégration du modèle, les commutations entre différents modes sont réalisées par un ensemble de transitions. Les conditions de transition (instants des commutations) pour le système adjoint sont les mêmes que pour le modèle du procédé. Les fonctions de transition correspondantes sont :

- Si les variables d'états sont continues aux points de transitions ($\Delta_i = 0$) :

$$\lambda_i^{(k)}(t_f^{(k)}) = \lambda_i^{(k+1)}(t_0^{(k+1)}) \quad (5.13)$$

- Si les variables d'états sont discontinues aux points de transitions ($\Delta_i \neq 0$) :

$$\lambda_i^{(k)}(t_f^{(k)}) = \lambda_i^{(k+1)}(t_0^{(k+1)}) + \lambda_i^{(k+1)}(t_0^{(k+1)}) \frac{\partial \Delta_i}{\partial x_i^{(k)}} \quad (5.14)$$

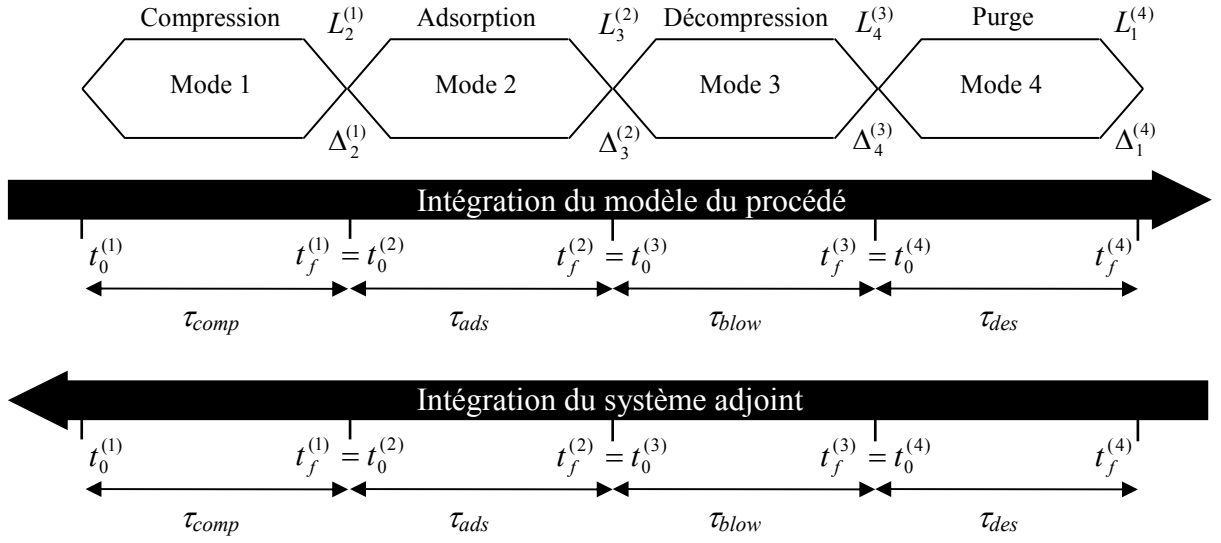


Figure 5.2: Intégration du modèle et du système adjoint

La méthode de résolution consiste à fournir une estimation des valeurs initiales des variables de décision pour l'intégration du modèle du procédé. Le critère de performance ainsi que ses gradients sont calculés et fournis au solveur NLP qui estime un nouveau vecteur des variables de décision. Le processus est répété jusqu'à la convergence où les valeurs optimales des variables de décision sont obtenues.

L'algorithme pour la résolution du problème d'optimisation par la méthode du système adjoint est présenté sur la figure (5.3).

Les calculs sont réalisés à l'aide d'un ordinateur Intel Pentium 4 cadencé à 3,40 GHz. L'intégration numérique est réalisée grâce aux codes VODE et DASSL .

Le code VODE (Variable co-efficient ODE Solver) a été développé par (Brown *et al.* (1989)). Il peut être utilisé pour résoudre un des problèmes aux conditions initiales. Il est capable de résoudre des systèmes d'équations ODE raides ou non. Il est basé sur les méthodes de Adams-Moulton pour des systèmes ODE raides et de discrétisation arrière (Backward differentiation formula) pour des systèmes ODE non raides.

Le code DASSL a été développé par (Brenan *et al.* (1989)) pour des systèmes d'équations différentielles ordinaires (ODE) raides ou non, et pour des systèmes algébro-différentiels (DAE) d'indice inférieur ou égal à 1 mais il peut être utilisé pour résoudre des systèmes d'indice supérieur 1. Il est basé sur une méthode de discrétisation arrière d'ordre 0 jusqu'à 5. Le système non linéaire issu de la discrétisation est résolu à chaque étape par la mé-

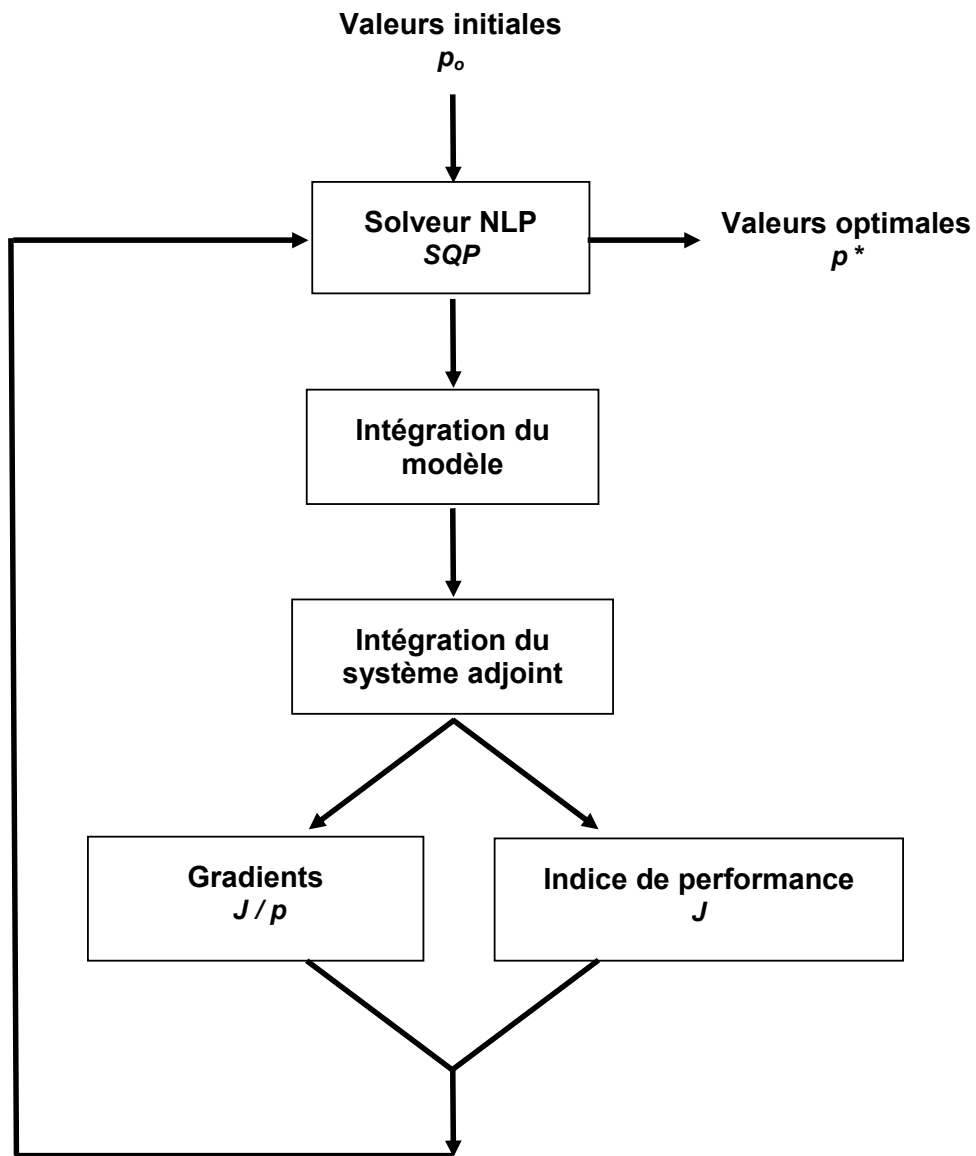


Figure 5.3: Algorithme de résolution

thode de Newton. En outre, il adapte le pas d'intégration et il est couplée à une méthode prédicteur-correcteur.

Les modèles basés sur l'hypothèse d'états gelés sont transformés en systèmes différentiels ordinaires (ODE) par l'application de la méthode des lignes. Par contre, le modèle sans états gelés est transformé en un système algèro-différentiel (DAE). Nous avons utilisé l'intégrateur VODE pour les modèles isotherme et non isotherme avec états gelés, tandis que DASSL est utilisé pour l'intégration numérique du modèle non isotherme sans états gelés.

Comme solveur NLP, nous avons utilisé le code NLPQL développé par Schittkowski (1986). Il est basé sur la méthode de programmation quadratique successive (SQP). Son principe est présenté en Annexe (B).

5.4 Problèmes traités

Dans cette partie, les différents modèles établis dans le chapitre (2) sont résolus par l'approche proposée. La méthode des collocations orthogonales est utilisée dans la discrétisation des modèles isotherme et non isotherme avec états gelés. Quant à la méthode des volumes finis, elle est utilisée pour discrétiser l'ensemble des modèles considérés.

5.4.1 Collocations orthogonales

5.4.1.1 Modèle isotherme avec états gelés (I-EG-CO)

Introduction

Dans cette partie, le problème de simulation d'un procédé PSA utilisé pour le séchage de l'air est résolu par l'optimisation dynamique hybride. Le modèle isotherme du procédé établi à l'aide de l'hypothèse des états gelés est considéré. La formulation hybride du modèle du procédé présentée dans le chapitre (3) est utilisée. Le problème de simulation pour la détermination de l'état stationnaire cyclique est formulé comme un problème d'optimisation dynamique d'abord. Ensuite, la méthode de calcul et les résultats obtenus sont présentés.

Formulation du problème de simulation

L'objectif de la simulation du procédé PSA est la détermination d'état stationnaire cyclique. La formulation classique de cet objectif peut être écrite sous la forme :

$$x^{(1)}(t_o^{(1)}) = x^{(2)}(t_f^{(2)}) \quad (5.15)$$

Il est important de noter que les variables de décision sont les valeurs initiales des variables d'état. Le vecteur des paramètres est défini par :

$$\begin{aligned} p &= x^{(1)}(t_o^{(1)}) \\ &= \left(\bar{c}_0^{(1),0}, \bar{c}_1^{(1),0}, \dots, \bar{c}_{N+1}^{(1),0}, \bar{q}_0^{(1),0}, \bar{q}_1^{(1),0}, \dots, \bar{q}_{N+1}^{(1),0} \right)^T \end{aligned} \quad (5.16)$$

La formulation mathématique du problème de simulation basée sur l'optimisation s'écrit :

$$\min_p J = \frac{1}{2} e^T e \quad (5.17)$$

$$\text{où } e = x^{(1)}(t_o^{(1)}) - x^{(2)}(t_f^{(2)}) \quad (5.18)$$

soumis au modèle du procédé (3.28-3.32) avec les conditions initiales et aux limites (tableau 3.1).

Méthode de calcul

La convergence et sa vitesse dépendent fortement de la précision du calcul des gradients pour les solveurs basés sur les gradients. Deux méthodes de calcul des gradients sont mises en oeuvre dans ce travail. Ces deux méthodes sont basées sur la définition générale de l'indice de performance ci-dessous :

$$\min_p J = G[x(t_f), p] + \int_0^{t_f} F[x(t), p] dt \quad (5.19)$$

Méthode des différences finies

Le gradient de l'indice de performance J par rapport à un paramètre p_i peut être obtenu selon la méthode des différences finies centrés, en perturbant J par une quantité finie Δp_i du paramètre p_i comme suit :

$$\frac{\partial J}{\partial p_i} \approx \frac{J(p_i + \Delta p_i) - J(p_i - \Delta p_i)}{2\Delta p_i} \quad (5.20)$$

où $\frac{\Delta p_i}{p_i} = 1\%$ généralement.

Méthode du système adjoint

Le hamiltonien de l'indice de performance pour chaque mode peut être exprimé par :

$$H^{(k)} = F(x, p) + \lambda^T f^{(k)}; \quad k = 1, 2 \quad (5.21)$$

Le vecteur des variables adjointes est défini par :

$$\dot{\lambda}^{(k)} = -\frac{\partial H^{(k)}}{\partial x^{(k)}}; \quad k = 1, 2 \quad (5.22)$$

avec les conditions aux limites :

$$\lambda^{(2)}(t_f) = \frac{\partial G}{\partial x} \Big|_{t=t_f^{(2)}} = x^{(2)}(t_f^{(2)}) - p \quad (5.23)$$

Les conditions de transition (instants des commutations) pour le système adjoint sont les mêmes que pour le modèle du procédé. Les fonctions de transition correspondantes sont :

- Pour la concentration dans le gaz

$$\lambda^{(1)}(t_f^{(1)}) = \lambda^{(2)}(t_0^{(2)}) \frac{P_L}{P_H} \quad (5.24)$$

- Pour la concentration dans le solide

$$\lambda^{(1)}(t_f^{(1)}) = \lambda^{(2)}(t_0^{(2)}) \quad (5.25)$$

L'algorithme pour la résolution du problème d'optimisation par la méthode du système adjoint est comme suit :

1. Estimation des valeurs initiales des variables de décision p .
2. Intégration du modèle hybride du procédé.
3. Intégration à rebours du système adjoint.
4. Calcul du critère de performance et des gradients.
5. Estimation d'un nouveau vecteur de variables de décision par le solveur NLP et le processus est répété jusqu'à la convergence.

Résultats de simulation**Paramètres du modèle**

Les durées des étapes d'adsorption et de purge sont égales. Le nombre de points de collocation est 15. Les paramètres du procédé nécessaires pour la simulation sont donnés dans le tableau (5.1) (Chihara et Suzuki (1983a)).

Parameter	Value	Unit
L	1	m
r	0,1	m
ϵ	0,4	-
γ	$7,2 \times 10^3$	kg/m^3
ρ_s	$1,2 \times 10^3$	kg/m^3
C_{ps}	$1,26 \times 10^3$	$J/kg.K$
ρ_g	1,2	kg/m^3 (à pres. atm.)
C_{pg}	1×10^3	$J/kg.K$
k	7,57	m^3/kg
ΔH	$5,19 \times 10^4$	J/mol
$K_s a_v$	0,2	$kg/m^3.s$ (à P_H)
	1	$kg/m^3.s$ (à P_B)
k_{ez}	0,293	$J/m.s.K$
h_o	40	$J/m^2.s.K$
c_o	0,79	mol/m^3
T_o	303	K
u_H	0,25	m/s
u_L	0,5	m/s
P_H	$5,07 \times 10^5$	Pa
P_B	$1,01 \times 10^5$	Pa
γ	2	—
τ_{ads}	548	sec

Tableau 5.1: Paramètres pour la simulation du procédé de Chihara et Suzuki (1983a)

Resultats et discussion

Le nombre d'itérations, les temps de calcul et les valeurs optimales de l'indice de performance pour les deux méthodes de calcul des gradients sont donnés dans le tableau (5.2). On remarque que la méthode du système adjoint converge plus rapidement que les différences finies. En plus, elle est plus précise puisqu'elle conduit à un critère de performance plus faible. Les résultats obtenus à l'aide de la méthode classique des substitutions successives sont également présentés sur le tableau (5.2) à titre de comparaison. On remarque que l'approche de simulation basée sur le système adjoint est plus performante.

	Méthode des Différences Finies	Méthode de Système Adjoint	Substitutions Successives
N° d'itération	8	15	40
Temps du calcul (s)	206	13	117
Indice de Performance	$2,9 \times 10^{-3}$	$2,5 \times 10^{-4}$	$6,9 \times 10^{-4}$

Tableau 5.2: Résultats de l'optimisation du modèle isotherme (I-EG-CO)

L'évolution du critère de performance en fonction du nombre d'itérations est illustrée sur la figure (5.4).

Les figures (5.5) et (5.6) présentent respectivement les variations de la concentration dans le gaz et dans le solide le long de la colonne. Les profils à la fin de l'adsorption du premier cycle et au CSS y sont reportés.

Les résultats obtenus sont identiques à ceux obtenus par Chihara et Suzuki (1983a). Ces derniers ont utilisé la méthode implicite de Crank-Nicolson pour la résolution du système, mais le temps de calcul par rapport à la méthode du système adjoint développé ici doit être assez important.

5.4.1.2 Modèle non isotherme avec états gelés (NI-EG-CO)

Introduction

Le modèle mathématique non isotherme établi à l'aide de l'hypothèse des états gelés est traité ici. Afin de représenter le modèle hybride du procédé PSA, la formulation présentée précédemment est utilisée.

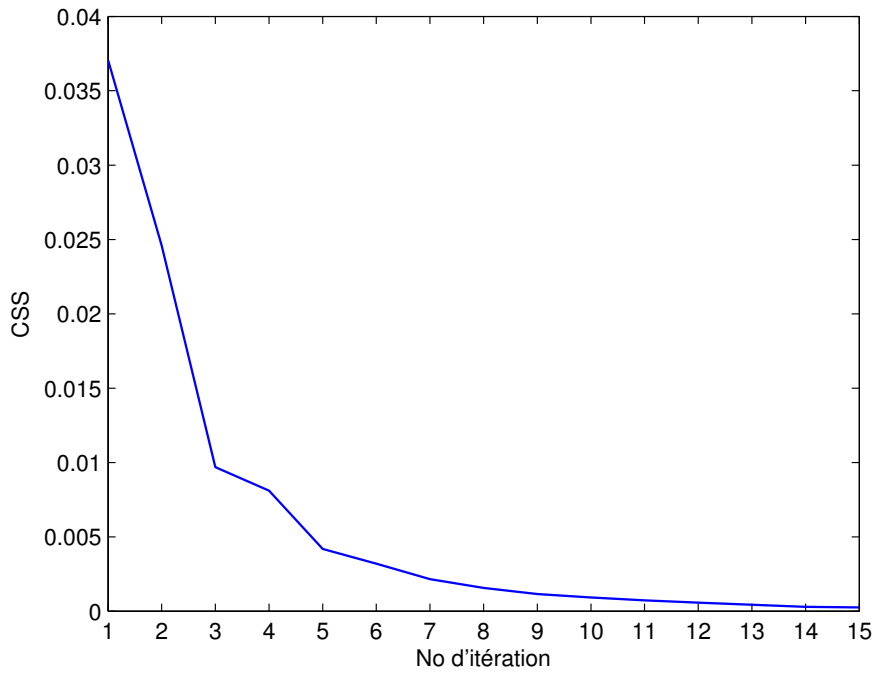


Figure 5.4: Évolution itérative du critère de performance (I-EG-CO)

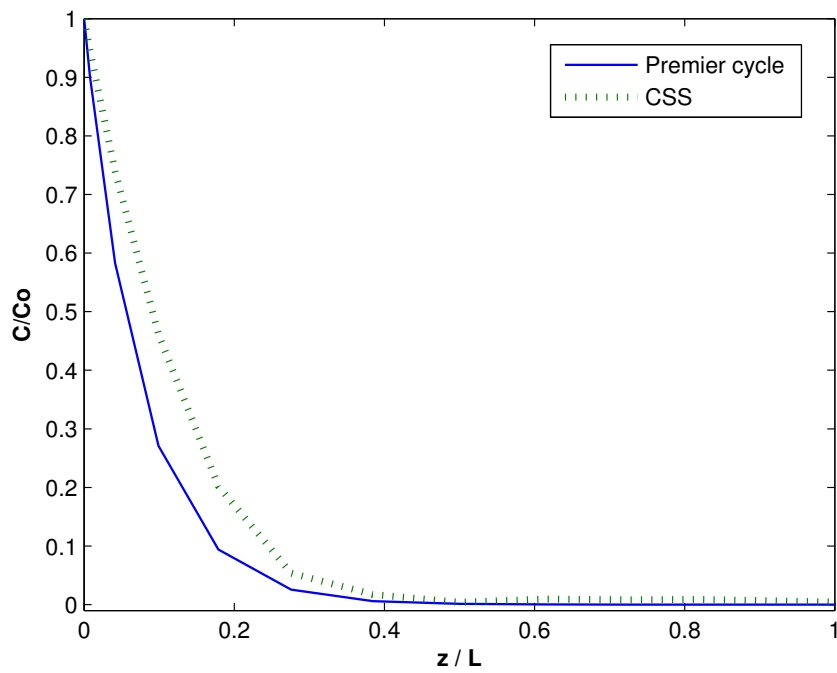


Figure 5.5: Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne (I-EG-CO)

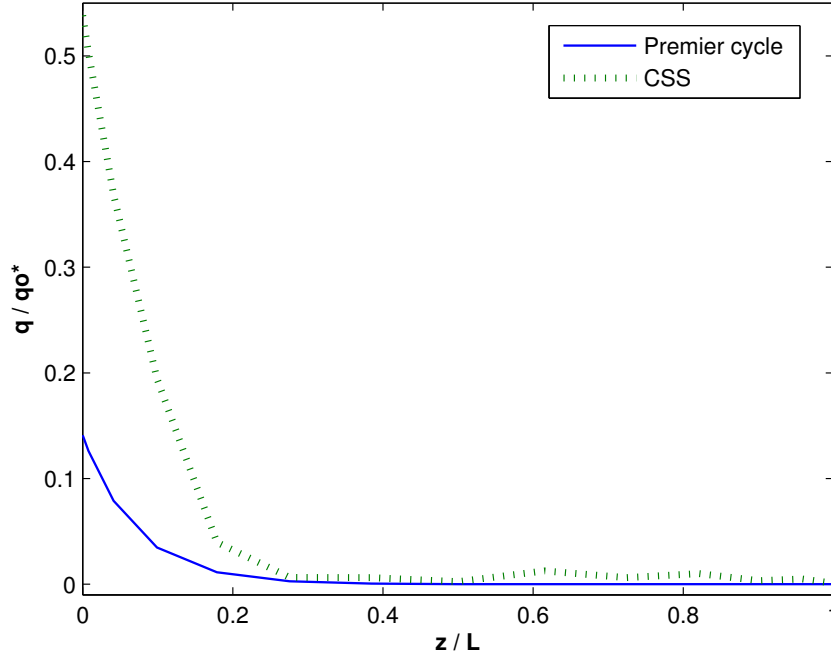


Figure 5.6: Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (I-EG-CO)

Formulation du problème de simulation

Comme pour le cas isotherme, la condition de CSS s'écrit :

$$x^{(1)}(t_o^{(1)}) = x^{(2)}(t_f^{(2)}) \quad (5.26)$$

Le vecteur des variables de décision est défini par :

$$\begin{aligned} p &= x^{(1)}(t_o^{(1)}) \\ &= \left(\bar{c}_0^{(1),0}, \bar{c}_1^{(1),0}, \dots, \bar{c}_{N+1}^{(1),0}, \bar{q}_0^{(1),0}, \bar{q}_1^{(1),0}, \dots, \bar{q}_{N+1}^{(1),0}, \bar{T}_0^{(1),0}, \bar{T}_1^{(1),0}, \dots, \bar{T}_{N+1}^{(1),0} \right) \end{aligned} \quad (5.27)$$

La formulation mathématique du problème de simulation basée sur l'optimisation est identique à celle présentée dans la cas isotherme.

Méthode de calcul

Méthode du système adjoint

La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (5.4.1.1), la seule différence étant que les équations de transitions pour le système adjoint sont différentes pour le modèle non isotherme. Ces équations sont présentées ici.

5.4. PROBLÈMES TRAITÉS

Les conditions de transition (instants des commutations) pour le système adjoint sont les même que pour le modèle du procédé. Les fonctions de transition correspondantes sont :

- Pour la concentration dans le gaz

$$\lambda^{(1)}(t_f^{(1)}) = \lambda^{(2)}(t_0^{(2)}) \frac{P_L}{P_H} \quad (5.28)$$

- Pour la concentration dans le solide et la température

$$\lambda^{(1)}(t_f^{(1)}) = \lambda^{(2)}(t_0^{(2)}) \quad (5.29)$$

Résultats de simulation

Paramètres du modèle

Les durées des étapes d'adsorption et de purge sont égales. Le nombre de points de collocation est 15. Les paramètres de procédé nécessaires pour la simulation du procédé sont donnés dans le tableau (5.1) (Chihara et Suzuki (1983a)).

Resultats et discussion

Les différents critères pour la comparaison des deux méthodes de calcul des gradients sont présentés dans le tableau (5.3). On remarque que la méthode du système adjoint converge plus rapidement que les différences finies. En plus, elle est plus précise puisqu'elle conduit à un critère de performance plus faible. Les résultats obtenus à l'aide de la méthode classique des substitutions successives sont également présentés sur le tableau (5.3) à titre de comparaison. On remarque que l'approche de simulation basée sur le système adjoint est plus performante.

	Méthode des Différences Finies	Méthode de Système Adjoint	Substitutions Successives
No d'itération	5	9	40
Temps du calcul (s)	1137	76	165
Indice de Performance	$5,6 \times 10^{-3}$	$1,8 \times 10^{-3}$	$5,2 \times 10^{-3}$

Tableau 5.3: Résultats de l'optimisation du modèle non isotherme (NI-EG-CO)

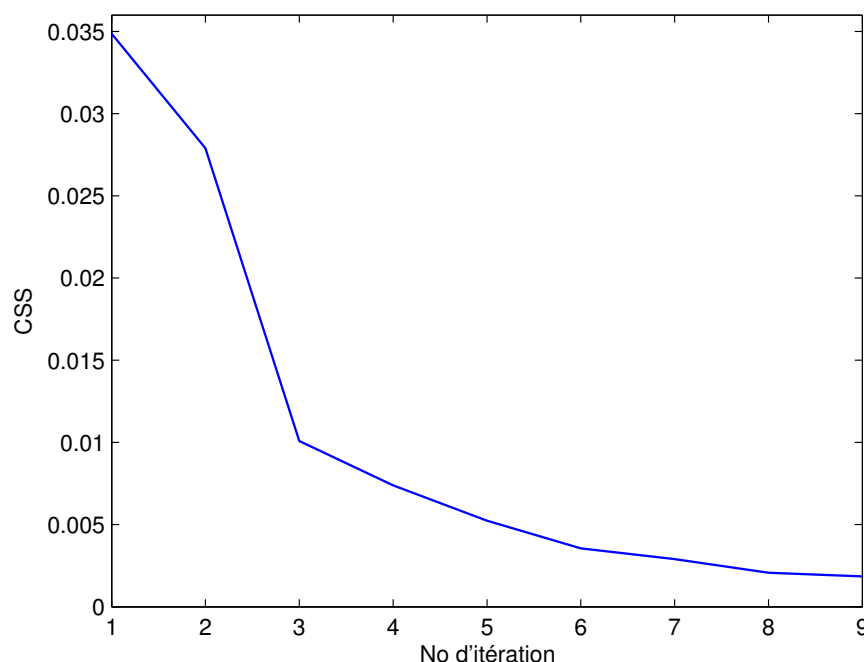


Figure 5.7: Évolution itérative du critère de performance (NI-EG-CO)

L'évolution du critère de performance en fonction de nombre d'itérations est illustrée sur la figure (5.7).

Le profil des concentrations dans le gaz et dans le solide et de la température le long de la colonne à la fin de l'adsorption du première cycle et à l'état stationnaire cyclique sont présentés sur les figures (5.8), (5.9) et (5.10) respectivement.

Les profils des concentrations dans le gaz et dans le solide sont identiques à ceux de Chihara et Suzuki (1983a). Par contre, le profil de température présente un léger écart. C'est probablement lié à la méthode des collocations orthogonales appliquée pour discrétiser le domaine spatial. Chihara et Suzuki (1983a) ont résolu le problème de simulation par la discrétisation totale basé sur la méthode implicite de Crank-Nicolson donc le temps de calcul doit être assez important par rapport à la méthode de système adjoint.

La méthode des collocation orthogonales produit des oscillations non réalistes près des fronts raides d'adsorption, qui aboutissent à des solutions de valeurs négatives pour des variables devant être positives (par exemple, les fractions molaires). Afin d'éviter ce problème, la méthode des volumes finis est appliquée pour la discrétisation spatiale. C'est une méthode conservatrice; les bilans de matière et d'énergie sont conservés dans la

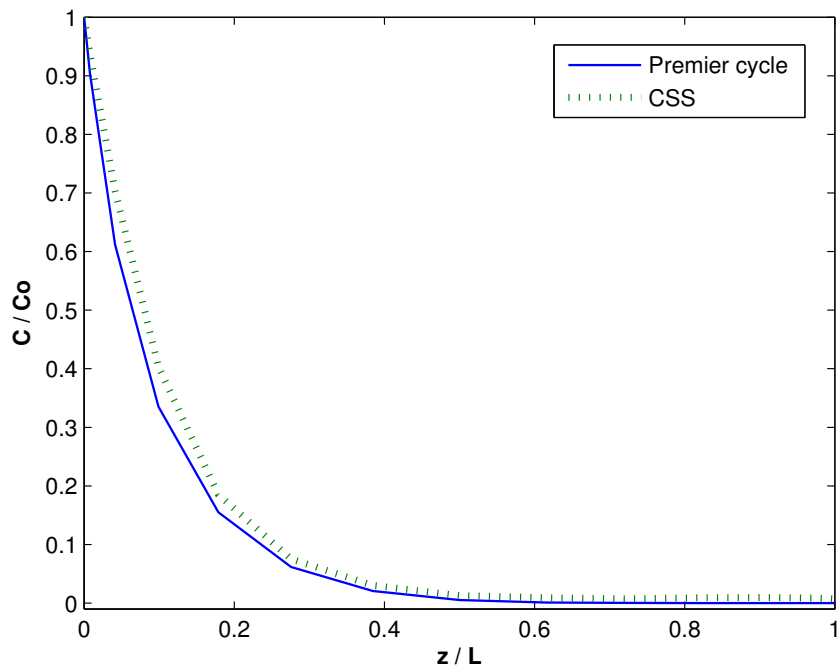


Figure 5.8: Profil de concentration dans le gaz le long de la colonne (NI-EG-CO)

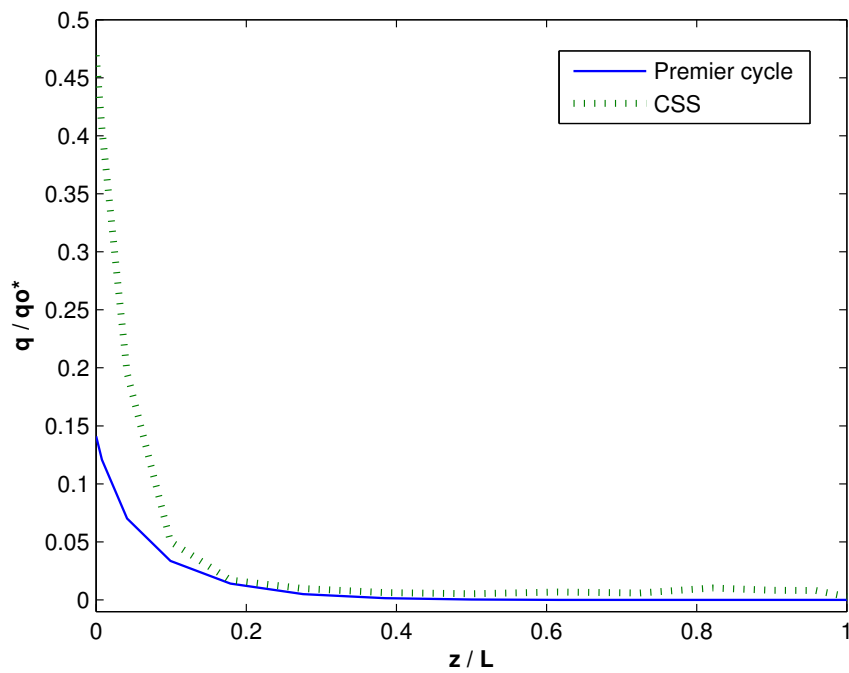


Figure 5.9: Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (NI-EG-CO)

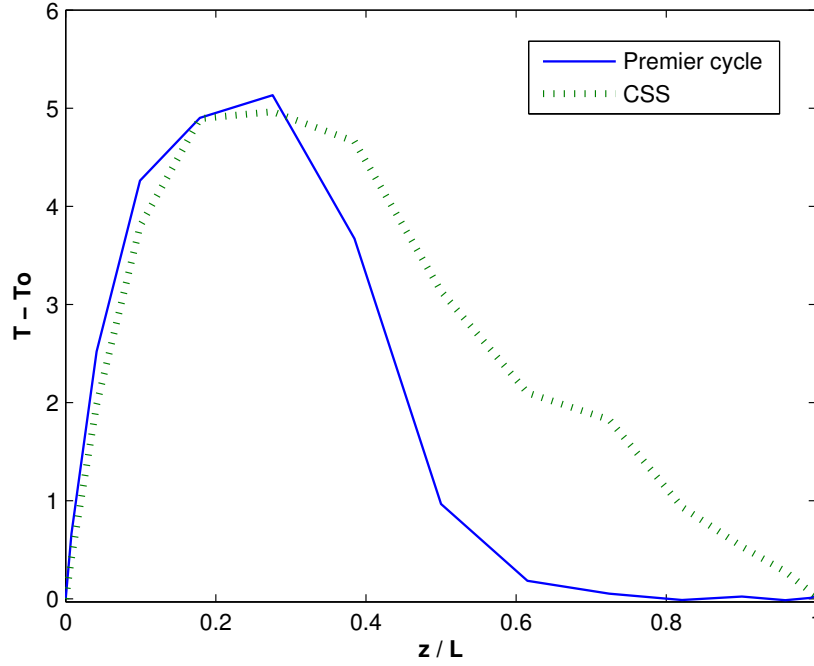


Figure 5.10: Profils de température le long de la colonne (NI-EG-CO)

direction spatiale.

5.4.2 Volumes finis

5.4.2.1 Modèle isotherme avec états gelés (I-EG-VF)

Introduction

Dans cette partie, l'approche de simulation basée sur l'optimisation des procédés dynamiques hybrides est appliquée sur un modèle isotherme avec états gelés, mais la discrétisation spatiale est réalisée par la méthode des volumes finis au lieu de la méthode des collocations orthogonales utilisée dans la partie précédente. À part la méthode de discrétisation de l'espace, la formulation du problème d'optimisation et la méthode de calcul sont exactement les mêmes que dans la section (5.4.1.1).

Résultats de simulation

Paramètres du modèle

Les durées des étapes d'adsorption et de purge sont égales. Le nombre de volumes finis est 20. Les paramètres du procédé nécessaires pour la simulation du procédé sont donnés

5.4. PROBLÈMES TRAITÉS

dans le tableau (5.1) (Chihara et Suzuki (1983a)).

Résultats et discussion

Les différents critères pour la comparaison des deux méthodes de calcul des gradients sont présentés dans le tableau (5.4). On remarque que la méthode du système adjoint converge plus rapidement que les différences finies. En plus, elle est plus précise puisqu'elle conduit à un critère de performance plus faible. Les résultats obtenus à l'aide de la méthode classique des substitutions successives sont également présentés sur le tableau (5.4) à titre de comparaison. On remarque que l'approche du système adjoint est plus performante.

	Méthode des Différences Finies	Méthode de Système Adjoint	Substitutions Successives
N° d'itération	9	15	39
Temps du calcul (s)	410	11	108
Indice de Performance	$3,8 \times 10^{-3}$	$6,4 \times 10^{-4}$	$9,7 \times 10^{-4}$

Tableau 5.4: Résultat de l'optimisation du modèle isotherme (I-EG-VF)

L'évolution du critère de performance en fonction du nombre d'itérations est illustrée sur la figure (5.11).

Les profils de concentration d'adsorbant dans le gaz et dans le solide le long de la colonne à la fin de l'adsorption du premier cycle et à l'état stationnaire cyclique sont présentés sur les figures (5.12) et (5.13) respectivement.

Les résultats obtenus par l'approche de l'optimisation sont parfaitement identiques à ceux de Chihara et Suzuki (1983a).

5.4.2.2 Modèle non isotherme avec états gelés (NI-EG-VF)

Introduction

On s'intéresse maintenant à la résolution du problème de détermination du CSS du modèle non isotherme par l'approche proposée, mais la discrétisation spatiale est réalisée par la méthode des volumes finis au lieu de la méthode des collocations orthogonales utilisée dans la partie précédente. Par rapport au problème traité en 5.4.1.2, seule la méthode de discrétisation diffère.

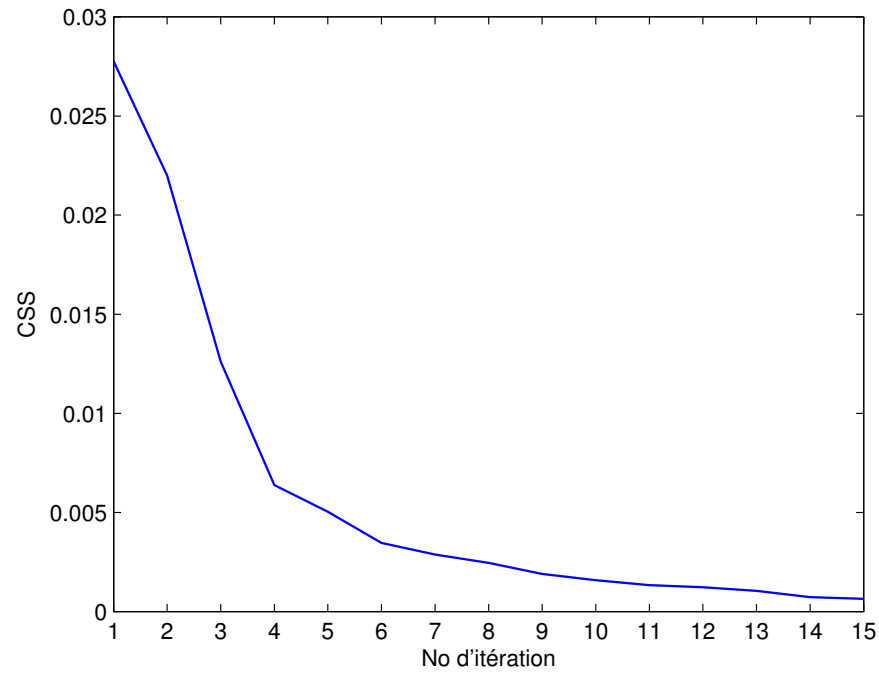


Figure 5.11: Évolution itérative du critère de performance (I-EG-VF)

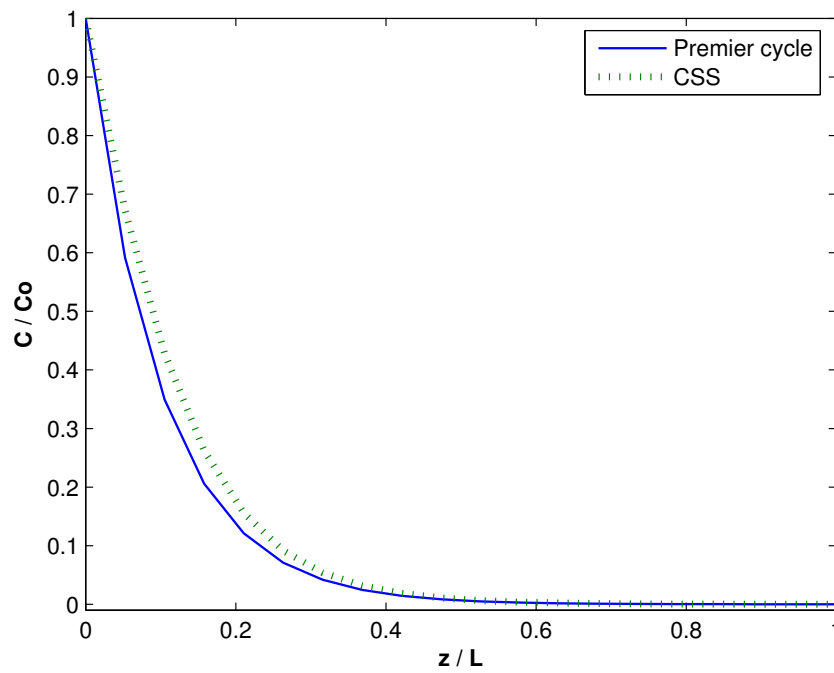


Figure 5.12: Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne (I-EG-VF)

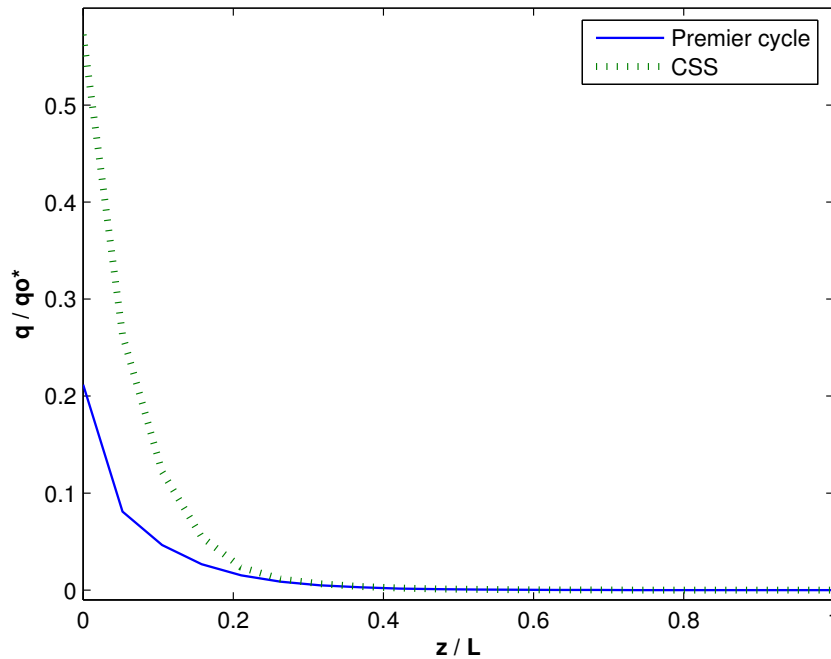


Figure 5.13: Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (I-EG-VF)

Résultats de simulation

Paramètres du modèle

Les paramètres nécessaires pour la simulation du procédé sont donnés dans le tableau 5.1 (Chihara et Suzuki (1983a)). Les durées des étapes d'adsorption et de purge sont égales. Le nombre de volumes finis pour la discrétisation spatiale est 20.

Resultats et discussion

Les différents critères pour la comparaison des deux méthodes de calcul des gradients sont présentés dans le tableau (5.5). De la même manière que précédemment, on remarque que la méthode du système adjoint converge plus rapidement que les différences finies. En plus, elle est plus précise puisqu'elle conduit à un critère de performance plus faible. Les résultats obtenus à l'aide de la méthode classique des substitutions successives sont également présentés sur le tableau (5.5) à titre de comparaison. De la même manière, on remarque que l'approche du système adjoint est plus performante.

L'évolution du critère de performance en fonction du nombre d'itérations est illustrée sur la figure (5.14).

	Méthode des Différences Finies	Méthode de Système Adjoint	Substitutions Successives
No d'itération	6	10	42
Temps du calcul (s)	1505	52	157
Indice de Performance	$5,3 \times 10^{-3}$	$4,8 \times 10^{-4}$	$9,8 \times 10^{-4}$

Tableau 5.5: Résultats de l'optimisation du modèle non isotherme (NI-EG-VF)

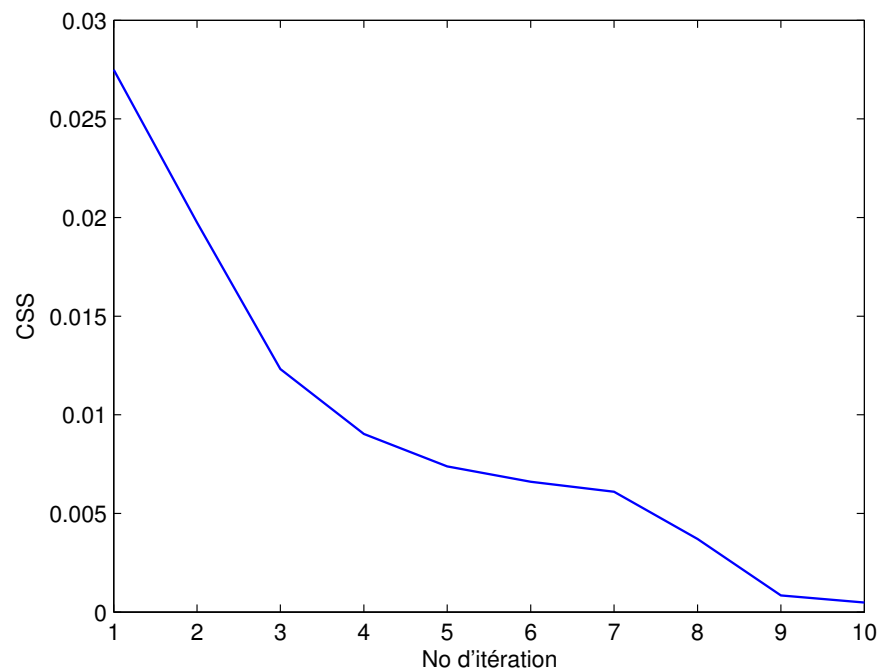


Figure 5.14: Évolution itérative du critère de performance (NI-EG-VF)

Les profils de concentration d'adsorbant dans la gaz et dans le solide et de la température le long de la colonne à la fin de l'adsorption du première cycle et à l'état stationnaire cyclique sont présentés sur les figures (5.15), (5.16) et (5.17) respectivement.

Les profils des concentrations dans le gaz et dans le solide et les profils de température sont identiques à ceux de Chihara et Suzuki (1983a). La comparaison de ces profils avec ceux obtenus par la mise en oeuvre de la méthode des collocations orthogonales pour la discrétisation spatiale nous permet de remarquer que l'écart dans les profils de température dans le cas précédent provient de la discrétisation spatiale par la méthode des collocations orthogonales.

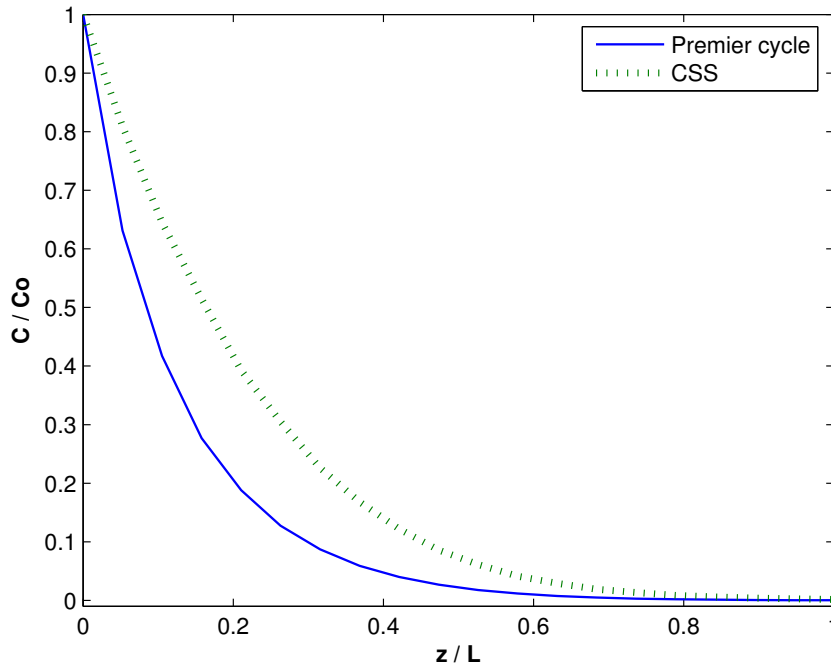


Figure 5.15: Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne (NI-EG-VF)

5.4.2.3 Modèle non isotherme sans états gelés (NI-VF)

L'approche de simulation basée sur l'optimisation pour déterminer l'état stationnaire cyclique a été appliquée sur les modèles établis à l'aide de l'hypothèse des états gelés dans les sections précédentes. Dans cette partie, l'approche est appliquée sur un modèle de procédé PSA où le comportement de la colonne d'adsorption au cours des quatre étapes de cycle de Skarstrom est pris en compte.

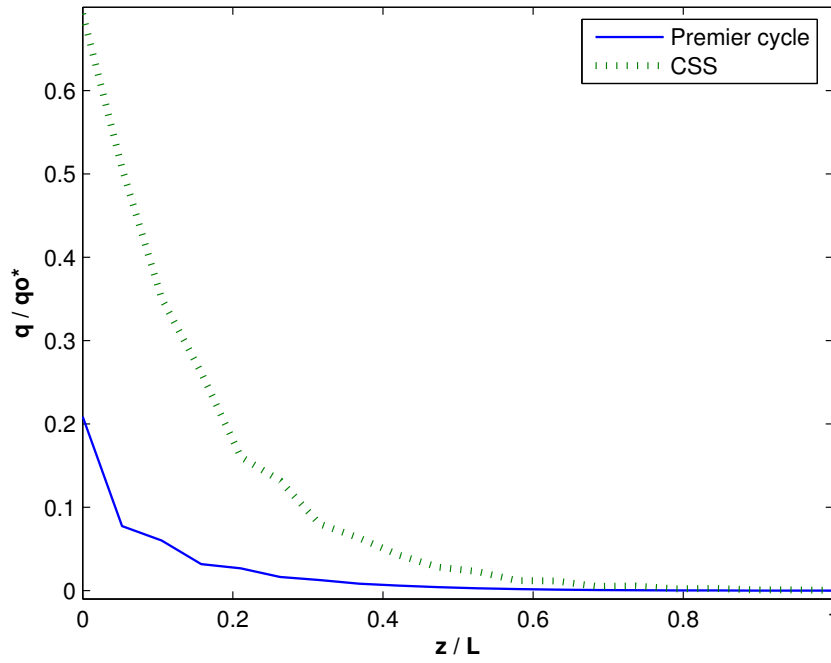


Figure 5.16: Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (NI-EG-VF)

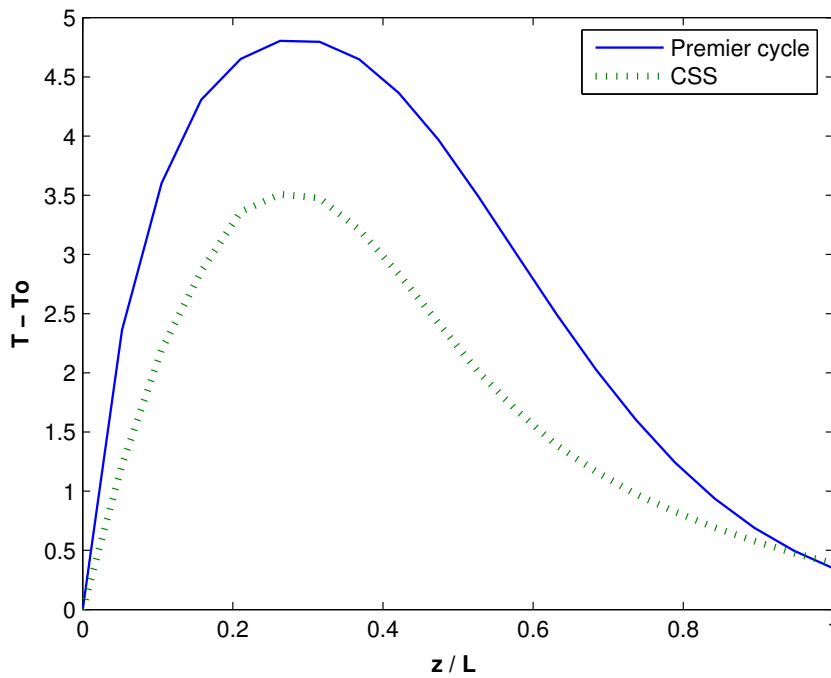


Figure 5.17: Profils de température le long de la colonne (NI-EG-VF)

Formulation du problème de simulation

La formulation classique du problème de simulation pour le procédé PSA peut s'écrire :

$$x^{(1)}(t_o^{(1)}) = x^{(4)}(t_f^{(4)}) \quad (5.30)$$

Le vecteur des variables de décision est défini par :

$$\begin{aligned} p &= x^{(1)}(t_o^{(1)}) \\ &= \left(\bar{c}_1^{(1),0}, \bar{c}_2^{(1),0}, \dots, \bar{c}_N^{(1),0}, \bar{q}_1^{(1),0}, \bar{q}_2^{(1),0}, \dots, \bar{q}_N^{(1),0}, \bar{T}_1^{(1),0}, \bar{T}_2^{(1),0}, \dots, \bar{T}_N^{(1),0} \right) \end{aligned} \quad (5.31)$$

La formulation mathématique du problème de simulation basé sur l'optimisation pour le procédé peut être exprimé ainsi par :

$$\min_p J = \frac{1}{2} e^T e \quad (5.32)$$

$$\text{où } e = x^{(1)}(t_o^{(1)}) - x^{(4)}(t_f^{(4)}) \quad (5.33)$$

soumis aux modèle du procédé (3.46 - 3.49) et les conditions initiales et aux limites (tableau 3.5).

Méthode de calcul

Méthode du système adjoint

La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (5.4.1.1), la seule différence étant que les transitions pour le système adjoint sont différentes pour ce modèle.

Les conditions de transition (instants de commutation) pour le système adjoint sont les mêmes que pour le modèle du procédé. Les fonctions de transition correspondantes sont données par les relations suivantes :

$$\lambda^{(k)}(t_f^{(k)}) = \lambda^{(k+1)}(t_o^{(k+1)}), \quad k = 3, 2, 1 \quad (5.34)$$

Résultats de simulation

Paramètres du modèle

Les profils de pression pour les étapes non isobares sont des fonctions linéaires du temps. La pression pour l'étape de compression s'écrit :

$$P(t) = P_H + (P_L - P_H) \left[-\frac{t}{\tau_{comp}} + 1 \right] \quad (5.35)$$

et pour l'étape de décompression, elle s'exprime par :

$$P(t) = P_L + (P_H - P_L) \left[-\frac{t}{\tau_{decom}} + 1 \right] \quad (5.36)$$

En outre, les durées des étapes d'adsorption et de purge sont égales ($\tau_{ads} = \tau_{des} = \tau$). De la même façon, les durées des étapes de compression et décompression sont égales et sont fixées au quart des durées des étapes isobares ($\tau_{comp} = \tau_{decom} = 0,25 \tau$).

Le nombre de volumes finis est 20. Les paramètres du procédé nécessaires pour la simulation sont présentés dans la tableau (5.6) (Liu et Ritter (1996)).

Paramètre	Valeur	Unité
r	0,0135	m
L	0,29	m
ϵ	0,43	-
ρ_s	480	kg/m^3
C_{ps}	$1,05 \times 10^3$	$J/kg.K$
V_f	0,0005	$m^3 STP/min$
y_f	5	vol %
T_f	293	K
T_o	293	K
τ_c	20	min
τ_{com} et τ_{dec}	2	min
τ_{ads} et τ_{pur}	8	min
ρ_g	1,308	kg/m^3
C_{pg}	1,006	kJ/kgK
ΔH	43,5	$kJ/mole$
k	0,086	s^{-1}
q_s	4,4	$mole/kg$
b_o	$3,88 \times 10^{-8}$	$m^3/mole$
h	31,4	J/m^2sK
P_H	$1,52 \times 10^5$	Pa
P_L	$7,6 \times 10^3$	Pa
γ	1,5	-

Tableau 5.6: Paramètres pour la simulation du modèle de Liu et Ritter (1996)

Résultats et discussion

Les différents critères pour la comparaison des deux méthodes de calcul des gradients sont présentés dans le tableau (5.7). La comparaison de ce critère nous permet de constater que la méthode du système adjoint converge plus rapidement que les différences finies. En plus, elle est plus précise puisqu'elle conduit à un critère de performance plus faible. Les résultats obtenus à l'aide de la méthode classique des substitutions successives sont également présentés sur le tableau (5.7) à titre de comparaison. On remarque que l'approche du système adjoint est plus performante

	Méthode des Différences Finies	Méthode de Système Adjoint	Substitutions Successives
No d'itération	30	7	184
Temps du calcul (s)	1097	10	823
Indice de Performance	$2,1 \times 10^{-3}$	$5,9 \times 10^{-6}$	$1,1 \times 10^{-3}$

Tableau 5.7: Résultats de l'optimisation du modèle non isotherme (NI-VF)

L'évolution du critère de performance en fonction de nombre d'itérations est illustrée sur la figure (5.18). Il convient de noter que la condition du CSS n'est pas uniformément nulle à partir de la 3ème itération. La figure (5.19) le montre en présentant un agrandissement de cette partie de la figure (5.18).

Les figures (5.20), (5.21), (5.22) et (5.23) présentent respectivement les variations de la concentration dans le gaz et dans le solide, de la température et de la vitesse le long de la colonne. Les profils à la fin de l'adsorption du premier cycle et au CSS y sont reportés.

Les profils temporels des variables d'état à l'état stationnaire cyclique pour les étapes de compression, adsorption, décompression et purge sont présentés sur les figures (5.24), (5.25), (5.26) et (5.27) respectivement.

Les résultats obtenus par cette approche sont identiques à ceux de Liu et Ritter (1996). Pour déterminer l'état stationnaire cyclique par la simulation du procédé, ils ont discrétisé le modèle par la méthode des différences finies et l'ont résolu à l'aide de méthode de Newton-Raphson. Cependant, le temps de calcul est important (Liu *et al.* (1998)) par rapport à la méthode de système adjoint développée ici.

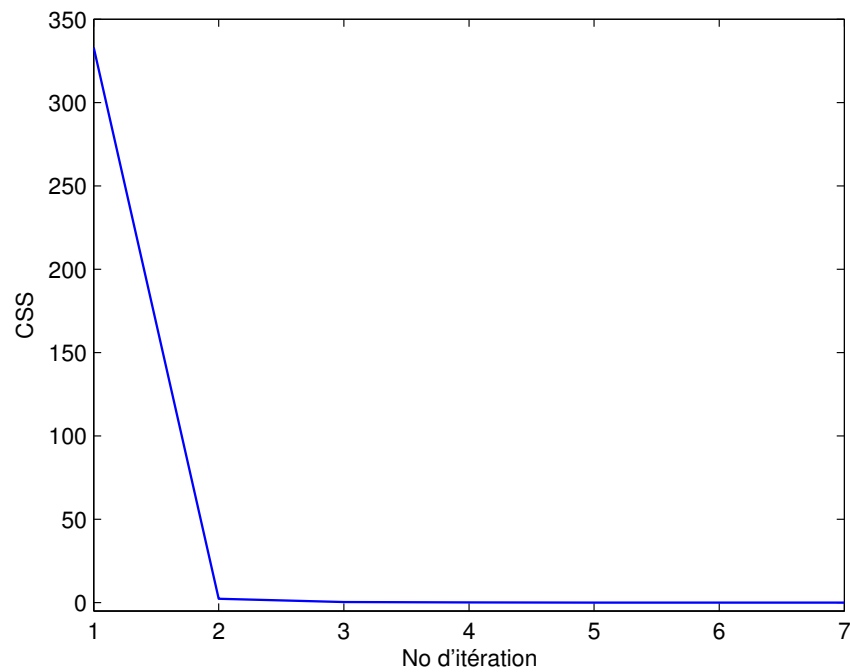


Figure 5.18: Évolution itérative du critère de performance (NI-FV)

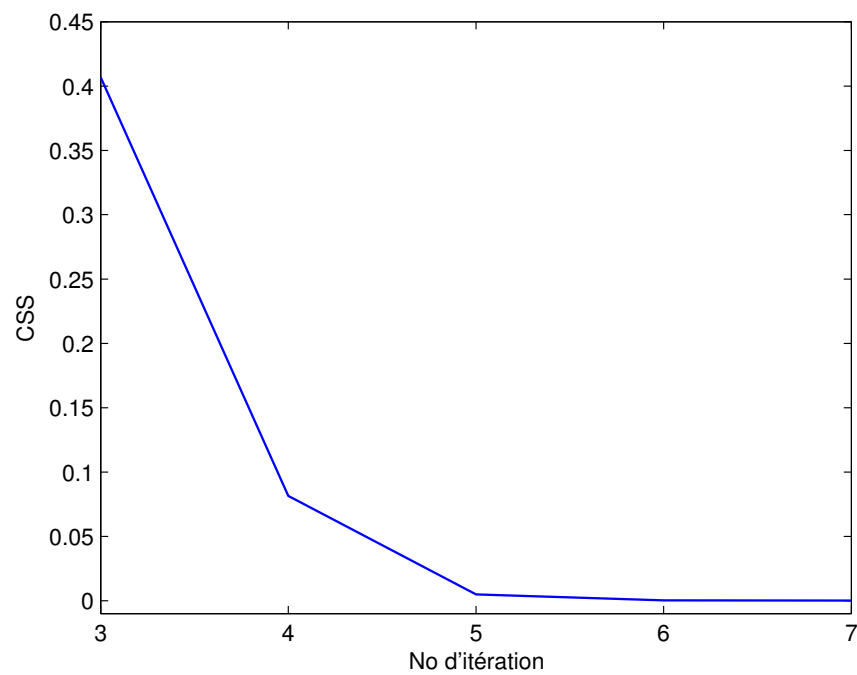


Figure 5.19: Évolution itérative du critère de performance (agrandissement) (NI-FV)

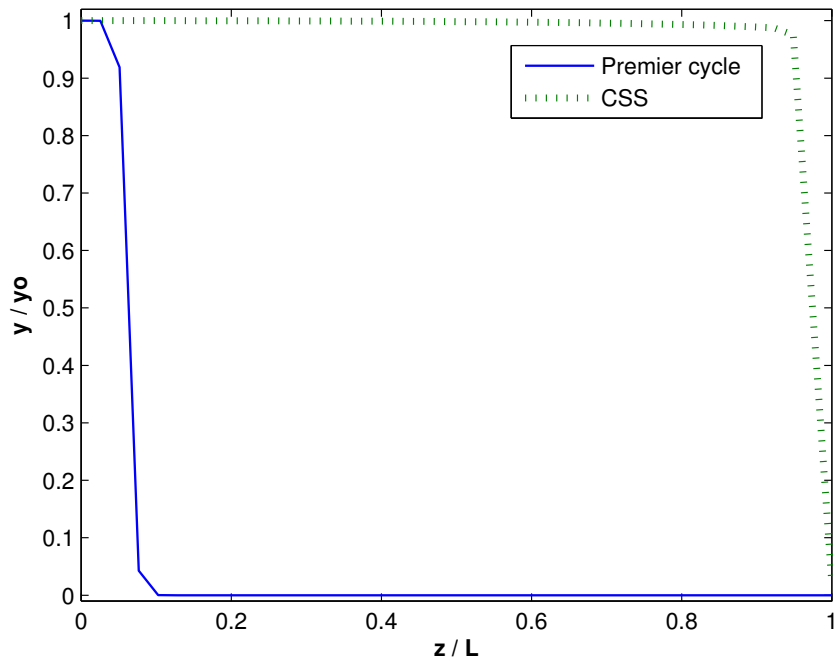


Figure 5.20: Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne (NI-FV)

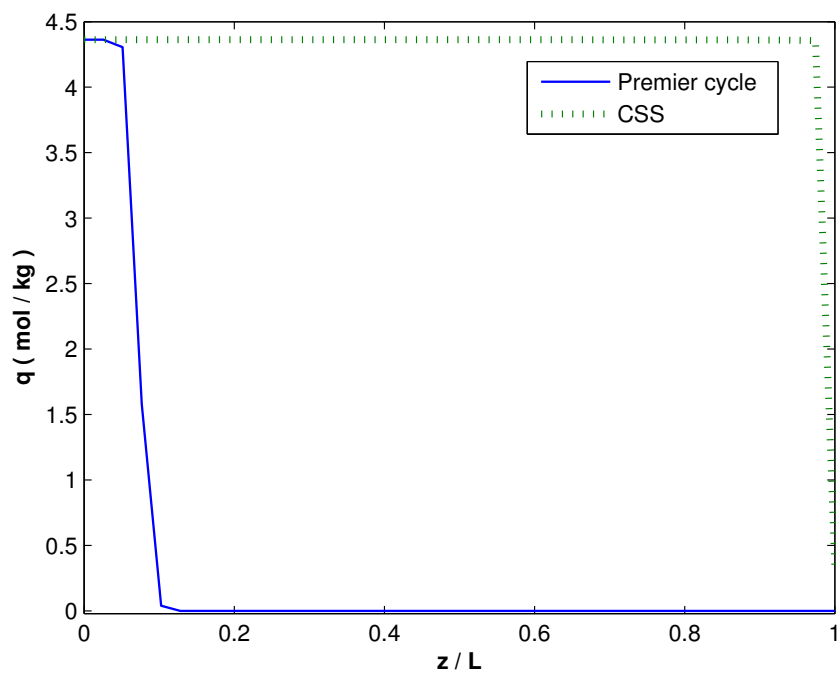


Figure 5.21: Profils de concentration dans le solide le long de la colonne (NI-FV)

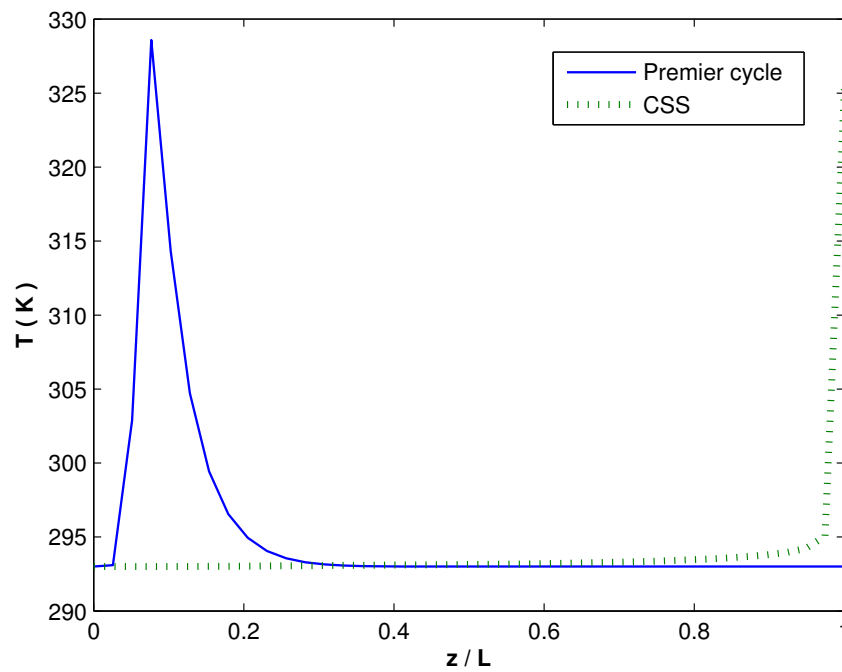


Figure 5.22: Profils de température le long de la colonne (NI-FV)

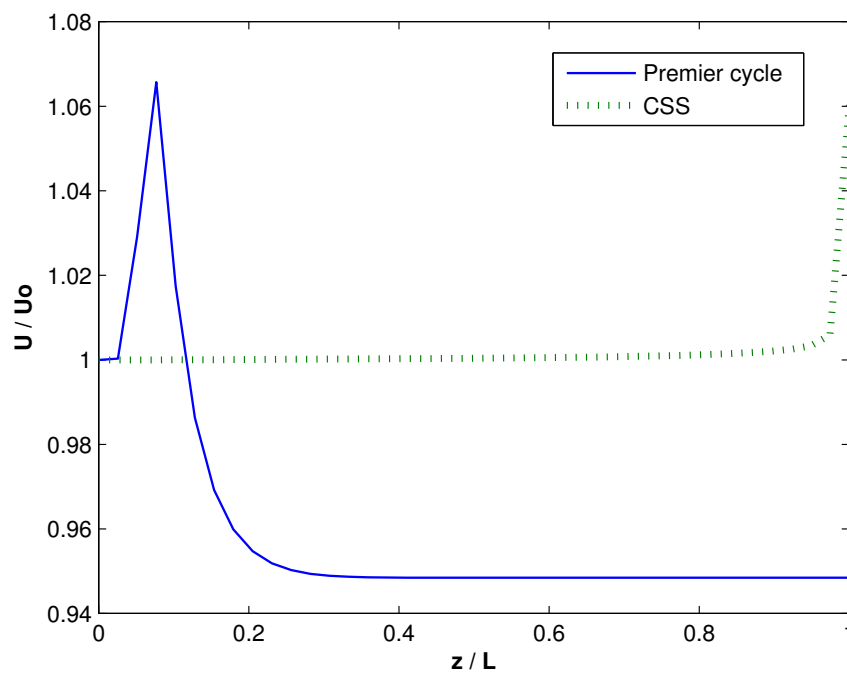
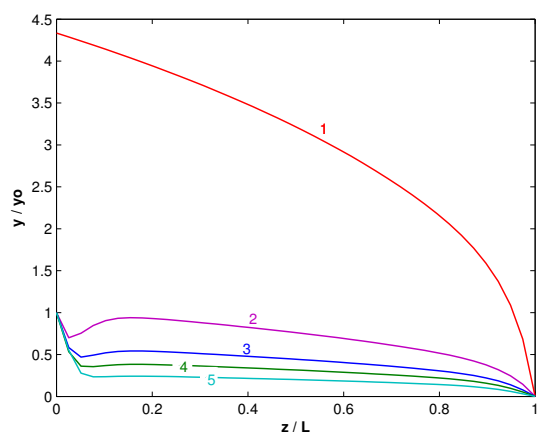
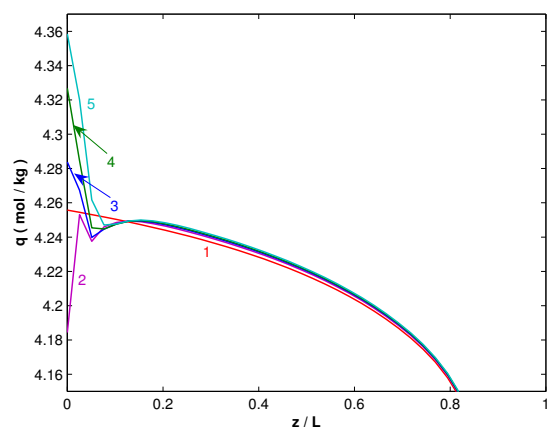


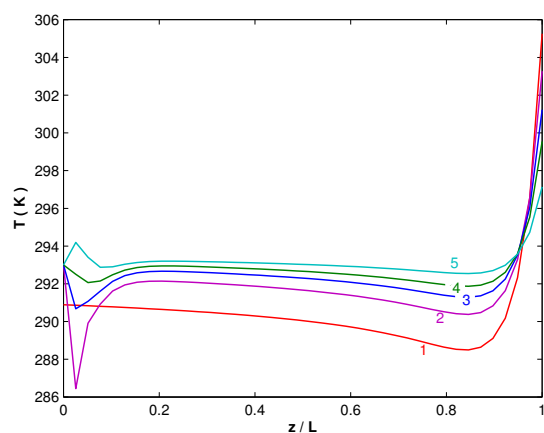
Figure 5.23: Profils de vitesse le long de la colonne (NI-FV)



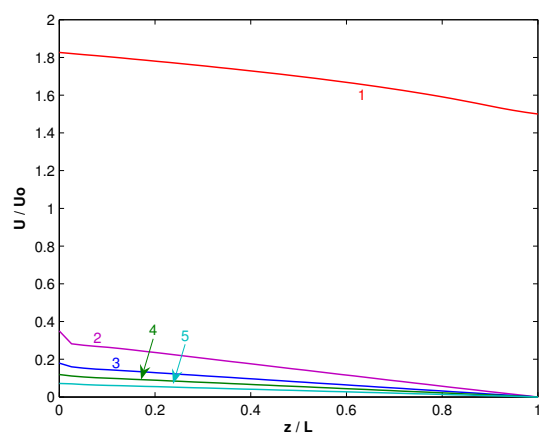
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

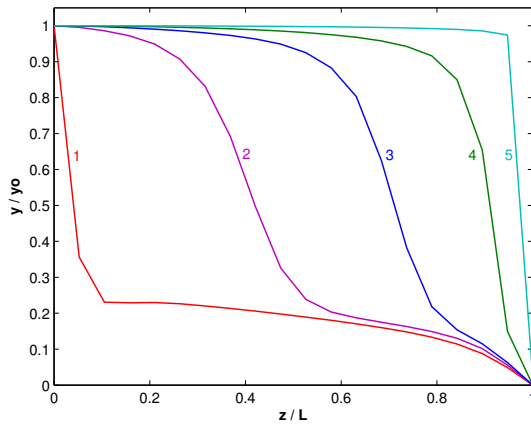


Profils de température le long de la colonne

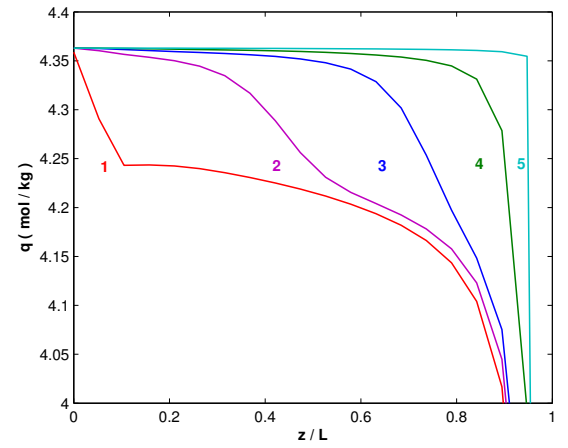


Profils de vitesse le long de la colonne

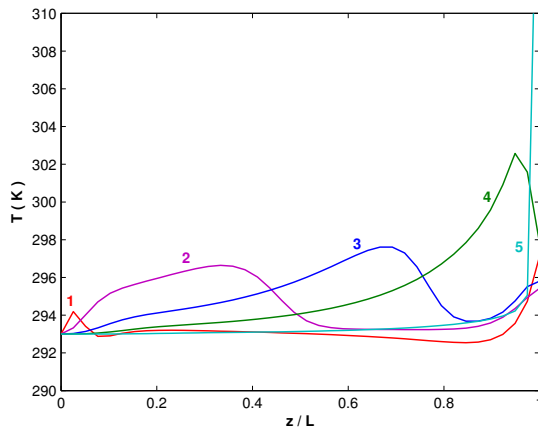
Figure 5.24: Profils temporels des variables d'état pour l'étape de compression au CSS
Les courbes 1, 2, 3, 4 et 5 correspondent aux profils aux instants = 0, 0,5, 1, 1,5 et 2 minutes respectivement.



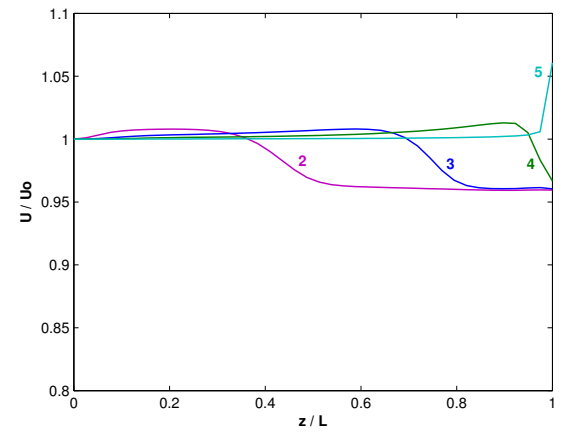
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

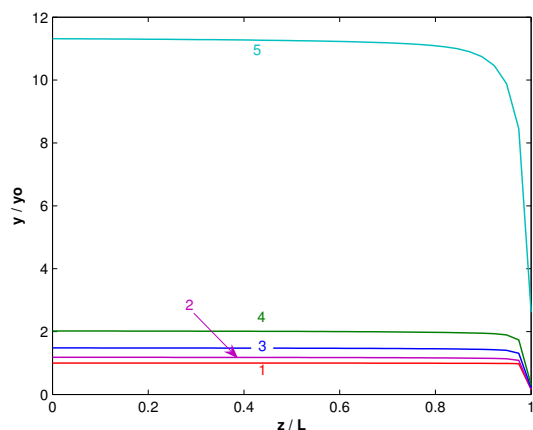


Profils de température le long de la colonne

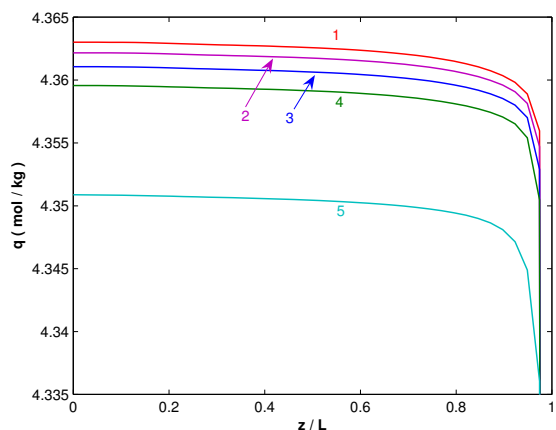


Profils de vitesse le long de la colonne

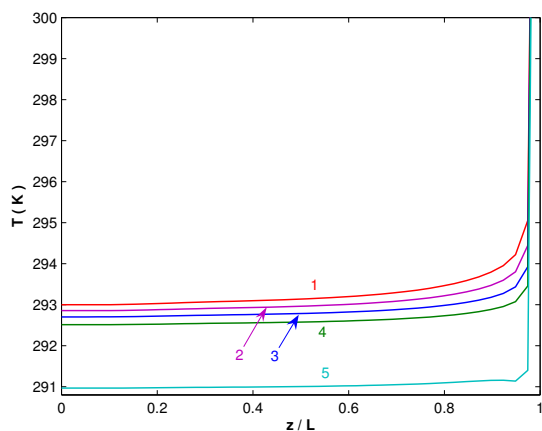
Figure 5.25: Profils temporels des variables d'état pour l'étape d'adsorption au CSS
Les courbes 1, 2, 3, 4 et 5 correspondent aux profils aux instants = 0, 2, 4, 6 et 8 minutes respectivement.



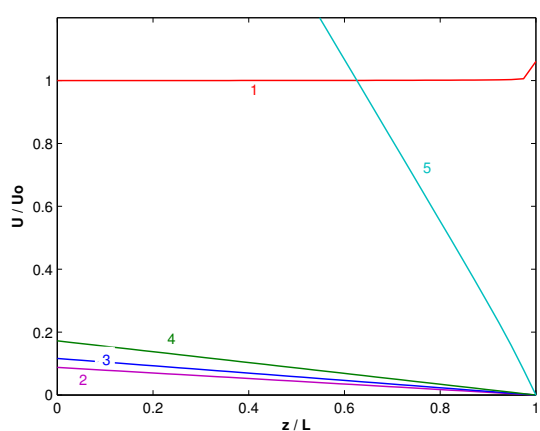
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

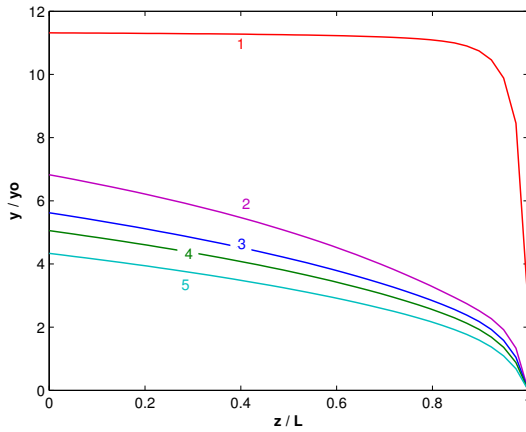


Profils de température le long de la colonne

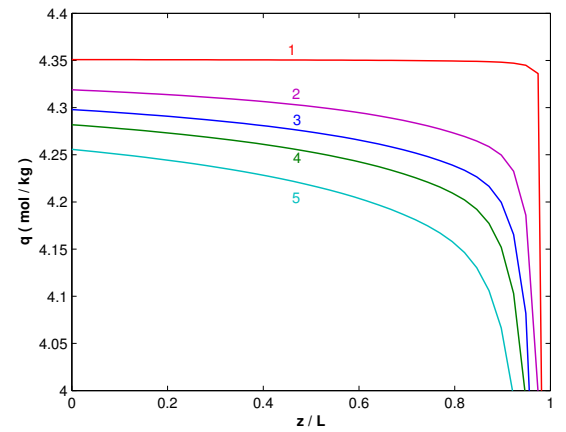


Profils de vitesse le long de la colonne

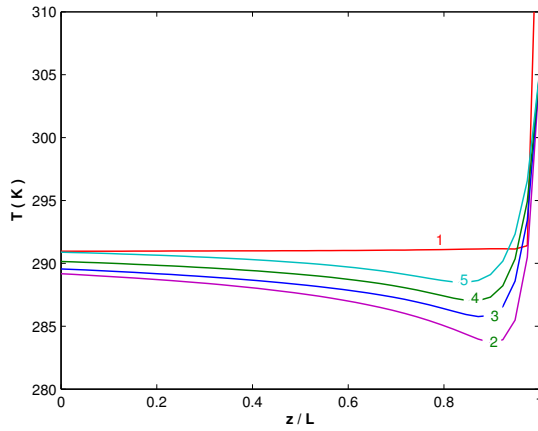
Figure 5.26: Profils temporels des variables d'état pour l'étape de decompression au CSS
Les courbes 1, 2, 3, 4 et 5 correspondent aux profils aux instants = 0, 0,5, 1, 1,5 et 2 minutes respectivement.



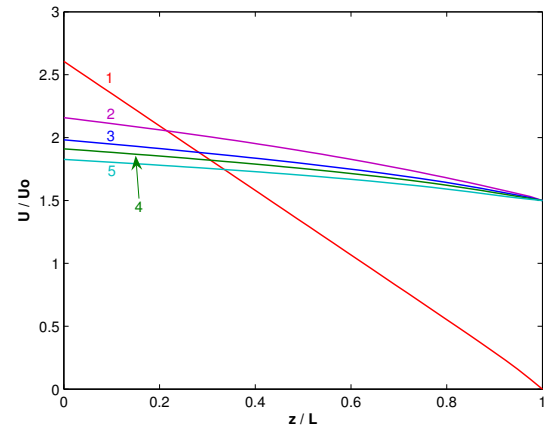
Profil de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profil de concentration dans le solide le long de la colonne



Profil de température le long de la colonne



Profil de vitesse le long de la colonne

Figure 5.27: Profils temporels des variables d'état pour l'étape de purge au CSS
Les courbes 1, 2, 3, 4 et 5 correspondent aux profils aux instants = 0, 2, 4, 6 et 8 minutes respectivement.

5.5 Conclusions

La simulation basée sur l'optimisation hybride de procédé PSA a été réalisée dans ce travail. La méthode du système adjoint a été développée pour le procédé hybride et les résultats obtenus ont été comparés à ceux de la méthode des différences finies. Pour les trois types de modèles traités (isotherme et non isotherme avec états gelés, et non isotherme sans états gelés), allant du plus simple au plus compliqué; la performance de la méthode de système adjoint est meilleure que celle de la méthode de différences finies.

Par ailleurs, les performances de la méthode classique des substitutions successives sont présentées pour chacun des problèmes traités. Cette méthode est dans tous les cas étudiés plus performante que la méthode d'optimisation basée sur les différences finies. Ce constat peut paraître paradoxale pour cette méthode dont la convergence est seulement du premier ordre; mais pour des systèmes de petite taille et un point de départ très proche de la solution, elle peut être tout à fait performante.

Plus globalement, il convient de comparer l'approche développée dans ce travail de simulation basée sur l'optimisation aux méthodes de Newton dont la convergence est quadratique (Croft et LeVan (1994)). En effet, ces dernières méthodes n'ont besoin que de quelques itérations pour converger. Par contre, cela suppose que la matrice jacobienne est calculée d'une manière précise et qu'elle présente encore un caractère creux. Dans la littérature la plus récente (Croft et LeVan (1994), Jiang *et al.* (2003)), la méthode des sensibilités est utilisée pour calculer précisément la jacobien. La matrice résultante est souvent dense (moins creuse); et son inversion nécessite beaucoup de temps. En plus, Latifi *et al.* (2008) ont montré que le calcul des gradients à l'aide de la méthode des sensibilités est moins rapide que la méthode du système adjoint. D'où la pertinence et l'intérêt de l'approche d'optimisation basée sur le système adjoint.

Chapitre 6

Optimisation des procédés PSA

6.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons traité le problème de détermination de l'état stationnaire cyclique (CSS) de procédés PSA. Ce problème de simulation a été formulé comme un problème d'optimisation où le critère de performance est défini par la condition du CSS et les contraintes sont principalement imposées par le modèle hybride du procédé.

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser au problème d'optimisation de procédés PSA. L'objectif est de déterminer les valeurs de paramètres de fonctionnement (pression d'adsorption, durée des étapes, vitesses d'écoulement isobares) et/ou de dimensionnement (longueur et rayon de colonne) qui optimisent un critère de performance donné (énergie, pureté, rendement) sous des contraintes spécifiées (modèle de procédé,...). La principale caractéristique de ce problème réside dans le fait que la condition de CSS du problème de simulation devient une contrainte pour le problème d'optimisation. En effet, toute solution du problème d'optimisation doit satisfaire le CSS.

Après une étude bibliographique, les principaux critères d'optimisation seront présentés et les contraintes les plus significatives seront décrites. Ensuite, les problèmes d'optimisation les plus pertinents seront détaillés, suivis d'une discussion des résultats obtenus.

6.2 Etude bibliographique

Bien que les procédés PSA soient utilisés depuis assez longtemps, l'intérêt de la communauté scientifique envers l'optimisation des procédés PSA est assez récent

(Kvamsdal et Hertzberg (1995a), (Kvamsdal et Hertzberg (1997), Nilchan et Pantelides (1998), Ko et Moon (2000), Jiang *et al.* (2003), Ko *et al.* (2003), Knaebel *et al.* (2005), Ko *et al.* (2005)). La plupart des recherches publiées dans la littérature sur l'optimisation des procédés PSA peuvent être groupées dans deux catégories : l'approche "boîte noire" ou l'approche "orientée équations".

Dans l'approche "boîte noire", un ensemble de variables de décision est choisi pour l'optimiser et cela pour chaque essai. Le modèle du procédé est intégré avec ces variables jusqu'à ce que l'état stationnaire cyclique soit établi. Les valeurs de l'indice de performance et des contraintes sont calculées une fois les profils des variables d'état dans la colonne établis. Cette approche peut être efficace pour trouver les effets de certaines variables de décision et leurs interactions. Du fait que cette approche soit robuste et nous permet d'analyser les modèles très détaillés des procédés PSA, elle est largement utilisée dans l'industrie. Pourtant, il est important de remarquer que cette approche nécessite que la condition du CSS soit établie pour chaque ensemble de variables de décision et afin de pouvoir analyser le procédé, on doit faire plusieurs centaines d'essais. Par conséquent, l'optimisation des procédés PSA, par cette approche, prend un temps assez important Jiang *et al.* (2003).

Nilchan et Pantelides (1998) proposent l'approche "orientée équations". Ils formulent le problème d'optimisation avec le modèle du procédé, le critère d'optimisation et la contrainte de CSS ainsi que d'autres contraintes. Le problème d'optimisation ainsi formulé est résolu à l'aide d'un solveur NLP basé sur les gradients. Cette approche est utilisée dans plusieurs études pour l'optimisation de procédés PSA, mais les modèles des procédés décrits à l'aide des systèmes d'équations algèbro-différentielles partielles sont résolus différemment.

Nilchan et Pantelides (1998) et Ko *et al.* (2003) appliquent la technique de discrétisation totale. D'après cette méthode, les domaines spatial et temporel sont discrétisés par la méthode des différences finies ou la méthode d'éléments finis. Par conséquent, le problème d'optimisation dynamique est transformé en un problème d'optimisation statique et résolu ensuite à l'aide du code gPROMS basé sur les sensibilités. Pour atteindre une précision satisfaisante, la dimension du problème approximé par la méthode de discrétisation totale est souvent assez grande. Cette approche est efficace pour les systèmes simples, mais le solveur échoue pour les systèmes complexes à cause de l'accumulation des erreurs (Ko *et al.* (2003), Jiang *et al.* (2003)).

Kvamsdal et Hertzberg (1997), Ko *et al.* (2003), Jiang *et al.* (2003) et Ko *et al.* (2005) proposent de résoudre le problème d'optimisation à l'aide de la méthode des lignes; les variations spatiales sont ainsi remplacées par leurs approximations. Kvamsdal et Hertzberg (1997) utilisent la méthode des collocations orthogonales pour la discrétisation spatiale. Ils calculent les gradients par les équations de sensibilité et utilisent un code basé sur la méthode SQP pour l'optimisation d'un modèle simple de procédé PSA. Ko et Moon (2000), Ko *et al.* (2003) et Ko *et al.* (2005) mettent en oeuvre la méthode des différences finies centrées pour la discrétisation spatiale tandis que Jiang *et al.* (2003) utilisent la méthode des volumes finis. La méthode des sensibilités est utilisée dans ces travaux pour calculer les gradients et le problème est résolu à l'aide du code gPROMS. Rappelons que le nombre de variables de décision issu de la discrétisation spatiale est assez grand. En outre, l'application de la méthode de sensibilités pour le calcul des gradients conduit à un système DAE de grande dimension et par conséquent, le temps de calcul est important.

Pour remédier à ce problème, nous proposons dans ce travail d'utiliser la méthode du système adjoint pour le calcul des gradients. Les variables spatiales seront discrétisées à l'aide de la méthode des volumes finis.

6.3 Critères de performance et contraintes

6.3.1 Critères de performance

Les trois paramètres les plus importants pour définir la performance technique d'un procédé PSA sont la pureté du produit, le taux de récupération du produit et la productivité de l'adsorbant. Par exemple, pour un procédé PSA destiné à séparer un mélange binaire H_2/CO_2 où H_2 est le produit, ces paramètres de performance peuvent être définis comme suit :

$$Pureté = \frac{Produit_{H_2}}{Produit_{H_2} + Produit_{CO_2}} \quad (6.1)$$

$$Récupération = \frac{Produit_{H_2} - Purge_{H_2}}{Alimentation_{H_2}} \quad (6.2)$$

$$Productivité = \frac{Quantité\ (kg)\ de\ H_2\ produite\ par\ heure}{Quantité\ (kg)\ de\ l'adsorbant} \quad (6.3)$$

La consommation d'énergie est le principal facteur qui permet d'évaluer la performance économique d'un procédé PSA. Par ailleurs, le travail de compression constitue la partie

prédominante des dépenses énergétiques. L'énergie de compression W_c peut être exprimée par :

$$W_c = \frac{k}{k-1} \left[\frac{P_H^{\frac{k-1}{k}}}{P_L} \right] u_H \pi r^2 P_H \quad (6.4)$$

Les variables de décision sont souvent des variables de dimensionnement et d'opération. Les variables de dimensionnement sont la longueur et le rayon du lit, tandis que les variables d'opération sont les pressions pour l'étape d'adsorption et pour l'étape de purge, les durées des étapes, le débit d'alimentation, etc...

6.3.2 Contraintes

La principale contrainte d'un problème d'optimisation des procédés PSA est la condition de l'état stationnaire cyclique (CSS). Les valeurs des variables de dimensionnement et d'opérations sont souvent bornées comme suit :

$$p_{min} \leq p \leq p_{max}$$

D'autres types de contraintes liées au fonctionnement des procédés PSA peuvent également être prises en comptes. Un exemple typique concerne la détection des fronts de percée pendant l'étape d'adsorption.

6.4 Quelques problèmes d'optimisation

Nous présentons ici quelques problèmes d'optimisation des procédés PSA à titre d'exemples :

- **P1 :**

Critère : Pureté

Contrainte : Modèle du procédé, CSS.

- **P2 :**

Critère : Taux de récupération

Contrainte : Modèle du procédé, CSS.

- **P3 :**

Critère : Pureté

Contrainte : Modèle du procédé, CSS, Taux de récupération.

- **P4 :**

Critère : Énergie

Contrainte : Modèle du procédé, CSS, Pureté.

Quelques études de cas sont décrites dans la littérature (Smith IV et Westerberg (1991), Kvamsdal et Hertzberg (1995b), Betlem *et al.* (1998), Pigorini et Douglas Levan (1998)).

6.5 Approche proposée

6.5.1 Principales nouveautés

La méthode d'optimisation utilisée dans cette étude peut être classée comme l'approche "orientée équations" selon la classification des différentes méthodes d'optimisation des procédés PSA discutée dans la section précédente. Pour la résolution des modèles mathématiques, la méthode des lignes est utilisée. La discrétisation spatiale est réalisée à l'aide de la méthode des volumes finis. Le problème d'optimisation est résolu en utilisant un solveur NLP basé sur les gradients calculés à l'aide de la méthode du système adjoint.

Les principales nouveautés de l'approche que nous proposons sont :

1. la formulation hybride du problème d'optimisation. Elle permet d'identifier clairement les différents modes, les conditions et les fonctions de transition d'un mode à un autre. Elle est très importante pour le calcul des fonctions de transition du système adjoint.
2. l'association de la méthode des volumes finis à la méthode du système adjoint. En effet, la première méthode qui permet de discrétiser l'espace est une méthode conservative; quant à la deuxième méthode, nous avons montré qu'elle était plus rapide et précise que les méthodes des sensibilités ou des différences finies (Latifi *et al.* (2008)).

6.5.2 Définition du problème d'optimisation

Du fait que tous les procédés PSA fonctionnent normalement à l'état stationnaire cyclique, il est donc important pour la conception de ces procédés de trouver la condition où les profils des variables d'état dans la colonne d'adsorption sont établis. Par conséquent, la condition de CSS est considérée comme une contrainte dans le problème d'optimisation.

Nous avons montré dans le chapitre précédent que la détermination du CSS consistait à trouver les conditions initiales de sorte que les profils dans la colonne ne changent pas d'un cycle à l'autre. Par conséquent, pour le problème d'optimisation des procédés PSA, le vecteur des valeurs initiales des variables différentielles fait ainsi partie des variables de décision.

Le vecteur des variables de décision θ constitué par les vecteurs d'état au début du cycle et de paramètres s'écrit :

$$\theta = \left(x_0^{(1),T}, p^T \right)^T \quad (6.5)$$

Le vecteur initial des variables différentielles d'état est donné par :

$$x_0^{(1),T} = \left(y_1^{(1),0}, y_2^{(1),0}, \dots, y_N^{(1),0}, q_1^{(1),0}, q_2^{(1),0}, \dots, q_N^{(1),0}, T_1^{(1),0}, T_2^{(1),0}, \dots, T_N^{(1),0} \right) \quad (6.6)$$

Le vecteur des variables de dimensionnement et d'opération s'exprime :

$$p^T = (L, r, \tau_{comp}, \tau_{ads}, \tau_{dec}, \tau_{pur}, P_H, u_L, u_H) \quad (6.7)$$

Les variables de décision varient entre des limites inférieures et des limites supérieures comme suit :

$$\theta_{min} \leq \theta \leq \theta_{max} \quad (6.8)$$

Le problème d'optimisation peut être exprimé par :

$$\min_{\theta} \left\{ J_0 = G_0 [x(t_f), \theta, t_f] + \int_{t_0}^{t_f} F_0 [x, \theta, t] dt \right\} \quad (6.9)$$

soumis à :

- modèle hybride du procédé
- condition de CSS
- bornes des variables

Les conditions nécessaires d'optimalité pour les systèmes hybrides sont développées dans la section (4.4.2). Les gradients du critère de performance et des contraintes par rapport aux paramètres θ selon cette méthode s'expriment :

$$\frac{\partial J_i}{\partial \theta_j} = \lambda^1(t_o^{(1)}) \frac{\partial x^{(1)}(t_o^{(1)})}{\partial \theta_j} + \frac{\partial G_i}{\partial \theta_j} + \int_0^{t_f} \frac{H_i}{\partial \theta_j} dt \quad (6.10)$$

Le Hamiltonien du critère de performance et des contraintes pour chaque mode peut être exprimé par :

$$H_i^{(k)} = F_i(x, \theta) + \lambda_i^T f^{(k)}(x, \theta), \quad i = 0, 1, \dots, n_c, \quad k = 1, 2, \dots, n_s \quad (6.11)$$

où l'indice 0 est utilisé pour le critère et les autres indices sont réservés pour les contraintes.

Le vecteur des variables adjointes est défini par :

$$\dot{\lambda}_i^{(k)} = -\frac{\partial H_i^{(k)}}{\partial x^{(k)}} \quad (6.12)$$

avec les conditions aux limites :

$$\lambda_i(t_f) = \frac{\partial G_i}{\partial x} \Big|_{t=t_f}, \quad i = 0, 1, \dots, n_c \quad (6.13)$$

Rappelons que le procédé PSA est hybride et qu'il utilise plusieurs opérations (compression, adsorption, décompression, purge) pour former un cycle. Par conséquent, le système adjoint correspondant utilisé pour le calcul des gradients est également hybride.

Comme dans le cas de l'intégration du modèle, les commutations entre différents modes sont réalisées par un ensemble de transitions. Les conditions de transition (instants des commutations) pour le système adjoint sont les mêmes que pour le modèle du procédé. Les fonctions de transition correspondantes sont :

- Si les variables d'état sont continues aux points de transitions ($\Delta_i = 0$) :

$$\lambda_i^{(k)}(t_f^{(k)}) = \lambda_i^{(k+1)}(t_o^{(k+1)}) \quad (6.14)$$

- Si les variables d'état sont discontinues aux points de transitions ($\Delta_i \neq 0$) :

$$\lambda_i^{(k)}(t_f^{(k)}) = \lambda_i^{(k+1)}(t_o^{(k+1)}) + \lambda_i^{(k+1)}(t_o^{(k+1)}) \frac{\partial \Delta_i}{\partial x_i^{(k)}} \quad (6.15)$$

où $i = 0, 1, \dots, n_c$ et $k = 1, 2, \dots, n_s - 1$.

6.5.3 Méthode de résolution

La méthode de résolution consiste à fournir une estimation des valeurs initiales des variables de décision. Ces valeurs sont utilisées pour l'intégration du modèle du procédé et du système adjoint. Ceci nous permet de calculer le critère de performance et les contraintes ainsi que leurs gradients à fournir au solveur NLP. Le solveur estime un nouveau vecteur des variables de décision. Le processus est répété jusqu'à la convergence où les valeurs optimales des variables de décision sont obtenues.

L'algorithme de résolution est montré sur la figure (6.1).

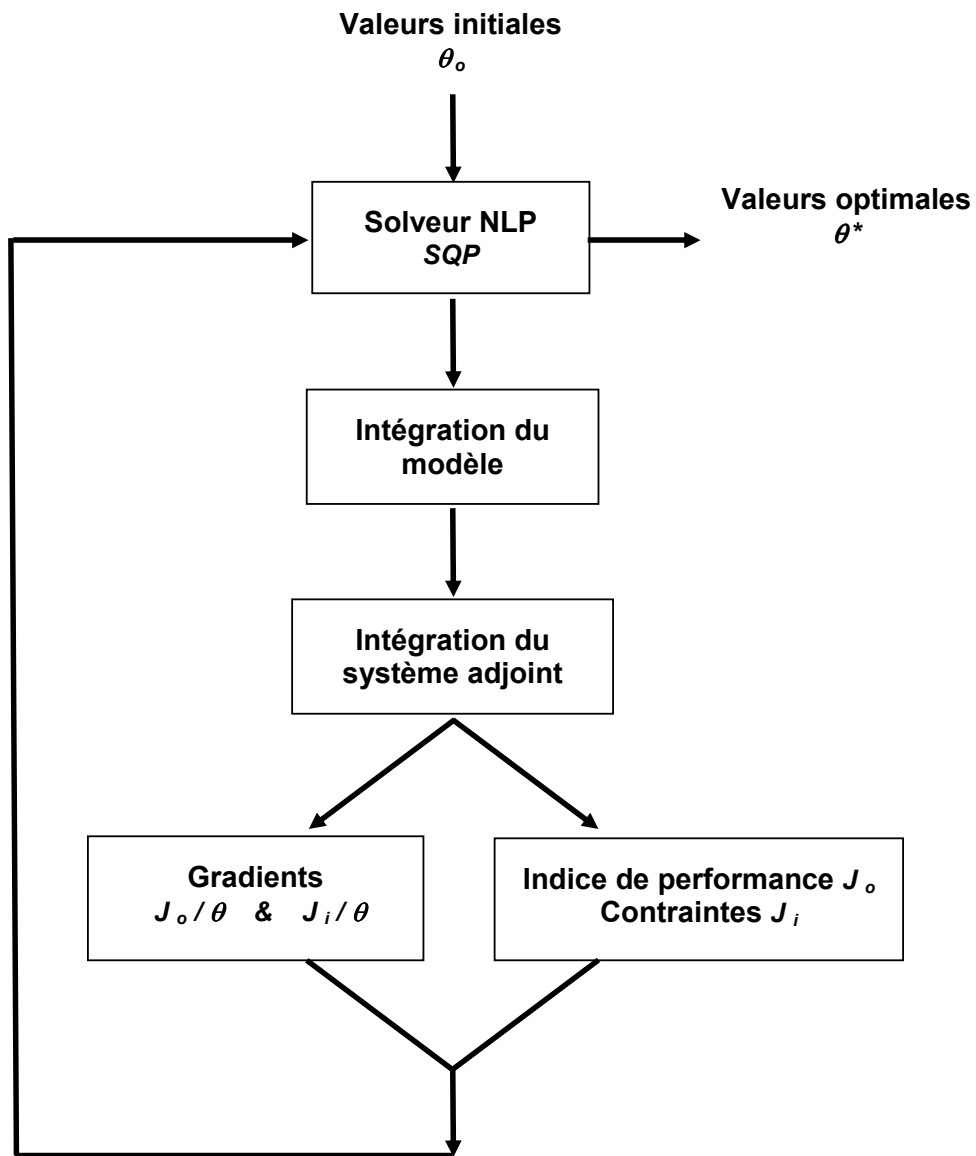


Figure 6.1: Algorithme de résolution

6.6 Problèmes traités

L'approche proposée dans la section précédente est appliquée aux différents modèles de procédés établis dans le chapitre (2) afin de déterminer les variables optimales de dimensionnement et d'opération. Les modèles isotherme et non isotherme avec états gelés sont d'abord optimisés pour la pureté et le taux de récupération. Ensuite, le modèle non isotherme sans états gelés est optimisé pour l'énergie, la pureté, le taux de récupération et l'énergie avec contrainte sur la pureté.

Les différents critères utilisés pour l'évaluation de la performance des procédés PSA, destiné à séparer un mélange binaire H_2/CO_2 où H_2 est le produit, sont présentés ci-dessous :

- *Puissance instantanée* (J/s) : elle représente l'énergie fournie par unité de temps pour la compression du mélange gazeux à séparer. Pour les étapes non isobares, on peut calculer la puissance instantanée par :

$$Puissance = \frac{k}{k-1} \left[\left(\frac{P_H}{P_L} \right)^{\frac{k-1}{k}} - 1 \right] u_H \pi r^2 P_H \quad (6.16)$$

- *Puissance moyenne* (J/s) : C'est la moyenne de l'énergie fournie par unité de temps au cours des étapes de compression et d'adsorption pour la compression du mélange gazeux. Elle s'écrit :

$$Puissance_{(moy)} = \frac{\int_{t_0}^{t_1} Puissance dt + \int_{t_1}^{t_2} Puissance dt}{\tau_{comp} + \tau_{ads}} \quad (6.17)$$

- *Pureté instantanée* (%) : elle est exprimée par le rapport instantané entre la quantité de H_2 et la quantité totale du produit ($H_2 + CO_2$) à la sortie du lit d'adsorption au cours de l'étape d'adsorption. Elle est donnée par l'expression :

$$Pureté_{H_2} = \frac{v(L, t) C_{H_2}(L, t)}{v(L, t) C_{CO_2}(L, t) + v(L, t) C_{H_2}(L, t)} \times 100 \quad (6.18)$$

- *Pureté moyenne* (%) : elle mesure la pureté de H_2 tout au long de l'étape d'adsorption. Elle s'exprime par :

$$Pureté_{(moy)}_{H_2} = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_1}^{t_2} Pureté_{H_2} dt \times 100 \quad (6.19)$$

- *Récupération instantanée* (%) : C'est le rapport instantané entre la quantité de H_2 produite et la quantité de H_2 utilisée pour l'alimentation de la colonne au cours de l'étape d'adsorption. Elle est fournie par :

$$Récupération_{H_2} = \frac{v(L, t) C_{H_2}(L, t)}{v(0, t) C_{H_2}(0, t)} \times 100 \quad (6.20)$$

- *Récupération moyenne (%)* : elle exprime la récupération de H_2 tout au long de l'étape d'adsorption. Elle s'écrit :

$$Récupération_{(moy) H_2} = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_1}^{t_2} Récupération_{H_2} dt \times 100 \quad (6.21)$$

- *Récupération nette instantanée (%)* : la récupération nette prend en compte la régénération du lit au cours de l'étape de purge par H_2 produit au cours de l'étape d'adsorption. Elle est définie comme le rapport instantanée entre la quantité de H_2 produite durant l'adsorption moins la quantité utilisé pour la purge et la quantité de H_2 alimentée dans la colonne au cours de l'étape d'adsorption. Elle est donnée par :

$$Récupération_{net H_2} = \frac{v(L, t)C_{H_2}(L, t)|_{ads} - v(L, t)C_{H_2}(L, t)|_{pur}}{v(0, t)C_{H_2}(0, t)|_{ads}} \times 100 \quad (6.22)$$

- *Récupération nette moyenne (%)* : elle mesure la récupération nette de H_2 tout au long de l'étape d'adsorption, et s'exprime par :

$$Récupération_{net(moy) H_2} = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_1}^{t_2} Récupération_{net H_2} dt \times 100 \quad (6.23)$$

- *Productivité de l'adsorbant (mol/kg.s)* : c'est la quantité de H_2 produite par unité de masse d'adsorbant et par unité de temps. Elle s'écrit :

$$Productivité = \frac{\int_{t_1}^{t_2} v(L, t)C_{H_2}(L, t) dt}{\rho_b L \tau_c} \quad (6.24)$$

- *Production moyenne (mol/s)* : elle représente la mesure de la quantité de H_2 produite par unité du temps. Elle peut être calculée par :

$$Production_{(moy) H_2} = \frac{\Omega}{\tau_{ads}} \int_{t_1}^{t_2} v(L, t)C_{H_2}(L, t) dt \quad (6.25)$$

- *Puissance spécifique moyenne (J/mol)* : elle est exprimée par le rapport entre la consommation de l'énergie pour la compression de mélange gazeux et la quantité de H_2 produite.

$$P_{spe(moy)} = \frac{Puissance_{moyenne}}{Production_{moyenne}} \quad (6.26)$$

- *Facteur de capacité du lit BCF* (%)* : c'est le rapport entre la capacité du lit utilisé au CSS et la capacité maximale du lit aux conditions initiales. Elle est définie par :

$$BCF = \frac{1}{L} \int_0^L \frac{q}{q_f^*} dz \times 100 \quad (6.27)$$

*BCF : Bed capacity factor

- *Temps du séjour* $\tau_{sej}(s)$: c'est un important paramètre pour caractériser les unités qui travaillent avec des flux continus. Pour les procédés d'adsorption, la pureté du produit est directement proportionnelle au temps de séjour. Il s'écrit :

$$\tau_{sej} = \frac{L}{v} \quad (6.28)$$

Les calculs sont réalisés à l'aide d'un ordinateur Intel Pentium 4 cadencé à 3,40 GHz. Nous avons utilisé l'intégrateur VODE (Brown *et al.* (1989)) pour les modèles isotherme et non isotherme avec états gelés, tandis que DASSL (Brenan *et al.* (1989)) est utilisé pour l'intégration numérique du modèle non isotherme sans états gelés. Le problème d'optimisation est résolu à l'aide du solveur de programmation non linéaire NLPQL (Schittkowski (1986)).

6.6.1 Modèle isotherme avec états gelés

6.6.1.1 Optimisation de la pureté (I-EG-P)

Dans cette partie, le problème d'optimisation d'un procédé PSA utilisé pour le séchage d'air est résolu à l'aide de la méthode d'optimisation dynamique hybride afin de maximiser la pureté moyenne de l'air. Le modèle isotherme avec états gelés présenté dans la chapitre précédent est considéré.

Formulation du problème d'optimisation

Le problème d'optimisation consiste à déterminer les valeurs optimales des variables d'état au début du cycle, de dimensionnement (longueur de la colonne) et d'opération (durée d'étape, vitesse de fluide) qui maximisent la pureté moyenne de l'air tout en respectant la condition de l'état stationnaire cyclique.

Le critère d'optimisation défini ici est la pureté moyenne de l'air. Elle est exprimée par l'équation (6.19) où la pureté instantanée est donnée par l'équation (6.18).

La contrainte de l'état stationnaire cyclique (CSS) s'écrit :

$$\begin{aligned} e^T e &\leq \epsilon_{css} \\ \text{où } e &= x^{(1)}(t_o^{(1)}) - x^{(2)}(t_f^{(2)}), \\ \text{et } \epsilon_{css} &\text{ la précision requise pour le CSS.} \end{aligned} \quad (6.29)$$

Le vecteur des variables de décision θ est défini ainsi :

$$\theta = \left(x_0^{(1),T}, p^T \right)^T \quad (6.30)$$

$$\text{où } x_0^{(1),T} = \left(\bar{c}_1^{(1),0}, \bar{c}_2^{(1),0}, \dots, \bar{c}_N^{(1),0}, \bar{q}_1^{(1),0}, \bar{q}_2^{(1),0}, \dots, \bar{q}_N^{(1),0} \right) \quad (6.31)$$

$$\text{et } p^T = (L, \tau_{ads}, \tau_{pur}, u_L, u_H) \quad (6.32)$$

Le vecteur des variables de décision est soumis aux bornes suivantes :

$$\theta_{min} \leq \theta \leq \theta_{max} \quad (6.33)$$

Le problème d'optimisation peut être ainsi exprimé comme suit :

$$\max_{\theta} \left\{ J = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_0}^{t_1} \frac{v(L, t) C_{air}(L, t)}{v(L, t) C_{air}(L, t) + v(L, t) C_{eau}(L, t)} dt \right\} \quad (6.34)$$

soumis au modèle du procédé (3.28-3.32), à la condition du CSS (6.29) et aux bornes des variables de décision (6.33).

Méthode de calcul

La méthode de calcul est développée dans la section (6.5.3) et est résumée sur le diagramme de la figure (6.1).

Rappelons que la convergence et sa vitesse dépendent fortement de la précision du calcul des gradients nécessaires pour les solveurs basés sur les gradients. Les gradients sont calculés par la méthode du système adjoint brièvement rappelée ci-dessous.

$$\frac{\partial J_i}{\partial \theta_j} = \lambda^1(t_o^{(1)}) \frac{\partial x^{(1)}(t_o^{(1)})}{\partial \theta_j} + \frac{\partial G_i}{\partial \theta_j} + \int_0^{t_f} \frac{H_i}{\partial \theta_j} dt \quad (6.35)$$

Le hamiltonien de l'indice de performance et de la contrainte de CSS pour chaque mode s'écrit :

$$H_i^{(k)} = F_i(x, \theta) + \lambda_i^T f^{(k)}(x, \theta) \quad (6.36)$$

Le vecteur des variables adjointes est défini par :

$$\dot{\lambda}_i^{(k)} = - \frac{\partial H_i^{(k)}}{\partial x^{(k)}} \quad (6.37)$$

avec les conditions aux limites :

$$\lambda_i^{(2)}(t_f) = \left. \frac{\partial G_i}{\partial x} \right|_{t=t_f^{(2)}} \quad (6.38)$$

$i = 0, 1; j = 1, 2, \dots, Np$ et $k = 1, 2$.

Les conditions de transition (instants des commutations) pour le système adjoint sont les mêmes que pour le modèle du procédé. Les fonctions de transition correspondantes sont :

- Pour la concentration dans le gaz

$$\lambda_i^{(1)}(t_f^{(1)}) = \lambda_i^{(2)}(t_0^{(2)}) \frac{P_L}{P_H} \quad (6.39)$$

- Pour la concentration dans le solide

$$\lambda_i^{(1)}(t_f^{(1)}) = \lambda_i^{(2)}(t_0^{(2)}) \quad (6.40)$$

L'algorithme de résolution du problème d'optimisation est le suivant :

1. Estimation des valeurs initiales des variables de décision θ
2. Intégration du modèle hybride du procédé (3.28-3.32)
3. Intégration à rebours du système adjoint (6.37-6.40)
4. Calcul du critère de performance (6.34) et des gradients (6.35)
5. Estimation d'un nouveau vecteur des variables de décision par le solveur NLP et le processus est répété jusqu'à la convergence.

Résultats

Paramètres du modèle

Les durées des étapes d'adsorption et de purge sont égales. Les paramètres du procédé sont donnés dans le tableau 6.1 (Chihara et Suzuki (1983a)). Le nombre de volumes finis pour la discrétisation spatiale est 20. Les paramètres de calcul sont présentés sur le tableau (6.2).

Resultats et discussion

Paramètre	Valeur	Unité
r	0,1	m
ϵ	0,4	-
ρ_s	$1,2 \times 10^3$	kg/m^3
C_{ps}	$1,26 \times 10^3$	$J/kg.K$
ρ_g	1,2	kg/m^3 (à pres. atm.)
C_{pg}	1×10^3	$J/kg.K$
k	7,57	m^3/kg
ΔH	$5,19 \times 10^4$	J/mol
$K_s a_v$	0,2	$kg/m^3.s$ (à P_H)
	1	$kg/m^3.s$ (à P_B)
k_{ez}	0,293	$J/m.s.K$
h_o	40	$J/m^2.s.K$
c_o	0,79	mol/m^3
T_o	303	K
P_H	$5,07 \times 10^5$	Pa
P_B	$1,01 \times 10^5$	Pa

Tableau 6.1: Paramètres du modèle (États gelés)

Paramètre	Valeur	Unité
Temps de calcul	11,9	s
Nombre d'itérations	11	—
Précision CSS (ϵ_{css})	1×10^{-3}	—
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-7}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-7}	—

Tableau 6.2: Paramètres de calcul (I-EG-P)

Avant de présenter et discuter les résultats, nous allons d'abord expliquer comment le vecteur des variables de décision a été borné et initialisé.

Les bornes des variables de dimensionnement et d'opération ont été fixées en se basant sur l'analyse paramétrique réalisée par Chihara et Suzuki (1983a) dans leur étude sur la simulation du même procédé PSA. Quant aux variables d'état initiales, les résultats obtenus dans le chapitre précédent sur la détermination du CSS ont servi de base pour les borner.

Quant à l'initialisation, les variables de dimensionnement et d'opération sont initialisées, au sien de leurs limites de variation, de sorte que la pureté moyenne soit relativement faible. Par exemple : la pureté du produit peut être améliorée en augmentant le taux de reflux. La valeur du taux de reflux donnée dans Chihara et Suzuki (1983a) est 2. Par ailleurs, ils constatent que le CSS n'est pas atteint si le taux de reflux est égal à 1. Les valeurs initiales des vitesses (d'adsorption et de purge) de sorte que le taux de reflux soit égale à 1 conduisent ainsi à une valeur initiale relativement faible de la pureté. Les mêmes considérations sont prises en compte pour initialiser la longueur du lit.

Pour le vecteur d'état initial, les valeurs de départ sont fixées de sorte que la pureté soit relativement faible et que la conditions du CSS ne soit pas respectée. Les profils initiaux de concentration dans le gaz et dans le solide sont bien développés mais la contrainte du CSS n'est pas encore respectée.

Les valeurs initiales, les valeurs optimales et les bornes correspondantes des paramètres de dimensionnement et de fonctionnement sont présentées sur le tableau (6.3). Par ailleurs, le tableau (6.4) montre les valeurs optimales de la pureté moyenne, de la condition de CSS ainsi que de quelques critères de performance précédemment définis. En analysant ces résultats, on peut noter que le temps de séjour du fluide dans le lit pendant l'étape d'adsorption a substantiellement augmenté en passant de 1,5 s (cette valeur est déduite des valeurs initiales de la vitesse d'adsorption et de la longueur du lit (tableau 6.3)) au début de l'optimisation à 5,4 s à l'optimum. Cette augmentation est nettement favorable à l'amélioration de la pureté dont la valeur optimale atteint les 100%.

Il convient toutefois de noter sur la figure (6.2), qui présente l'évolution de la pureté en fonction des itérations, que la pureté de départ était de 99,996%, c'est à dire que l'air était déjà très pur et que l'objectif de l'optimisation était d'éliminer les dernières traces

Variable de décision	Valeur initiale	Valeur optimale	Borne supérieure	Borne inférieure	Unité
Longueur de lit	0,6	0,76	1,2	0,18	<i>m</i>
Durée d'adsorption	548	539	1080	162	<i>s</i>
Vitesse (adsorption)	0,4	0,142	0,8	0,12	<i>m/s</i>
Vitesse (purge)	0,4	0,37	0,8	0,12	<i>m/s</i>

Tableau 6.3: Valeurs optimales et bornes des variables de décision (I-EG-P)

Critère	Valeur	Unité
Pureté moyenne	100	%
Contrainte de ESC	$5,6 \times 10^{-4}$	—
Impureté moyenne	$9,9 \times 10^{-8}$	%
Taux de récupération net	48,4	%
Productivité de l'adsorbant	$2,4 \times 10^3$	<i>mol/kg.s</i>
BCF	0,98	%
Temps de séjour	5,4	<i>s</i>

Tableau 6.4: Résultats de l'optimisation (I-EG-P)

d'eau. Il est cependant connu que l'amélioration des derniers centièmes, voire millièmes de la pureté est la plus difficile à réaliser.

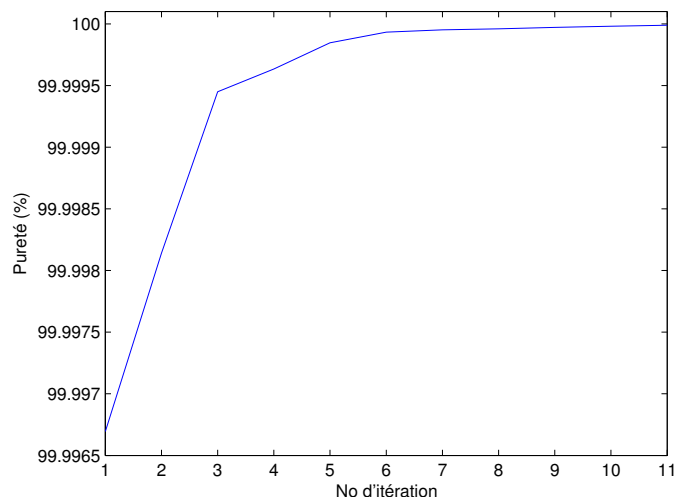


Figure 6.2: Évolution itérative du critère de performance (I-EG-P)

Par contre, l'augmentation du temps de séjour, largement induite par la diminution de la vitesse d'adsorption, pénalise le taux de récupération net moyen. Sa valeur à l'optimum n'atteint que 48,4% et reste relativement faible pour un procédé PSA (une valeur normale se situe aux alentours de 60%). Il est d'ailleurs connu que la pureté et le taux de récupération sont deux critères de performance antagonistes, et c'est la raison pour laquelle l'optimisation de la pureté (taux de récupération) est souvent réalisée sous la contrainte du taux de récupération (pureté) (voir 6.6.1.3). En outre, le facteur BCF est très faible justifiant la nécessité de l'augmentation du temps de séjour pour pouvoir maximiser la pureté. Par ailleurs, les valeurs de l'impureté moyenne et de la productivité de l'adsorbant sont fournies à titre indicatif.

Quant à l'évolution de la contrainte du CSS avec les itérations, elle est présentée sur la figure (6.3). Elle montre que les valeurs optimales ainsi déterminées respectent bien l'état stationnaire cyclique.

Enfin, les figures (6.4) et (6.5) présentent les profils des concentrations dans le fluide et dans le solide pour les étapes d'adsorption et de purge respectivement. Les profils initiaux et à l'optimum y sont également reportés et montrent la bonne initialisation des variables d'état.

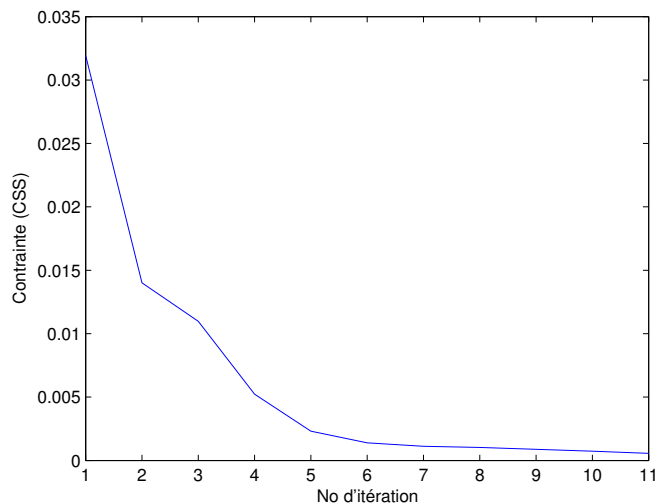
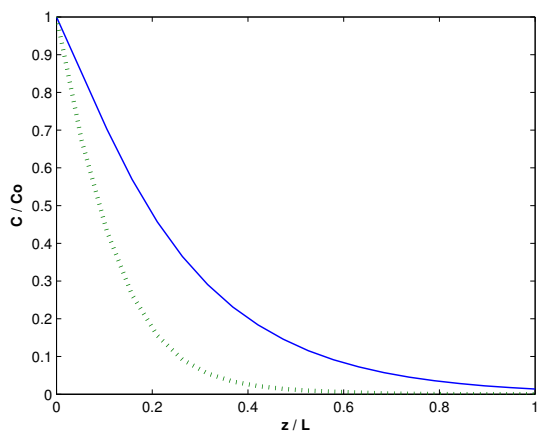
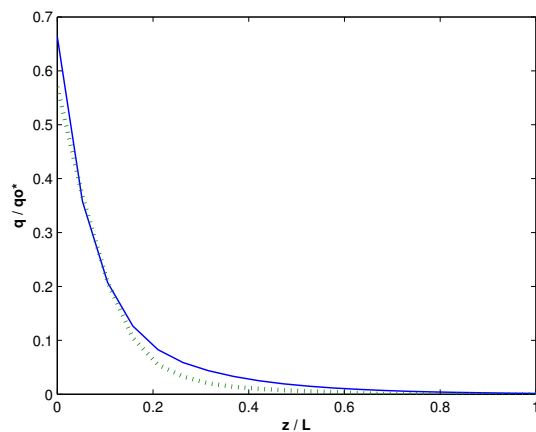


Figure 6.3: Évolution itérative de la contrainte du CSS (I-EG-P)



Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

Figure 6.4: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (I-EG-P)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

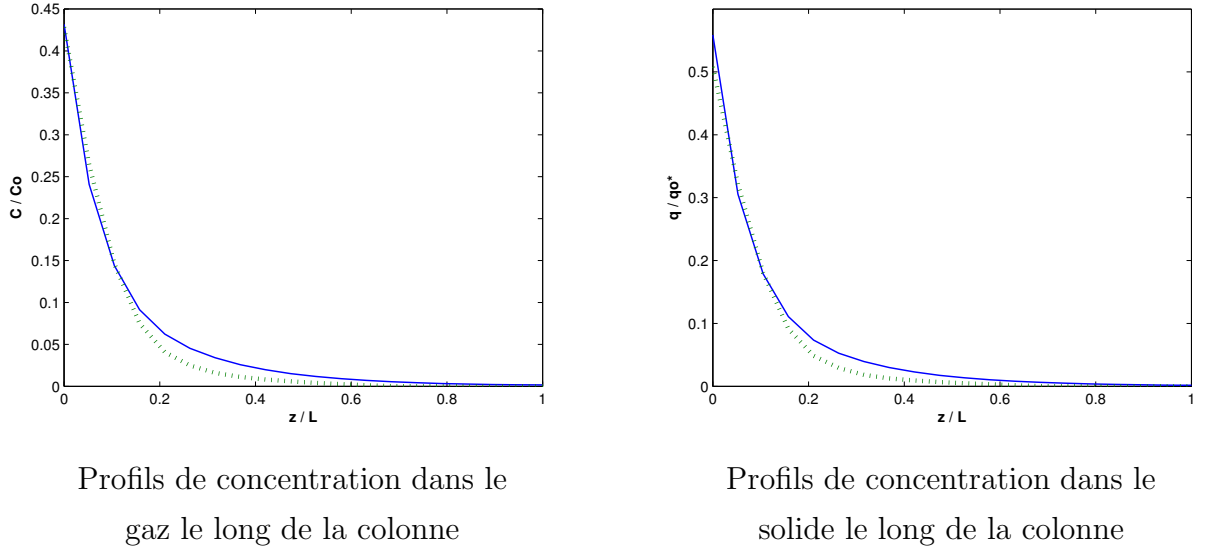


Figure 6.5: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (I-EG-P)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

6.6.1.2 Optimisation de la récupération (I-EG-R)

Dans cette partie, nous nous intéressons à l'optimisation de la récupération de l'air pour le même problème que précédemment (section (6.6.1.1)).

La récupération moyenne de l'air est exprimée par l'équation (6.23) où la récupération instantanée est donnée par l'équation (6.22).

La conditions du CSS, le vecteur des variables de décision avec les bornes correspondantes sont les mêmes que dans la section (6.6.1.1).

Le problème d'optimisation peut être exprimé comme suit :

$$\max_{\theta} \left\{ J = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_0}^{t_1} \frac{v(L, t)C_{air}(L, t)|_{ads} - v(L, t)C_{air}(L, t)|_{pur}}{v(0, t)C_{air}(0, t)|_{ads}} dt \right\} \quad (6.41)$$

soumis au modèle du procédé (3.28-3.32), à la condition du CSS (6.29) et aux bornes des variables de decision (6.33).

Méthode de calcul

La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (6.5.3).

Résultats

Paramètres du modèle

Les paramètres du modèle sont les mêmes que précédemment (6.6.1.1). Les paramètres de calcul sont présentés sur le tableau (6.5).

Paramètre	Valeur	Unité
Temps de calcul	5, 8	<i>s</i>
Nombre d'itérations	5	—
Précision CSS (ϵ_{css})	2×10^{-2}	—
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-6}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-6}	—

Tableau 6.5: Paramètres de calcul (I-EG-R)

Résultats et discussion

Les bornes des variables de décision sont fixées de la même façon que dans le cas de l'optimisation de la pureté (6.6.1.1). Les valeurs initiales des variables de décision sont estimées en considérant le critère d'optimisation : la récupération moyenne nette. En fait, le taux de récupération net peut être amélioré en augmentant la vitesse au cours de l'étape d'adsorption ou en diminuant la vitesse au cours de l'étape de purge. À partir de ces considérations, nous avons initialisé les variables opératoires en utilisant les résultats de Chihara et Suzuki (1983a), sauf la longueur du lit et la vitesse pour l'étape de purge. Les résultats du problème isotherme ont servi pour initialiser ces deux variables. Les variables d'état sont initialisées de sorte que la contrainte du CSS ne soit pas respectée.

Les valeurs initiales, les valeurs optimales et les bornes correspondantes des paramètres de dimensionnement et de fonctionnement sont présentées sur le tableau (6.6). Par ailleurs, le tableau (6.7) montre les valeurs optimales du taux de récupération net moyen, de la condition de CSS ainsi que des autres critères précédemment définis. Ces résultats nous permettent de remarquer que les rôles des vitesses d'adsorption et de purge dans la récupération net sont très importants. En fait, la vitesse d'adsorption a tendance à augmenter et celle de purge a tendance à diminuer. Le taux de reflux, par conséquent, a baissé en passant de 2,4 au début de l'optimisation à 1,19 à l'optimum, favorisant ainsi

l'amélioration de taux du récupération net moyen.

Variable de décision	Valeur initiale	Valeur optimale	Borne supérieure	Borne inférieure	Unité
Longueur de lit	0,8	0,81	1,6	0,64	<i>m</i>
Durée d'adsorption	480	480	960	384	<i>s</i>
Vitesse (adsorption)	0,25	0,42	0,5	0,2	<i>m/s</i>
Vitesse (purge)	0,6	0,5	1.2	0,48	<i>m/s</i>

Tableau 6.6: Valeurs optimales et bornes des variables de décision (I-EG-R)

Critère	Valeur	Unité
Pureté moyenne	100	%
Contrainte de CSS	2×10^{-2}	—
Impureté moyenne	$2,3 \times 10^{-5}$	%
Taux de récupération net	76,3	%
Productivité de l'adsorbant	$6,7 \times 10^3$	<i>mol/kg.s</i>
BCF	1,2	%
Temps de séjour	1,9	<i>s</i>

Tableau 6.7: Résultats de l'optimisation (I-EG-R)

L'évolution du critère de performance en fonction du nombre d'itérations est illustrée sur la figure (6.6). Nous notons que la récupération moyenne nette a bien été améliorée en passant de 52,2% à 76,3%. En outre, la comparaison de cette valeur avec celle obtenue dans l'optimisation de la pureté (6.6.1.1) nous permet de confirmer que la pureté et la taux de récupération sont deux critères de performance antagonistes. Ce résultat est mieux apprécié en regardant les impuretés plutôt que les puretés.

Par ailleurs, le temps de séjour a diminué de 3,2 à 1,92. Les effets du taux de reflux et de temps de séjour sur la pureté du produit sont très importants. L'impureté moyenne a, par conséquent, augmenté de $9,2 \times 10^{-7}$ au début de l'optimisation à $2,4 \times 10^{-5}$ à l'optimum.

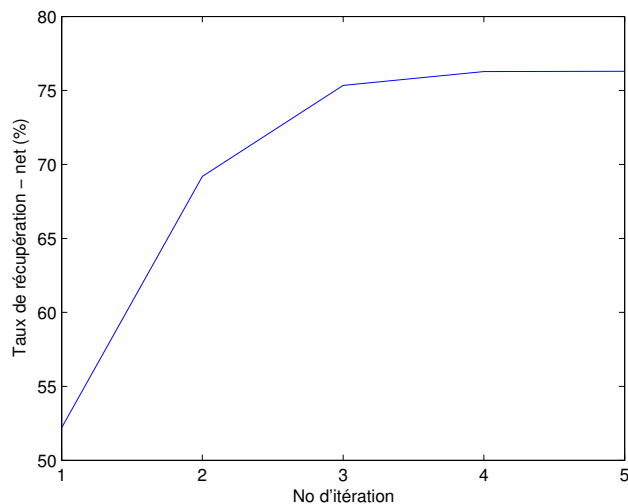


Figure 6.6: Évolution itérative du critère de performance (I-EG-R)

La figure (6.7) montre l'évolution de la contrainte du CSS avec les itérations. Elle montre que la contrainte du CSS est respectée à l'optimum.

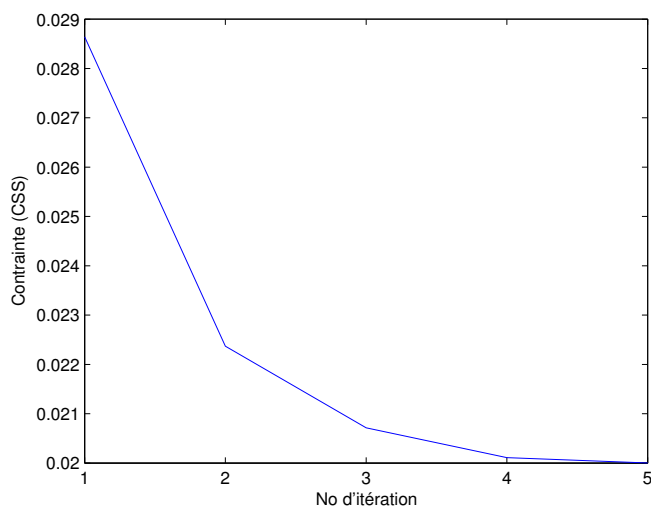
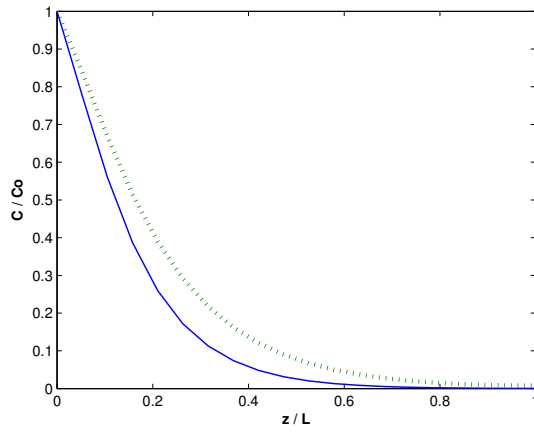
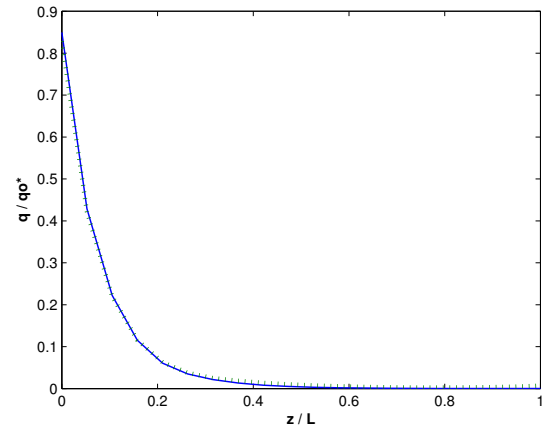


Figure 6.7: Évolution itérative de la contrainte du CSS (I-EG-R)

Les profils des variables d'état pour les étapes d'adsorption et de purge sont présentés sur les figures (6.8) et (6.9) respectivement. Ils mettent en évidence la bonne initialisation des variables d'état initial.

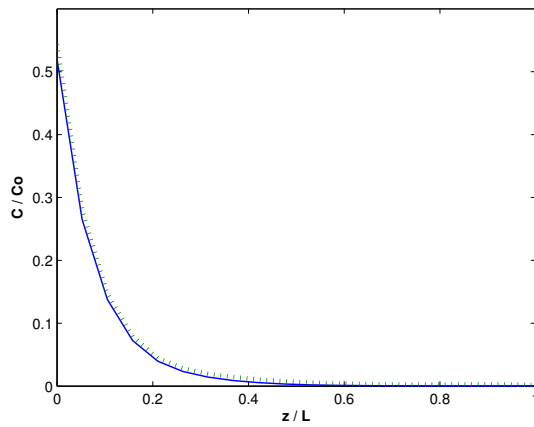


Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne

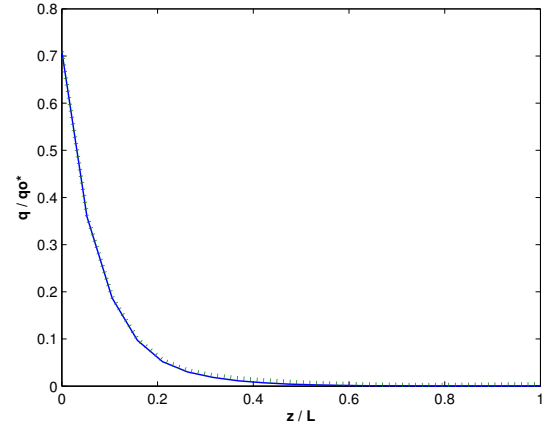


Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

Figure 6.8: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (I-EG-R)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

Figure 6.9: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (I-EG-R)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

6.6.1.3 Optimisation de la récupération avec contrainte sur l'impureté (I-EG-R(P))

Dans la section (6.6.1.1), nous avons vu que la pureté et la récupération étaient des critères antagonistes, et que l'optimisation de l'un avec l'autre comme contrainte était pertinente. Dans cette partie, nous nous intéressons à l'optimisation de la récupération de l'air pour le même problème que précédemment (section (6.6.1.2)) avec la contrainte sur l'impureté moyenne.

Le critère d'optimisation, la contrainte du CSS, les variables de décision et les bornes correspondantes sont les mêmes que dans la section (6.6.1.2).

La contrainte sur l'impureté moyenne peut être exprimée par :

$$\frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_0}^{t_1} \frac{v(L, t) C_{H_2O}(L, t)}{v(L, t) C_{air}(L, t) + v(L, t) C_{H_2O}(L, t)} dt \leq \epsilon_{imp} \quad (6.42)$$

où ϵ_{imp} est la valeur maximale tolérée de l'impureté moyenne.

Le problème d'optimisation peut être exprimé comme suit :

$$\max_{\theta} \left\{ J = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_0}^{t_1} \frac{v(L, t) C_{air}(L, t)|_{ads} - v(L, t) C_{air}(L, t)|_{pur}}{v(0, t) C_{air}(0, t)|_{ads}} dt \right\} \quad (6.43)$$

soumis au modèle du procédé (3.28-3.32), à la condition du CSS (6.29), à la contrainte de l'impureté (6.42) et aux bornes des variables de décision (6.33).

Méthode de calcul

La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (6.6.1.1).

Résultats

Paramètres du modèle

Les paramètres du modèle sont les mêmes que précédemment (6.6.1.1). Les paramètres de calcul sont présentés sur le tableau (6.8).

Resultats et discussion

Paramètre	Valeur	Unité
Temps de calcul	5, 8	<i>s</i>
Nombre d'itérations	5	—
Précision CSS (ϵ_{css})	2×10^{-2}	—
Tolérance impureté (ϵ_{imp})	$1, 6 \times 10^{-5}$	%
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-6}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-6}	—

Tableau 6.8: Paramètres de calcul (I-R(P))

Les bornes des variables de décision sont fixées de la même façon que dans le cas de l'optimisation de la pureté (6.6.1.1). Nous avons initialisé les variables de décision à partir des résultats de Chihara et Suzuki (1983a). Les variables d'état sont initialisées de sorte que la contrainte du CSS ne soit pas respectée.

Le tableau (6.9) montre les valeurs initiales, les valeurs optimales et les bornes correspondantes des paramètres de dimensionnement et de fonctionnement. Par ailleurs, le tableau (6.10) montre les valeurs optimales du taux de récupération net moyenne, de la condition de CSS ainsi que des autres critères précédemment définis. En analysant ces résultats, on peut remarquer les mêmes tendances pour les vitesses d'adsorption et de purge que dans le cas précédemment. Le taux de reflux a baissé en passant de 2,0 au début de l'optimisation à 1,0 à l'optimum favorisant ainsi l'amélioration de taux de récupération net moyen.

Variable de décision	Valeur initiale	Valeur optimale	Borne supérieure	Borne inférieure	Unité
Longueur de lit	0, 8	0, 802	1, 6	0, 64	<i>m</i>
Durée d'adsorption	480	497, 9	960	384	<i>s</i>
Vitesse (adsorption)	0, 25	0, 39	0, 5	0, 2	<i>m/s</i>
Vitesse (purge)	0, 5	0, 40	1, 0	0, 4	<i>m/s</i>

Tableau 6.9: Valeurs optimales et bornes des variables de décision (I-EG-R(P))

L'évolution du critère de performance en fonction du nombre d'itérations est présentée sur la figure (6.10). Nous notons que la récupération moyenne nette a bien été améliorée

Critère	Valeur	Unité
Pureté moyenne	100	%
Contrainte de CSS	2×10^{-2}	—
Contrainte d'impureté moyenne	$1,6 \times 10^{-5}$	%
Taux de récupération net	80,2	%
Productivité de l'adsorbant	$6,4 \times 10^3$	$mol/kg.s$
BCF	1,2	%
Temps de séjour	2,01	s

Tableau 6.10: Résultats de l'optimisation (I-EG-R(P))

en passant de 60,2% à 80,2%. Cette amélioration est issue des évolutions relatives des vitesses d'adsorption et de purge.

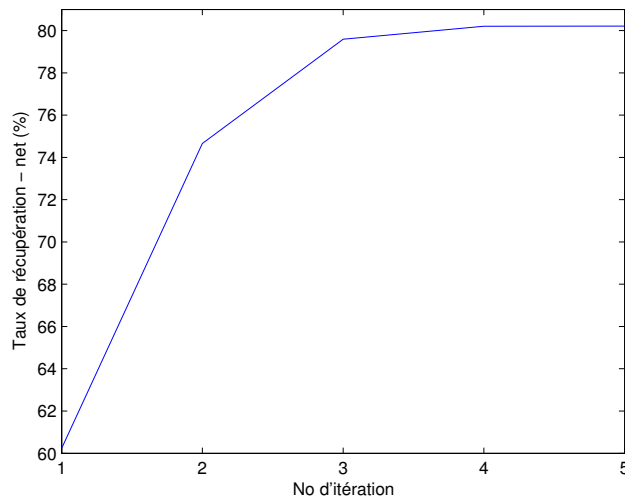


Figure 6.10: Évolution itérative du critère de performance (I-EG-R(P))

L'évolution de la contrainte du CSS en fonction du nombre d'itérations, présentée sur la figure (6.11), montre que la contrainte du CSS est respectée à l'optimum.

Par ailleurs, la figure (6.12) montre l'évolution de la contrainte d'impureté moyenne en fonction du nombre d'itérations. En fait, le temps de séjour a diminué de 3,2 à 2,01 qui favorise l'augmentation de l'impureté. La diminution du taux de reflux a également joué son rôle en augmentant l'impureté. L'impureté moyenne est, par conséquent, augmentée de $9,2 \times 10^{-7}$ au début de l'optimisation à $1,6 \times 10^{-5}$ à l'optimum. Il est important de

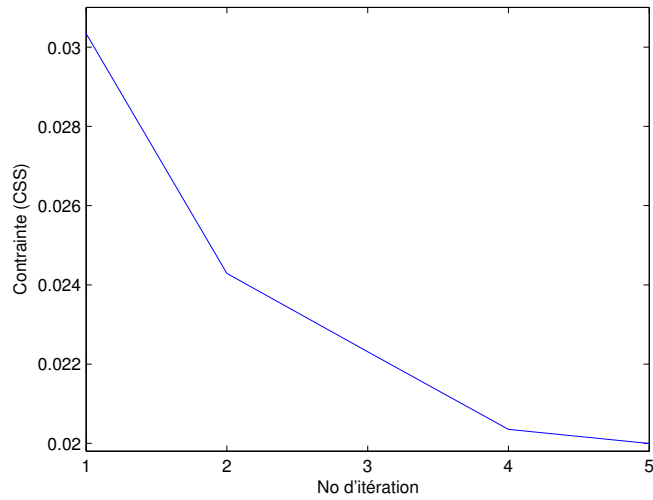


Figure 6.11: Évolution itérative de la contrainte du CSS (I-EG-R(P))

remarquer que la contrainte sur l'impureté moyenne est bien respectée.

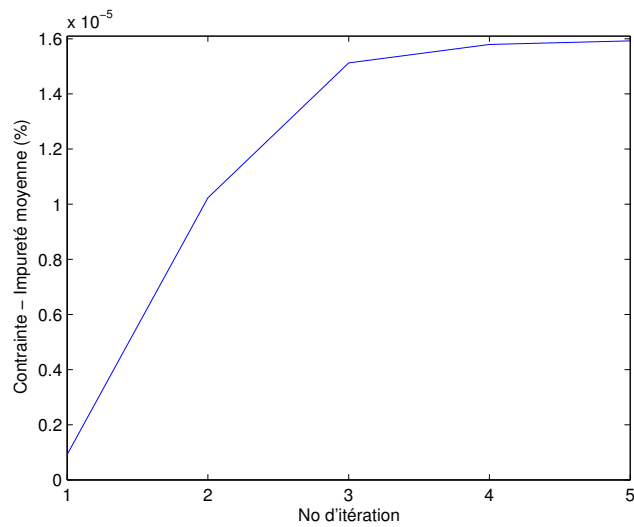
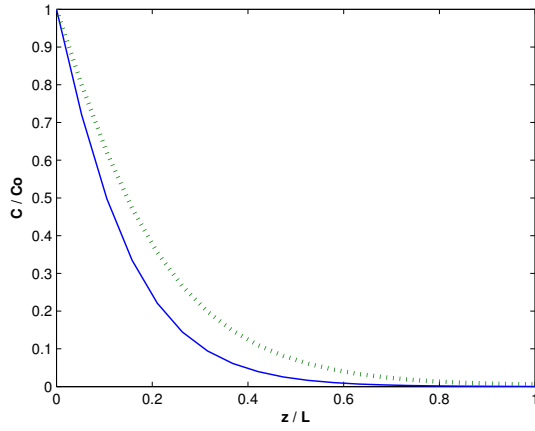


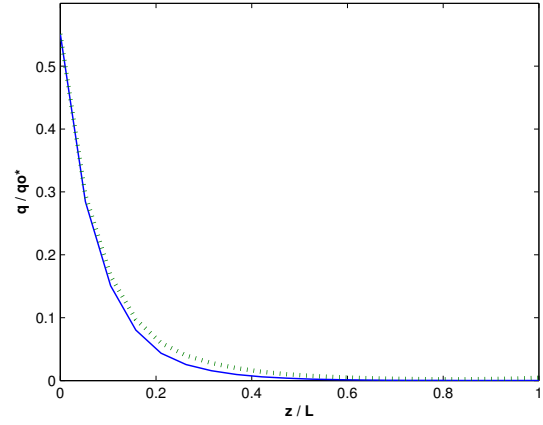
Figure 6.12: Évolution itérative de la contrainte d'impureté moyenne (I-EG-R(P))

Enfin, les profils des variables d'état pour les étapes d'adsorption et purge sont présentés sur les figures (6.13) et (6.14) respectivement. Les profils initiaux et à l'optimum y sont également reportés. Ils montrent que les variables d'état sont correctement initialisées.

Enfin, le tableau (6.11) compare les résultats des trois problèmes d'optimisation traités pour le modèle isotherme avec états gelés : optimisation de la pureté (I-EG-P), optimisation de la récupération (I-EG-R) et l'optimisation de la récupération sous la contrainte

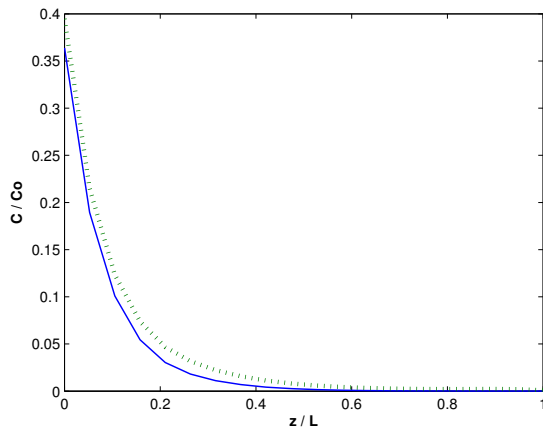


Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne

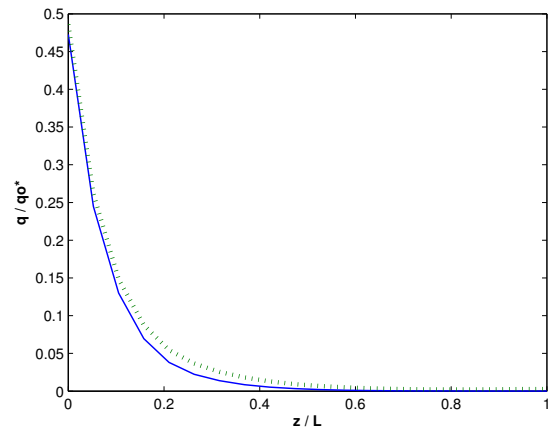


Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

Figure 6.13: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (I-EG-R(P))
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

Figure 6.14: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (I-EG-R(P))
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

de la impureté (I-EG-R(P)). Il est clair que globalement, les meilleures performances sont obtenues pour le dernier cas, c'est-à-dire, maximisation de la récupération sous la contrainte de l'impureté moyenne.

Critère	Max. pureté sans contrainte	Max. récupération sans contrainte	Max. récupération avec contrainte sur l'impureté
Impureté moyenne (%)	$9,9 \times 10^{-8}$	$2,3 \times 10^{-5}$	$1,6 \times 10^{-5}$
Récupération nette %	48,4	76,3	80,2
Temps de séjour (s)	5,4	1,9	2,01
Longueur du lit (m)	0,76	0,81	0,8
Vitesse (adsorption)	0,142	0,42	0,4
Vitesse (purge)	0,37	0,5	0,4

Tableau 6.11: Comparaison des résultats des trois problèmes d'optimisation (I-EG-P)

6.6.2 Modèle non isotherme avec états gelés

6.6.2.1 Optimisation de la pureté (NI-EG-P)

On s'intéresse maintenant à l'optimisation d'un modèle non isotherme du procédé PSA utilisé pour le séchage d'air afin de maximiser la pureté du produit. Le modèle non isotherme, basé sur l'hypothèse des états gelés, est considéré.

Formulation du problème d'optimisation

Le problème d'optimisation de pureté de l'air peut être exprimé par :

$$\max_{\theta} J = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_0}^{t_1} \frac{v(L, t) C_{air}(L, t)}{v(L, t) C_{air}(L, t) + v(L, t) C_{eau}(L, t)} dt \quad (6.44)$$

soumis au modèle du procédé (3.37-3.41) et à la condition du CSS et aux bornes des variables de décision.

La condition de l'état stationnaire cyclique (CSS) s'écrit :

$$e^T e \leq \epsilon_{css} \quad (6.45)$$

où $e = x^{(1)}(t_o^{(1)}) - x^{(2)}(t_f^{(2)})$

Le vecteur initial des variables d'état s'écrit :

$$x_0^{(1),T} = \left(\bar{c}_1^{(1),0}, \bar{c}_2^{(1),0}, \dots, \bar{c}_N^{(1),0}, \bar{q}_1^{(1),0}, \bar{q}_2^{(1),0}, \dots, \bar{q}_N^{(1),0}, \bar{T}_1^{(1),0}, \bar{T}_2^{(1),0}, \dots, \bar{T}_N^{(1),0} \right) \quad (6.46)$$

Le vecteur des variables de dimensionnement et d'opération et les bornes des variables de décision sont identiques à celles dans la section (6.6.1.1).

Méthode de calcul

La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (6.6.1.1).

Résultats

Paramètres du modèle

Les paramètres du modèle sont les mêmes que précédemment (6.6.1.1). Les paramètres de calcul sont présentés sur le tableau (6.12).

Paramètre	Valeur	Unité
Temps CPU	87,8	s
Nombre d'itérations	9	—
Précision CSS (ϵ_{css})	5×10^{-2}	—
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-6}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-6}	—

Tableau 6.12: Paramètres de calcul (NI-EG-P)

Resultats et discussion

Nous avons pris en compte les mêmes considérations que dans le cas d'optimisation de pureté du modèle isotherme (6.6.1.1) pour fixer les bornes des variables de décision ainsi que l'estimation de leurs valeurs initiales.

Le tableau (6.13) montre les valeurs initiales et à l'optimum des variables de décision et les bornes correspondantes. Les valeurs optimales de la pureté moyenne, de la condition de CSS ainsi que des autres critères sont présentées sur le tableau (6.14). Ces résultats nous permettent de remarquer que les variables de décision ont évolué de sorte que la pureté soit améliorée. On notera que la longueur du lit a augmenté et la vitesse d'écoulement

pour l'étape d'adsorption a diminué. Le résultat est que le temps de séjour a augmenté, passant de 1,55 au début de l'optimisation à 3,13 à l'optimum. Par ailleurs, le taux de reflux a également augmenté, passant du 0,9 au début à 1,57 à l'optimum. L'augmentation de ces deux paramètres est tout à fait favorable à l'amélioration de la pureté.

Variable de décision	Valeur optimale	Valeur optimale	Borne supérieure	Borne inférieure	Unité
Longueur de lit	0,7	0,82	1,4	0,35	m
Durée d'adsorption	540	539	1080	270	s
Vitesse (adsorption)	0,45	0,26	0,9	0,135	m/s
Vitesse (purge)	0,4	0,41	0,8	0,12	m/s

Tableau 6.13: Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-EG-P)

Critère	Valeur	Unité
Pureté moyenne	100	%
Contrainte du CSS	$1,4 \times 10^{-2}$	—
Impureté moyenne	$1,6 \times 10^{-7}$	%
Taux de récupération (net)	69,7	%
Productivité de l'adsorbant	$4,1 \times 10^3$	$mol/kg.s$
BCF	$7,8 \times 10^{-1}$	%
Temps de séjour	3,1	s

Tableau 6.14: Résultats de l'optimisation (NI-EG-P)

L'évolution de la pureté en fonction du nombre d'itérations est présentée sur la figure (6.15). Elle montre que la concentration de la vapeur d'eau, considérée comme l'impureté, atteint la valeur de $1,6 \times 10^{-7}$ tandis que sa valeur au début d'optimisation était 5×10^{-5} .

On constate que l'amélioration de la pureté est due à de l'augmentation de la longueur du lit, en plus de la diminution de la vitesse au cours de l'étape d'adsorption. Par conséquent, le taux de récupération net moyen est meilleur que dans le cas d'optimisation de pureté du modèle isotherme (6.6.1.1). La valeur de BCF, par contre, reste faible justifiant la relation entre la pureté et les profils de concentration dans le lit discutée dans (6.6.1.1).

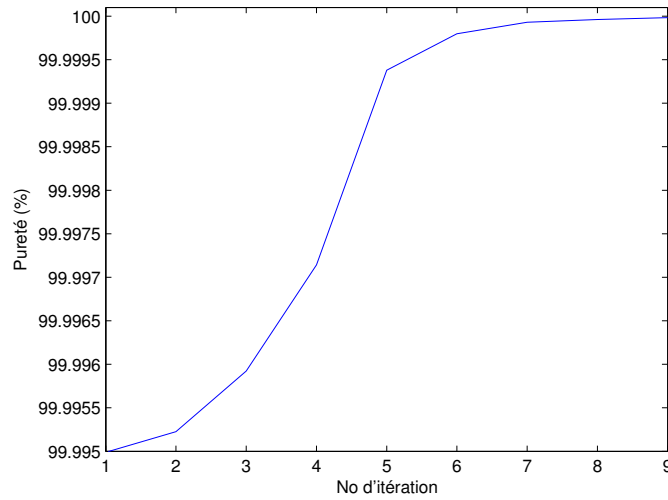


Figure 6.15: Évolution itérative du critère de performance (NI-EG-P)

L'évolution de la contrainte du CSS en fonction du nombre d'itérations, illustrée sur la figure (6.16), montre que les valeurs optimales des variables de dimensionnement et de fonctionnement sont obtenues en respectant la contrainte du CSS.

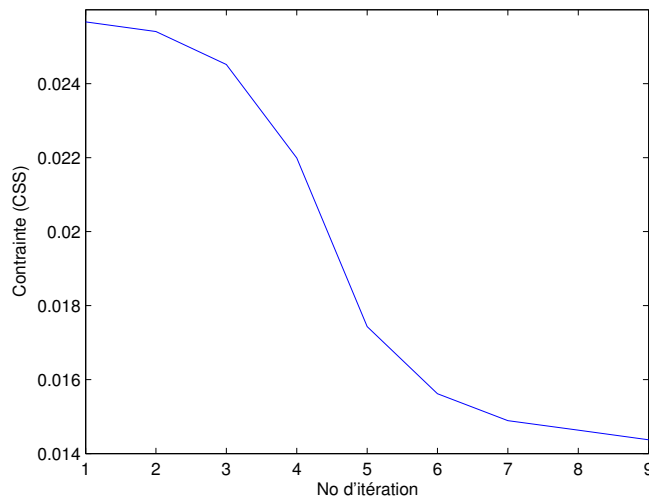
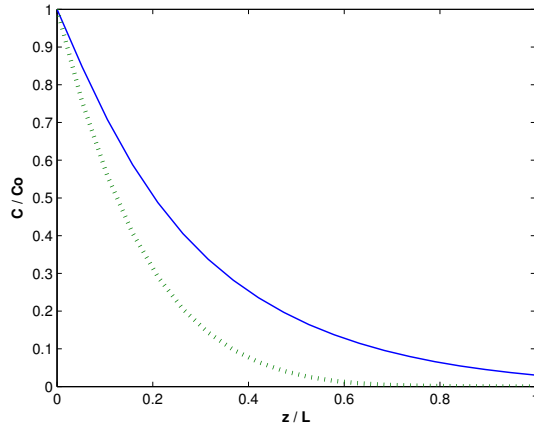
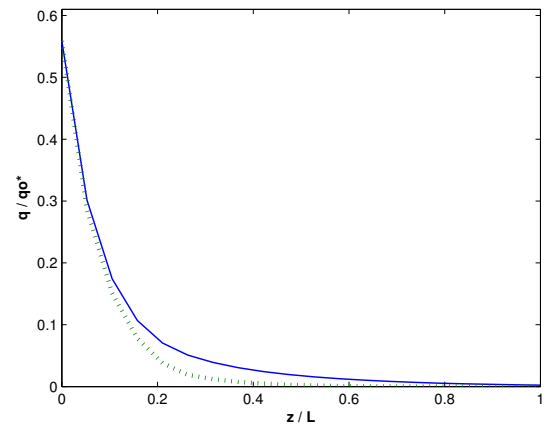


Figure 6.16: Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-EG-P)

Enfin, nous présentons les profils initiaux et optimaux de concentration pour les étapes d'adsorption et de purge sur les figures (6.17) et (6.18) respectivement. Les profils initiaux et optimaux de la température sont présentés sur la figure (6.19). Ces figures montrent que les concentrations sont bien initialisées, contrairement à la température. Le solveur SQP a néanmoins réussi à converger sans problème, en 9 itérations.

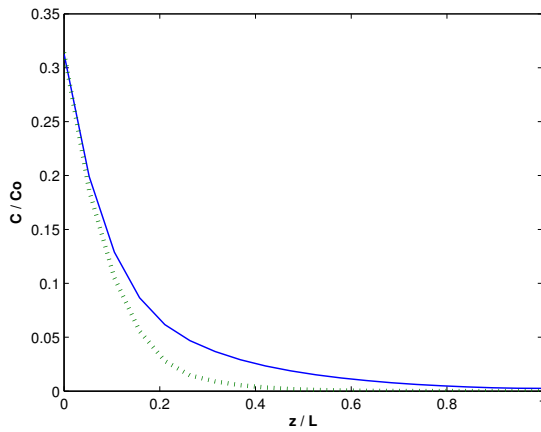


Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne

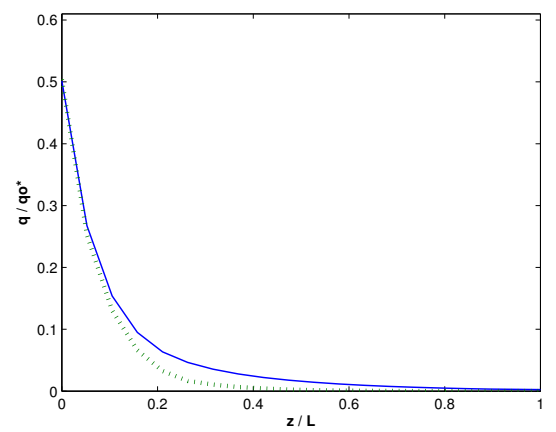


Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

Figure 6.17: Profils spatiaux de concentration pour l'étape d'adsorption (NI-EG-P)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

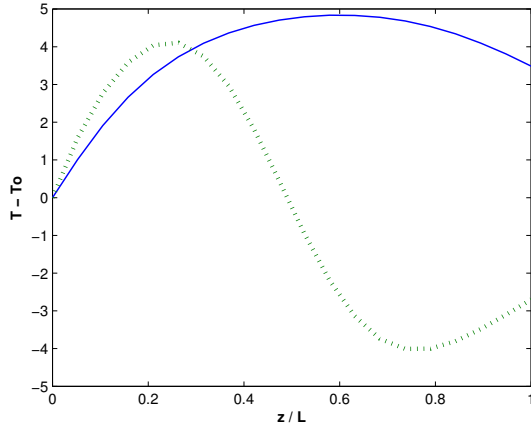


Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne

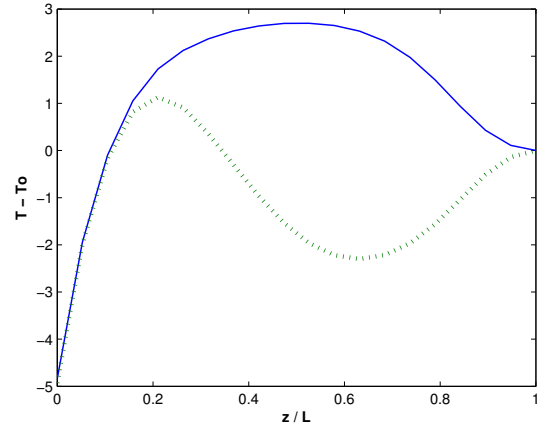


Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

Figure 6.18: Profils spatiaux de concentration pour l'étape de purge (NI-EG-P)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



Profils de température le long de
la colonne pour adsorption



Profils de température le long de
la colonne pour purge

Figure 6.19: Profils spatiaux de la température (NI-EG-P)

Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

6.6.2.2 Optimisation de la récupération (NI-EG-R)

Introduction

Nous nous intéressons maintenant à l'optimisation de la récupération de l'air pour le même modèle que précédemment (6.6.2.1).

Le problème d'optimisation peut être exprimé par :

$$\max_{\theta} J = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_0}^{t_1} \frac{v(L, t)C_{air}(L, t)|_{ads} - v(L, t)C_{air}(L, t)|_{pur}}{v(0, t)C_{air}(0, t)|_{ads}} dt \quad (6.47)$$

soumis au modèle du procédé (3.37-3.41), à la condition du CSS (6.45) et aux bornes des variables de décision.

Méthode de calcul

La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (6.6.1.1).

Résultats

Paramètres du modèle

Les paramètres du modèle sont les mêmes que précédemment (6.6.1.1). Les paramètres de calcul sont présenté sur le tableau (6.5).

Paramètre	Valeur	Unité
Temps de calcul	103, 2	s
Nombre d'itérations	5	—
Précision CSS (ϵ_{css})	5×10^{-2}	—
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-6}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-5}	—

Tableau 6.15: Paramètres de calcul (NI-EG-R)

Resultats et discussion

Les bornes des variables de décision sont fixées de la même façon que dans la section ((6.6.1.1)). L'estimation des valeurs initiales est basé sur les mêmes considérations que dans le problème d'optimisation du taux de récupération pour le modèle isotherme (6.6.1.2).

Les valeurs initiales et à l'optimum des variables de décision ainsi que les bornes correspondantes sont présentés sur le tableau (6.16). Le tableau (6.17) montre les valeurs optimales du taux de récupération net moyen, de la condition de CSS ainsi que des autres critères. En analysant ces résultats, on note que la vitesse d'adsorption a augmentée et celle de la purge a diminuée. Par conséquent, le taux de reflux a diminué de 2,4 au début de l'optimisation à 1,19 à l'optimum, ce qui favorise l'amélioration du taux de récupération net.

Par ailleurs, l'évolution du critère de performance en fonction du nombre d'itérations, présentée sur la figure (6.20), montre que le taux de récupération net a augmenté en passant de 52,2% au début de l'optimisation à 76,3% à l'optimum.

Il est toutefois important de remarquer que l'augmentation de la récupération net moyen est due à la diminution du taux de reflux qui pénalise la pureté du produit. Le temps de séjour a aussi diminué de 2,8 au début à 1,6 à l'optimum. Par conséquent, l'impureté moyenne a augmenté de $3,7 \times 10^{-6}\%$ au début de l'optimisation à $5,9 \times 10^{-5}\%$

Variable de décision	Valeur initiale	Valeur optimale	Borne supérieure	Borne inférieure	Unité
Longueur de lit	0,7	0,69	1,4	0,35	<i>m</i>
Durée d'adsorption	540	540	1080	270	<i>s</i>
Vitesse (adsorption)	0,25	0,43	0,5	0,125	<i>m/s</i>
Vitesse (purge)	0,6	0,51	1,2	0,3	<i>m/s</i>

Tableau 6.16: Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-EG-R)

Critère	Valeur	Unité
Pureté moyenne	100	%
Contrainte de CSS	$1,9 \times 10^{-2}$	—
Impureté moyenne	$5,9 \times 10^{-5}$	%
Taux de récupération net	76,3	%
Productivité de l'adsorbant	$7,83 \times 10^3$	<i>mol/kg.s</i>
BCF	1,4	%
Temps de séjour	1,6	<i>s</i>

Tableau 6.17: Résultats de l'optimisation (NI-EG-R)

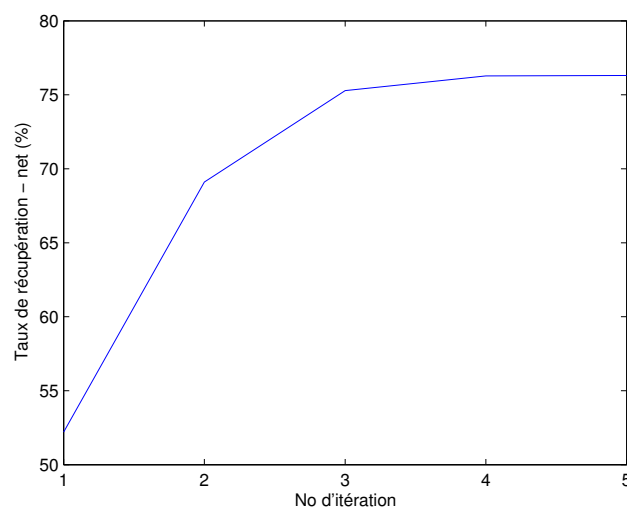


Figure 6.20: Évolution itérative du critère de performance (NI-EG-R)

à l'optimum.

L'évolution de la contrainte du CSS en fonction nombre d'itérations présentée sur la figure (6.21), montre que les valeurs optimales des variables de décision sont obtenues en respectant la contrainte du CSS.

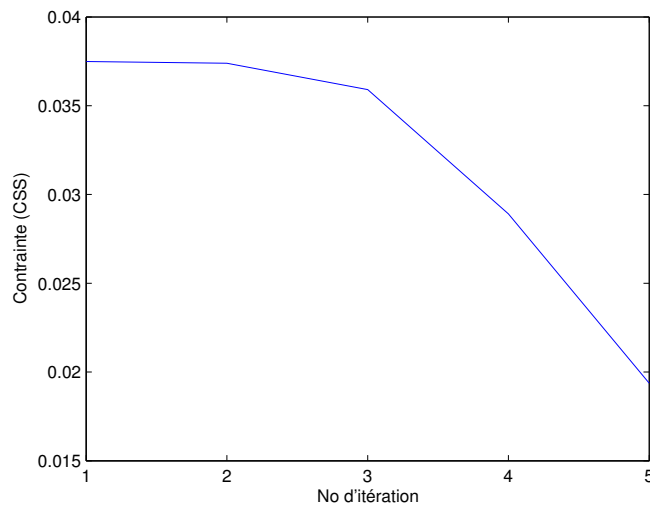


Figure 6.21: Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-EG-R)

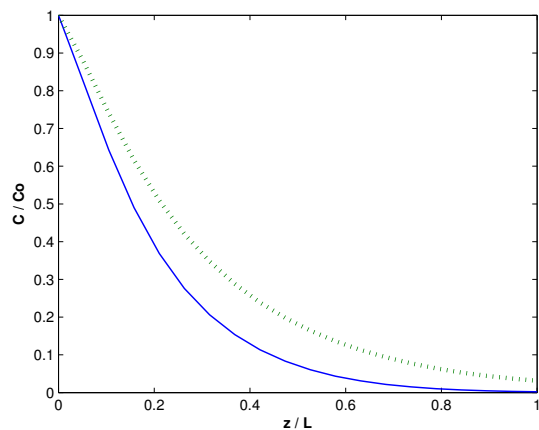
Les profils de concentration pour les étapes d'adsorption et de purge sont présentés sur les figures (6.22) et (6.23) respectivement; le profil de la température est présenté sur la figure (6.24). Ces figures nous permettent de comparer les profils initiaux et à l'optimum de ces variables d'état. On notera que la température est mieux estimée initialement que dans le cas précédent.

6.6.3 Modèle non isotherme sans états gelés

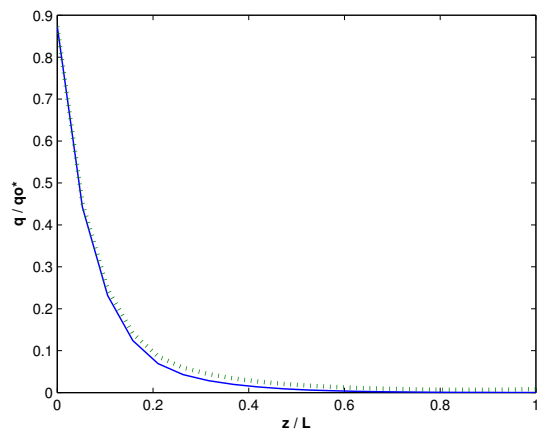
6.6.3.1 Optimisation de l'énergie (NI-E)

Introduction

Les modèles isotherme et non isotherme établis à l'aide de l'hypothèse des états gelés ont été optimisés dans la partie précédente. Nous nous intéressons maintenant à l'application de l'approche proposée sur un modèle non isotherme détaillé du procédé PSA. Ce modèle prend en compte le comportement de la colonne d'adsorption au cours des quatre étapes de cycle de Skarstrom. Le problème d'optimisation est résolu à l'aide

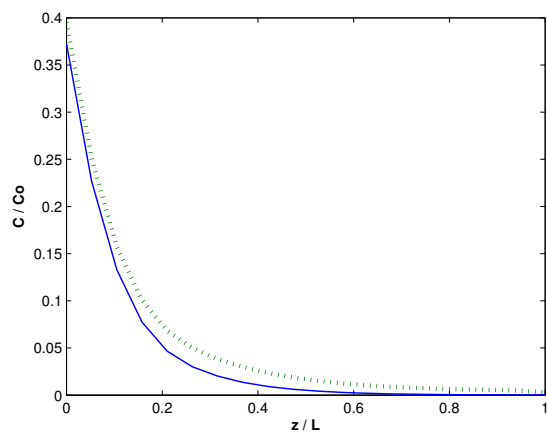


Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne

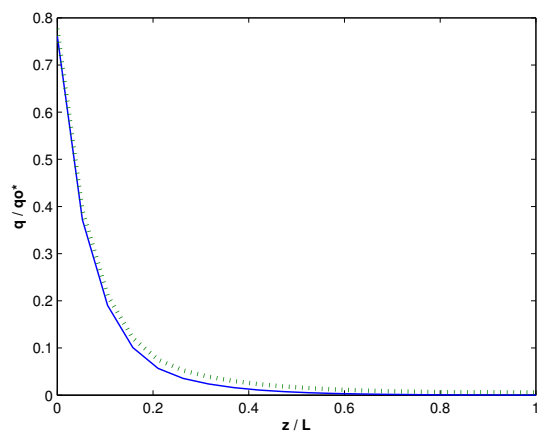


Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

Figure 6.22: Profils spatiaux de concentration pour l'étape d'adsorption (NI-EG-R)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

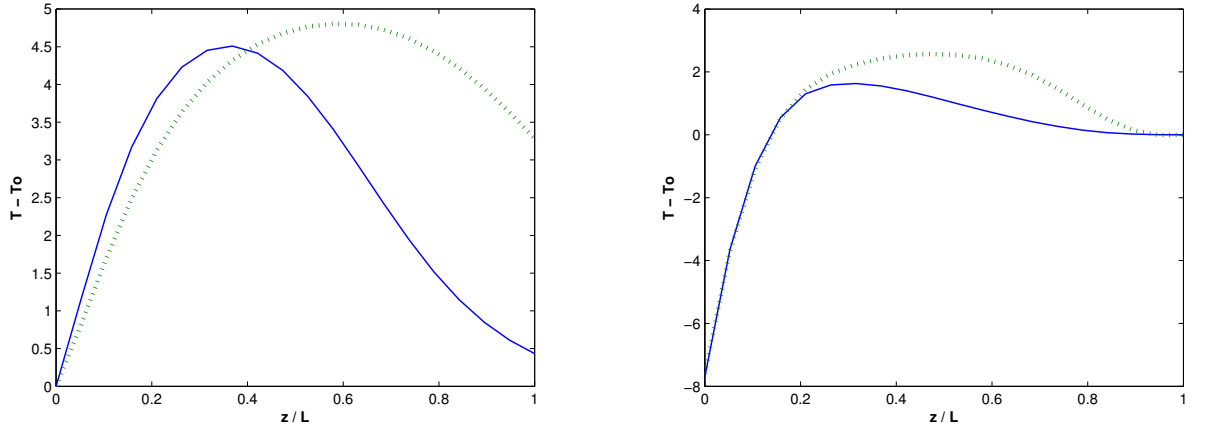


Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

Figure 6.23: Profils spatiaux de concentration pour l'étape de purge (NI-EG-R)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



Profils de température le long de
la colonne pour adsorption

Profils de température le long de
la colonne pour purge

Figure 6.24: Profils spatiaux de la température (NI-EG-R)

Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

de la méthode d'optimisation hybride afin de minimiser la consommation de l'énergie de compression.

Formulation du problème d'optimisation

Le problème d'optimisation consiste à déterminer les valeurs optimales des variables d'état au début du cycle, de dimensionnement (longueur de la colonne) et d'opération (durées des étapes, pression au cours de l'étape d'adsorption, débit d'alimentation) qui minimisent la consommation de l'énergie de compression en respectant la contrainte de l'état stationnaire cyclique.

Le critère d'optimisation défini ici est la consommation d'énergie par unité de temps pour la compression du mélange à traiter. Elle est définie par l'équation (6.16).

La condition de l'état stationnaire cyclique (CSS) s'écrit :

$$e^T e \leq \epsilon_{css}$$

où $e = x^{(1)}(t_o^{(1)}) - x^{(4)}(t_f^{(4)})$,

et ϵ_{css} la précision requise pour le CSS.

(6.48)

Le vecteur des variables de décision θ est défini ainsi :

$$\theta = \left(x_0^{(1),T}, p^T \right)^T \quad (6.49)$$

$$\begin{aligned} \text{où } x_0^{(1),T} &= \left(\bar{y}_1^{(1),0}, \bar{y}_2^{(1),0}, \dots, \bar{y}_N^{(1),0}, \bar{q}_1^{(1),0}, \bar{q}_2^{(1),0}, \dots, \bar{q}_N^{(1),0}, \bar{T}_1^{(1),0}, \bar{T}_2^{(1),0}, \dots, \bar{T}_N^{(1),0} \right) \\ \text{et } p^T &= (L, \tau_{ads}, P_H, V_f) \end{aligned} \quad (6.50)$$

Les variables de décision sont soumis aux bornes suivantes :

$$\theta_{min} \leq \theta \leq \theta_{max} \quad (6.51)$$

Le problème d'optimisation peut être ainsi exprimé comme suit :

$$\min_{\theta} \left\{ J = \frac{k}{k-1} \left[\left(\frac{P_H}{P_L} \right)^{\frac{k-1}{k}} - 1 \right] u_H \pi r^2 P_H \right\} \quad (6.52)$$

soumis au modèle du procédé (3.46-3.49), à la condition du CSS (6.48) et aux bornes des variables de décision (6.51).

Méthode de calcul

La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (6.5). Les conditions de transition (instants de commutation) pour le système adjoint sont les mêmes que pour le modèle du procédé. Les variables d'état sont continues aux points de transitions, et par conséquent, les fonctions de transition pour le système adjoint exprimées par l'équation (6.14) sont utilisées.

Résultats

Paramètres du modèle

Les durées des étapes d'adsorption et de purge sont égales ($\tau_{ads} = \tau_{des} = \tau$). De la même manière, les durées des étapes de compression et décompression sont égales est fixées au quart des durées des étapes isobares ($\tau_{comp} = \tau_{decom} = 0,25 \tau$). Les paramètres de procédé nécessaires pour la simulation du procédé sont donnés dans le tableau 6.18 (Liu et Ritter (1996)). Le nombre de volumes finis pour la discrétisation spatiale est 20. Les paramètres de calcul sont présentés sur le tableau (6.19).

Resultats et discussion

Paramètre	Valeur	Unité
r	0,0135	m
ϵ	0,43	-
ρ_s	480	kg/m^3
C_{ps}	$1,05 \times 10^3$	$J/kg.K$
y_f	5	vol %
T_f	293	K
T_o	293	K
ρ_g	1,308	kg/m^3
C_{pg}	1,006	kJ/kgK
ΔH	43,5	$kJ/mole$
k	0,086	s^{-1}
q_s	4,4	$mole/kg$
b_o	$3,88 \times 10^{-8}$	$m^3/mole$
h	31,4	J/m^2sK
γ	1,5	-

Tableau 6.18: Paramètres du modèle non isotherme

Paramètre	Valeur	Unité
Temps de calcul	185	s
Nombre d'itérations	12	—
Précision CSS (ϵ_{css})	1×10^{-2}	—
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-8}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-5}	—

Tableau 6.19: Paramètres de calcul (NI-E)

Les bornes des variables de dimensionnement et d'opération ont été fixées en se basant sur l'analyse paramétrique réalisée par Liu et Ritter (1996) dans leur étude sur la simulation du même procédé PSA. Quant aux variables d'état initiales, les résultats obtenus dans le chapitre précédent sur la détermination du CSS ont servi de base pour les borner.

Quant à l'initialisation, les variables de dimensionnement et d'opération sont initialisées, au sien de leurs limites de variation, de sorte que la puissance instantanée soit relativement élevée. Pour les variables d'état, les valeurs de départ sont fixées de sorte que la condition du CSS ne soit pas respectée.

Il est important de remarquer que la durée de l'étape d'adsorption fait partie des variables de décision. Les durées des étapes (compression, décompression et purge) sont liées à cette variable de décision et font partie indirectement de variables de décision. Par ailleurs, la vitesse du fluide peut être calculée à partir du rayon du lit et du débit d'alimentation. Nous avons choisi le débit d'alimentation comme variable de décision et nous avons maintenu le rayon du lit constant. On notera que le rayon peut également être optimisé, mais nous avons fait le choix de le garder constant dans ce travail.

Les valeurs initiales, les valeurs optimales et les bornes correspondantes des paramètres de dimensionnement et de fonctionnement sont présentées sur le tableau (6.20). Le tableau (6.21) montre les valeurs optimales de la puissance instantanée, de la condition de CSS ainsi que de quelques critères afin de pouvoir évaluer les performances du procédé. En analysant ces résultats, on peut remarquer que la longueur du lit a diminué par rapport à l'estimation initiale, favorisant ainsi la réduction de la consommation d'énergie de compression. Par ailleurs, on constate que le débit d'alimentation a également diminué par rapport à sa valeur initiale et par conséquent la vitesse du fluide au cours de l'étape d'adsorption a baissée, ce qui favorise également la réduction de la consommation d'énergie. Quant à la durée d'adsorption (et par conséquent la durée de toutes les étapes), elle n'a pratiquement pas varié, comme d'ailleurs la pression d'adsorption.

L'évolution du critère de performance en fonction de nombre d'itérations est illustrée sur la figure (6.25). Elle nous montre que la puissance instantanée a diminuée en passant de 8,62 J/s au début de l'optimisation à 3,59 J/s à l'optimum et ce dès la deuxième itération. Le reste des itérations a surtout servi à satisfaire la conditions de CSS.

Variable de décision	Valeur initiale	Valeur optimale	Borne supérieure	Borne inférieure	Unité
Longueur de lit	0,31	0,23	0,32	0,22	m
Durée d'adsorption	450	449	490	445	s
Pression (adsorption)	$1,82 \times 10^5$	$1,82 \times 10^5$	$2,53 \times 10^5$	$1,45 \times 10^5$	Pa
Débit d'alimentation	1×10^{-5}	$4,17 \times 10^{-6}$	$1,5 \times 10^{-5}$	$4,17 \times 10^{-6}$	m^3/s

Tableau 6.20: Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-E)

Critère	Valeur	Unité
Pureté moyenne	98,9	%
Contrainte de CSS	$4,8 \times 10^{-3}$	—
Impureté moyenne	$1,3 \times 10^{-5}$	%
Taux de récupération	99,2	%
Productivité de l'adsorbant	$3,6 \times 10^{-3}$	$mol/kg.s$
BCF	97,5	%
Temps de séjour	31,3	s
Puissance instantanée	3,59	J/s
Puissance moyenne	3,17	J/s
Production moyenne N_2	$3,6 \times 10^{-3}$	mol/s
Puissance spécifique moyenne	880,6	J/mol

Tableau 6.21: Résultats de l'optimisation (NI-E)

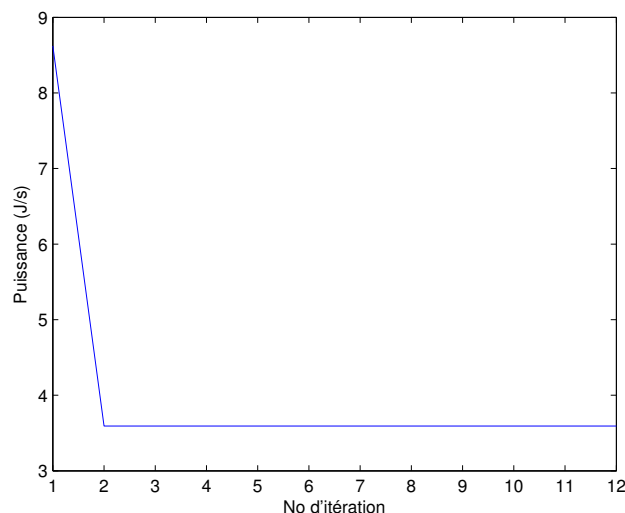


Figure 6.25: Évolution itérative du critère de performance (NI-E)

Par ailleurs, le temps de séjour a augmenté de 30,2 s au début à 31,3 s à l'optimum favorisant ainsi la pureté du produit dont la valeur à l'optimum est 98,9%. En outre, la valeur du BCF est très élevée par rapport à celle obtenue dans les cas précédent. En fait, le BCF est un facteur qui nous permet de caractériser la relation entre l'adsorbant et l'adsorbé. Si l'adsorbant est fortement adsorbé, la valeur du BCF est élevée et vice versa. Les valeurs des autres critères de performance sont présentées à titre indicatif. On peut notamment noter une valeur élevée du taux de récupération. L'ensemble de ces critères montre que le procédé est très performant.

La figure (6.26) montre l'évolution de la contrainte du CSS en fonction de nombre d'itérations. On peut noter que les valeurs optimales des variables de décision respectent bien la contrainte du CSS.

Enfin, les figures (6.27), (6.28), (6.29) et (6.30) présentent les profils des variables d'état pour les étapes de compression, adsorption, décompression et purge. Les profils initiaux et à l'optimum y sont également reportés.

L'ensemble de ces profils montrent que malgré une initialisation loin de l'optimum, le solveur converge en un nombre d'itérations relativement faible avec un temps CPU raisonnable.

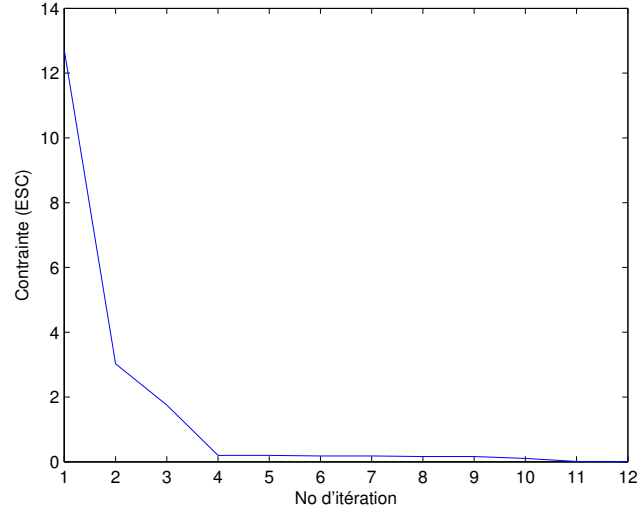


Figure 6.26: Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-E)

6.6.3.2 Optimisation de la pureté (NI-P)

Introduction

Dans cette partie, nous nous intéressons à l'optimisation de la pureté d'azote pour le même problème que précédemment (section (6.6.3.1)).

La pureté moyenne est exprimée par l'équation (6.19) où la pureté instantanée est donnée par l'équation (6.18).

La conditions du CSS, le vecteur des variables de décision avec les bornes correspondantes sont les mêmes que dans la section (6.6.3.1).

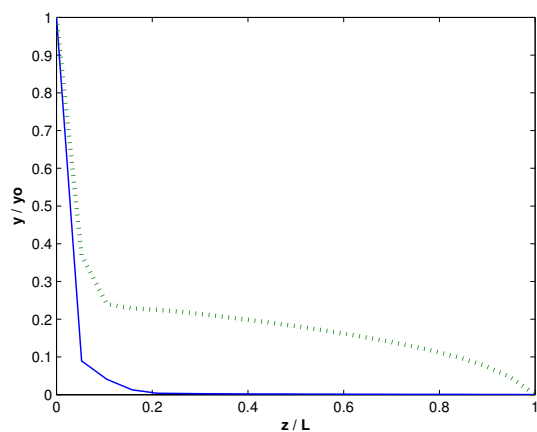
Le problème d'optimisation peut être exprimé comme suit :

$$\max_{\theta} \left\{ J = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_1}^{t_2} \frac{v(L, t) C_{azote}(L, t)}{v(L, t) C_{azote}(L, t) + v(L, t) C_{benzène}(L, t)} dt \right\} \quad (6.53)$$

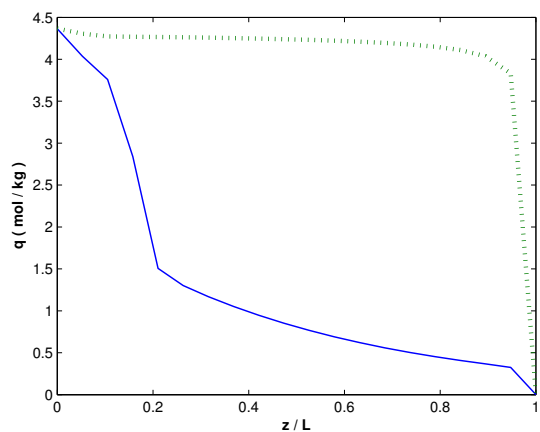
soumis au modèle du procédé (3.46-3.49), à la condition du CSS (6.48) et aux bornes des variables de décision (6.51).

Méthode de calcul

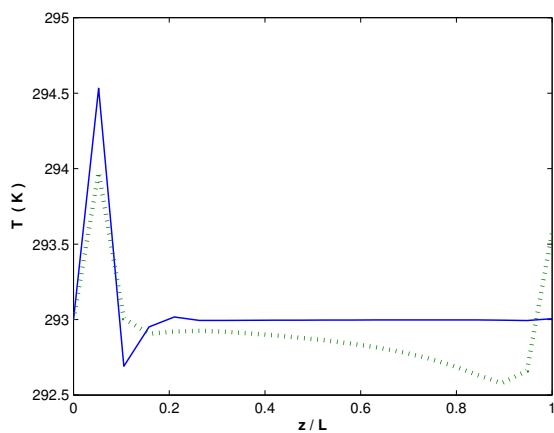
La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (6.6.3.1).



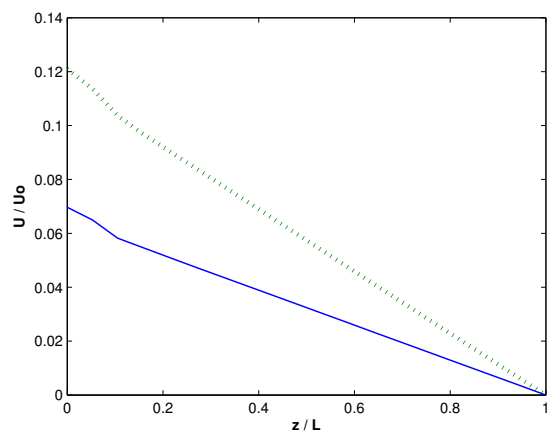
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

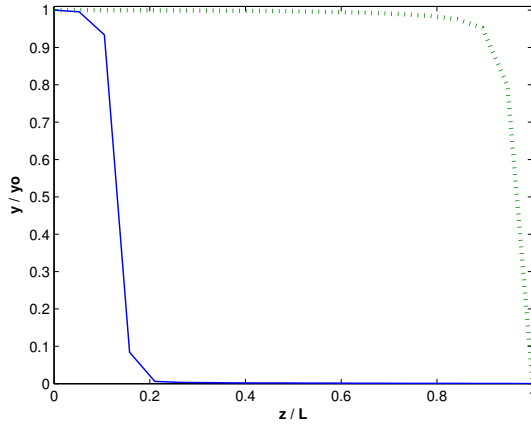


Profils de température le long de la colonne

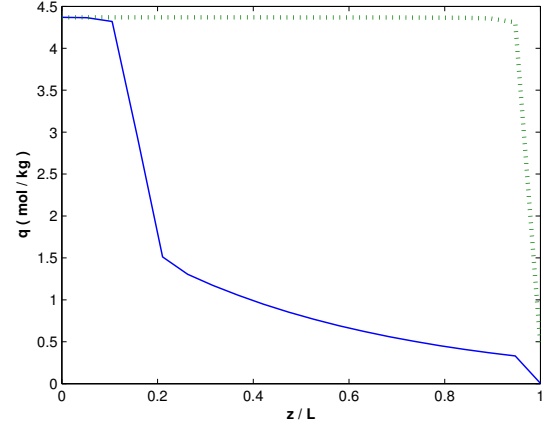


Profils de vitesse le long de la colonne

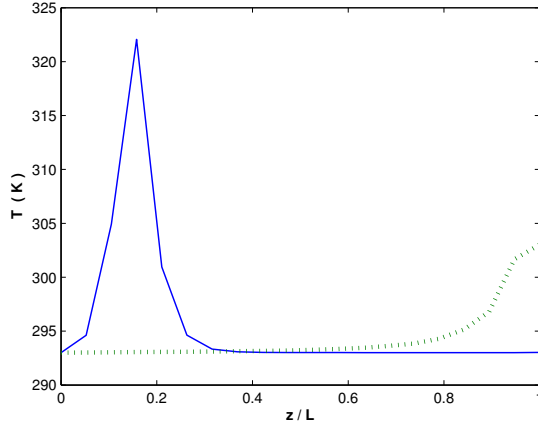
Figure 6.27: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-E)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



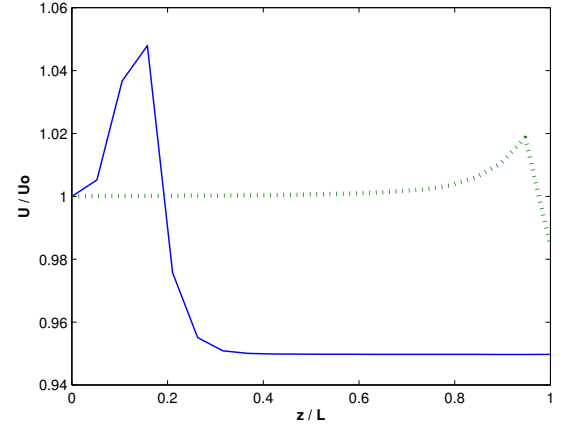
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

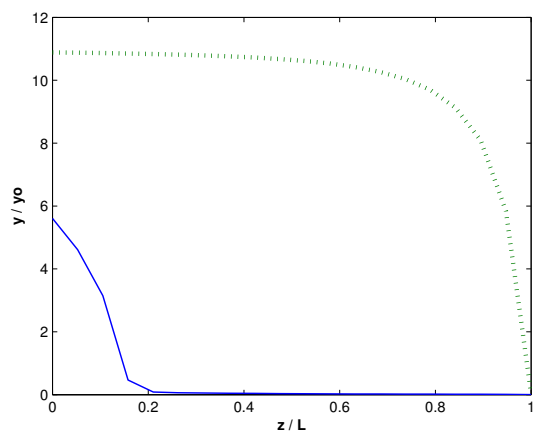


Profils de température le long de la colonne

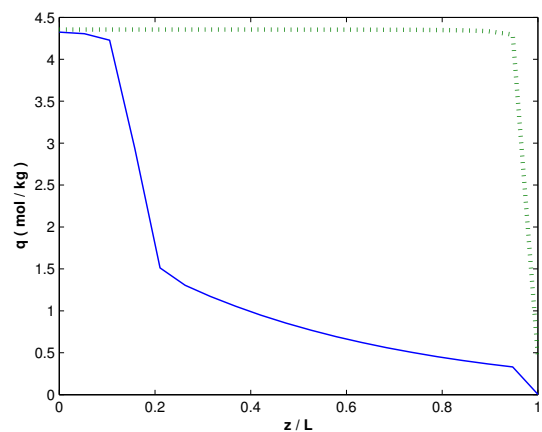


Profils de vitesse le long de la colonne

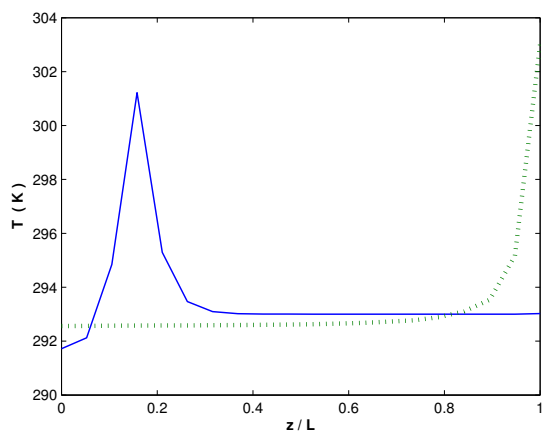
Figure 6.28: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-E)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



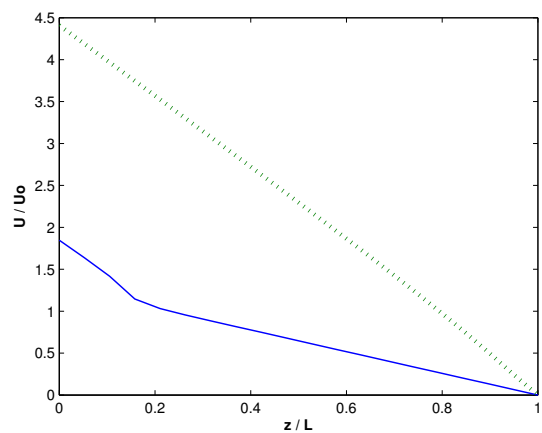
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

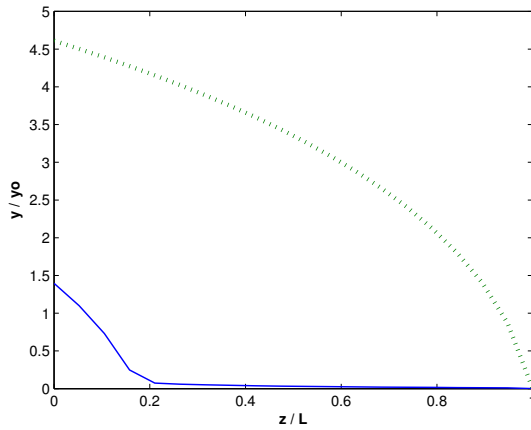


Profils de température le long de la colonne

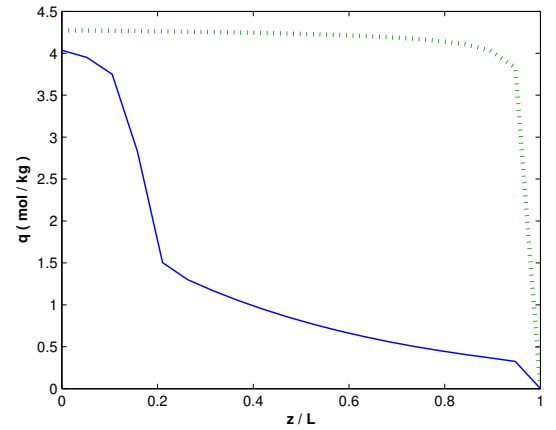


Profils de vitesse le long de la colonne

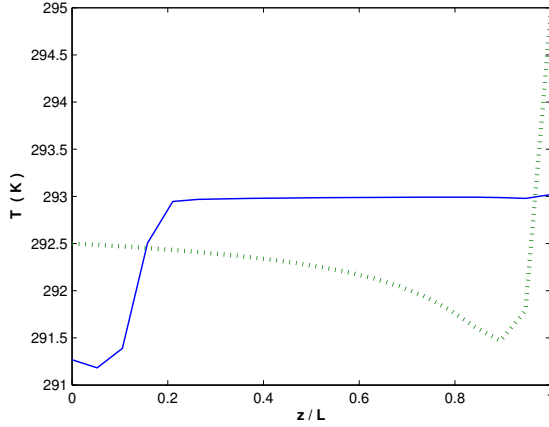
Figure 6.29: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de décompression (NI-E)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



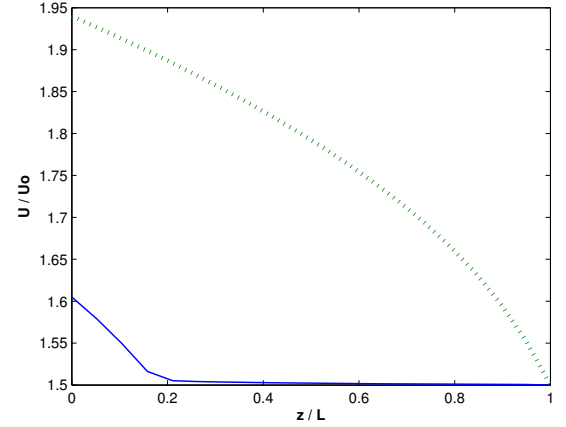
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne



Profils de température le long de la colonne



Profils de vitesse le long de la colonne

Figure 6.30: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-E)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

Résultats

Paramètres du modèle

Les paramètres du modèle sont les mêmes que précédemment (6.6.3.1). Les paramètres de calcul sont présentés sur le tableau (6.22).

Paramètre	Valeur	Unité
Temps de calcul	139	<i>s</i>
Nombre d'itérations	8	—
Précision CSS (ϵ_{css})	1×10^{-1}	—
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-8}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-7}	—

Tableau 6.22: Paramètres de calcul (NI-P)

Resultats et discussion

Les bornes des variables de décision sont fixées de la même façon que dans le cas de l'optimisation de l'énergie (6.6.3.1). Pour l'initialisation des variables de dimensionnement et de fonctionnement, nous avons utilisé les paramètres dans (Liu et Ritter (1996)). Les variables d'état sont initialisées de sorte que la contrainte du CSS ne soit pas respectée.

Les valeurs initiales et optimales des variables de décision et les bornes correspondantes sont présentées sur le tableau (6.23). Par ailleurs, le tableau (6.24) montre les valeurs optimales de la pureté, de la condition de CSS ainsi que des autres critères de performance. En analysant ces résultats, nous notons que la longueur du lit a augmenté par rapport à sa valeur initiale, tandis que la durée d'adsorption et le débit d'alimentation ont diminué. Par conséquent, le temps de séjour a augmenté en passant de 21 s au début à 94 s à l'optimum. La variation de chacun de ces paramètres favorise l'amélioration de la pureté.

La figure (6.31) présente l'évolution de la pureté en fonction du nombre d'itérations. Il est évident que la pureté de départ était de 98,91%, c'est à dire que l'azote était déjà très pur. Il est important de remarquer que l'impureté (benzène) a évolué de $0,85 \times 10^{-5}$ au début d'optimisation à $1,94 \times 10^{-7}$. Par ailleurs, la comparaison de la puissance spécifique moyenne par celle dans l'optimisation de l'énergie (6.6.3.1) nous permet de remarquer que

Variable de décision	Valeur initiale	Valeur optimale	Borne supérieure	Borne inférieure	Unité
Longueur de lit	0,31	0,82	1,00	0,2	m
Durée d'adsorption	450	443	490	345	s
Pression (adsorption)	$1,82 \times 10^5$	$1,82 \times 10^5$	$2,53 \times 10^5$	$1,45 \times 10^5$	Pa
Débit d'alimentation	$8,33 \times 10^{-6}$	5×10^{-6}	$8,33 \times 10^{-5}$	5×10^{-6}	m^3/s

Tableau 6.23: Valeur optimales et bornes des variables de décision (NI-P)

Critère	Valeur	Unité
Pureté moyenne	99	%
Contrainte de CSS	$4,7 \times 10^{-2}$	—
Impureté moyenne	$1,94 \times 10^{-7}$	%
Taux de récupération	99,2	%
Productivité de l'adsorbant	$1,2 \times 10^{-3}$	$mol/kg.s$
BCF	94,4	%
Temps de séjour	94,2	s
Puissance instantanée	4,31	J/s
Puissance moyenne	3,8	J/s
Production moyenne N_2	$1,2 \times 10^{-3}$	mol/s
Puissance spécifique moyenne	3162	J/mol

Tableau 6.24: Résultats de l'optimisation (NI-P)

l'élimination des dernières traces de benzène a pour résultat la consommation assez élevée de l'énergie. Les autres critères de performance sont fournis à titre indicatif.

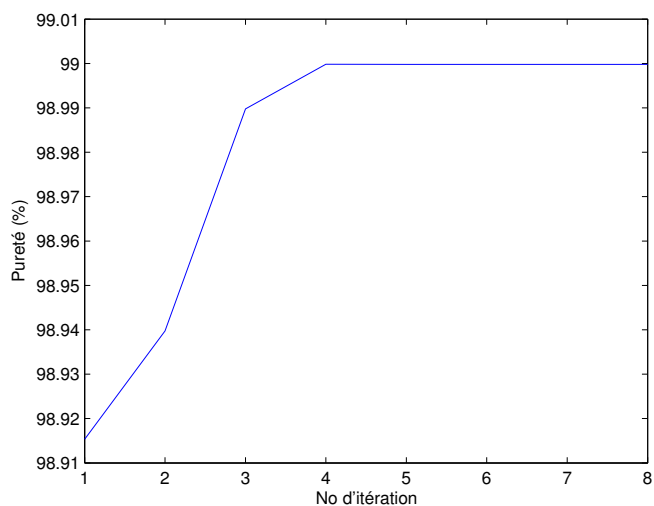


Figure 6.31: Évolution itérative du critère de performance (NI-P)

La figure (6.32) qui présente l'évolution de la contrainte du CSS en fonction du nombre d'itérations montre que la contrainte du CSS est respectée à l'optimum.

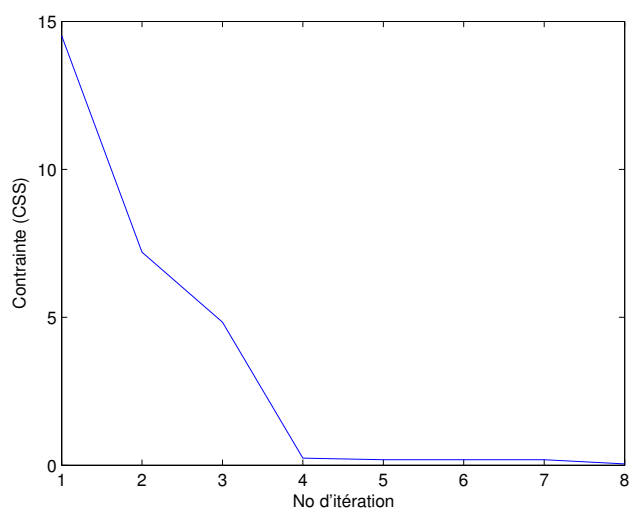
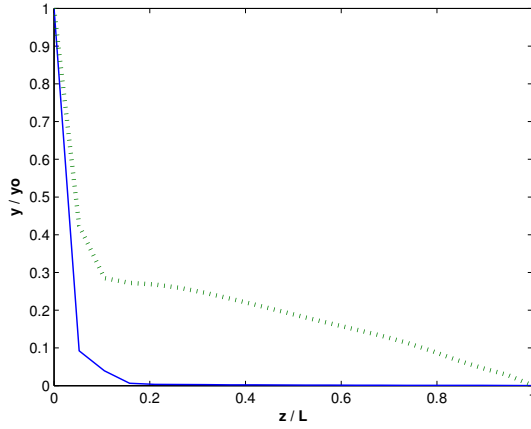
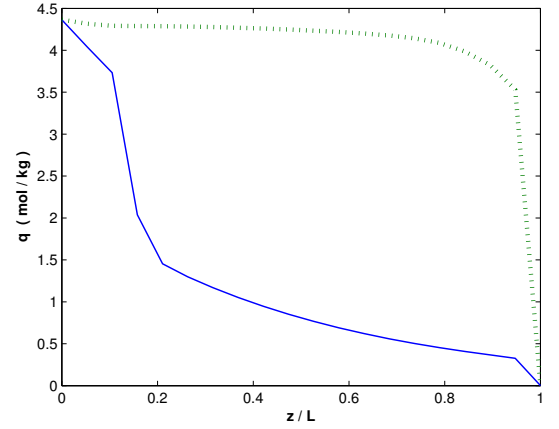


Figure 6.32: Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-P)

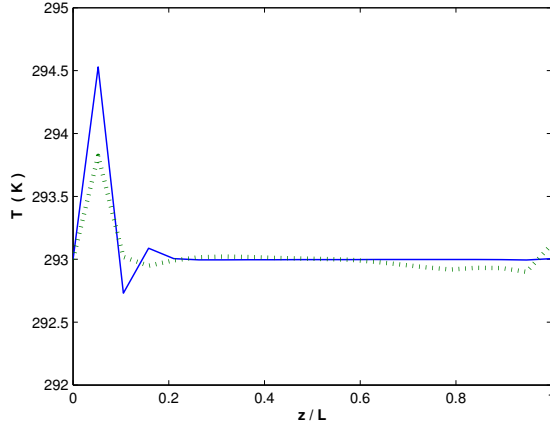
Les profils des variables d'état pour les étapes de compression, adsorption, décompression et purge sont présentés sur les figures (6.33), (6.34), (6.35) et (6.36) respectivement. Ils nous permettent de comparer les profils initiaux et à l'optimum de ces variables.



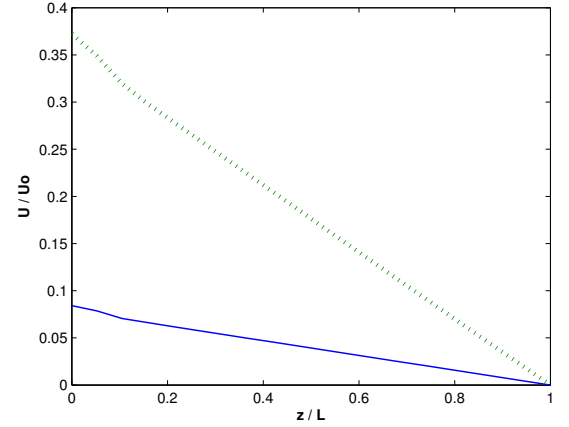
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

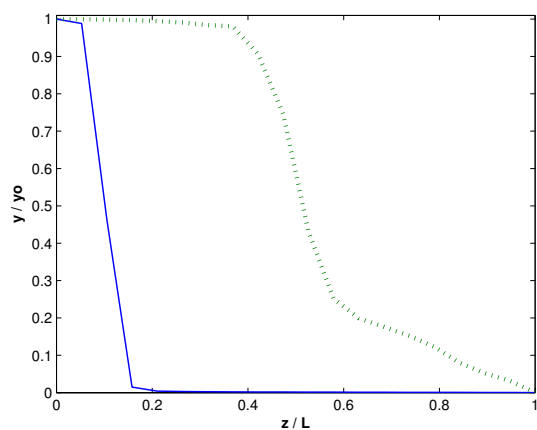


Profils de température le long de la colonne

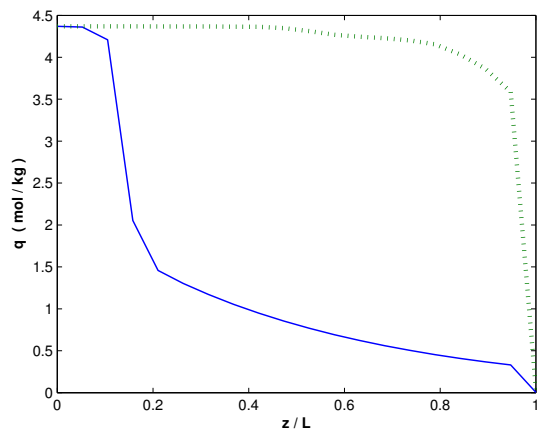


Profils de vitesse le long de la colonne

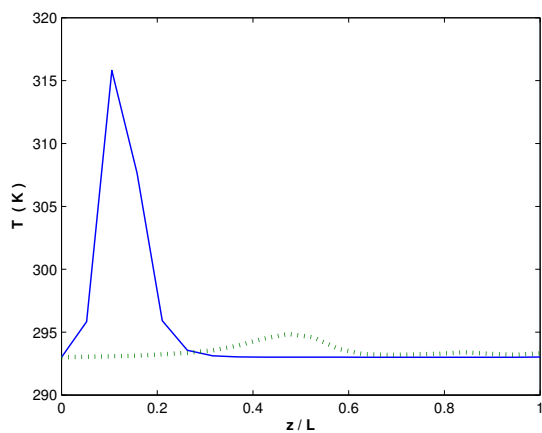
Figure 6.33: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-P)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



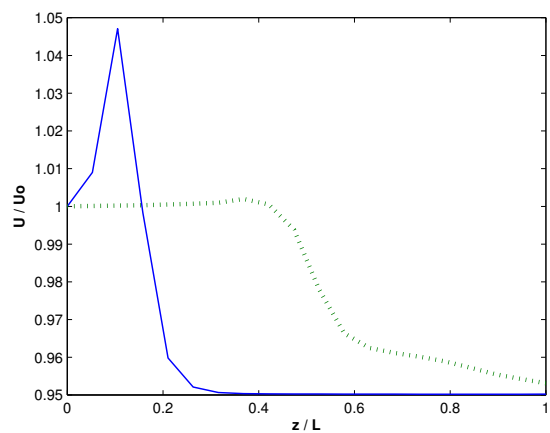
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

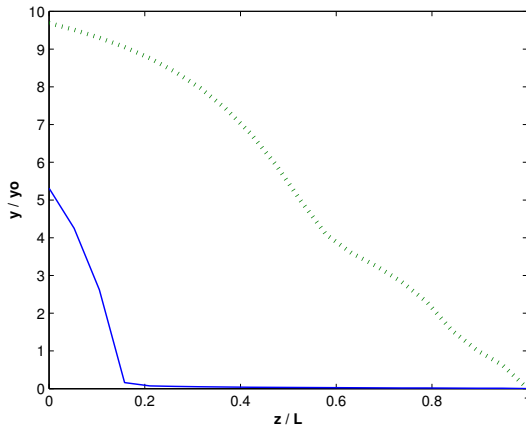


Profils de température le long de la colonne

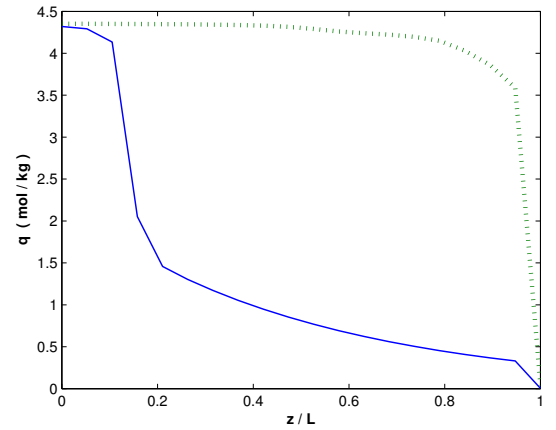


Profils de vitesse le long de la colonne

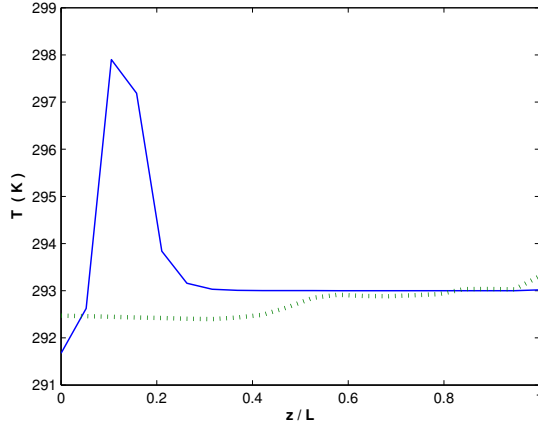
Figure 6.34: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-P)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



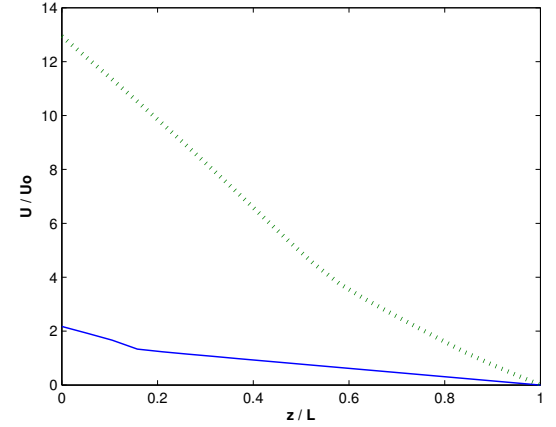
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

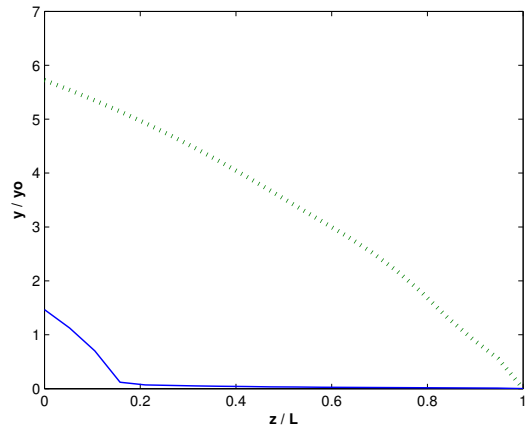


Profils de température le long de la colonne

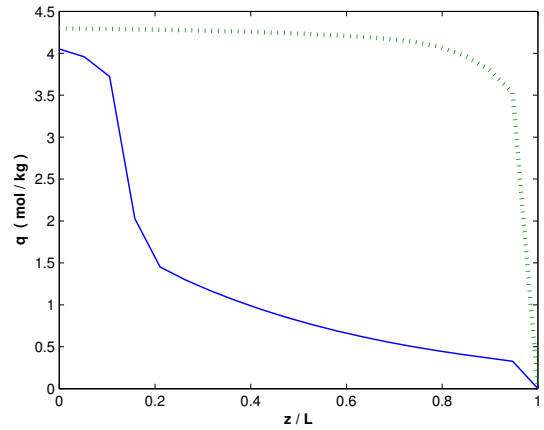


Profils de vitesse le long de la colonne

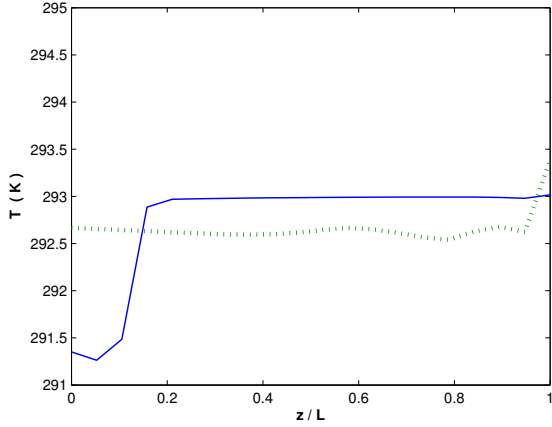
Figure 6.35: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de décompression (NI-P)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



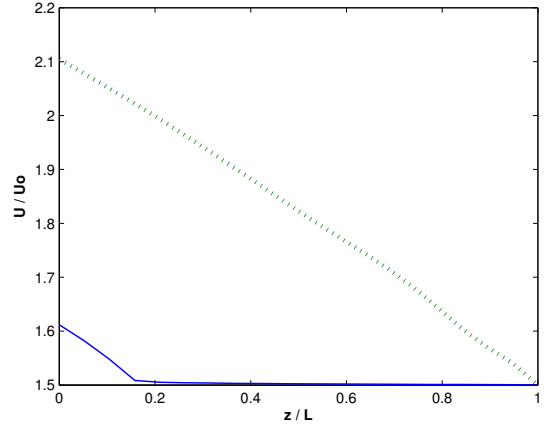
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne



Profils de température le long de la colonne



Profils de vitesse le long de la colonne

Figure 6.36: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-P)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

6.6.3.3 Optimisation de la récupération (NI-R)

On s'intéresse maintenant à l'optimisation du taux de récupération d'azote pour le même problème que précédemment (section (6.6.3.1)).

La récupération moyenne est exprimée par l'équations (6.21) où la récupération instantanée est donnée par l'équation (6.20).

La conditions du CSS, le vecteur des variables de décision avec les bornes correspondantes sont les mêmes que dans la section (6.6.3.1).

Le problème d'optimisation peut être exprimé comme suit :

$$\max_{\theta} J = \frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_1}^{t_2} \frac{v(L, t) C_{azote}(L, t)}{v(0, t) C_{azote}(0, t)} dt \quad (6.54)$$

soumis au modèle du procédé (3.46-3.49), à la condition du CSS (6.48) et aux bornes des variables de décision (6.51).

Méthode de calcul

La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (6.6.3.1).

Résultats

Paramètres du modèle

Les paramètres du modèle sont les mêmes que précédemment (6.6.3.1). Les paramètres de calcul sont présenté sur le tableau (6.25).

Paramètre	Valeur	Unité
Temps de calcul	54	s
Nombre d'itérations	6	—
Précision CSS (ϵ_{css})	$1, 2 \times 10^{-3}$	—
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-8}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-7}	—

Tableau 6.25: Paramètres de calcul (NI-R)

6.6. PROBLÈMES TRAITÉS

Resultats et discussion

Les bornes des variables de décision sont fixées de la même façon que dans le cas de l'optimisation de l'énergie (6.6.3.1). Pour l'initialisation des variables de dimensionnement et de fonctionnement, nous avons utilisé les paramètres dans (Liu et Ritter (1996)). Les variables d'état sont initialisées de sorte que la contrainte du CSS ne soit pas respectée.

Le tableau (6.26) montre les valeurs initiales et optimales des variables de décision et les bornes correspondantes. Les valeurs optimales du taux de récupération moyenne, de la condition de CSS ainsi que des autres critères de performance sont présentées sur le tableau (6.27). On peut remarquer que le temps de séjour a augmenté en passant de 15,02 au début à 20,03, favorisant à la fois l'amélioration de la récupération moyenne et la pureté moyenne d'azote.

Variable de décision	Valeur initiale	Valeur optimale	Borne supérieure	Borne inférieure	Unité
Longueur de lit	0,35	0,34	0,75	0,22	<i>m</i>
Durée d'adsorption	480	480,04	550	300	<i>s</i>
Pression (adsorption)	$1,52 \times 10^5$	$1,52 \times 10^5$	$2,53 \times 10^6$	$1,45 \times 10^4$	<i>Pa</i>
Débit d'alimentation	$1,33 \times 10^{-5}$	$9,89 \times 10^{-6}$	$1,5 \times 10^{-5}$	$3,3 \times 10^{-6}$	<i>m³/s</i>

Tableau 6.26: Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-R)

La figure (6.37) présente l'évolution de la récupération moyenne en fonction du nombre d'itérations. Il est évident que le taux de récupération moyenne au début de l'optimisation était élevée et que l'amélioration est due à la diminution du débit d'alimentation.

Par ailleurs, il est intéressant de remarquer que le taux de récupération et la pureté augmentent en même temps. Il est important de rappeler ici que le taux de récupération ne prend pas en compte la quantité de produit pur efflué au cours de l'étape de purge, contrairement au taux de récupération net. Le taux de récupération net et la pureté du produit ne peuvent pas augmenter en même temps puisqu'ils sont antagonistes. Nous avons présenté les autres critères de performance du procédé à titre indicatif.

La figure (6.38) présente l'évolution de la contrainte du CSS en fonction du nombre d'itérations. Il nous montre que la contrainte du CSS est respectée à l'optimum.

Critère	Valeur	Unité
Pureté moyenne	99	%
Contrainte de CSS	$7,7 \times 10^{-3}$	—
Impureté moyenne	$6,1 \times 10^{-5}$	%
Taux de récupération	99,2	%
Productivité de l'adsorbant	$4,7 \times 10^{-3}$	$mol/kg.s$
BCF	97,9	%
Temps de séjour	20	s
Puissance instantanée	7,1	J/s
Puissance moyenne	6,3	J/s
Production moyenne N_2	$4,7 \times 10^{-3}$	mol/s
Puissance spécifique moyenne	1347	J/mol

Tableau 6.27: Résultats de l'optimisation (NI-R)

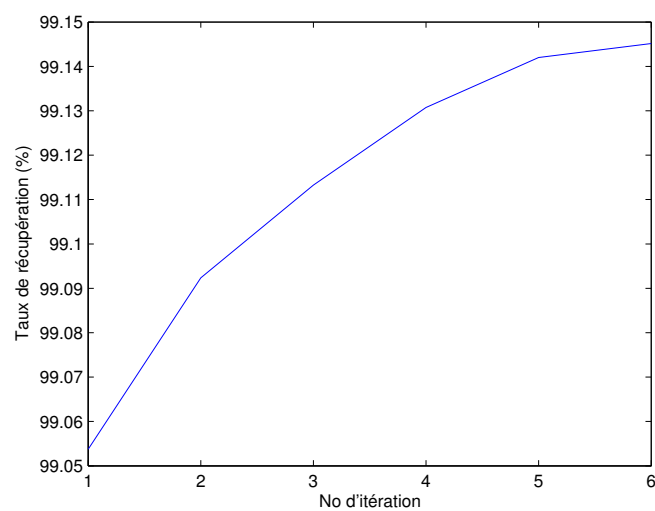


Figure 6.37: Évolution itérative du critère de performance (NI-R)

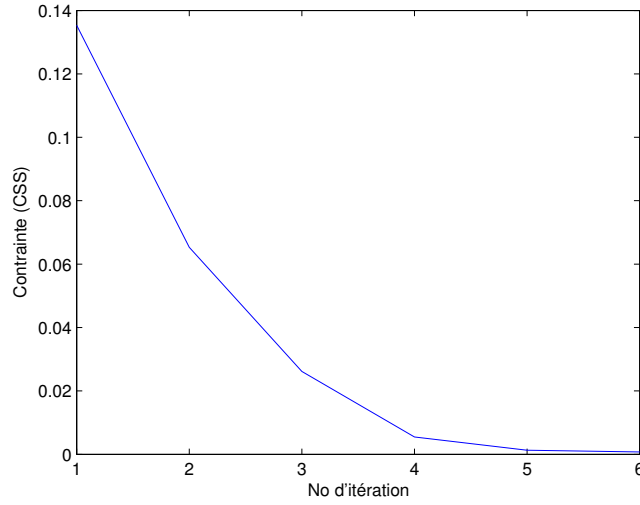


Figure 6.38: Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-R)

Les figures (6.39), (6.40), (6.41) et (6.42) présentent les profils des variables d'état pour les étapes de compression, d'adsorption, de décompression et de purge respectivement. De la même manière que précédemment, ces profils nous montrent que l'algorithme d'optimisation est robuste, puisqu'il arrive à converger rapidement, même avec des initialisations relativement loin de l'optimum.

6.6.3.4 Optimisation de l'énergie avec contrainte sur impureté (NI-E(P))

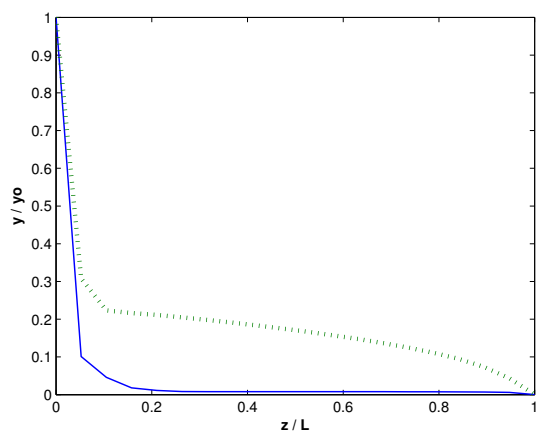
Dans la partie consacrée aux modèles avec états gelés, nous avons traité un problème de maximisation de la pureté sous la contrainte de la récupération. Ici, nous allons considérer le problème de minimisation de l'énergie consommée sous la contrainte de la pureté ou plutôt de l'impureté du produit. Le problème est le même que précédemment (section (6.6.3.1)) avec la contrainte sur l'impureté moyenne.

La critère d'optimisation, la condition du CSS, le vecteur des variables de décision avec les bornes correspondantes sont les mêmes que dans la section (6.6.3.1).

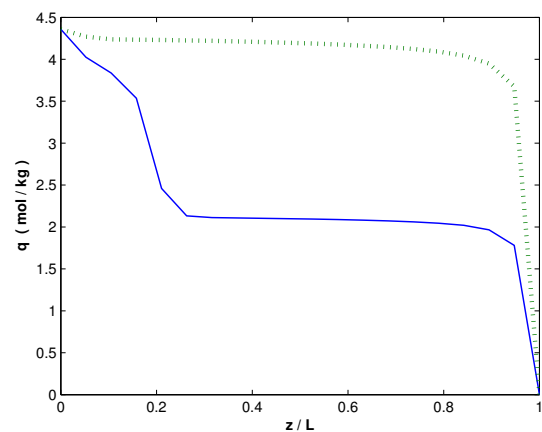
La contrainte de l'impureté moyenne peut être exprimée par :

$$\frac{1}{\tau_{ads}} \int_{t_1}^{t_2} \frac{v(L, t) C_{benzène}(L, t)}{v(L, t) C_{azote}(L, t) + v(L, t) C_{benzène}(L, t)} dt \leq \epsilon_{imp} \quad (6.55)$$

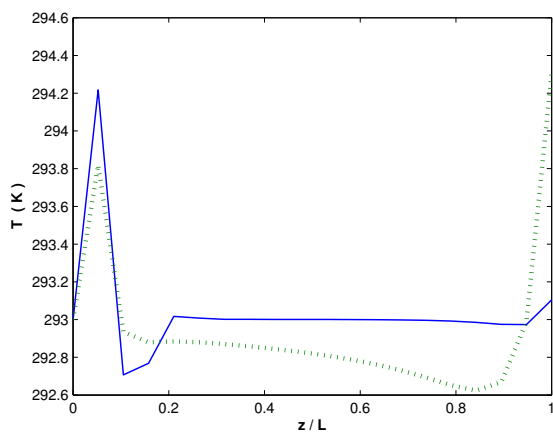
où ϵ_{imp} est la valeur maximale de l'impureté moyenne tolérée.



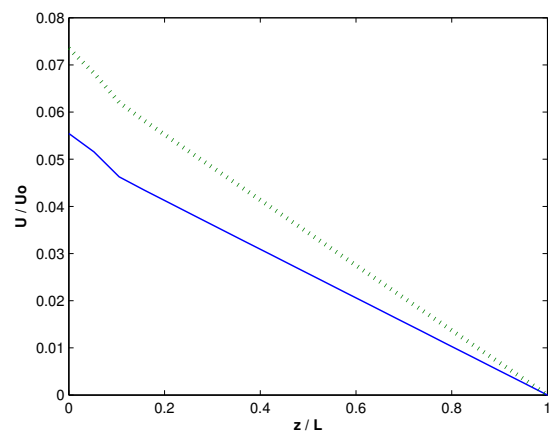
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

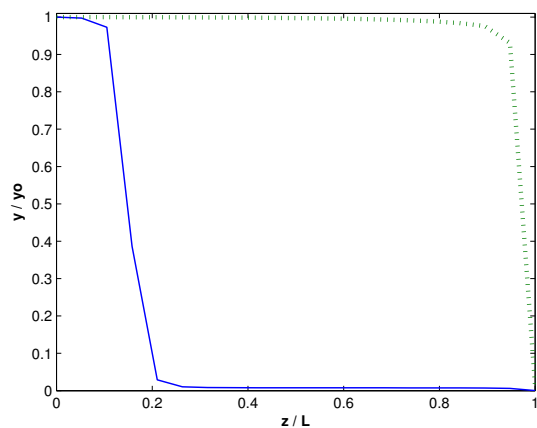


Profils de température le long de la colonne

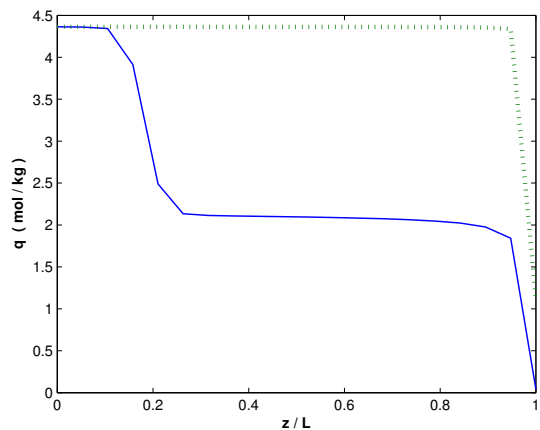


Profils de vitesse le long de la colonne

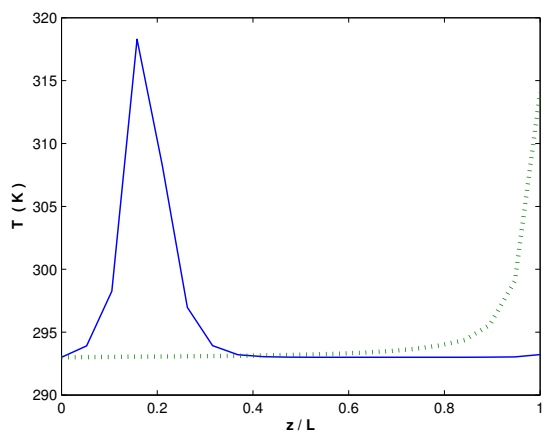
Figure 6.39: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-R)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



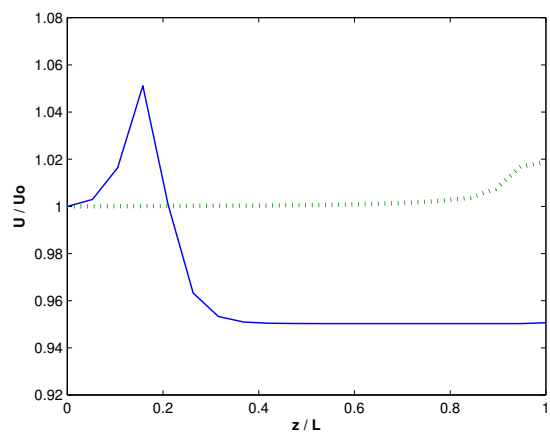
Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

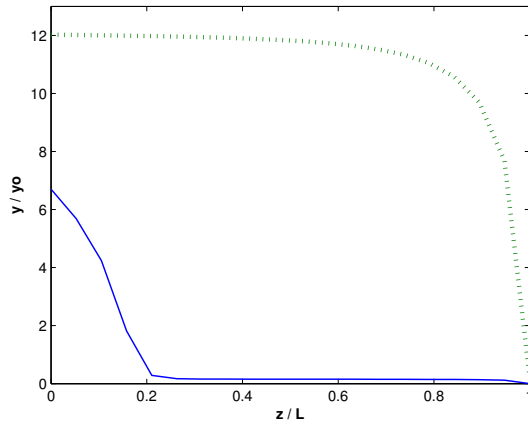


Profils de température
le long de la colonne

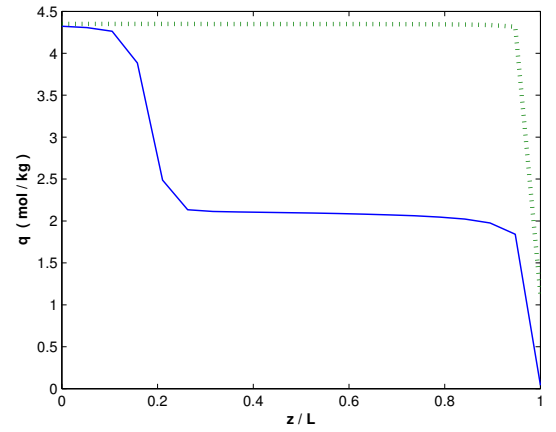


Profils de vitesse
le long de la colonne

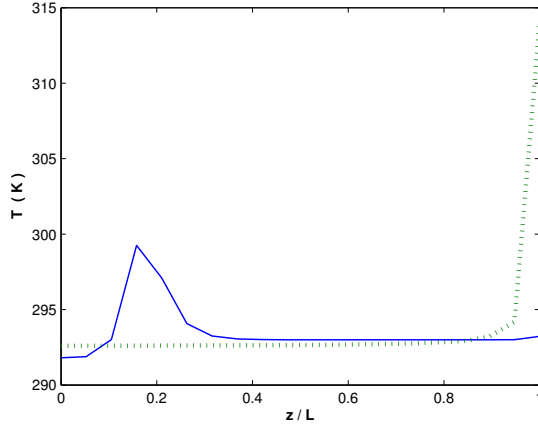
Figure 6.40: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-R)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



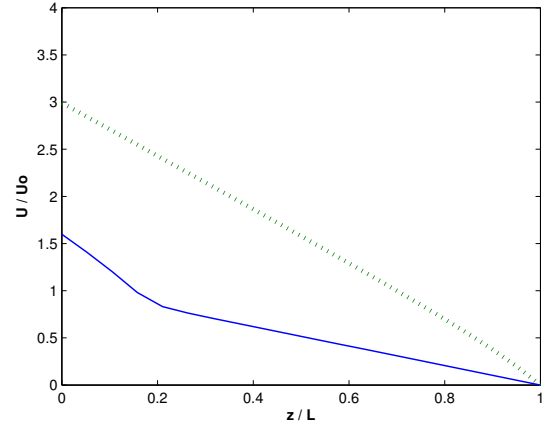
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

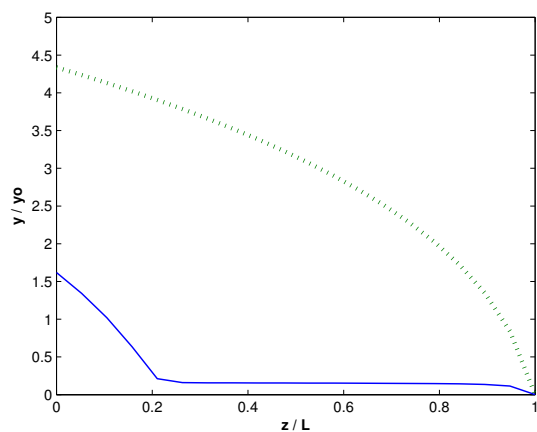


Profils de température le long de la colonne

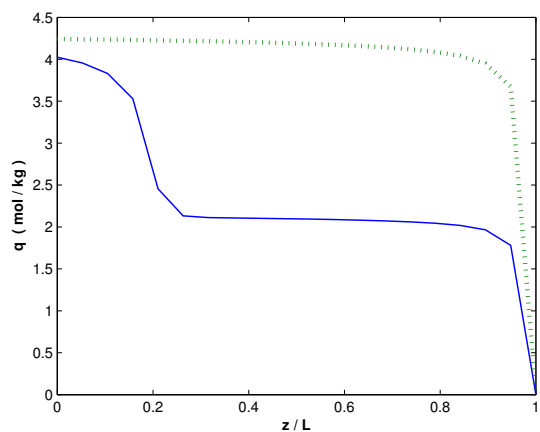


Profils de vitesse le long de la colonne

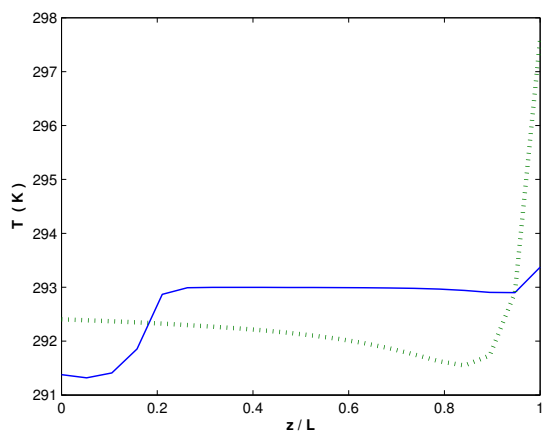
Figure 6.41: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de décompression (NI-R) Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



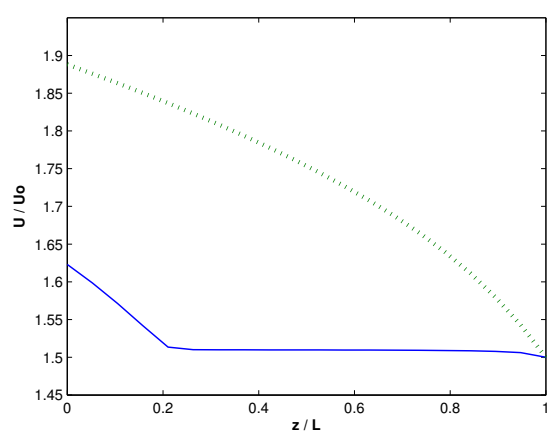
Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne



Profils de température
le long de la colonne



Profils de vitesse
le long de la colonne

Figure 6.42: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-R)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

Le problème d'optimisation peut être exprimé comme suit :

$$\min_{\theta} \left\{ J = \frac{k}{k-1} \left[\left(\frac{P_H}{P_L} \right)^{\frac{k-1}{k}} - 1 \right] u_H \pi r^2 P_H \right\} \quad (6.56)$$

soumis au modèle du procédé (3.46-3.49), à la condition du CSS (6.48), à la contrainte de l'impureté (6.55) et aux bornes des variables de décision (6.51).

Méthode de calcul

La méthode de calcul est identique à celle présentée dans la section (6.6.3.1).

Résultats

Paramètres du modèle

Les paramètres du modèle sont les mêmes que précédemment (6.6.3.1). Les paramètres de calcul sont présenté sur le tableau (6.28).

Paramètre	Valeur	Unité
Temps de calcul	86	s
Nombre d'itérations	16	—
Précision CSS (ϵ_{css})	1×10^{-1}	—
Tolérance impureté (ϵ_{imp})	1×10^{-5}	%
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-8}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-5}	—

Tableau 6.28: Paramètres de calcul (NI-E(P))

Resultats et discussion

Les bornes des variables de décision sont fixées de le même manière que dans le cas de l'optimisation de l'énergie (6.6.3.1). Pour l'initialisation des variables de dimensionnement et de fonctionnement, nous avons utilisé les paramètres dans (Liu et Ritter (1996)). Les variables d'état sont initialisées de sorte que les contraintes du CSS et de l'impureté moyenne ne soient pas respectées.

6.6. PROBLÈMES TRAITÉS

Le tableau (6.29) montre les valeurs initiales et optimales des variables de décision et les bornes correspondantes. Par ailleurs, les valeurs optimales du taux de récupération moyenne, de la condition de CSS ainsi que des autres critères de performance sont présentées sur le tableau (6.30). En analysant ces résultats, on note que la longueur du lit et le débit d'alimentation ont diminués par rapport à leurs valeurs initiales. La diminution du débit d'alimentation a pour résultat la diminution de la vitesse du fluide. Il convient de remarquer que ces deux variables de décision (longueur du lit et débit d'alimentation) ont évolué de sorte que la consommation de l'énergie par unité du temps baisse.

Variable de décision	Valeur initiale	Valeur optimale	Borne supérieure	Borne inférieure	Unité
Longueur de lit	0,31	0,23	0,75	0,22	<i>m</i>
Durée d'adsorption	480	482	540	360	<i>s</i>
Pression (adsorption)	$1,52 \times 10^5$	$1,52 \times 10^5$	$2,53 \times 10^6$	$1,45 \times 10^4$	<i>Pa</i>
Débit d'alimentation	$1,33 \times 10^{-5}$	$3,33 \times 10^{-6}$	$1,5 \times 10^{-5}$	$3,33 \times 10^{-6}$	<i>m</i> ³ / <i>s</i>

Tableau 6.29: Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-E(P))

Critère	Valeur	Unité
Pureté moyenne	99	%
Contrainte de CSS	$9,3 \times 10^{-2}$	—
Contrainte de l'impureté	$2,2 \times 10^{-7}$	%
Taux de récupération	99,17	%
Productivité de l'adsorbant	$2,5 \times 10^{-3}$	<i>mol/kg.s</i>
BCF	90,8	%
Temps de séjour	38,6	<i>s</i>
Puissance instantanée	2,4	<i>J/s</i>
Puissance moyenne	2,1	<i>J/s</i>
Production moyenne <i>N</i> ₂	$2,4 \times 10^{-3}$	<i>mol/s</i>
Puissance spécifique moyenne	867,7	<i>J/mol</i>

Tableau 6.30: Résultats de l'optimisation (NI-E(P))

L'évolution du critère de performance en fonction du nombre d'itérations, présentée sur la figure (6.43), montre que la puissance instantanée a diminué en passant de 9,6

J/s au début de l'optimisation à 2,4 J/s à l'optimum et ce dès la deuxième itération. Le reste des itérations et du temps CPU est consacré à la satisfactions des contraintes. La comparaison de la valeur optimale avec celle dans l'optimisation de l'énergie sans contrainte sur l'impureté (6.6.3.1), nous permet de remarquer que la consommation de l'énergie par unité du temps a bien baissé ici due aux différences de pression au cours de l'étape d'adsorption et du débit d'alimentation. Par ailleurs, les valeurs optimales des variables de décision nous montrent que la puissance instantanée a diminué dans les deux cas à la suite aux diminutions de longueur du lit et de débit d'alimentation. On notera que les valeurs optimales de la longueur du lit dans les deux cas sont les mêmes. Par contre, la valeur du débit d'alimentation est faible ici par rapport à celle obtenue dans (6.6.3.1). Un autre moyen d'évaluer la performance du procédé est de comparer les valeurs de la puissance spécifique moyenne dans ces deux cas. Il est important de remarquer que la consommation de l'énergie par unité d'azote produit est plus basse ici que dans le cas traité dans (6.6.3.1) parce que la valeur de la haute pression p_H est comparativement petite.

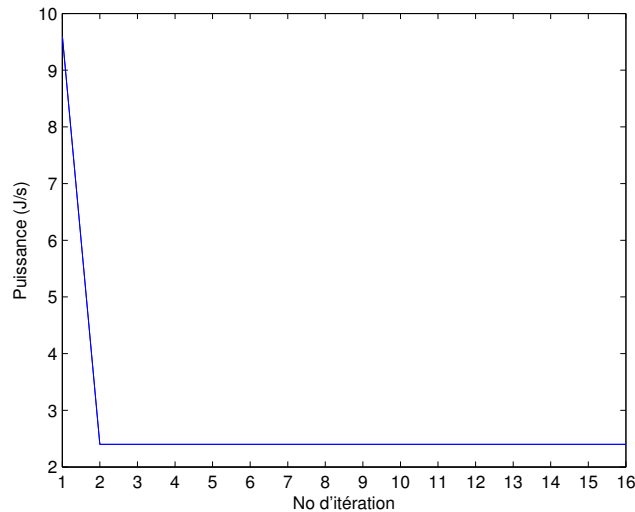


Figure 6.43: Évolution itérative du critère de performance (NI-E(P))

La figure (6.45) montre l'évolution de la contrainte du CSS en fonction du nombre d'itérations. On peut noter que les valeurs optimales des variables de décision respectent bien la contrainte du CSS.

L'évolution de la impureté moyenne en fonction de nombre d'itérations, présentée sur la figure (6.45), montre que la contrainte de l'impureté est bien respectée à l'optimum.

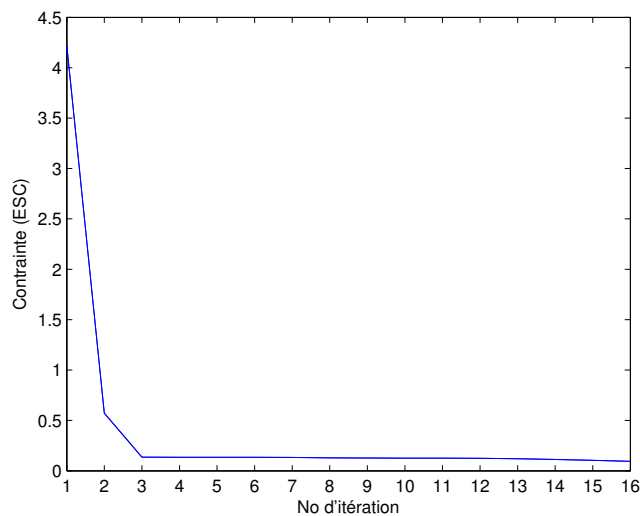


Figure 6.44: Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-E(P))

En comparant la valeur de l'impureté moyenne à l'optimum avec celle dans (6.6.3.1), on note que la valeur de la impureté moyenne à l'optimum ici est nettement plus faible.

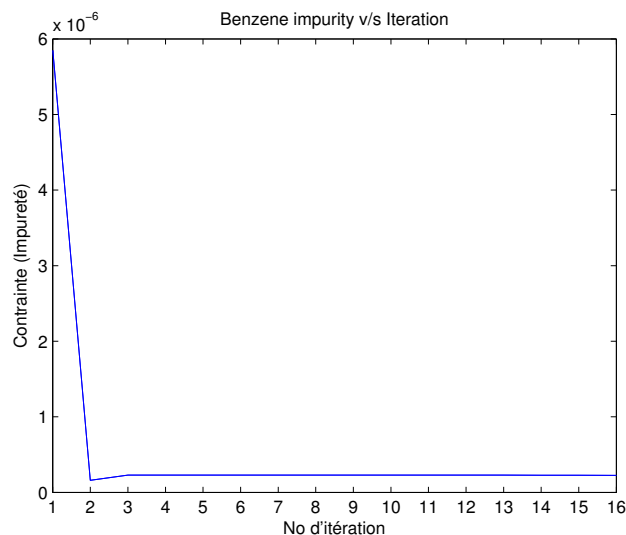
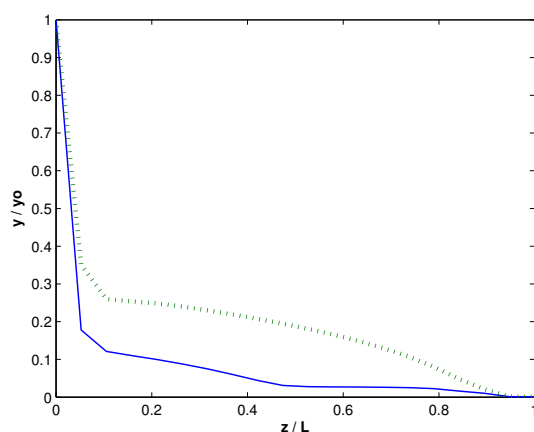


Figure 6.45: Évolution itérative de la contrainte sur l'impureté (NI-E(P))

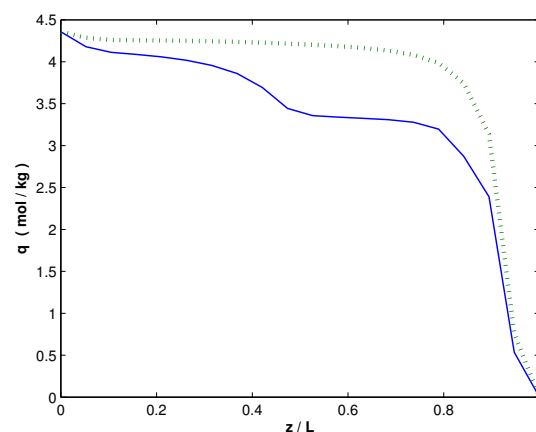
Par ailleurs, la valeur du facteur de capacité du lit (BCF) est 90,8% à l'optimum. Cette valeur est plus petite que celle dans (6.6.3.1) à la suite de la contrainte sur l'impureté. Les autres critères de performance sont présentés à la titre indicatif.

Enfin, les profils des variables d'état pour les étapes de compression, d'adsorption, de décompression et de purge sont présentés sur les figures (6.46), (6.47), (6.48) et (6.49)

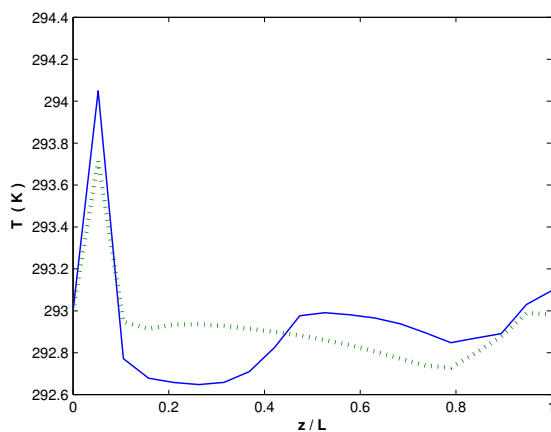
respectivement. Les profils initiaux et à l'optimum y sont également reportés. Ils montrent de la même manière que précédemment une certaine robustesse de l'algorithme d'optimisation mis en oeuvre.



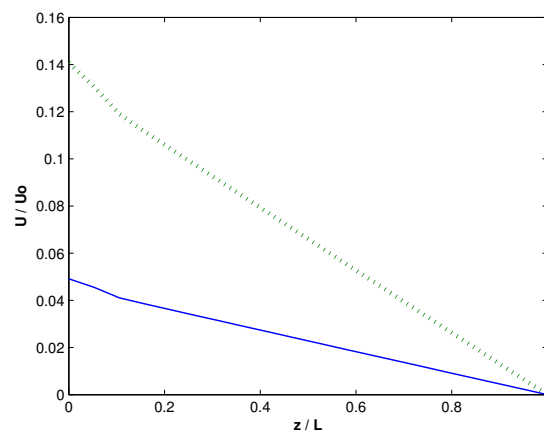
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

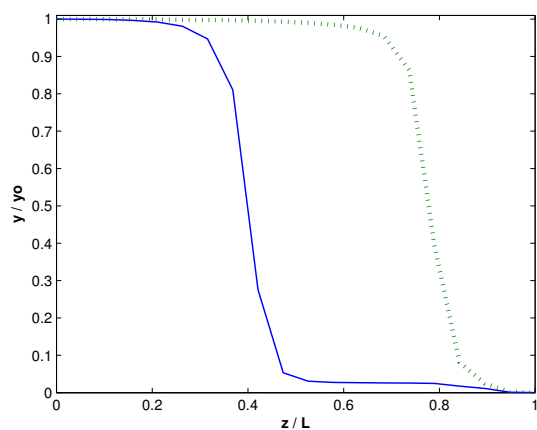


Profils de température le long de la colonne

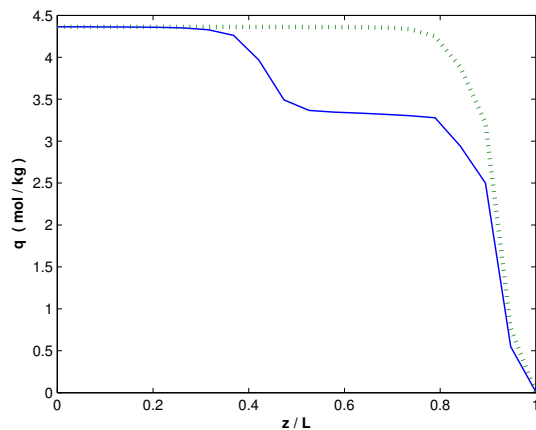


Profils de vitesse le long de la colonne

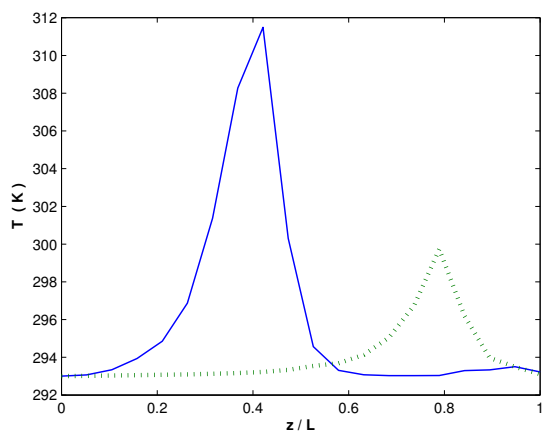
Figure 6.46: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-E(P)) Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



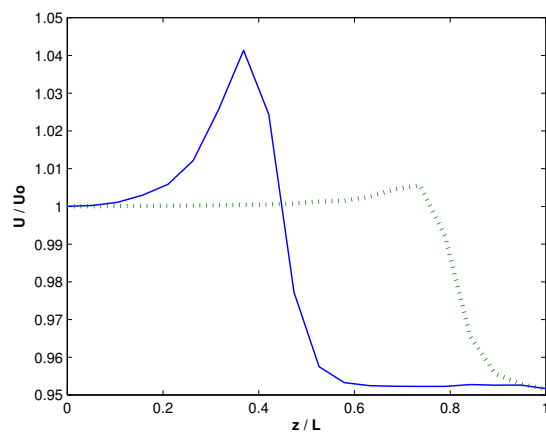
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

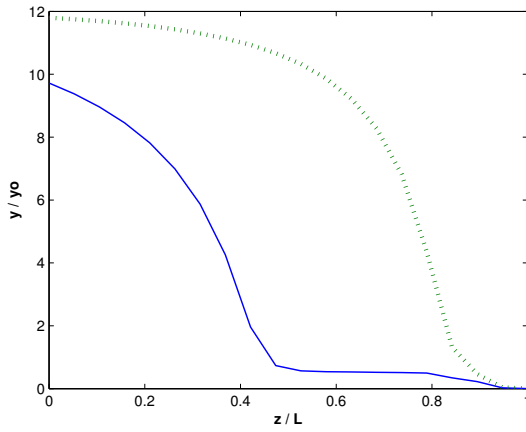


Profils de température le long de la colonne

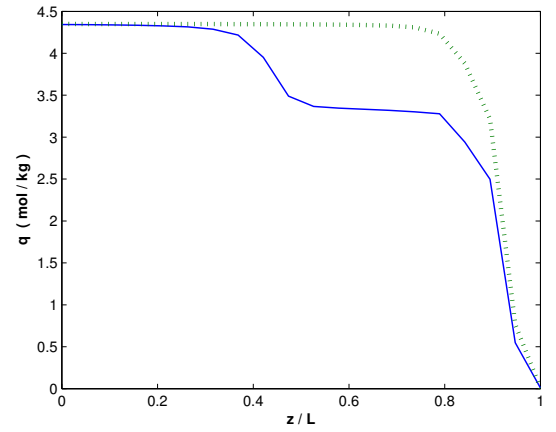


Profils de vitesse le long de la colonne

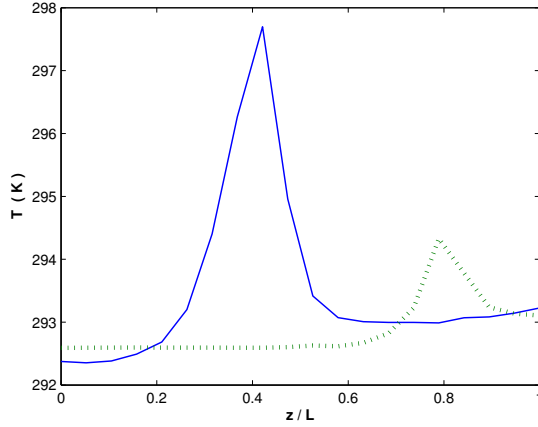
Figure 6.47: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-E(P))
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



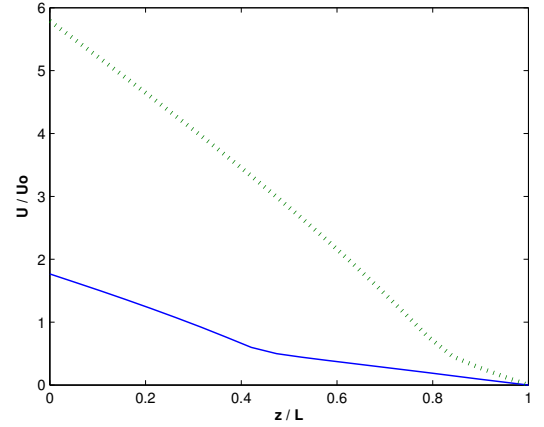
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

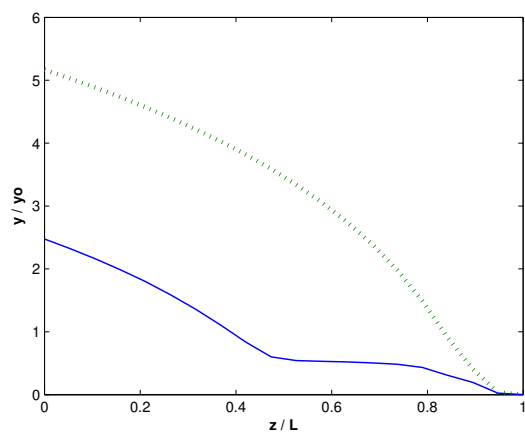


Profils de température le long de la colonne

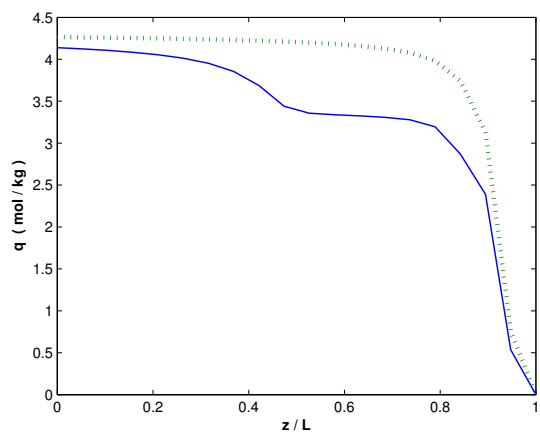


Profils de vitesse le long de la colonne

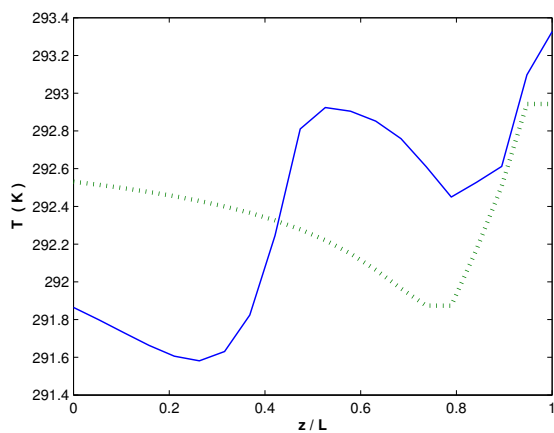
Figure 6.48: Profils spatiaux des variables d'état pour la décompression (NI-E(P))
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.



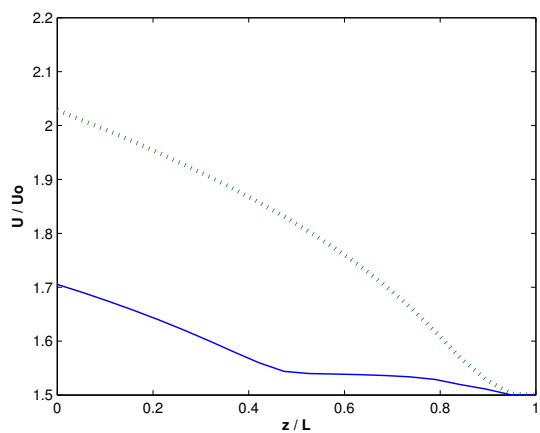
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne



Profils de température le long de la colonne



Profils de vitesse le long de la colonne

Figure 6.49: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-E(P))
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement.

6.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons utilisé l'approche de l'optimisation dynamique hybride pour optimiser le dimensionnement et le fonctionnement de procédés PSA. Deux types de modèles de procédés sont traités, allant du plus simple au plus compliqué. Il s'agit de procédés isotherme et non isotherme avec états gelés, et d'un procédé non isotherme sans états gelés. Pour les procédés avec états gelés, la pureté et la récupération sont optimisées, alors que pour le procédé sans états gelés, l'énergie est optimisée en plus. Les résultats obtenus aussi bien au niveau des performances des procédés étudiés que de la robustesse de l'algorithme d'optimisation mis en oeuvre sont tout à fait intéressants, et laissent entrevoir les différents champs d'application de l'approche développée dans ce travail, ainsi que les nouvelles directions possibles pour l'amélioration et l'approfondissement du dimensionnement et du fonctionnement optimaux des procédés PSA. Il convient cependant de souligner que pour les procédés relativement complexes, la dimension des problèmes d'optimisation résultants devient rapidement très grande. Le solveur SQP utilisé ici ne sera plus capable de résoudre ces problèmes de grande dimension. Pour surmonter cette difficulté, trois alternatives sont possibles : (i) utiliser et développer des méthodes de décomposition pour pouvoir continuer à utiliser le même solveur SQP (Biegler et Zavala (2009)), (ii) utiliser un solveur NLP basé sur la méthode du gradient réduit qui est mieux adapté pour les systèmes de grande dimension, MINOS par exemple (Murtagh et Saunders (1978), Murtagh et Saunders (1982)), (iii) paramétrer les variables d'état pour réduire la dimension des problèmes d'optimisation. C'est justement cette dernière possibilité qui va être étudiée dans le chapitre suivant.

Chapitre 7

Optimisation paramétrée des procédés PSA

7.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons vu que pour un problème d'optimisation, le nombre de variables de décision peut devenir rapidement très grand. Par exemple, si on souhaite discrétiser finement l'espace pour améliorer la précision des résultats, au lieu de prendre un nombre de volumes finis de vingt, on en choisit dix fois plus, c'est-à-dire deux cents. Avec trois variables d'état, c'est-à-dire la température et les concentrations dans les phases fluide et solide, et huit variables de dimensionnement et d'opération, le nombre total de variables de décision est de six cent huit.

Le problème résultant est par conséquent un problème d'optimisation de grands systèmes qui est très intéressant, mais en dehors du cadre de ce travail. Des méthodes, comme le gradient réduit (Wolfe (1963), Wilde et Beightler (1967), Abadie et Carpentier (1969)) ou de décomposition (Vasantharajan et Biegler (1988), Cervantes *et al.* (2002), Biegler et Zavala (2009)), sont sûrement plus appropriées que la méthode SQP utilisée dans ce travail pour résoudre ces problèmes.

L'idée développée ici est de réduire le nombre de variables de décision pour continuer à utiliser la même méthode d'optimisation SQP pour résoudre les problèmes d'optimisation de procédés PSA. Pour ce faire, nous avons paramétré les valeurs initiales du vecteur d'état à l'aide de fonctions splines d'ordre trois. Dans l'exemple de deux cents volumes finis, le résultat est qu'au lieu d'optimiser six cent huit variables de décision, nous allons en optimiser que vingt, ce qui est nettement plus avantageux pour la convergence et la

vitesse du solveur SQP. Naturellement, le prix à payer pour cette réduction considérable des variables de décision est souvent la précision des résultats.

7.2 Paramétrisation des valeurs initiales du vecteur d'état

Bien que l'approche de paramétrisation soit souvent utilisée en optimisation, la paramétrisation des valeurs initiales du vecteur d'état dans un procédé d'adsorption a été utilisée pour la fois par Ko *et al.* (2003) et Ko *et al.* (2005). Ils ont utilisé les fonctions exponentielles suivantes :

$$y_{p_i} = k_{y_1} + \frac{k_{y_2}}{1 + \exp \left[-\frac{z - k_{y_3}}{k_{y_4}} \right]} \quad (7.1)$$

$$q_{p_i} = k_{q_1} + \frac{k_{q_2}}{1 + \exp \left[-\frac{z - k_{q_3}}{k_{q_4}} \right]} \quad (7.2)$$

$$T_{p_i} = k_{T_1} + \frac{k_{T_2}}{1 + \exp \left[-\frac{z - k_{T_3}}{k_{T_4}} \right]} \quad (7.3)$$

où $i = 1, 2, \dots, N$. N est le nombre de points de discrétisation.

Pour des profils monotones, ces fonctions arrivent à bien reproduire les variations spatiales des variables d'état ; par contre, elles échouent dès que la monotonie est rompue.

Dans ce travail, nous proposons d'utiliser des polynômes d'ordre trois comme fonctions de paramétrisation. Elles s'expriment comme suit :

$$y_{p_i} = k_{y_1} + k_{y_2}z + k_{y_3}z^2 + k_{y_4}z^3 \quad (7.4)$$

$$q_{p_i} = k_{q_1} + k_{q_2}z + k_{q_3}z^2 + k_{q_4}z^3 \quad (7.5)$$

$$T_{p_i} = k_{T_1} + k_{T_2}z + k_{T_3}z^2 + k_{T_4}z^3 \quad (7.6)$$

où $i = 1, 2, \dots, N$. N est le nombre de points de discrétisation.

Naturellement, plusieurs autres types de fonctions de paramétrisation existent. Les polynômes sont choisis pour leur facilité de mise en oeuvre et le degré trois est retenu parce qu'il permet de représenter plusieurs formes de profils non monotones semblables à ceux qui se développent dans une colonne d'adsorption.

7.3 Identification des paramètres des fonctions polynomiales

Le problème majeur de l'utilisation de fonctions paramétriques dans un problème d'optimisation de procédés PSA est de déterminer l'ordre de grandeur et les bornes de variation de ces paramètres. En effet, ces deux informations sont capitales pour la convergence et la vitesse du solveur SQP.

7.3.1 Procédure

Pour résoudre ce problème, nous avons utilisé les résultats de simulation des procédés PSA à l'aide de la méthode de substitutions successives. Nous avons procédé de la manière suivante :

- nous avons simulé le procédé jusqu'au CSS et nous avons stocké les profils spatiaux des variables d'état toutes les quarante substitutions.
- pour chaque ensemble de profils spatiaux, nous avons résolu le problème d'optimisation suivant :

$$\min_{p_p} \{ J = e^T e \} \quad (7.7)$$

avec $e = x_c - x_p$

où x_c est le vecteur des variables d'état (y, q, T) issu des substitutions successives tandis que x_p est le vecteur des ces variables obtenu par la paramétrisation à l'aide des fonctions présentées par les équations (7.4-7.6).

Le vecteur des variables de décision (p_p) s'écrit :

$$p_p^T = [k_{y_1}, k_{y_2}, k_{y_3}, k_{y_4}, k_{q_1}, k_{q_2}, k_{q_3}, k_{q_4}, k_{T_1}, k_{T_2}, k_{T_3}, k_{T_4}] \quad (7.8)$$

- à la fin de ce processus d'optimisation, nous disposons de quelques valeurs pour chacun des coefficients des polynômes de paramétrisation. A partir de ces valeurs, nous avons non seulement l'ordre de grandeur, mais également les bornes de variation de chacun des coefficients.

7.3.2 Résultats

Cette procédure est appliquée au modèle non isotherme du procédé présenté dans la section (6.6.3.1). Le régime stationnaire cyclique est atteint au bout de 200 cycles. La

7.3. IDENTIFICATION DES PARAMÈTRES DES FONCTIONS POLYNOMIALES

fréquence de stockage des profils spatiaux étant de 40, le nombre d'optimisations réalisées est de 5.

Les figures (7.1), (7.2) et (7.3) présentent les profils des concentrations dans les phases fluide et solide et de température respectivement tous les 40 cycles. Ces profils sont déterminés d'une part à l'aide de la méthode des substitutions successives et d'autre part à l'aide des fonctions de paramétrisation. On remarque que les fonctions de paramétrisation reproduisent très bien la forme des différents profils.

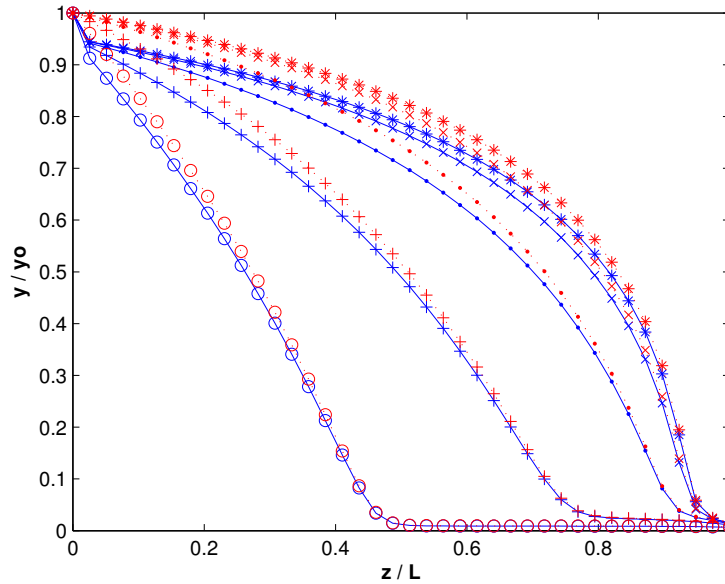


Figure 7.1: Profils spatiaux de concentration dans le gaz (NI-Par)

Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils obtenus par les substitutions successives et par la paramétrisation respectivement. (O): 40, (+): 80, (•): 120, (×): 160 et (*): 200 cycles.

Les valeurs des coefficients polynomiaux déduits sont présentées sur le tableau (7.1).

Les résultats de ce tableau nous permettent de borner l'ensemble de ces coefficients comme suit :

$k_{y_1} \in [0, 932923; 1, 04946]$	$k_{q_1} \in [0, 662579; 0, 911059]$	$k_{T_1} \in [1, 003850; 1, 005890]$
$k_{y_2} \in [-2; 0, 248348]$	$k_{q_2} \in [-0, 09354; 0, 15055]$	$k_{T_2} \in [-0, 00509; -0, 00351]$
$k_{y_3} \in [-0, 73718; -0, 30628]$	$k_{q_3} \in [-0, 13724; -0, 04785]$	$k_{T_3} \in [-0, 00567; -0, 00335]$
$k_{y_4} \in [-0, 54519; 1, 42279]$	$k_{q_4} \in [-0, 21295; -0, 00447]$	$k_{T_4} \in [0, 00373; 0, 00625]$

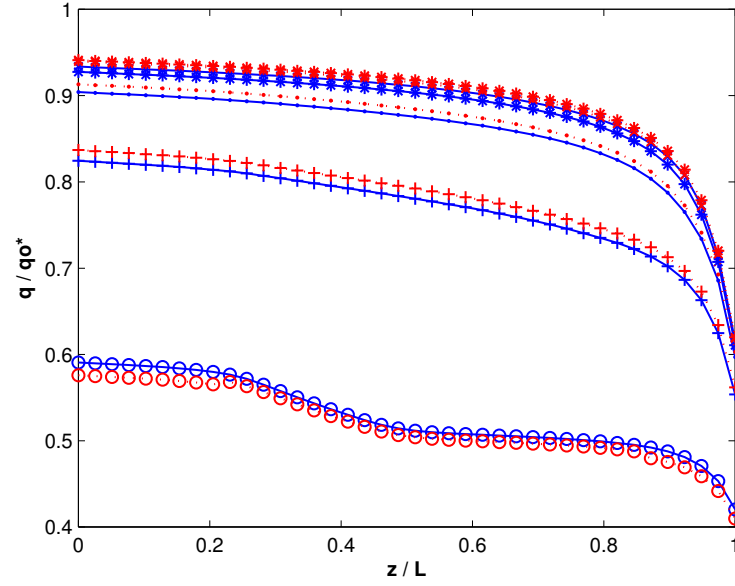


Figure 7.2: Profils spatiaux de concentration dans le solide (NI-Par)

Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils obtenus par les substitutions successives et par la paramétrisation respectivement. (O): 40, (+): 80, (●): 120, (×): 160 et (*): 200 cycles.

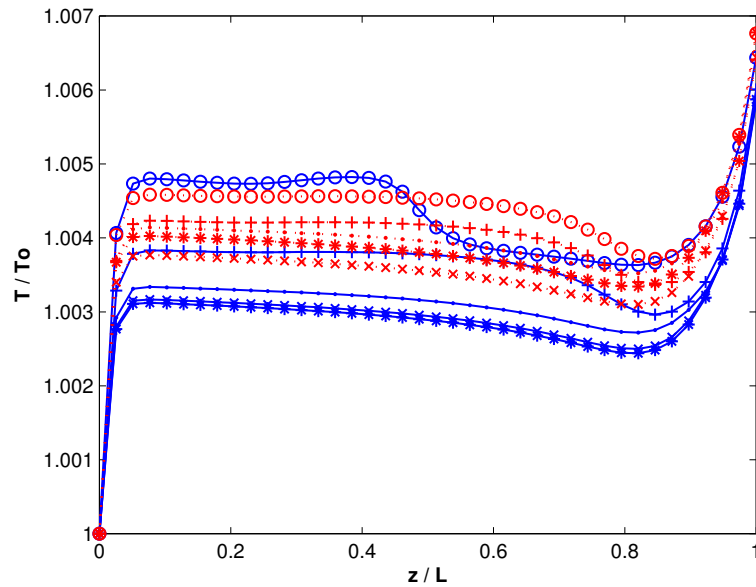


Figure 7.3: Profils spatiaux de température (NI-Par)

Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils obtenus par les substitutions successives et par la paramétrisation respectivement. (O): 40, (+): 80, (●): 120, (×): 160 et (*): 200 cycles.

7.4. FORMULATION DU PROBLÈME D'OPTIMISATION ÉNERGÉTIQUE DE PROCÉDÉS PSA

Cycles	40	80	120	160	200
k_{y_1}	1,00865	1,04946	0,952361	0,932923	0,933226
k_{y_2}	-2	-0,763058	0,054622	0,228106	0,248348
k_{y_3}	-0,306284	-0,737181	-0,588394	-0,602036	-0,609172
k_{y_4}	1,42279	0,364315	-0,460019	-0,545197	-0,544841
k_{q_1}	0,662579	0,857093	0,901903	0,909592	0,911059
k_{q_2}	-0,093541	0,0820563	0,150548	0,171175	0,174980
k_{q_3}	-0,047846	-0,109958	-0,129916	-0,137243	-0,137226
k_{q_4}	-0,004468	-0,158588	-0,202612	-0,211916	-0,212946
k_{T_1}	1,003850	1,005890	1,005040	1,004670	1,004670
k_{T_2}	-0,003512	-0,004326	-0,004851	-0,005087	-0,005087
k_{T_3}	-0,003348	-0,005042	-0,005462	-0,005668	-0,005668
k_{T_4}	0,006254	0,004277	0,003916	0,003727	0,003727

Tableau 7.1: Valeurs des paramètres pour différents cycles de simulation

A partir de ces bornes, l'initialisation pour le problème d'optimisation de procédés PSA est nettement plus aisée.

7.4 Formulation du problème d'optimisation énergétique de procédés PSA

Nous venons de voir que les valeurs initiales du vecteur d'état sont correctement paramétrées, nous allons maintenant présenter la nouvelle formulation du problème d'optimisation énergétique de procédés PSA.

Le critère d'optimisation peut être exprimé par :

$$\min_{\theta} \left\{ J = \frac{k}{k-1} \left[\left(\frac{P_H}{P_L} \right)^{\frac{k-1}{k}} - 1 \right] u_H \pi r_b^2 P_H \right\} \quad (7.9)$$

La contrainte de l'état stationnaire cyclique (CSS) s'écrit :

$$\begin{aligned} e^T e &\leq \epsilon_{css} \\ \text{où } e &= x^{(1)}(t_o^{(1)}) - x^{(4)}(t_f^{(4)}), \\ \text{et } \epsilon_{css} &\text{ la précision requise pour le CSS.} \end{aligned} \quad (7.10)$$

Il est important de remarquer que le vecteur initial des variables d'état ($x^{(1)}(t_o^{(1)})$) est obtenu à l'aide des fonctions de paramétrisation présentées par les équations (7.4-7.6).

Le vecteur des variables de décision θ est :

$$\begin{aligned} \theta &= (p_p^T, p_d^T)^T \\ \text{où } p_p^T &= [k_{y_1}, k_{y_2}, k_{y_3}, k_{y_4}, k_{q_1}, k_{q_2}, k_{q_3}, k_{q_4}, k_{T_1}, k_{T_2}, k_{T_3}, k_{T_4}] \\ &\text{est le vecteur des paramètres des fonctions de paramétrisation} \\ \text{et } p_d^T &= (L, \tau_{ads}, P_H, V_f) \\ &\text{le vecteur des paramètres de dimensionnement et d'opération.} \end{aligned} \quad (7.11)$$

Les variables de décision sont soumis aux bornes suivantes :

$$\theta_{min} \leq \theta \leq \theta_{max} \quad (7.12)$$

Le problème d'optimisation devient ainsi :

$$\min_{\theta} \left\{ J = \frac{k}{k-1} \left[\left(\frac{P_H}{P_L} \right)^{\frac{k-1}{k}} - 1 \right] u_H \pi r_b^2 P_H \right\} \quad (7.13)$$

soumis au modèle du procédé (3.46-3.49), à la condition du CSS (7.10) et aux bornes des variables de décision (7.12).

7.5 Méthode de calcul

La méthode de calcul pour la résolution de ce type de problème est exactement la même que celle présentée au chapitre (6).

7.6 Résultats et discussion

Paramètres du modèle

Les durées des étapes d'adsorption et de purge sont égales ($\tau_{ads} = \tau_{des} = \tau$). De la même manière, les durées des étapes de compression et décompression sont égales est sont fixées au quart des durées des étapes isobares ($\tau_{comp} = \tau_{decom} = 0,25 \tau$). Les paramètres nécessaires pour la simulation du procédé sont donnés dans le tableau 7.2. Le nombre de volumes finis pour le discrétisation spatiale est 20.

Résultats et discussion

Paramètre	Valeur	Unité
r	0,0135	m
ϵ	0,43	-
ρ_s	480	kg/m^3
C_{ps}	$1,05 \times 10^3$	$J/kg.K$
y_f	5	vol %
T_f	293	K
T_o	293	K
ρ_g	1,308	kg/m^3
C_{pg}	1,006	kJ/kgK
ΔH	43,5	$kJ/mole$
k	$1,1 \times 10^{-4}$	s^{-1}
q_s	4,4	$mole/kg$
b_o	$3,88 \times 10^{-8}$	$m^3/mole$
h	31,4	J/m^2sK
γ	1,5	-

Tableau 7.2: Paramètres du modèle (NI-Par)

Afin de pouvoir comparer les résultats de l'optimisation paramétrée avec celles de l'optimisation non paramétrée, nous avons résolu le même problème par l'approche d'optimisation proposée dans le chapitre précédent.

Les paramètres de calcul pour l'optimisation paramétrée et non paramétrée sont présentés sur le tableau (7.3).

Paramètre	Optimisation paramétrée	Optimisation non paramétrée	Unité
Temps de calcul	237	151,8	<i>s</i>
Nombre d'itérations	5	3	—
Précision CSS (ϵ_{css})	1	$7,1 \times 10^{-2}$	—
Tolérance (intégrateur)	1×10^{-5}	1×10^{-8}	—
Tolérance (solveur)	1×10^{-5}	1×10^{-5}	—

Tableau 7.3: Paramètres de calcul (NI-Par)

Les bornes des variables de décision ont été fixées de la même façon que dans le chapitre précédent. Pour l'optimisation paramétrée, l'initialisation des variables de décision doit être au voisinage l'optimum, sinon le solveur de programmation non linéaire ne converge pas.

Le tableau (7.4) montre les valeurs initiales et à l'optimum des variables de décision et les bornes correspondantes pour l'optimisation paramétrée et l'optimisation non paramétrée. Quant au tableau (7.5), il montre les valeurs optimales de la puissance instantanée, de la condition de CSS ainsi que des critères de performance du procédé. On remarque que l'optimisation paramétrée a besoin de plus de temps que l'optimisation non paramétrée pour converger. De plus, la condition de CSS est moins précise dans le cas de l'optimisation paramétrée. Nous expliquerons la raison par la suite. Cependant, les tableaux (7.4) et (7.5) montrent que les deux optimisations conduisent globalement aux mêmes valeurs des variables de dimensionnement et d'opération.

La figure (7.4) présente l'évolution du critère de performance en fonction du nombre d'itérations. Elle nous montre que la puissance instantanée a diminué en passant de 7,2 J/s au début de l'optimisation à 3,6 J/s à l'optimum dans l'optimisation paramétrée et non paramétrée.

7.6. RÉSULTATS ET DISCUSSION

Variable de décision	Valeur initiale	Valeur optimale		Borne supérieure	Borne inférieure
		optimisation paramétrée	optimisation non paramétrée		
L (m)	0,29	0,291	0,27	0,35	0,25
τ_{ads} (s)	200	200,66	200,2	250	150
P_H (Pa)	$1,52 \times 10^5$	$1,52 \times 10^5$	$1,52 \times 10^5$	$1,82 \times 10^5$	$1,45 \times 10^5$
V_f (m ³ /s)	1×10^{-5}	$5,1 \times 10^{-6}$	5×10^{-6}	$1,5 \times 10^{-5}$	5×10^{-6}

Tableau 7.4: Valeurs optimales et bornes des variables de décision (NI-Par)

Critère	Optimisation	Optimisation	Unité
	paramétrée	non paramétrée	
Pureté moyenne	94,6	94,7	%
Contrainte de CSS	1	$7,1 \times 10^{-2}$	—
Impureté moyenne	$4,3 \times 10^{-2}$	$4,2 \times 10^{-2}$	%
Taux de récupération	99	99	%
Productivité de l'adsorbant	$3,3 \times 10^{-3}$	$3,1 \times 10^{-3}$	mol/kg.s
BCF	90,6	90,4	%
Temps de séjour	28	31	s ⁻¹
Puissance instantanée	3,6	3,6	J/s
Puissance moyenne	3,2	3,2	J/s
Production moyenne	$3,3 \times 10^{-3}$	$3,1 \times 10^{-3}$	mol/s
Puissance spécifique moyenne	963,6	1044	J/mol

Tableau 7.5: Résultats de l'optimisation du modèle non isotherme (NI-Par)

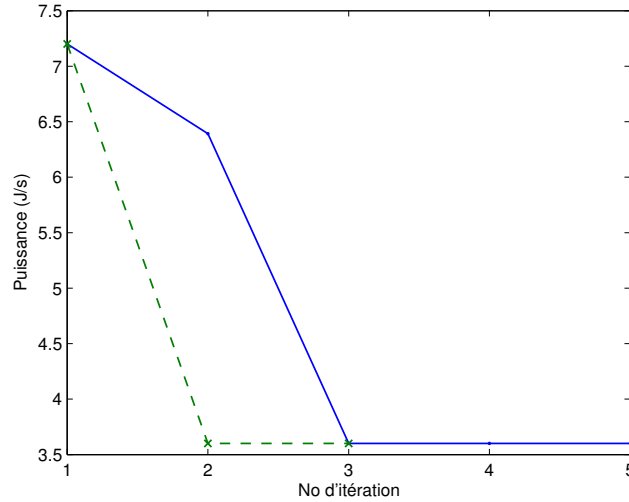


Figure 7.4: Évolution itérative du critère de performance (NI-Par)

Les lignes continues et en pointillé correspondent aux optimisation paramétrée et optimisation non paramétrée respectivement.

La figure (7.5) présente l'évolution de la contrainte du CSS en fonction du nombre d'itérations. Elle montre que la contrainte du CSS est respectée à l'optimum. La comparaison de la contrainte du CSS nous montre que elle n'est pas assez précise pour l'optimisation paramétrée par rapport à celle dans l'optimisation non paramétrée. En fait, les profils sont estimés librement si les profils spatiaux ne sont pas paramétrés et par conséquent, le CSS est précis. Par contre, les profils spatiaux initiaux sont imposés dans l'approche de l'optimisation paramétrée qui à pour résultats une valeur faible du CSS.

Les figures (7.6), (7.7), (7.8) et (7.9) présentent les profils des variables d'état pour les étapes de compression, adsorption, décompression et purge respectivement. Les profils initiaux et à l'optimum y sont reportés pour l'optimisation paramétrée et non paramétrée. Il est toutefois important de remarquer que les variables d'état ont été initialisées à l'optimum ou tout près de l'optimum dans le cas de l'optimisation paramétrée, mais pas dans le cas de l'optimisation non paramétrée.

Enfin, il convient de noter que l'intégrateur numérique échoue systématiquement lorsque les tolérances utilisées en optimisation non paramétrée sont utilisées en optimisation paramétrée. Pour remédier à ce problème, nous étions obligés de diminuer la précision de l'intégrateur. Le résultat est que les profils optimaux obtenus sont moins précis. C'était le prix à payer pour la réduction substantielle des variables de décision en

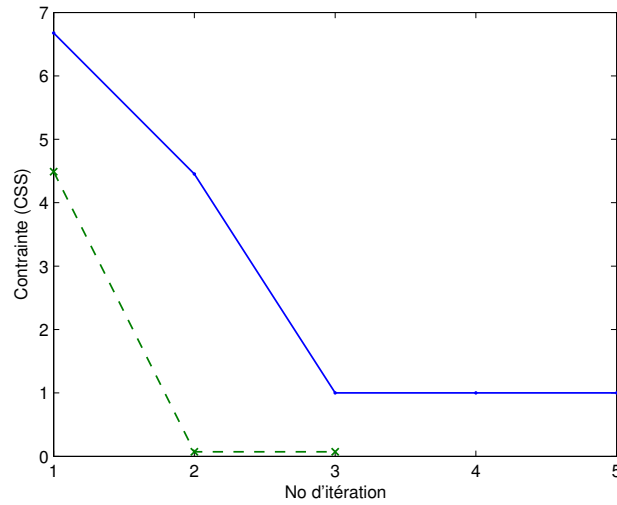


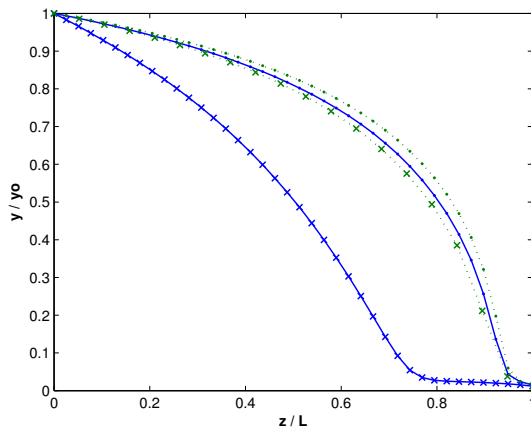
Figure 7.5: Évolution itérative de la contrainte du CSS (NI-Par)

Les lignes continues et en pointillé correspondent aux optimisation paramétrée et optimisation non paramétrée respectivement.

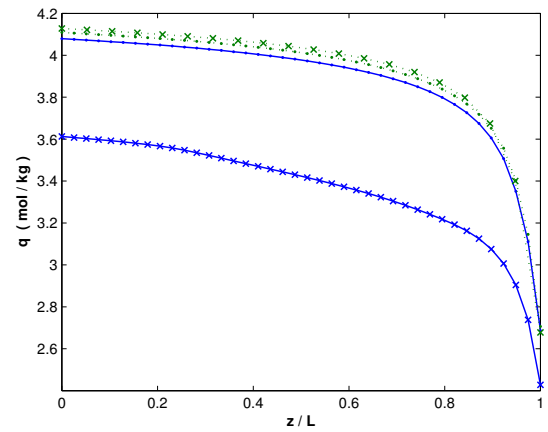
optimisation paramétrée.

7.7 Conclusion

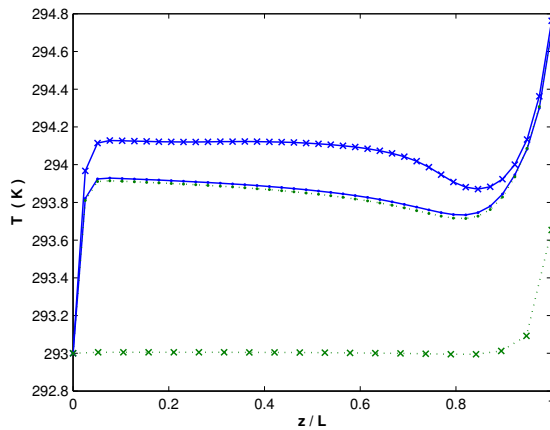
Dans ce chapitre, nous avons réalisé l'optimisation paramétrée de procédé PSA afin de réduire le nombre de variables de décision. Nous avons mis en oeuvre l'optimisation paramétrée pour résoudre le problème d'optimisation de consommation de l'énergie de compression. L'application de cette approche nous a permis de la comparer avec l'approche d'optimisation non paramétrée. Il convient de remarquer que l'approche de l'optimisation paramétrée est intéressante pour les systèmes de grandes dimensions mais elle conduit à des résultats moins précis que l'optimisation non paramétrée. Un compromis entre la dimension et la précision doit probablement exister, mais il n'est pas évident de le déterminer. En général, on préfère changer de solveur NLP, c'est que nous verrons en perspectives de ce travail.



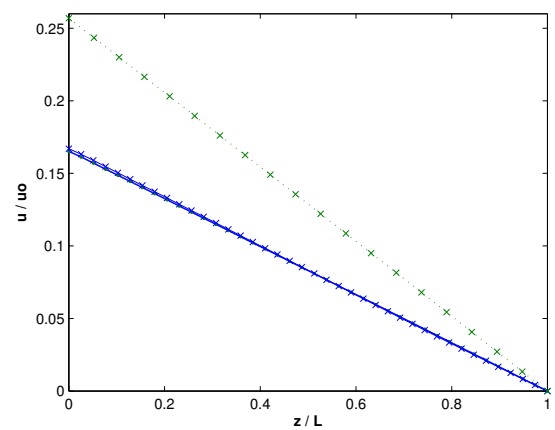
Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

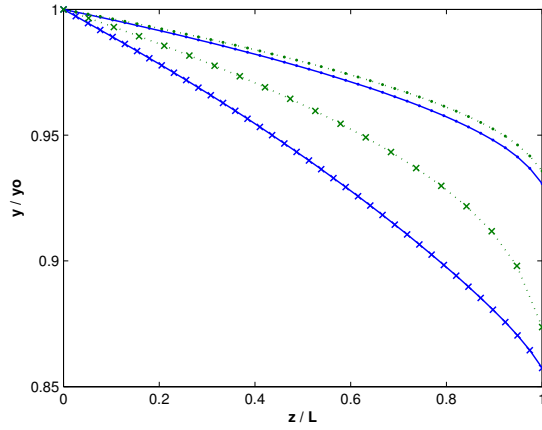


Profils de température
le long de la colonne

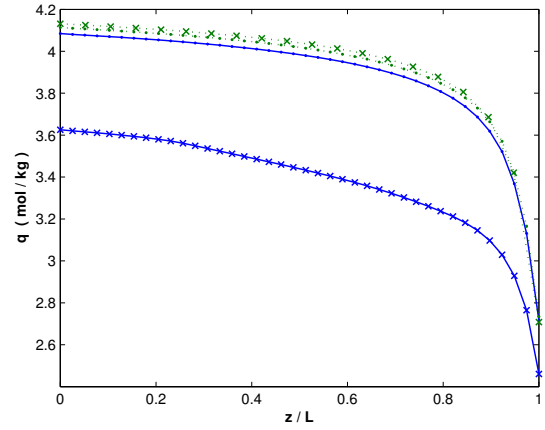


Profils de vitesse
le long de la colonne

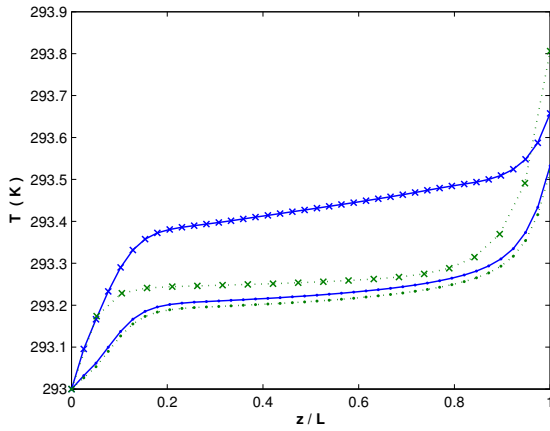
Figure 7.6: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de compression (NI-Par)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement. (●): optimisation paramétrée, (×): optimisation non paramétrée.



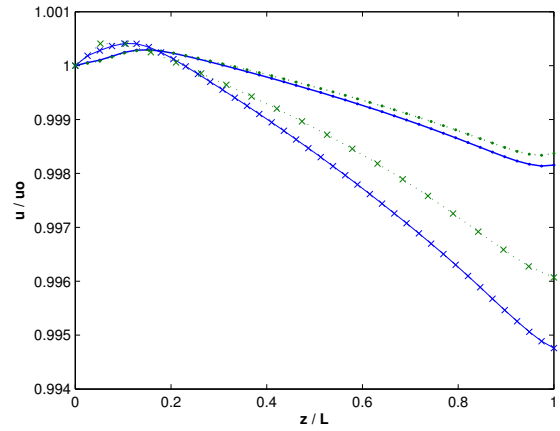
Profils de concentration dans le gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le solide le long de la colonne

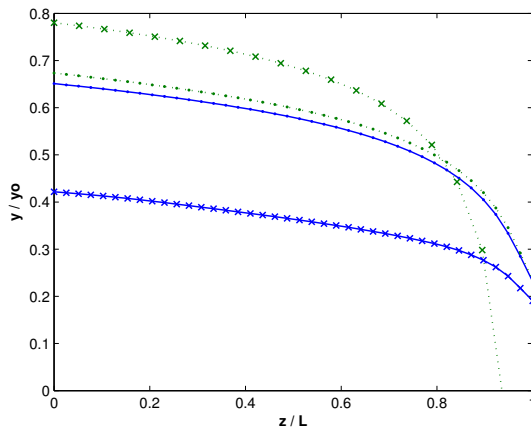


Profils de température le long de la colonne

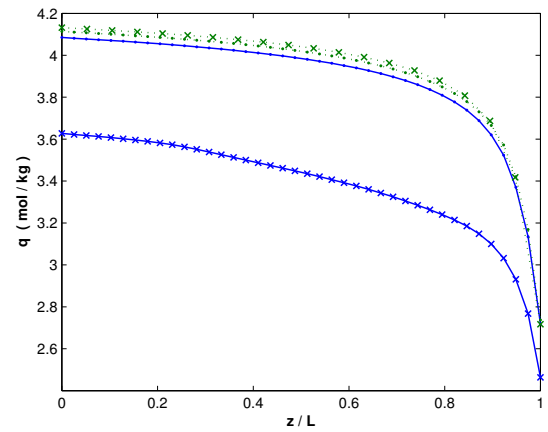


Profils de vitesse le long de la colonne

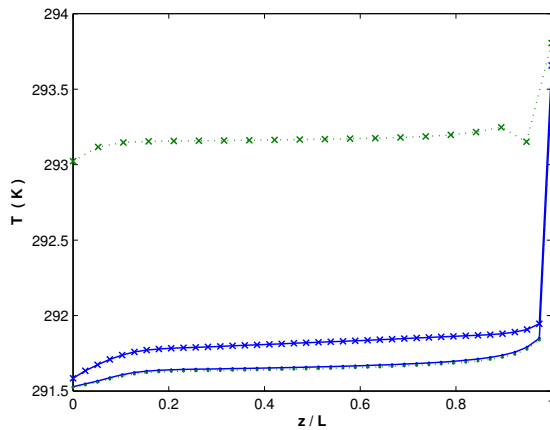
Figure 7.7: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape d'adsorption (NI-Par)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement. (●): optimisation paramétrée, (×): optimisation non paramétrée.



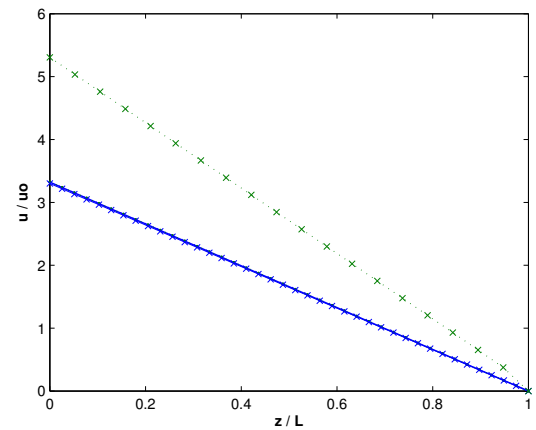
Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne

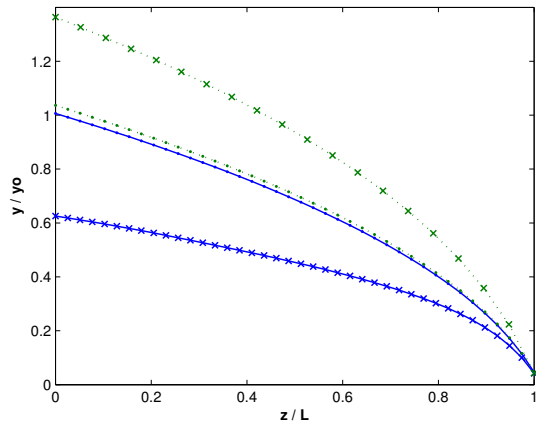


Profils de température
le long de la colonne

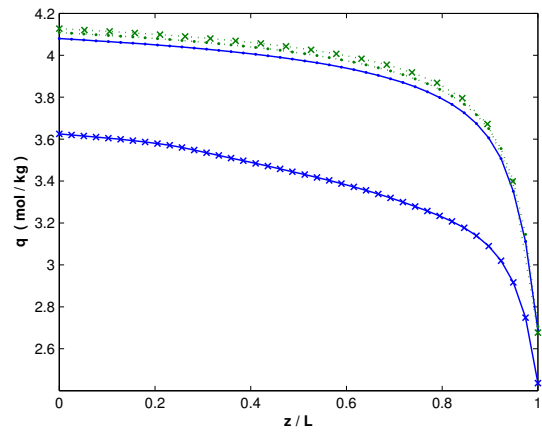


Profils de vitesse
le long de la colonne

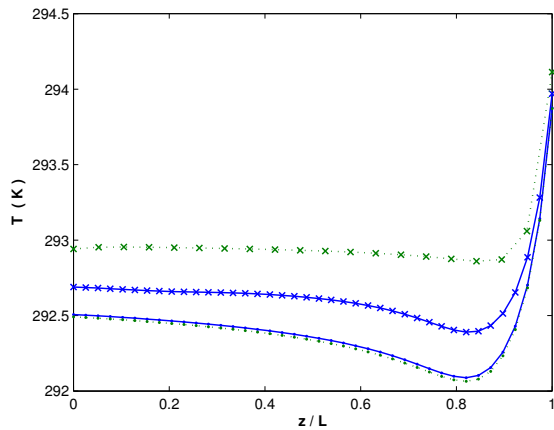
Figure 7.8: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de décompression (NI-Par)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement. (●): optimisation paramétrée, (×): optimisation non paramétrée.



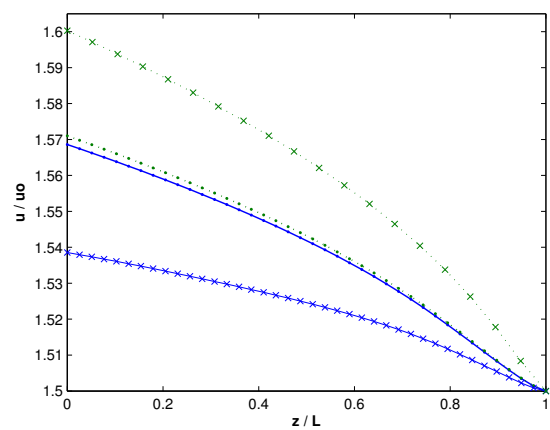
Profils de concentration dans le
gaz le long de la colonne



Profils de concentration dans le
solide le long de la colonne



Profils de température
le long de la colonne



Profils de vitesse
le long de la colonne

Figure 7.9: Profils spatiaux des variables d'état pour l'étape de purge (NI-Par)
Les lignes continues et en pointillé correspondent aux profils initiaux et optimaux respectivement. (●): optimisation paramétrée, (×): optimisation non paramétrée.

Conclusions et Perspectives

Conclusions générales

L'objectif de ce travail était de développer et d'utiliser les méthodes d'optimisation dynamique hybride pour la simulation et l'optimisation de procédés PSA. Pour ce faire, nous nous sommes d'abord intéressés à la modélisation de ces procédés puisque leur optimisation est basée sur la connaissance et la bonne prédiction de leurs modèles.

Nous avons ainsi considéré deux types de modèles, allant du plus simple au plus compliqué. Il s'agit de modèles isotherme et non isotherme avec états gelés, et d'un modèle non isotherme sans états gelés. Tous ces modèles sont décrits par des systèmes d'équations algébro-différentielles partielles (PDAE) avec les conditions initiales et aux limites associées.

Pour résoudre ces équations, nous avons utilisé la méthode des lignes pour discrétiser l'espace, afin de transformer les PDAE en simples équations algébro-différentielles (DAE). Plus spécifiquement, les méthodes des collocations orthogonales et des volumes finis sont utilisées. Nous avons vu par ailleurs que la méthode des collocations orthogonales conduisait à des instabilités numériques, surtout au voisinage des fronts d'adsorption, et que nous lui avons préféré la méthode des volumes finis qui a le grand avantage d'être conservatrice de flux.

Nous avons ensuite formulé les modèles de procédés PSA, ainsi discrétisés, sous forme de systèmes hybrides avec autant de modes que d'étapes mises en oeuvre dans le fonctionnement du procédé. Chaque mode est caractérisé par un système d'équations algébro-différentielles, une condition et des fonctions de transition. La condition initiale n'est qu'un cas particulier des fonctions de transition. La formulation hybride est tout à fait nouvelle pour les procédés PSA et va nous permettre de déterminer exactement les fonctions de transition des variables adjointes en optimisation.

Les méthodes d'optimisation dynamique hybride sont ensuite abordées. Nous avons utilisé la formulation variationnelle pour déterminer les conditions nécessaires d'optimalité d'abord pour un problème d'optimisation continue sans contraintes, puis nous avons pris en compte différents types de contraintes. Nous avons ensuite considéré le problème d'optimisation dynamique hybride et déterminé ses conditions d'optimalité. Les conditions d'optimalité résultantes forment un système d'équations algébro-différentielles à conditions aux limites partagées. C'est un problème bien posé mathématiquement, mais difficile à résoudre numériquement. Différentes méthodes de résolution sont ainsi présentées et nous avons choisi la méthode de paramétrisation de la variable de commande (CVP) qui présente l'avantage d'être du type faisable. Le problème de programmation non linéaire (NLP) résultant est résolu à l'aide d'une méthode de gradient, SQP en l'occurrence, où les gradients sont calculés à l'aide de la méthode du système adjoint et des différences finies.

La simulation basée sur l'optimisation de procédés PSA est ensuite abordée. Elle consiste à formuler le problème de détermination du régime stationnaire cyclique (CSS) comme un problème d'optimisation dynamique où le critère de performance est défini par la condition de CSS, les variables de décision sont données par les valeurs initiales des variables d'état, et les contraintes par le modèle hybride du procédé avec les conditions aux limites associées. Les modèles de procédés isothermes et non isothermes avec et sans états gelés sont résolus avec succès et montrent que l'approche développée est plus efficace que les différentes méthodes utilisées dans la littérature pour simuler les procédés PSA. Plus spécifiquement, nous avons montré que le calcul des gradients à l'aide de la méthode du système adjoint était plus rapide et plus précise que les méthodes des différences finies ou des sensibilités.

Après cette étape de simulation qui est très importante, l'optimisation proprement dite des procédés PSA est abordée. Elle consiste à déterminer, non seulement les valeurs initiales des variables d'état, mais également les paramètres de dimensionnement et de fonctionnement qui optimisent un critère de performance donné. Dans ce cas, la condition de CSS constitue une contrainte supplémentaire pour le problème d'optimisation puisque quelle que soit la solution obtenue, elle doit toujours vérifier le régime stationnaire cyclique. Plusieurs problèmes d'optimisation pour les différents modèles isothermes non isothermes, avec et sans états gelés, sont traités. Il s'agit notamment des problèmes de maximisation de la pureté et de la récupération, et de la minimisation de l'énergie sous différentes contraintes additionnelles. Les résultats obtenus sont tout à fait intéressants

et montrent l'efficacité et la performance de l'approche développée dans ce travail.

Enfin, nous avons présenté l'optimisation paramétrée des procédés PSA. En effet, nous nous sommes rendu compte que pour améliorer la précision des résultats, il fallait, entre autres, augmenter le nombre de volumes finis utilisés pour discrétiser l'espace. Dans ce cas, la dimension du vecteur des variables de décision devient très grande et le solveur NLP utilisé n'est plus capable de résoudre ces problèmes de grande dimension. La solution que nous avons adoptée pour surmonter cette difficulté consistait à paramétrer les valeurs initiales du vecteur d'état. Cette paramétrisation nous a permis de réduire considérablement le nombre de variables de décision et de continuer à utiliser le solveur SQP choisi dans ce travail. Les fonctions de paramétrisation utilisées dans ce travail sont des polynômes d'ordre trois. Les résultats obtenus pour les problèmes étudiés sont comparés à ceux fournis par l'optimisation non paramétrée. Ils ont permis de mettre en évidence les avantages de la paramétrisation en termes du nombre de variables de décision, mais également ses inconvénients en termes de convergence, de vitesse du solveur, et surtout de précision de résultats.

Perspectives

Les résultats obtenus aussi bien au niveau des performances des procédés étudiés que de la robustesse de l'algorithme d'optimisation mis en oeuvre sont tout à fait intéressants, et laissent entrevoir les différents champs d'application de l'approche développée dans ce travail, ainsi que les nouvelles directions possibles pour l'amélioration et l'approfondissement du dimensionnement et du fonctionnement optimaux des procédés PSA.

Une perspective à court terme consisterait à inclure le diamètre de la colonne dans le vecteur des variables de décision. On aurait ainsi deux paramètres de dimensionnement, c'est-à-dire la longueur et le diamètre du lit. La prise en compte des pertes de charge dans le lit serait également intéressante et approcherait davantage le modèle de la réalité.

Une autre perspective concerne les conditions de transition. Au lieu de fixer a priori les instants de commutation fournis par les durées des étapes, il serait intéressant de déterminer ces instants à l'aide de conditions sur les fronts de percée. Les instants de commutations ne seront plus explicites, mais bien implicites et permettraient de prendre en compte d'éventuelles variabilités de l'alimentation et de déterminer avec précision les durées des différentes étapes.

Enfin, une perspective à moyen et à long termes a pour objectif l'ordonnancement dynamique des procédés PSA. Il s'agit de déterminer, pour un procédé aussi complexe soit-il, la meilleure combinaison des différentes colonnes d'adsorption au sens d'un critère donné et sous des contraintes spécifiées. Pour y parvenir il faudrait :

1. d'abord résoudre le problème d'optimisation de grande dimension : au lieu de paramétrer les valeurs initiales des variables de décision, une des solutions consisterait à utiliser un solveur NLP basé sur la méthode du gradient réduit qui est mieux adapté pour les systèmes de grande dimension. Le nombre d'itérations pour converger sera sûrement plus important ; par contre, chaque itération prendra beaucoup moins de temps CPU. Pour tester rapidement la pertinence de cette idée, il suffirait de remplacer le solveur NLPQL, utilisé dans ce travail, par le code MINOS développé par Murtagh et Saunders (1978, 1982), et de comparer les résultats. Sinon, des méthodes de décomposition, qui consistent à remplacer le système de grande dimension par des systèmes de petite dimension qui peuvent être résolus à l'aide d'une méthode SQP, seraient à envisager.
2. développer des méthodes et algorithmes d'optimisation hybride et globale fondées sur les résultats d'optimisation statique ou d'inégalités différentielles. Ces méthodes globales sont capitales pour la mise en oeuvre de l'optimisation dynamique mixte dans la détermination de combinaisons optimales de colonnes d'adsorption.
3. développer des méthodes et algorithmes robustes et rapides d'optimisation dynamique mixte.

Annexes

Annexes A

Adimensionnalisation

Les différents modèles du procédé d'adsorption modulée en pression sont présentés sous la forme adimensionnelle :

A.1 Modèle isotherme avec états gelés

Les variables adimensionnelles utilisées sont présentées ci-dessous :

$$\bar{t} = \frac{t}{\tau_{ads}}, \quad \bar{z} = \frac{z}{L}, \quad \bar{c} = \frac{c}{c_0}, \quad \bar{q} = \frac{q}{q_0^*}, \quad \bar{q}_0^* = \frac{q_0^*}{q_0^*}, \quad K = \frac{k}{k_0} \quad (\text{A.1})$$

Le mise en oeuvre de ces variables adimensionnelles nous permet d'écrire le modèle isotherme du procédé PSA sous la forme adimensionnelle comme suit :

$$\frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{t}} + \tau_a \frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{z}} + \tau_b \frac{\partial \bar{q}}{\partial \bar{t}} = 0 \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{\partial \bar{q}}{\partial \bar{t}} = \tau_f (\bar{q}^* - \bar{q}) \quad (\text{A.3})$$

$$\bar{q}^* = K \bar{c} \quad (\text{A.4})$$

Les paramètres non dimensionnelle sont comme suit :

$$\tau_a = \frac{\tau_{ads} u}{L}, \quad \tau_b = \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \frac{\rho_s q_0^*}{c_0}, \quad \tau_f = \frac{\tau_{ads} K_{sav}}{(1 - \epsilon) \rho_s} \quad (\text{A.5})$$

Les conditions initiales et aux limites pour chaque étape sous la forme adimensionnelle sont explicitées dans le tableau (A.1).

Adsorption	Purge
$P = P_H$	$P = P_B$
$u = u_H$	$u = -u_L = -\gamma v_H$
$\bar{t} = 0; \forall \bar{z} : \bar{c} = \bar{c}_{II}; \bar{q} = \bar{q}_{II}$	$\bar{t} = 0; \forall \bar{z} : \bar{c} = \bar{c}_I \frac{P_B}{P_H}; \bar{q} = \bar{q}_I$
$\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \bar{c} = 1$	$\bar{z} = 1; \forall \bar{t} : \bar{c}(\bar{t}) = \frac{P_B}{P_H} \bar{c}_I(\bar{t})$

Tableau A.1: Conditions initiales et aux limites sous forme adimensionnelles (I-EG)

A.2 Modèle non isotherme avec états gelés

Les variables adimensionnelles utilisées dans la partie précédent sont les mêmes. On considère pour le cas non isotherme :

$$\bar{T} = \frac{T}{T_0} \quad (\text{A.6})$$

Le bilans matière et la cinétique d'adsorption sont adimensionnalisés de les mêmes façons que dans le cas isotherme avec états gelés.

Le bilan enthalpique et sous forme adimensionnelle s'écrit :

$$\frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{t}} + \tau_H \frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{z}} - \tau_L \frac{\partial^2 \bar{T}}{\partial \bar{z}^2} - \tau_w \frac{\partial \bar{q}}{\partial \bar{t}} + \beta(\bar{T} - 1) = 0 \quad (\text{A.7})$$

La relation entre le coefficient de l'équilibre d'adsorption et la température par :

$$K = \exp \left[-\frac{\Delta H}{RT_0} \frac{\bar{T} - 1}{\bar{T}} \right] \quad (\text{A.8})$$

Les paramètres non dimensionnelle sont comme suit :

$$\begin{aligned} \tau_H &= \frac{u \epsilon \rho_g C_{pg} \tau_{ads}}{(\epsilon \rho_g C_{pg} + (1 - \epsilon) \rho_s C_{ps}) L} & \tau_L &= \frac{\epsilon k_{ez} \tau_{ads}}{(\epsilon \rho_g C_{pg} + (1 - \epsilon) \rho_s C_{ps}) L^2} \\ \tau_W &= \frac{(1 - \epsilon) \rho_s \Delta H q_0^*}{(\epsilon \rho_g C_{pg} + (1 - \epsilon) \rho_s C_{ps}) T_0} & \beta &= \frac{2h \tau_{ads}}{(\epsilon \rho_g C_{pg} + (1 - \epsilon) \rho_s C_{ps}) r} \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

Conditions initiales et aux limites

Les conditions initiales et aux limites sont les mêmes que pour le cas isotherme. La seule différence se situe au niveau de la température. Les conditions initiales et aux limites pour la température sous forme adimensionnelle sont données dans la tableau (A.2)

Adsorption	Purge
$\bar{t} = 0; \forall \bar{z} : \bar{T} = \bar{T}_{II}$	$\bar{t} = 0; \forall \bar{z} : \bar{T} = \bar{T}_I$
$\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \bar{T} = 1$	$\bar{z} = \bar{L}; \forall \bar{t} : \bar{T} = 1$
$\bar{z} = 1; \forall \bar{t} : \partial \bar{T} / \partial \bar{z} = 0$	$\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \partial \bar{T} / \partial \bar{z} = 0$

Tableau A.2: Conditions initiales et aux limites sous forme adimensionnelles (NI-EG)

A.3 Modèle non isotherme sans états gelés

Les variables adimensionnelles sont définies comme suit :

$$\bar{t} = \frac{t}{\tau_{ads}}, \quad \bar{z} = \frac{z}{L}, \quad \bar{y} = \frac{y}{y_f}, \quad \bar{q} = \frac{q}{q_s}, \quad \bar{u} = \frac{u}{u_f}, \quad \bar{P} = \frac{P}{P_H}, \quad \bar{T} = \frac{T}{T_0} \quad (\text{A.10})$$

Le modèle non isotherme du procédé PSA peut être écrit sous la forme adimensionnelle à l'aide de ces variables adimensionnelles comme suit :

$$\frac{\partial \bar{y}}{\partial \bar{t}} + cst_1 \bar{u} \frac{\partial \bar{y}}{\partial \bar{z}} + \left(\frac{1}{cst_{12}} - \bar{y} \right) cst_2 \frac{\bar{T}}{\bar{P}} \frac{\partial \bar{q}}{\partial \bar{t}} = 0 \quad (\text{A.11})$$

$$\frac{\partial \bar{u}}{\partial \bar{z}} - cst_3 \frac{1}{\bar{T}} \frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{t}} + cst_3 \frac{1}{\bar{P}} \frac{\partial \bar{P}}{\partial \bar{t}} - \frac{\bar{u}}{\bar{T}} \frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{z}} + cst_4 \frac{\bar{T}}{\bar{P}} \frac{\partial \bar{q}}{\partial \bar{t}} = 0 \quad (\text{A.12})$$

$$\frac{\partial \bar{q}}{\partial \bar{t}} = cst_5 (\bar{q}^* - \bar{q}) \quad (\text{A.13})$$

$$\bar{q}^* = \frac{cst_9 b \bar{P} \bar{y}}{1 + cst_9 b \bar{P} \bar{y}} \quad (\text{A.14})$$

$$b = \frac{cst_{10}}{R \sqrt{\bar{T}}} \exp \left[-\frac{cst_{11}}{\bar{T}} \right] \quad (\text{A.15})$$

$$cst_6 \frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{t}} + cst_1 \bar{u} \frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{z}} + cst_7 \frac{\partial \bar{q}}{\partial \bar{t}} + cst_8 (\bar{T} - 1) = 0 \quad (\text{A.16})$$

Les conditions initiales et aux limites pour chaque étape sous la forme adimensionnelle sont explicitées dans le tableau (A.3).

A.3. MODÈLE NON ISOTHERME SANS ÉTATS GELÉS

Compression	Adsorption
$\bar{P} = 1 + (1 - \frac{1}{\alpha})[\bar{t} - 1]$ $\bar{t} = 0; \forall \bar{z} : \bar{y} = \bar{y}_{IV}; \bar{q} = \bar{q}_{IV}; \bar{T} = \bar{T}_{IV}$ $\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \bar{y} = 1; \bar{T} = 1;$ $\bar{z} = 1; \forall \bar{t} : \bar{u} = 0$	$\bar{P} = 1$ $\bar{t} = 0; \forall \bar{z} : \bar{y} = \bar{y}_I; \bar{q} = \bar{q}_I; \bar{T} = \bar{T}_I$ $\bar{z} = 0; \forall \bar{t} : \bar{y} = 1; \bar{T} = 1; \bar{u} = 1$
Décompression	Purge
$\bar{P} = \frac{1}{\alpha} + (\frac{1}{\alpha} - 1)[\bar{t} - 1]$ $\bar{t} = 0; \forall \bar{z} : \bar{y} = \bar{y}_{II}; \bar{q} = \bar{q}_{II}; \bar{T} = \bar{T}_{II}$ $\bar{z} = 1; \forall \bar{t} : \partial \bar{y} / \partial \bar{z} = 0; \bar{T} = \bar{T}_{II}; \bar{u} = 0$	$\bar{P} = P_B / P_H$ $\bar{t} = 0; \forall \bar{z} : \bar{y} = \bar{y}_{III}; \bar{q} = \bar{q}_{III}; \bar{T} = \bar{T}_{III}$ $\bar{z} = 1; \forall \bar{t} : \bar{y}(t) = \bar{y}_{II(t)}; \bar{T} = \bar{T}_{II}; \bar{u} = \frac{u_p}{u_f}$

Tableau A.3: Conditions initiales et aux limites sous forme adimensionnelles (NI)

Les différents paramètre sont définis comme suit :

$$\begin{aligned}
cst_1 &= \frac{\tau_{ads} u_f}{L} & cst_2 &= \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \frac{R \rho_s T_0 q_s}{P_H} \\
cst_3 &= \frac{L}{\tau_{ads} u_f} & cst_4 &= \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \frac{R \rho_s T_0 q_s L}{P_H \tau_{ads} u_f} \\
cst_5 &= k \tau_{ads} & cst_6 &= \left[1 + \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \frac{\rho_s C_{ps}}{\rho_g C_{pg}} \right] \\
cst_7 &= \frac{(1 - \epsilon)}{\epsilon} \frac{\Delta H \rho_s q_s}{T_0 C_{pg} \rho_g} & cst_8 &= \frac{2h \tau_{ads}}{\epsilon r_c C_{pg} \rho_g} \\
cst_9 &= y_f P_H & cst_{10} &= \frac{b_o}{R \sqrt{T_0}} \\
cst_{11} &= \frac{\Delta H}{R T_0} & cst_{12} &= y_f
\end{aligned}$$

Annexes B

Programmation Quadratique Successive

La méthode de programmation quadratique successive (Sequential quadratic programming - SQP) a été développée par Han (1976) et Powell (1978) sur la base des travaux de Wilson (1963). Elle consiste à générer une séquence de sous-problèmes (approximations) de programmation quadratique à résoudre successivement. Chaque sous-problème est une approximation de programmation quadratique sous contraintes linéaires du problème originel d'optimisation non linéaire sous contraintes. Une estimation du hessien de la fonction lagrangienne du problème non linéaire est construite basée sur les gradients du critère et des contraintes par rapport aux paramètres d'optimisation.

Considérons un problème d'optimisation non linéaire :

$$\begin{aligned} \min_x J &= f(x) \\ \text{soumis à } g_i(x) &= 0; \quad i = 1, \dots, r_e \\ g_i(x) &\geq; \quad i = r_e + 1, \dots, r \\ x^L &\leq x \leq x^U \end{aligned} \tag{B.1}$$

où x est le vecteur de paramètres d'optimisation.

Le lagrangien associé au problème s'écrit :

$$L(x, v) = f(x) + \sum_{i=1}^r v_i g_i(x) \tag{B.2}$$

où v est le vecteur des multiplicateurs de Lagrange et de Kuhn-Tucker.

Nous considérons que x^k est la valeur courante, v^k l'approximation optimale du vecteur des multiplicateurs de Lagrange et de Kuhn-Tucker et B_k une approximation semi-définie positive du hessien de la fonction lagrangienne. La linéarisation des contraintes et la minimisation de l'approximation quadratique du lagrangien nous permet d'exprimer un sous-problème comme suit :

$$\begin{aligned}
\min_{\delta x} J^k &= \frac{1}{2} \delta x^T B^k \delta x + \nabla_x^T f(x^k) \delta x \\
\text{soumis à} \quad &\nabla_x^T g_i(x^k) \delta x + g_i(x^k) = 0; \quad i = 1, \dots, r_e \\
&\nabla_x^T g_i(x^k) \delta x + g_i(x^k) \geq 0; \quad i = r_e + 1, \dots, r \\
&\delta x - (x^k - x^L) \geq 0 \\
&-\delta x - (x^U - x^k) \geq 0
\end{aligned} \tag{B.3}$$

La condition d'optimalité de ce sous-problème est donnée par l'annulation du jacobien de cette approximation quadratique et ainsi nous fournit une solutions explicite δx^k . L'itération suivante est :

$$x^{k+1} = x^k + \alpha^k \delta x^k \tag{B.4}$$

Le multiplicateur de Lagrange et de Kuhn-Tucker est mis à jours à chaque itération :

$$v^{k+1} = v^k + \alpha^k \delta v^k \tag{B.5}$$

où δv^k est le vecteur des multiplicateurs de Lagrange et de Kuhn-Tucker associé à δx^k .

La longueur du pas α^k est choisie pour réduire une fonction de mérite ω du type :

$$\omega(\alpha^k) = \psi(x^k + \delta x^k, v^k + \alpha^k \delta v^k) \tag{B.6}$$

Les différents solveurs de la programmation non linéaire basés sur la méthode SQP utilisent différentes fonctions de mérite. Par exemple, la fonction de pénalisation exacte s'écrit :

$$\psi(x, v) = f(x) + \sum_{i=1}^{r_e} p_i |g_i(x)| + \sum_{i=r_e+1}^r p_i |\min[0, g_i(x)]| \tag{B.7}$$

Schittkowski (1985) a utilisé le lagrangien augmenté dans le solveur NLPQL :

$$\psi(x, v) = f(x) + \sum_{i \in K} \left[v_i g_i(x) - \frac{1}{2} p_i (g_i(x))^2 \right] + \sum_{i \in K'} \frac{v_i^2}{p_i} \tag{B.8}$$

où K et K' sont définis comme suit :

$$\begin{aligned} K &= \{1, \dots, r_e\} \cup \left\{ i \mid r_e \leq i \leq r, g_i(x) \leq \frac{v_i}{p_i} \right\} \\ K' &= \{1, \dots, r\} \setminus K \end{aligned} \tag{B.9}$$

Les différentes variantes de la méthode SQP sont basées sur différentes fonctions de mérite.

Références

- J. Abadie et J. Carpentier. Generalization of the wolfe reduced gradient method to the case of non-linear constraints. *Optimization*, pages 37–47, 1969. 189
- G. Alptekin. An advanced rapid cycling co2 and h2o control system for plss. *TDA Research, Inc., Wheat Ridge, CO*, 2005. 15
- R. Bellman. Dynamic programming. *Princeton, NJ, Princeton Univ. Press*, 1957. 56
- N. Berlin. U.S. Patent No. 3280536. *Exxon Research and Engineering*, 1966. 10
- B. H. L. Betlem, R. W. M. Gotink, et H. Bosch. Optimal operation of rapid pressure swing adsorption with slop recycling. *Computers and Chemical Engineering*, 22(SUPPL.1): S633–S636, 1998. 119
- L. T. Biegler. Solution of dynamic optimization problems by successive quadratic programming and orthogonal collocation. *Computers and Chemical Engineering*, 8(3-4): 243–247, 1984. 73
- L. T. Biegler et V. M. Zavala. Large-scale nonlinear programming using ipopt: An integrating framework for enterprise-wide dynamic optimization. *Computers and Chemical Engineering*, 33(3):575–582, 2009. 187, 189
- R. Bird, W. Stewart, et E. Lightfoot. *Transport Phenomena - Second*, 2002. 24
- C. Bischof, A. Carle, G. Corliss, A. Griewank, et P. Hovland. Adifor: Generating derivative codes from fortran programs. *Scientific Programming*, 1(1):11–29, 1992. 72
- K. E. Brenan, S. L. Campbell, et L. R. Petzold. Numerical solution of initial-value problems in differential-algebraic equations. *Classics in Applied Mathematics*, 14, 1989. 85, 125
- P. N. Brown, G. D. Byrne, et A. C. Hindmarsh. VODE: A variable-coefficient ODE solver. *SIAM J. Sci. Stat. Comput.*, 10(5):1038–1051, 1989. 85, 125

- P. N. Brown, A. C. Hindmarsh, et L. R. Petzold. Using krylov methods in the solution of large-scale differential-algebraic systems. *SIAM Journal of Scientific Computing*, 15: 1467–1488, 1994. 72
- A. E. Bryson et Y. Ho. Applied optimal control. *New York: Wiley*, 1975. 56, 68
- J. R. Cash et M. H. Wright. Implementation issues in solving nonlinear equations for two-point boundary value problems. *Computing*, 45(1):17–37, 1990. 67
- A. M. Cervantes, S. Tonelli, A. Brandolin, J. A. Bandoni, et L. T. Biegler. Large-scale dynamic optimization for grade transitions in a low density polyethylene plant. *Computers and Chemical Engineering*, 26(2):227–237, 2002. 189
- B. Chachuat, N. Roche, et M. A. Latifi. Dynamic optimisation of small size wastewater treatment plants including nitrification and denitrification processes. *Computers and Chemical Engineering*, 25(4-6):585–593, 2001. 62
- C. Chen et C. Hwang. Optimal control computation for differential-algebraic process systems with general constraints. *Chem. Eng. Commun.*, 97:9–26, 1990. 59, 69
- K. Chihara et M. Suzuki. Simulation of nonisothermal pressure swing adsorption. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 16(1):53–61, 1983a. xi, 90, 91, 94, 95, 98, 100, 102, 127, 129, 134, 139
- K. Chihara et M. Suzuki. Air drying by pressure swing adsorption. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 16(4):293–299, 1983b. 31, 32, 46
- D. T. Croft et M. D. LeVan. Periodic states of adsorption cycles-I. direct determination and stability. *Chemical Engineering Science*, 49(11):1821–1829, 1994. 80, 114
- J. E. Cuthrell et L. T. Biegler. On the optimization of differential-algebraic process systems. *AIChE Journal*, 33(8):1257–1270, 1987. 73
- G. de Montgareuil et Domine. Fr. Patent No. 1223261. *Air Liquide*, 1957. 5
- Y. Ding et M. D. LeVan. Periodic states of adsorption cycles iii. convergence acceleration for direct determination. *Chemical Engineering Science*, 56(17):5217–5230, 2001. 78, 80
- S. J. Doong et R. T. Yang. A comparison of gas separation performance by different pressure swing adsorption cycles. *Chem.Eng.Commun.*, 54:61–71, 1987. 5, 10

- S. Doong et R. Yang. The role of pressure drop in pressure swing adsorption. *AIChE Symp. Ser.*, 84(264):145–154, 1988. 12
- G. Eigenberger et U. Nienke. Catalytic combustion with periodic flow reversal. *Chemical Engineering Science*, 43(8):2109–2115, 1988. 62
- Finlayson et Sharp. U.K. Patent No. 365092. *British Celanese Corp.*, 1930. 5
- S. Galán, W. F. Feehery, et P. I. Barton. Parametric sensitivity functions for hybrid discrete/continuous systems. *Applied Numerical Mathematics*, 31(1):17–47, 1999. 50
- E. Glueckauf. Theory of chromatography: Part 10. - formula for diffusion into spheres and their application to chromatography. *Transactions of the Faraday Society*, 51: 1540–1551, 1955. 25
- C. Goh et K. Teo. Control parametrization: A unified approach to optimal control problems with general constraints. *Automatica*, 24(1):3–18, 1988. 59, 69
- Hasche et Dargan. U.S. Patent No. 1794377. 1931. 5
- M. Hassan, N. Raghavan, et D. Ruthven. Numerical simulation of a pressure swing air separation system - a comparative study of finite difference and collocation methods. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 65(3):512–516, 1987. 43
- L. Jiang, L. T. Biegler, et V. G. Fox. Simulation and optimization of pressure-swing adsorption systems for air separation. *AIChE Journal*, 49(5):1140–1157, 2003. 78, 79, 80, 81, 114, 116, 117
- H. Kahle. *Chemie Ing. Technik*, 23, 144, 1953. 5
- H. Kahle. *Chemie Ing. Technik*, 26, 75, 1954. 5
- A. Kapoor et R. Yang. Kinetic separation of methane-carbon dioxide mixture by adsorption on molecular sieve carbon. *Chemical Engineering Science*, 44(8):1723–1733, 1989. 35
- J. Karger et D. Ruthven. Diffusion in zeolites and other microporous solids. *Applied Catalysis A: General*, 92:N9–N10, 1992. 24
- S. Knaebel, D. Ko, et L. Biegler. Simulation and optimization of a pressure swing adsorption system: Recovering hydrogen from methane. *Adsorption*, 11(1 SUPPL.):615–620, 2005. 116

- D. Ko et I. Moon. Optimization of start-up operating condition in rpsa. *Separation and Purification Technology*, 21(1-2):17–26, 2000. 116, 117
- D. Ko, R. Siriwardane, et L. T. Biegler. Optimization of a pressure-swing adsorption process using zeolite 13X for CO₂ sequestration. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 42(2):339–348, 2003. 15, 81, 116, 117, 190
- D. Ko, R. Siriwardane, et L. T. Biegler. Optimization of pressure swing adsorption and fractionated vacuum pressure swing adsorption processes for CO₂ capture. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 44(21):8084–8094, 2005. 15, 81, 116, 117, 190
- R. Krishna et J. Wesselingh. The maxwell-stefan approach to mass tranfer. *Chemical Engineering Science*, 52(6):861–911, 1997. 23
- H. Kvamsdal et T. Hertzberg. Optimization of pressure swing adsorption systems-the effect of mass transfer during the blowdown step. *Chem. Eng. Scien.*, 50(7):1203–1212, 1995a. 116
- H. Kvamsdal et T. Hertzberg. Pressure swing adsorption - optimization of a trace separation system. *Computers and Chemical Engineering*, 19:S339–S344, 1995b. 119
- H. Kvamsdal et T. Hertzberg. A preliminary design study of a multicomponent PSA gas separation system. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 35(3):213–224, 1996. 10, 12, 13
- H. Kvamsdal et T. Hertzberg. Optimization of PSA systems-studies on cyclic steady state convergence. *Chem. Eng. Scien.*, 21(8):819–832, 1997. 78, 80, 116, 117
- M. A. Latifi, D. Salhi, et D. Tondeur. Optimisation-based simulation of a pressure swing adsorption process. *Adsorption*, 14(4-5):567–573, 2008. 43, 81, 82, 114, 119
- A. Le Pourhiet. Résolution numérique des équations aux dérivées partielles: une première approche. *CEPADUES, Toulouse*, 1988. 41
- E. Lee. Quasi-linearisation and invariant imbedding. *Academic Press*, 1968. 68
- H. Lee et W. Schiesser. Ordinary and partial differential equation routines in c, c++, fortran, java, maple, and matlab. *CRC Press*, 2004. 40
- D. Leinekugel-Le-Cocq. *Contribution to the Simplified Dynamic Modeling of A Pressure Swing Adsorption Process*, 2004. 19, 22, 24, 25

- B. P. Leonard. A stable and accurate convective modelling procedure based on quadratic upstream interpolation. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 19(1):59–98, 1979. 43
- S. Li et L. R. Petzold. Design of new daspk for sensitivity analysis. *Technical report, University of California, Santa Barbara, CA, USA*, 1999. 72
- Y. Liu, J. Delgado, et J. Ritter. Comparison of finite difference techniques for simulating pressure swing adsorption. *Adsorption*, 4:337–344, 1998. 106
- Y. Liu et J. Ritter. Pressure swing adsorption-solvent vapor recovery: Process dynamics and parametric study. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 35(7):2299–2312, 1996. xi, 10, 34, 35, 105, 106, 154, 156, 164, 172, 179
- J. S. Logsdon et L. T. Biegler. Decomposition strategies for large-scale dynamic optimization problems. *Chemical Engineering Science*, 47(4):851–864, 1992. 73
- E. A. Mason et A. P. Malinauskas. Gas transport in porous media: The dusty gas model. *Chemical Engineering Monographs*, 17, 1983. 24
- S. Matt et F. Gilbert. Hydroisomerisation and hydrocracking. 3. kinetic analysis of rate data for n-decane and n-dodecane. *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev.*, 20:660–668, 1981. 22
- M. J. Matz et K. S. Knaebel. Pressure swing adsorption: Effects of incomplete purge. *AIChE Journal*, 34(9):1486–1492, 1988. 10
- B. A. Murtagh et M. A. Saunders. Large-scale linearly constrained optimization. *Mathematical Programming*, 14(1):41–72, 1978. 187
- B. A. Murtagh et M. A. Saunders. A projected lagrangian algorithm and its implementation for sparse nonlinear constraints. *Mathematical Programming Study*, 16:84–117, 1982. 187
- S. Nilchan et C. C. Pantelides. On the optimisation of periodic adsorption processes. *Adsorption*, 4(2):113–147, 1998. 62, 78, 80, 81, 116
- J. S. I. Oliver et A. Westerberg. Acceleration of cyclic steady state convergence for pressure swing adsorption models. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 31:1569–1573, 1992. 78, 80
- J. Paloschi. The numerical solution of nonlinear equations representing chemical processes. *PhD Thesis, University of London*, 1982. 80
-

- J.-H. Park, H.-T. Beum, J.-N. Kim, et S.-H. Cho. Numerical analysis on the power consumption of the psa process for recovering co₂ from flue gas. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 41(16):4122–4131, 2002. 15
- Perley. U.S. Patent No. 1794377. 1933. 5
- G. Pigorini et M. Douglas Levan. Equilibrium theory for pressure-swing adsorption. 4. optimizations for trace separation and purification in two-component adsorption. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 37(6):2516–2528, 1998. 119
- L. Pontryagin, V. Boltyanskii, R. Gamkrelidze, et E. Mishchenko. The mathematical theory of optimal processes. *Pergamon Press, New York*, 1964. 56
- W. H. Ray et J. Szekely. Process optimization. *Wiley and Sons, New York*, 1973. 67
- A. I. Ruban. Sensitivity coefficients for discontinuous dynamic systems. *Journal of Computer and Systems Sciences International*, 36(4):536–542, 1997. 50
- D. Ruthven. Principles of adsorption and adsorption processes. *John Wiley and Sons Inc.*, 1984. 2, 19, 22, 23
- D. Ruthven, S. Farooq, et K. Knaebel. Pressure swing adsorption. *VCH: New York, NY*, 1994. 11, 18, 20, 21, 22, 23, 24
- D. Salhi, M. Daroux, C. Gentric, J. P. Corriou, F. Pla, et M. A. Latifi. Optimal temperature-time programming in a batch copolymerization reactor. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 43(23), 2004. 62
- W. Schiesser. The numerical method of lines, academic press. *Academic Press*, 1991. 39
- W. Schiesser. Computational mathematics in engineering and applied science: Odes, daes, and pdes. *CRC Press*, 1994. 39
- K. Schittkowski. NLPQL: A Fortran subroutine solving constrained nonlinear programming problems. *Annals of Operations Research*, 5(2):485–500, 1986. 87, 125
- L. H. Shendalman et J. E. Mitchell. A study of heatless adsorption in the model system CO₂ in He, II. *AIChE Symp. Series*, 69(134):25–32, 1972. 31, 33
- C. Skarstrom. US Patent No. 2944627. *Esso Research and Engineering Company*, 1957. 5, 7, 50

- C. Skarstrom. Heatless fractionation of gases over solid adsorbents. *Recent Developments in Separation Science*, 2:95–106, 1972. 6
- D. Smith. Variational methods in optimisation. *Prentice Hall*, 1974. 56
- O. J. Smith IV et A. W. Westerberg. The optimal design of pressure swing adsorption systems. *Chemical Engineering Science*, 46(12):2967–2976, 1991. 79, 119
- O. Talu et A. L. Myers. Rigorous thermodynamic treatment of gas adsorption. *AIChE Journal*, 34(11):1887–1893, 1988. 21
- R. S. Todd, J. He, P. A. Webley, C. Beh, S. Wilson, et M. A. Lloyd. Fast finite-volume method for psa/vsa cycle simulation - experimental validation. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 40(14):3217–3224, 2001. 78, 79
- D. Tondeur, G. Migault, et P. Wankat. Purification de gas par AMP: une analyse de procédés. *Entropie*, (123):39–55, 1985. 6, 9, 10, 11, 13
- S. Vasantharajan et L. T. Biegler. Large-scale decomposition for successive quadratic programming. *Computers and Chemical Engineering*, 12(11):1087–1101, 1988. 189
- W. E. Waldron et S. Sircar. Parametric study of a pressure swing adsorption process. *Adsorption*, 6(2):179–188, 2000. 10, 12
- P. A. Webley et J. He. Fast solution-adaptive finite volume method for PSA/VSA cycle simulation; 1 single step simulation. *Computers and Chemical Engineering*, 23(11-12):1701–1712, 2000. 45
- D. J. Wilde et C. S. Beightler. Foundations of optimization. *Prentice-hall*, 1967. 189
- P. Wolfe. Methods of nonlinear programming. *Recent Advances in Mathematical Programming*, pages 67–86, 1963. 189
- S. Yagi, D. Kunii, et N. Wakao. Radically effective thermal conductivities in packed beds. *Int. Dev. Heat Transfer*, 13:742–750, 1961. 30
- R. T. Yang et S. J. Doong. Gas separation by pressure swing adsoption : A pore-diffusion model for bulk separation. *AIChE Journal*, 31:1829–1842, 1985. 10, 13
- R. Yang. Gas separation by adsorption processes. *Butterworths : Boston*, 1987. 2

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Hassan HAMMOURI, Professeur, LAGEP, CPE, Villeurbanne

Monsieur Grégory FRANÇOIS, Research Associate & Lecturer, Ecole Polytechnique Fédérale
de Lausanne, Suisse

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur AYOUB Shahid

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDOEUVRE CEDEX

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

« Simulation et optimisation de procédés d'adsorption modulée en pression –
Formulation et résolution à l'aide de l'optimisation dynamique hybride »

en vue de l'obtention du titre de :

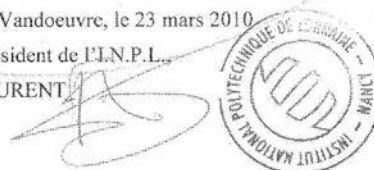
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Génie des Procédés et des Produits »

Fait à Vandoeuvre, le 23 mars 2010

Le Président de l'I.N.P.L.

F. LAURENT



Simulation et optimisation de procédés d'adsorption modulée en pression -

Formulation et résolution à l'aide de l'optimisation dynamique hybride

Résumé: Dans ce travail, une approche d'optimisation dynamique hybride est développée et utilisée pour simuler et optimiser les procédés d'adsorption modulée en pression (PSA). Elle est principalement basée sur la formulation hybride du modèle du procédé et sur l'utilisation de la méthode du système adjoint. Le problème de simulation qui consiste à déterminer le régime stationnaire cyclique (CSS) est formulé comme un problème d'optimisation où le critère de performance est défini par la condition de CSS, les variables de décision sont données par les valeurs initiales des variables d'état, et les contraintes par le modèle hybride du procédé avec les conditions aux limites associées. En optimisation, le vecteur des variables de décision contient, en plus des valeurs initiales de l'état, les paramètres de dimensionnement et de fonctionnement. La condition de CSS devient, dans ce cas, une contrainte à satisfaire par chaque solution optimale. Plusieurs modèles de procédés, allant du plus simple au plus compliqué, sont étudiés. Il s'agit notamment de procédés isothermes et non isothermes avec et sans états gelés. Les critères de performance considérés sont la pureté, la récupération et l'énergie. Les résultats obtenus aussi bien au niveau des performances des procédés considérés que de la robustesse de l'algorithme d'optimisation mis en oeuvre, sont tout à fait intéressants et montrent le grand potentiel de l'approche développée pour le dimensionnement et le fonctionnement optimaux des procédés PSA.

Mots clés: Optimisation dynamique, Système adjoint, Systèmes hybrides, Procédés PSA, Etat stationnaire cyclique (CSS), énergie, pureté, rendement.

Simulation and optimisation of pressure swing adsorption processes - Formulation and resolution with the hybrid dynamic optimisation

Abstract: The objective of the work was to develop a hybrid dynamic optimisation approach for simulation and optimisation of pressure swing adsorption (PSA) processes. It is mainly based on the hybrid formulation of the process model and on the use of adjoint system method. The simulation problem which consists in determining the cyclic steady state (CSS) is formulated as an optimisation problem where the CSS condition is considered as the performance index, initial values of state variables as decision variables and process model along with associated conditions as constraints. In optimisation, the decision vector consists of design and operation parameters in addition to the initials values of state variables whereas the CSS condition is considered in this case as a constraint to be satisfied for each optimal solution. Several process models with a varied degree of complexity have been studied. These models are isothermal and non isothermal with and without frozen states. The performance index considered are purity, recovery and energy. The results obtained are interesting vis-a-vis the performance of the processes considered as well as the robustness of the optimisation algorithm and show the great potential of the approach developed for the optimal design and operation of PSA processes.

Keywords: Dynamic optimisation, Adjoint system, Hybrid systems, PSA processes, CSS determination, Energy, Purity, Recovery.