

## CONTROLE DU CHAUFFAGE MICROONDE DES MATERIAUX GRANULÉS

GEORGES ROUSSY, PHILIPPE CHENOT, PHILIPPE COLIN et JEAN-MARIE THIEBAUT

*Laboratoire de Spectroscopie et des Techniques Microondes, E.R.A. C.N.R.S. No. 22, Interactions Moléculaires, Université de Nancy I, Case Officielle 140, 54037 Nancy Cedex (France)*

(Reçu le 7 avril 1980)

### ABSTRACT

Heat transfer between microwave heated granular material and a surrounding moving gas is both theoretically and experimentally studied. When the microwave field is homogeneous, the temperature of the material can be well estimated from the gas temperature at the output and controlled through its variations.

Chemical reactors heated by an inhomogeneous microwave field are also studied. Two elementary models are considered. The behavior of a long reactor, for which the travelling wave and the fluid flow have the same direction, may not be temperature stable.

### RESUME

L'étude du transfert de chaleur entre un matériau granulé, chauffé par microonde et un fluide le parcourant est développée dans le cas d'une répartition homogène du champ électromagnétique. Il est montré que l'on peut connaître la température du matériau et contrôler l'apport d'énergie en mesurant simplement la température de sortie du fluide.

Le comportement thermique des réacteurs chimiques soumis à une répartition de champ inhomogène est discuté à partir de deux modèles simples. On montre que la température d'une colonne parcourue par une onde progressive de même sens que le fluide qui la refroidit, est susceptible de s'emballer. Plusieurs résultats expérimentaux sont présentés.

### 1. INTRODUCTION

Lorsqu'on soumet un matériau diélectrique à un champ électromagnétique RF ou microonde, il est difficile de connaître la température qu'il prend. Du point de vue théorique le problème est complexe car il faut résoudre un système d'équations aux dérivées partielles du second ordre, couplées, comportant notamment les équations de Maxwell qui définissent la répartition des champs et l'équation de la chaleur (diffusion, transfert ou autre) qui contient le terme d'apport d'énergie par unité de volume  $\epsilon'' f E^2$ . On soulève autant de difficulté si on veut résoudre le problème expérimentalement. Toute mesure du champ électromagnétique à l'intérieur du maté-

riau perturbe celui-ci et malgré le développement récent de sondes thermiques spéciales, les mesures de température, en présence d'un champ électromagnétique restent délicates à mettre en oeuvre [1].

Le cas des réacteurs remplis d'un matériau granulé, parcouru par un fluide qui échange avec lui de l'énergie calorifique peut être traité simplement.

De nombreux réacteurs utilisés dans l'industrie chimique, échangeurs de chaleur, colonnes d'adsorption ou colonnes catalytiques ont des garnissages diélectriques granulés. Si on les soumet à un champ microonde, leur comportement thermique relève des modèles développés dans cet article.

## 2. THEORIE DU REACTEUR AGITE, HOMOGENE

Considérons un réacteur de forme cylindrique (section droite  $S$ , volume  $V$ ) rempli d'un matériau diélectrique granulé (masse volumique  $\rho_m$ , capacité calorifique  $C_{pm}$ , porosité  $e$ , surface par unité de volume  $\sigma$ , permittivité  $\epsilon' - j\epsilon''$ ). Le réacteur est parcouru par un gaz de capacité calorifique  $C_{pg}$  avec un débit massique  $M_g$ . Le champ électrique appliqué est supposé homogène constant et de valeur  $E$ ; le matériau reçoit ainsi la puissance microonde

$$P_a = f\epsilon''E^2(1 - e) V$$

Nous supposons que le réacteur est du type agité continu et adiabatique. Si  $T_{ge}$  est la température d'entrée du gaz,  $T_{gs}$  sa température de sortie et  $T_m$  celle du matériau, supposée homogène à tout instant, les équations de conservation de l'énergie, pour le matériau et le gaz s'écrivent

$$(1 - e) V\rho_m C_{pm} \frac{dT_m}{dt} + h\sigma V(T_m - T_{gs}) = P_a \quad (1)$$

$$M_g C_{pg}(T_{gs} - T_{ge}) = h\sigma V(T_m - T_{gs}) \quad (2)$$

$h$  est le coefficient de convection.

Si à l'instant  $t = 0$  on applique le champ électromagnétique et si la puissance consommée reste constante ( $\epsilon'' = cte$ ), la température de sortie des gaz suit la loi

$$T_{gs} = T_{ge} + \frac{P_a}{M_g C_{pg}} \left( 1 - \exp - \frac{BC}{A(B + C)} t \right) \quad (3)$$

avec

$$A = \rho_m C_{pm}$$

$$B = \frac{h\sigma}{1 - e}$$

$$C = \frac{M_g C_{pg}}{(1 - e) V}$$

La température du gaz tend vers une limite [ $T_{gs}^0 = (P_a/M_g C_{pg}) + T_{ge}$ ] proportionnelle à la puissance microonde consommée (ou appliquée au matériau) et inversement proportionnelle au débit du gaz.

Si après stabilisation on cesse d'appliquer la puissance microonde, le système des éqns. (1) et (2) définit encore l'évolution thermique du réacteur avec  $P_a = 0$ , on obtient

$$T_{gs} = T_{gs}^0 \exp\left(-\frac{BCt}{A(B+C)}\right) + T_{ge} \quad (4)$$

La température décroît exponentiellement, avec le même exposant caractéristique, qu'au cours du chauffage.

Pour les deux expériences précédentes — chauffage et refroidissement — c'est la même relation (2) qui permet de déduire à tout instant la température du matériau de celle des gaz de sortie

$$T_m = T_{gs} + \frac{C}{B} (T_{gs} - T_{ge}) \quad (5)$$

La température du matériau suit linéairement celle des gaz, au cours du chauffage et du refroidissement. Le coefficient  $C/B$  est calculable en explicitant le coefficient de convection, pour un nombre de Reynolds inférieur à 50 par la formule donnée dans la réf. 2 par exemple

$$\frac{Sh}{M_g C_{pg}} = 0,91 \left(\frac{M_g}{S\sigma\mu}\right)^{0,50} \left(\frac{C_{pg}\mu}{k}\right)^{-2/3}$$

### 3. VERIFICATION EXPERIMENTALE ET DISCUSSION DU MODELE THERMIQUE DU REACTEUR AGITE, ADIABATIQUE

Un échantillon de quelques  $\text{cm}^3$  de granulés sphériques d'aluminosilicates (zéolite 13X, 8/12 mesh, Touzart et Matignon) a été placé dans un guide d'onde comme cela a été décrit plusieurs fois [3,4] et le rappelle la Fig. 1. Un tube de silice perce le guide parallèlement à la direction du champ électrique.

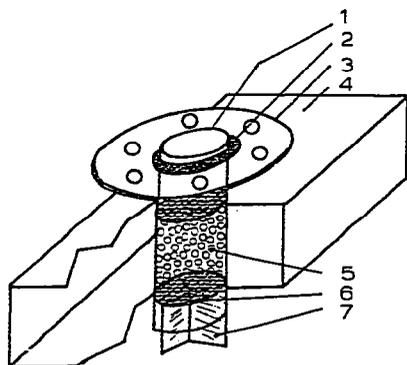


Fig. 1. Vue éclatée de l'applicateur. 1, Tube en silice; 2, Joint torique; 3, Bride de raccord vide; 4, Guide RG; 5, Matériau; 6, 7, Supports mica.

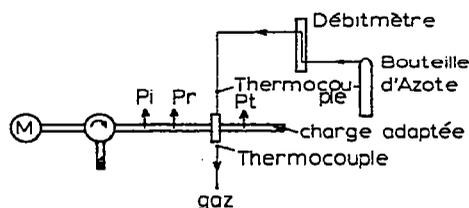


Fig. 2. Montage expérimental.

La hauteur du lit est égale à la dimension du petit côté du guide. Les granulés sont supportés par une grille et des plaques verticales en mica collées à l'araldite. Le montage expérimental est présenté Fig. 2. Le gaz caloporteur est de l'azote. Le thermocouple qui mesure la température de sortie du gaz est suffisamment éloigné du tamis pour ne pas interférer avec le champ microonde mais n'en est pas trop éloigné cependant, pour qu'on puisse négliger les pertes calorifiques du fluide entre la face de sortie du réacteur et la mesure.

L'applicateur définit un champ électromagnétique homogène, de direction constante, dont la valeur peut être déterminée par la puissance de l'onde progressive qui irradie le matériau. On mesure aussi la puissance réfléchie, et la puissance transmise, qui si elles restent constants indiquent que la permittivité du matériau est constante au cours de l'irradiation et ne dépend pas de la température [5,6].

Les courbes expérimentales données Fig. 3 décrivent l'évolution de la température du gaz au cours du chauffage et du refroidissement, pour différentes valeurs de la puissance incidente et du débit d'azote. Le profil de température présente les caractéristiques prévues par la théorie. Ces résultats de la Fig. 4 montrent la proportionnalité entre la puissance incidente et la température limite du gaz, pour un débit de gaz donné et ceux de la Fig. 5 indiquent que la décroissance de la température au cours du refroidissement est exponentielle. Ces résultats permettent d'obtenir les valeurs numériques des paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et de connaître la température du matériau dans chaque cas.

Dans le domaine des températures et des débits considérés, le modèle élémentaire présenté précédemment rend compte très correctement des résultats expérimentaux. Parfois au contraire, le transfert de chaleur par conduction du solide, ou l'échange calorifique entre le gaz et la surface extérieure du réacteur ne peut pas être négligé. Mentionnons aussi que la mesure de la température des gaz doit être effectuée au plus près de la face de sortie du

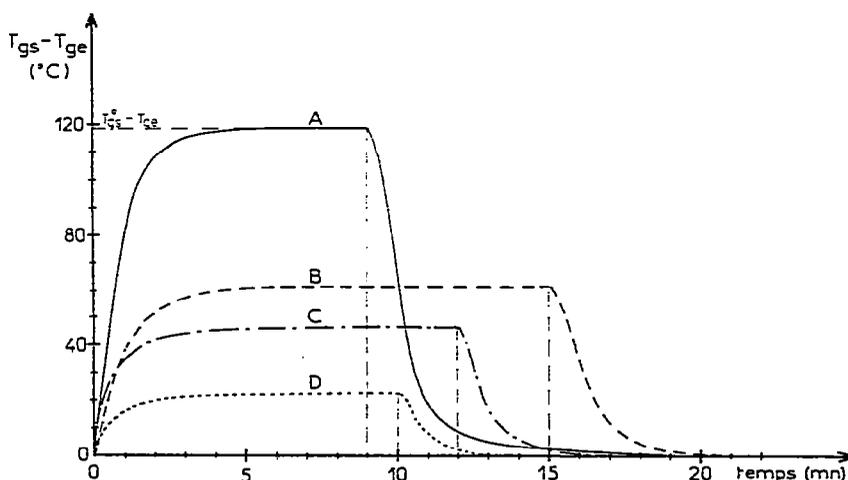


Fig. 3. Température de sortie des gaz au cours d'un chauffage et d'un refroidissement. A:  $P_i = 300$  W,  $M_g = 7$  g min<sup>-1</sup>; B:  $P_i = 165$  W,  $M_g = 7$  g min<sup>-1</sup>; C:  $P_i = 325$  W,  $M_g = 12$  g min<sup>-1</sup>; D:  $P_i = 160$  W,  $M_g = 12$  g min<sup>-1</sup>.

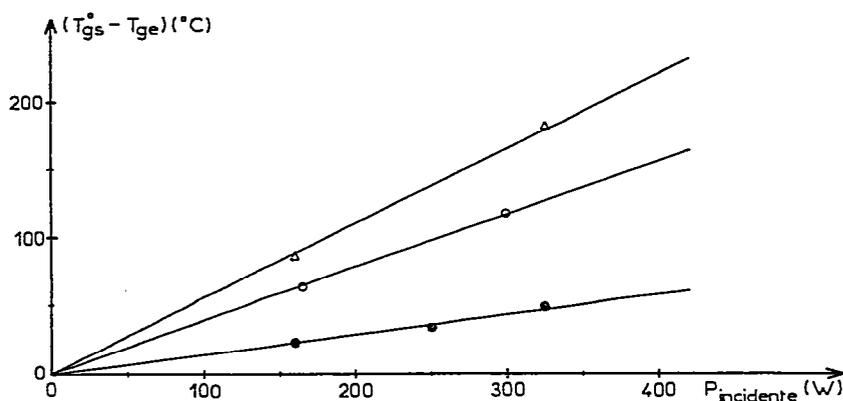


Fig. 4. Température limite de sortie des gaz en fonction de la puissance incidente.  $\Delta$ , 3,3 g  $\text{min}^{-1}$ ;  $\circ$ , 7 g  $\text{min}^{-1}$ ;  $\bullet$ , 12 g  $\text{min}^{-1}$ .

réacteur, si non on doit introduire dans le bilan énergétique les pertes calorifiques du fluide dans la partie correspondante. Le modèle peut être amélioré encore, si besoin est, pour tenir compte des variations de la permittivité avec la température. L'introduction d'une fonction  $P_a(T_m)$  ne modifie pas la structure du système des éqns. (1) et (2). Cette complication impose seulement de résoudre le système numériquement pour expliciter  $T_{gs}$  et  $T_m$ . Inversement, le dispositif expérimental décrit, constitue une excellente méthode de mesure des variations de la permittivité des matériaux en fonction de la température [3]. Il est nécessaire que les matériaux soient réduits en poudre ou puissent se présenter sous forme de granulés. Quand la température des gaz de sortie a atteint la limite  $T_{gs}^0$ , on doit vérifier que  $M_g C_{pg} (T_{gs}^0 - T_e)$  mesure la puissance électrique apportée et vaut  $P_i - P_t - P_r$ . Les pertes s'obtiennent en divisant celle-ci par la puissance incidente. La partie

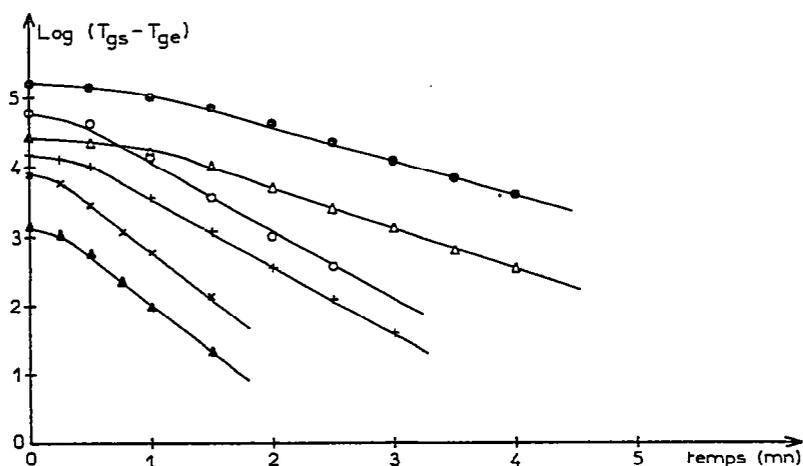


Fig. 5. Variations logarithmique de la température de sortie des gaz au cours du refroidissement (puissance et débits variables).  $\bullet$ :  $P_i = 325 \text{ W}$ ,  $M_g = 3,3 \text{ g min}^{-1}$ ;  $\Delta$ :  $P_i = 160 \text{ W}$ ,  $M_g = 3,3 \text{ g min}^{-1}$ ;  $\circ$ :  $P_i = 300 \text{ W}$ ,  $M_g = 7 \text{ g min}^{-1}$ ;  $+$ :  $P_i = 165 \text{ W}$ ,  $M_g = 7 \text{ g min}^{-1}$ ;  $\times$ :  $P_i = 325 \text{ W}$ ,  $M_g = 12 \text{ g min}^{-1}$ ;  $\blacktriangle$ :  $P_i = 160 \text{ W}$ ,  $M_g = 12 \text{ g min}^{-1}$ .

réelle de la permittivité est déterminée par la mesure du taux d'onde stationnaire [5] ou comme il est discuté dans la réf 3.

#### 4. REACTEUR SOUMIS A UN CHAMP INHOMOGENE

La répartition du champ électromagnétique qui règne dans un matériau est le plus souvent inhomogène, du fait de la proximité des parois métalliques du réacteur, qui imposent que les champs vérifient certaines conditions particulières incompatibles avec l'homogénéité des champs. Par ailleurs le phénomène de propagation des ondes induit très souvent des distributions stationnaires de champ qui impliquent, par nature, que les champs présentent des maximum et des minimum distants d'un quart de longueur d'onde.

Supposons que l'inhomogénéité délimite, en première approximation le volume total du réacteur, en deux volumes  $V_1$  et  $V_2$  séparés, constituant chacun un réacteur homogène adiabatique. Le flux de gaz peut alors parcourir ceux-ci successivement — les réacteurs sont alors montés en série — ou se partager en deux courants dans les proportions  $\alpha_1$  et  $\alpha_2 = 1 - \alpha_1$  pour alimenter chacun des réacteurs. Les réacteurs sont dits montés en parallèle, dans ce deuxième modèle.

##### *Etude de deux réacteurs série (Fig. 6)*

La théorie précédente s'applique strictement au premier réacteur; les équations différentielles se rapportant au second réacteur tiendront compte que sa température d'entrée ( $\theta$ ) varie au cours du temps. On aboutit à la solution

$$\begin{aligned}
 T_{gs} = & T_{ge} + \frac{P_{a1} + P_{a2}}{M_g C_{pg}} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{B_2 C_2 t}{A(B_2 + C_2)}\right) \right] \\
 & + \frac{P_{a1}}{M_g C_{pg}} \left[ \frac{C_2 B_2 (B_1 + C_1) - C_2 B_1 C_1}{B_2 C_2 (B_1 + C_1) - B_1 C_1 (B_2 + C_2)} \right] \\
 & \times \left[ \exp\left(-\frac{B_2 C_2 t}{A(B_2 + C_2)}\right) - \exp\left(-\frac{B_1 C_1 t}{A(B_1 + C_1)}\right) \right] \quad (6)
 \end{aligned}$$

Les indices 1 et 2 caractérisent chacun des réacteurs, selon les mêmes notations qu'au paragraphe 2.

La température de sortie des gaz, au cours du chauffage atteint une limite. La montée n'est plus une exponentielle simple, mais comporte en général deux temps caractéristiques. Le refroidissement suit une loi similaire. Les

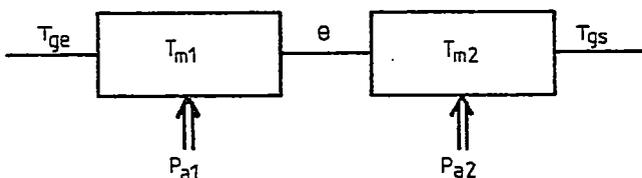


Fig. 6. Modèle d'un réacteur inhomogène a deux réacteurs branchés en série.

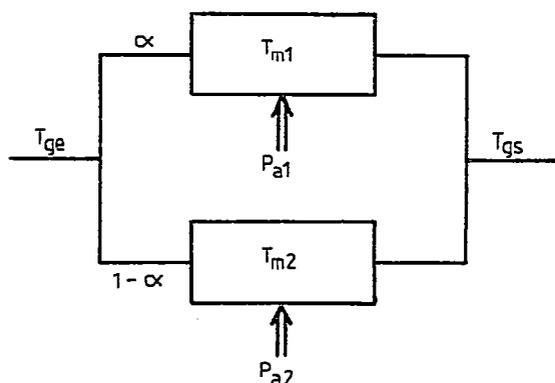


Fig. 7. Modèle d'un reacteur inhomogène a deux réacteurs branchés en parallèle.

temps caractéristiques des exponentielles sont identiques au cours du chauffage et du refroidissement. Les températures du matériau dans les deux réacteurs sont également connues

$$T_{m1} = T_{ge} + \frac{P_{a1}}{M_g C_{pg}} \frac{B_1 + C_1}{B_1} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{B_1 C_1}{A(B_1 + C_1)} t\right) \right] \quad (7)$$

$$T_{m2} = T_{ge} + \frac{B_2 + C_2}{B_2} (T_{gs} - T_{ge}) - \frac{P_{a1}}{M_g C_{pg}} \frac{C_2}{B_2} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{B_1 C_1 t}{A(B_1 + C_1)}\right) \right]$$

*Etude de deux réacteurs parallèles (Fig. 7)*

La température de sortie des gaz, au cours du chauffage suit la loi

$$T_{gs} = T_{ge} + \frac{P_{a1}}{\alpha_1 M_g C_{pg}} \left| 1 - \exp - \frac{B_1 C_1}{A(B_1 + C_1)} t \right| + \frac{P_{a2}}{\alpha_2 M_g C_p} \left| 1 - \exp - \frac{B_2 C_2 t}{A(B_2 + C_2)} \right| \quad (8)$$

La montée en température est la somme de deux exponentielles. La décroissance de la température, au cours du refroidissement s'explicite de la même façon.

Les températures du matériau dans les deux réacteurs sont connues, par application de la formule

$$T_{mi} = T_{ge} + \frac{P_{ai}}{\alpha_i M_g C_{pg}} \frac{B_i + C_i}{B_i} \left[ 1 - \exp - \frac{B_i C_i t}{A(B_i + C_i)} \right] \quad (9)$$

pour les indices  $\alpha = 1$  et 2.

L'étude de ces deux modèles de base montre que si l'on combine plusieurs réacteurs en série ou en parallèle, la loi d'évolution de la température de sortie des gaz peut faire intervenir un certain nombre d'exponentielles, mais reste identique pour les cycles de chauffage et de refroidissement. Il est à noter aussi que dans le cas d'une suite de réacteurs identiques, montés en parallèle ou en série, la loi de variation de la température de sortie des gaz se réduit à une fonction exponentielle unique, bien que les températures du

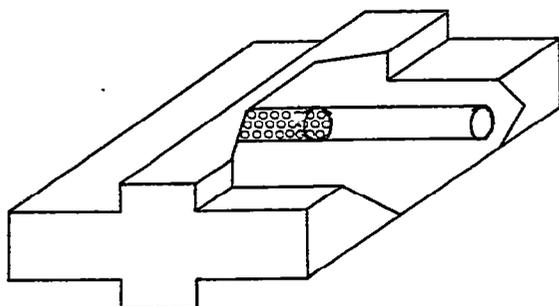


Fig. 8. Vue éclatée de l'applicateur rainure et contenant un échantillon de charbon actif.

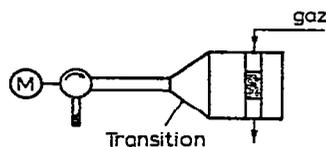


Fig. 9. Montage expérimental de l'applicateur.

matériau, de chacun des réacteurs soient différentes. Elles sont cependant connues dès que la configuration du réacteur est définie.

## 5. ETUDE EXPERIMENTALE D'UN REACTEUR INHOMOGENE

L'occasion d'étudier expérimentalement le comportement thermique d'un réacteur chimique soumis à un champ électromagnétique inhomogène, se présente lorsque le matériau qui le remplit est très absorbant et que les dimensions du réacteur sont grandes devant la profondeur de pénétration du rayonnement électromagnétique auquel il est soumis.

Considérons par exemple du charbon actif occupant un volume de forme cylindrique (section circulaire de  $6 \text{ cm}^2$  et longueur  $12 \text{ cm}$ ) et placé dans un applicateur du genre de celui décrit Fig. 8. En l'absence d'échantillon, on

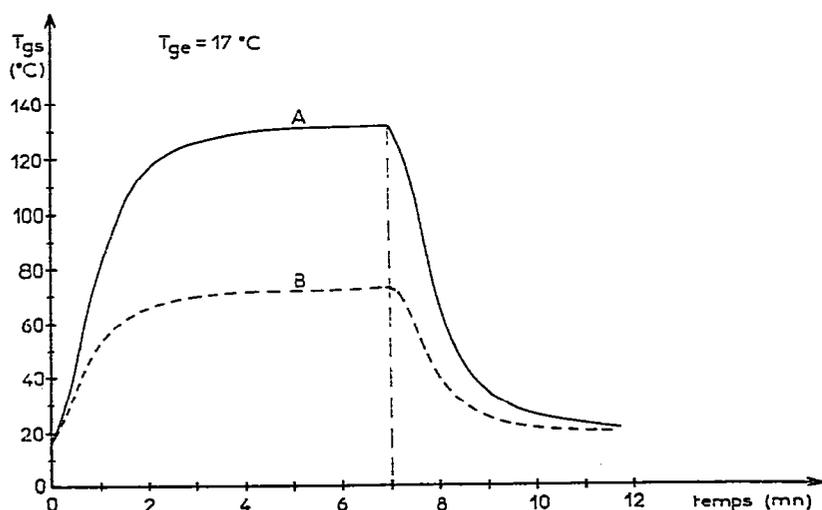


Fig. 10. Température de sortie de gaz au cours d'un chauffage et d'un refroidissement du charbon actif. A:  $P_i = 100 \text{ W}$ ,  $T_{gs}^0 = 133^\circ \text{C}$ ,  $M_g = 20 \text{ l min}^{-1}$ ; B:  $P_i = 50 \text{ W}$ ,  $T_{gs}^0 = 73^\circ \text{C}$ ,  $M_g = 20 \text{ l min}^{-1}$ .

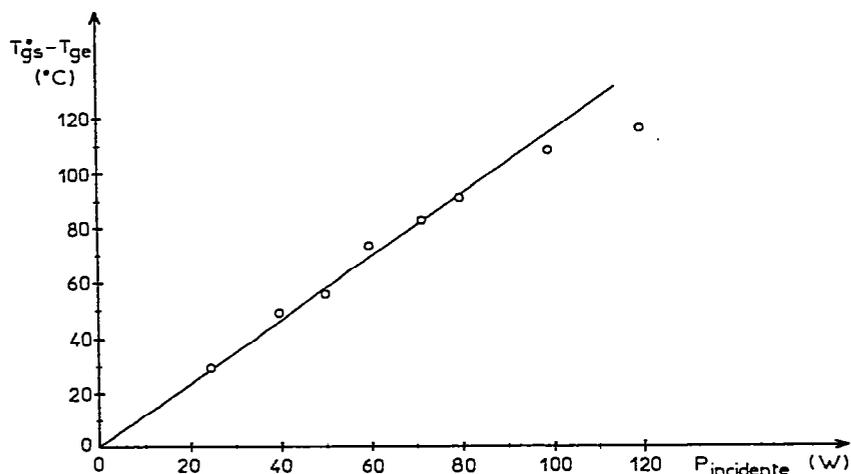


Fig. 11. Température de sortie des gaz en fonction de la puissance incidente pour le réacteur inhomogène.

sait que le champ est homogène [7,8] mais comme la profondeur de pénétration est d'environ 4 mm à 2.450 MHz, il est clair que le coeur de l'échantillon n'est soumis à aucun champ.

Lorsqu'on alimente le réacteur avec le montage microonde de la Fig. 9, l'évolution de la température de sortie des gaz ne traduit apparemment aucune différence avec le cas du réacteur homogène (Fig. 10). La température limite atteinte est proportionnelle à la puissance incidente (et donc à la puissance absorbée) (Fig. 11) et à l'inverse du débit de gaz (Fig. 12).

Les courbes de refroidissement et de chauffage sont identiques; et comme le prévoit encore la théorie les lois ne sont plus des fonctions exponentielles simples (Fig. 13). La forme de la courbe de la température de sortie n'est cependant pas un critère d'homogénéité du réacteur. On commettrait une grosse erreur en déterminant la température du matériau par la formule (5). Il est préférable d'utiliser la formule (9).

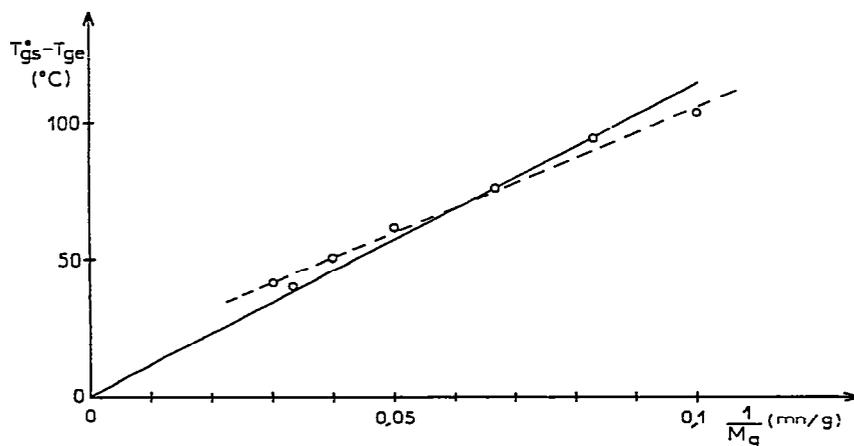


Fig. 12. Température de sortie des gaz en fonction du débit.

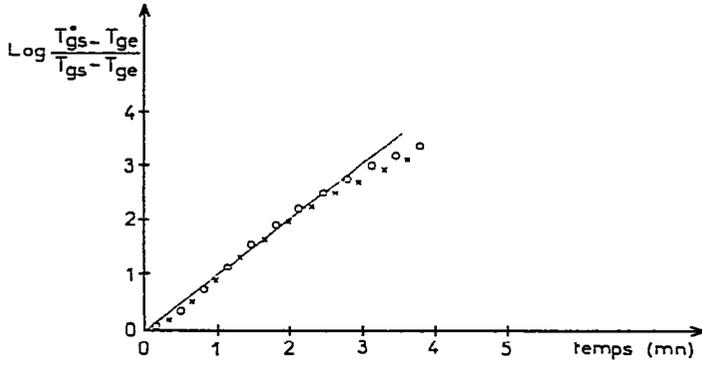


Fig. 13. Variation logarithmique de la température de sortie des gaz pour un réacteur inhomogène. O:  $P_i = 50 \text{ W}$ ,  $T_{gs}^0 = 73^\circ\text{C}$ ; x:  $P_i = 100 \text{ W}$ ,  $T_{gs}^0 = 133^\circ\text{C}$ .

6. REACTEUR INHOMOGENE LONGITUDINAL

Le cas d'un réacteur parcouru par une onde progressive dans le sens de sa longueur peut être également analysé. Il est supposé que le champ microonde appliqué décroît selon la direction du flux de gaz avec le facteur d'atténuation linéique  $\alpha$ . Reprenant les mêmes notations que précédemment, on écrit les deux relations du bilan énergétique pour une tranche d'épaisseur  $dx$  du lit (Fig. 14)

$$(1 - e) \rho_m C_{pm} \frac{dT_m}{dt} + h\sigma(T_m - T_g) = Pe^{-2\alpha x}$$

$$M_g C_{pg} \frac{dT_g}{dx} = h\sigma S(T_m - T_g)$$

D'où l'équation différentielle déterminant la température du matériau

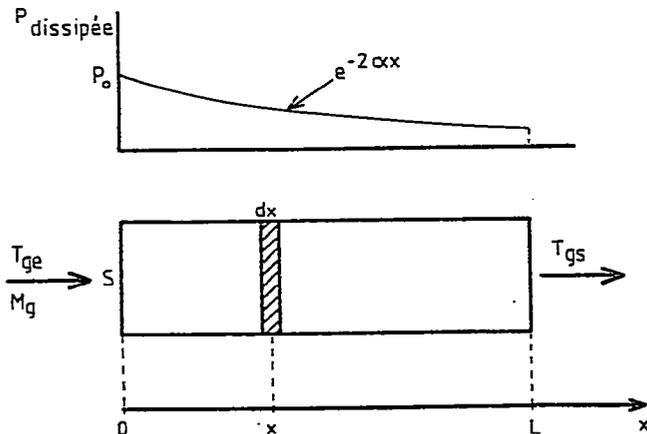


Fig. 14. Réacteur inhomogène longitudinal.

$T_m(x, t)$  au point  $x$  et à l'instant  $t$

$$\frac{\partial^2 T_m}{\partial t \partial x} + a \frac{T_m}{\partial x} + b \frac{T_m}{\partial t} = c e^{-2\alpha x}$$

avec

$$a = \frac{h\sigma}{(1-e)\rho_m C_{pm}}; \quad b = \frac{h\sigma S}{M_g C_{pg}}; \quad c = \frac{P}{\rho_m C_{pm}(1-e)} \left| \frac{h\sigma S}{M_g C_{pg}} - 2\alpha \right|$$

L'équation différentielle homogène admet des solutions générales de la forme

$$f(\lambda) \exp + \frac{t}{\lambda} - \frac{bx}{1 + \lambda a}$$

Une solution particulière est celle du régime stationnaire

$$T_m^0(x, t) = T_{ge} - \frac{c}{2\alpha} \exp(-2\alpha x)$$

Il s'ensuit que la répartition de la température, définie par les conditions initiales  $T_m(x, 0) = T_{ge}$  est

$$T_m(x, t) = T_{ge} - \frac{c}{2\alpha a} (\exp - 2\alpha x) |1 - \exp[2\alpha at / (b - 2\alpha)]|$$

et que la température de sortie des gaz vaut

$$T_{gs} = T_{ge} - \frac{cb}{2\alpha a(b - 2\alpha)} \exp - 2\alpha L |1 - \exp 2\alpha at / b - 2\alpha|$$

La température de sortie des gaz reflète directement encore la répartition de température dans le matériau.

Il faut noter que le régime des températures est stable quels que soient le refroidissement du gaz, la puissance microonde appliquée, et les pertes diélectriques du matériau si le flux de gaz est de direction opposée à la propagation de l'onde électromagnétique ( $\alpha < 0$ ).

Par contre il y a emballement thermique si

$$0 < \alpha < \frac{h\sigma S}{2M_g C_{pg}}$$

c'est-à-dire si l'écoulement du fluide a le même sens que la propagation et si le débit est inférieur à une certaine valeur limite. Ainsi lorsque la conduction de chaleur ne participe pas à l'homogénéisation de la température, il n'est pas nécessaire de supposer que les pertes du matériau croissent avec la température pour prévoir l'emballement thermique d'un réacteur. Ce résultat explique en partie pourquoi il est difficile de contrôler le chauffage microonde des matériaux granulés, dont la conductibilité thermique entre grains est parfois très faible.

## CONCLUSIONS

Il est possible de connaître le comportement thermique des réacteurs chimiques, contenant un matériau poreux soumis à un champ électromagnétique. Si le réacteur est traversé par un fluide échangeant de la chaleur avec le matériau, la température de sortie du fluide reflète la température du lit. Il est simple de tenir compte de l'inhomogénéité de la repartition de champ électromagnétique et du comportement du matériau lorsque celui-ci est fonction de la température.

## REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient la Compagnie Française de Raffinage pour le soutien qu'elle a accordé à cette étude et tout particulièrement Messieurs Szabo, E. Weisang et J. Grosmanin, pour leur précieuse collaboration.

## BIBLIOGRAPHIE

- 1 A. Deficis et A. Priou, J.E.T. Toulouse, Nouvelles Applications de l'Electricité, mars 1977.
- 2 R.B. Bird, W.E. Steward et E.N. Lightfoot, Transport Phenomena, John Wiley & Sons, 1960, p. 411.
- 3 H.D. Gorakhpurrwalla, R.J. Mc. Ginty et C.A. Watson, J. Agric. Eng. Res., 20 (1975) 319.
- 4 Le Bot, Thèse, Université Rennes, 1954.
- 5 E.D. Nielsen, IEEE Trans. Microwave Theory Tech., 17 (3) (1969) 148.
- 6 M. Marcuwitz, Waveguide Handbook, McGraw-Hill, New York, 1951, pp. 266—267.
- 7 B. Anvar, G. Roussy, J.M. Thiebaut et A.J. Berteaud, Nouvel Appicateur Microonde résonant, PV.77.13093 (1977).
- 8 J.M. Thiebaut, A.J. Berteaud et G. Roussy, J. Microwave Power, 14(3) (1979) 217.