



**HAL**  
open science

# Optimisation et modélisation de dispositifs de traitement d'effluents gazeux acides par voie semi-sèche

Nizar Kholi

## ► To cite this version:

Nizar Kholi. Optimisation et modélisation de dispositifs de traitement d'effluents gazeux acides par voie semi-sèche. Sciences de l'ingénieur [physics]. Institut National Polytechnique de Lorraine, 1992. Français. NNT : 1992INPL065N . tel-01776258

**HAL Id: tel-01776258**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01776258>**

Submitted on 24 Apr 2018

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



## 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](mailto: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.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

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

92 INPL 065N

Institut National Polytechnique  
de Lorraine

Laboratoire du Génie des Procédés  
Université de Nancy I

## **THESE**

présentée en vue de l'obtention du grade de  
DOCTEUR DE L'INPL EN GENIE DES PROCÉDES

par

**Nizar KHOLI**

Ingénieur en Génie Chimique  
Université de AL BAAS  
Syrie



# **OPTIMISATION ET MODELISATION DE DISPOSITIFS DE TRAITEMENT D'EFFLUENTS GAZEUX ACIDES PAR VOIE SEMI-SECHE**

Soutenue publiquement le 16 juillet 1992 devant la commission d'examen

### **JURY**

**Président :** M. André ZOULALIAN  
**Rapporteurs :** MM. Gérard ANTONINI  
Alain NAVARRO  
Alain STORCK  
**Examineurs :** MM. Gérard BESSON  
Pierre J. DYENS



D 136 008196 2

92 INPL 065N



*A mes parents*  
*A mes frères et soeurs*  
*A mes amis*



*A ma femme*  
*A mes enfants*

## AVANT-PROPOS

*Le présent travail a été effectué au sein du Laboratoire du Génie des Procédés hébergé par l'Université de Nancy I sous la direction de Monsieur le Professeur Zoulalian.*

*J'exprime ma sincère gratitude à Monsieur André Zoulalian qui a bien voulu m'accueillir dans son équipe et qui a dirigé ce travail avec grand soin. Sa rigueur scientifique, son esprit critique, sa connaissance et son enthousiasme m'ont aidé à acquérir une riche formation de chercheur. De même, je le remercie d'avoir consacré un temps important à la lecture et la correction de ce mémoire malgré ses multiples occupations. Je le remercie également pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant la présidence de mon jury de thèse.*

*Je remercie vivement Monsieur Gérard Antonini, Professeur à l'Université de Technologie de Compiègne, d'avoir bien voulu accepter d'être rapporteur de ce travail et de se déplacer spécialement pour faire partie du jury.*

*Je tiens à remercier Monsieur Alain Navarro, Professeur à l'INSA de Lyon d'avoir accepté d'être rapporteur de cette étude et de se déplacer spécialement pour faire partie du jury.*

*Je suis reconnaissant à Monsieur Alain Storck, Professeur à l'Ecole Nationale Supérieure des Industries Chimiques de Nancy qui a bien voulu accepter d'être rapporteur de ce travail et de participer à mon jury de thèse.*

*Mes remerciements vont également à Monsieur Gérard Besson, ancien responsable de la société SAPS Anticorrosion pour son aimable participation à mon jury de thèse.*

*Je remercie Monsieur Pierre J. Dyens, P-dg de la société Socrématic d'avoir accepté d'être membre du jury de ma thèse.*

*Je remercie également les techniciens Messieurs Hubert François, Jean-Michel Esmez et Christian Receveur qui m'ont aidé à chaque fois que cela fut nécessaire.*

*Je tiens à remercier Monsieur Didier Ronze pour sa élégante participation à la correction de ce mémoire.*

*Que l'ensemble du personnel (enseignants, chercheurs, ingénieurs, techniciens, administratifs et agents de service) de notre Laboratoire et du Laboratoire de Photochimie Appliquée, trouvent ici l'expression de ma profonde sympathie.*

*Que ceux et celles qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail reçoivent mes sincères remerciements.*

## PLAN GENERAL

	Page
<b>RESUME</b>	1
<b>INTRODUCTION GENERALE</b>	7
<b>CHAPITRE I</b>	12
<i>ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE</i>	
<b>CHAPITRE II</b>	46
<i>MONTAGES EXPERIMENTAUX</i>	
<b>CHAPITRE III</b>	56
<i>RESULTATS EXPERIMENTAUX</i>	
<b>CHAPITRE IV</b>	95
<i>INTERPRETATION DES RESULTATS</i>	
<b>CHAPITRE V</b>	135
<i>CARACTERISTIQUES DES PRODUITS SOLIDES</i>	
<b>CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES</b>	145
<b>NOTATIONS</b>	149
<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</b>	154
<b>ANNEXES</b>	164

## **RESUME**

Les effluents gazeux résultant de la combustion des combustibles fossiles (charbon, fuel) et des déchets (ordures ménagères, plastiques, etc..) constituent une source importante de pollution par les constituants qu'ils contiennent (poussières, métaux volatils, SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, HCl, HF, etc..). Ils provoquent des nuisances notables se traduisant par la dégradation de la couche d'ozone, la contamination des sols, des nappes phréatiques, etc... Leur traitement est une nécessité dans la mesure où la combustion constitue encore la première source de production de l'énergie thermique.

Parmi les polluants acides, les acides sulfureux et sulfurique sont à l'origine d'environ 60 à 70% de l'acidité des pluies d'où l'importance de l'élimination des oxydes de soufre. Les principaux procédés de désulfuration des combustibles peuvent être classés en trois techniques différentes : avant, pendant ou après la combustion des combustibles.

Le traitement des combustibles solides et liquides avant la combustion offre une réponse majeure mais l'efficacité d'élimination du soufre n'excède guère 50 % du soufre total contenu dans les combustibles. La réduction de la pollution due aux dioxydes de soufre à plus de 98 % ne peut être obtenue avant la combustion qu'en utilisant un combustible moins polluant tel que le gaz naturel.

Parmi les différentes techniques de désulfuration des combustibles pendant la combustion, le lit fluidisé avec recirculation des solides semble plus efficace (> 90 %) que la technique d'injection du réactif alcalin dans la zone de combustion (50 %). Le stockage des déchets composés à majorité de cendres et de sulfates reste toutefois un réel problème à résoudre.

Le traitement des effluents gazeux après la combustion est effectuée selon trois modes : humide, sèche et semi sèche. La désulfuration des gaz par voie humide est une technique relativement performante (90 %) mais elle reste coûteuse et entraîne l'apparition d'un rejet liquide difficile à stocker et à éliminer. Le traitement par voie sèche, moins efficace que par voie humide nécessite des appareils à temps de contact plus élevés fonctionnant à des températures supérieures à 300°C ; il conduit toutefois à un rejet solide plus facilement stockable.

Quant au procédé semi-sec, plus économique en investissement que la voie humide, il consomme moins d'énergie et reste aussi efficace que les procédés humides. Cette voie intermédiaire entre les procédés humide et sec permet l'obtention de taux d'absorption supérieurs à 85 % tout en conduisant à un résidu sec. En ce domaine, la recherche est fort active à l'échelon mondial, ce qui devrait conduire à rendre ces procédés plus fiables et plus économiques, d'où l'intérêt de notre recherche axée sur l'optimisation d'un absorbeur de dioxyde de soufre par voie semi-sèche. L'étude porte sur trois dispositifs à base d'un venturi et sur l'influence de certains paramètres opératoires et géométriques afin de trouver les conditions optimales permettant de maximiser l'efficacité de l'absorbeur. La particularité de notre dispositif est donc liée à la présence d'un contacteur gaz-liquide du type venturi haute énergie.

Les absorbeurs sont formés par l'association en série d'un venturi haute énergie, d'une colonne vide et d'un cyclone. Cette association du venturi et du cyclone dont le but est de séparer les

phases solide et liquide de la phase gazeuse, constitue le dispositif A, de volume 14,14 l. Afin d'accroître le temps de contact gaz-liquide-solide, une colonne cylindrique vide est placée en aval du venturi formant ainsi le dispositif B (93,22 l) ou C (82,20 l). Dans B, le venturi horizontal débouche à la base de la colonne disposée verticalement et l'écoulement des phases est à co-courant ascendant. Dans le dispositif C, le venturi et la colonne sont verticaux et l'écoulement des deux phases est à co-courant descendant. Rappelons que les dispositifs A et B sont identiques à ceux étudiés par BENACHOUR (1990).

Le dispositif C muni du venturi  $V_1$  ou  $V_2$  (le diamètre du col du venturi  $V_2$  est égal à 1,17 fois celui du venturi  $V_1$ ) sera plus particulièrement développé dans notre travail, dans la mesure où comme nous le verrons ci-après, il permet d'obtenir pour des conditions opératoires identiques des capacités d'évaporation et d'absorption de  $SO_2$  très supérieures à celles atteintes dans les deux autres dispositifs.

Les trois montages expérimentaux comportent un ventilateur et un réchauffeur permettant d'assurer une alimentation en air chaud de 200 °C avec un débit variant entre 85 et 120 Nm<sup>3</sup>/h. Le  $SO_2$  est fourni par une bouteille et mélangé à l'air pour obtenir une teneur voisine de 500 ppm ; cette teneur est contrôlée par un analyseur de  $SO_2$  dont le principe est une absorption sélective de  $SO_2$  dans l'infrarouge. Une pompe péristaltique alimente les dispositifs en eau pure, en solution d'hydroxyde de sodium ou en suspension d'hydroxyde de calcium ou de magnésium. Les phases aqueuses sont introduites en amont du col du venturi soit par une buse ordinaire ( $B_1$ ), soit à l'aide d'une buse de pulvérisation ( $B_2$ ). Le diamètre de sortie de la buse ordinaire est de 1 mm alors que celui de la buse de pulvérisation est de 0,25 mm.

Des prises de température, d'humidité et de teneur en  $SO_2$  sont placées à l'entrée et à la sortie des dispositifs A, B et C. De plus, la colonne du dispositif C est constituée de trois éléments démontables de volume 24,5 l. Des prises supplémentaires (de température, d'humidité et de teneur en  $SO_2$ ) sont installées à la sortie du venturi (soit après un volume de 0,5 l), à la sortie du premier élément (soit après un volume de 25 l) et à la sortie du second élément (soit après un volume de 49,5 l). Les températures sont mesurées à l'aide de thermocouples et les humidités relatives sont obtenues à l'aide d'un hygromètre.

Lors de l'absorption réactionnelle de  $SO_2$  par un réactif solide alcalin, l'expérience montre que l'augmentation de l'humidité du gaz permet d'améliorer considérablement le taux d'absorption de  $SO_2$ . Dans les procédés d'absorption semi-secs, on humidifie le gaz tout en obtenant un résidu solide pratiquement sec. C'est pourquoi, dans une première étape, nous nous intéressons aux capacités d'évaporation des dispositifs expérimentaux et au rôle de certains paramètres opératoires et géométriques. Ces études sont effectuées en alimentant les dispositifs par de l'eau pure.

Alors que le débit maximal d'eau évaporée en fonctionnement adiabatique est voisin de 7,5 kg/h avec le dispositif C, le taux d'évaporation est voisin de 1 pour des débits d'eau pure compris

entre 2 et 7 kg/h. Ceci confirme la grande efficacité du dispositif sur le plan évaporation. Avec la buse ordinaire  $B_1$ , la pulvérisation du liquide bien qu'amorcée au niveau de la buse se fait essentiellement au col du venturi. Elle dépend donc de la vitesse du gaz dans cette zone. En remplaçant le venturi  $V_1$  par le venturi  $V_2$ , on ne modifie que faiblement les capacités d'évaporation du dispositif. En réalité, cette pseudo-indépendance est due à deux effets antagonistes : la vitesse du gaz au col du venturi et l'enthalpie d'alimentation gazeuse.

Diverses expériences ont été réalisées avec le dispositif C muni du venturi  $V_1$  ou  $V_2$  afin de montrer que l'alimentation du liquide dans le venturi peut se faire par une buse ordinaire à condition que le jet liquide issu de la buse soit dirigé sur l'axe de symétrie du venturi.

Dans le dispositif C, les taux d'évaporation obtenus aux différents points de mesure du dispositif montrent qu'une bonne partie de l'évaporation a lieu au niveau du venturi mais l'adjonction du premier élément de la colonne est indispensable pour obtenir des taux d'évaporation voisins de un. De plus, au delà du premier élément, on constate que le taux d'évaporation n'augmente pratiquement plus pour un débit de gaz de l'ordre de  $100 \text{ Nm}^3/\text{h}$  alimenté à  $200 \text{ }^\circ\text{C}$  et un débit de liquide inférieur à  $8 \text{ kg/h}$ .

Suite aux études d'évaporation, nous déterminons les capacités d'absorption des trois dispositifs. Pour les débits volumiques de solution basique compris entre 2 et  $10 \text{ l/h}$ , les taux d'absorption obtenus dans les trois dispositifs sont donnés en fonction du débit volumique de NaOH et de  $\text{Ca(OH)}_2$ . D'une manière générale, les taux d'absorption augmentent lorsqu'on passe du dispositif A au dispositif C. Notons cependant que pour des conditions opératoires identiques, les différences sont plus prononcées dans le cas de la solution d'hydroxyde de sodium. En effet, dans le cas de cette dernière, les capacités d'absorption sont étroitement liées à celles d'évaporation contrairement à celles trouvées avec une suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$ . Avec la suspension basique, les taux de rétention de solide sont voisins et l'influence du taux d'évaporation du liquide sur le taux d'absorption est faible car l'eau peut jouer un rôle positif aussi bien à l'état liquide qu'à l'état vapeur.

Pour des conditions opératoires similaires, les capacités d'absorption du dispositif C en présence d'une solution de NaOH sont nettement supérieures à celles obtenues dans le cas de la suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$  et de  $\text{Mg(OH)}_2$ . Cette différence est sûrement due à la différence de nature des trois réactifs basiques mais également à la différence des dimensions moyennes des gouttes de NaOH par rapport à celles des particules de  $\text{Ca(OH)}_2$  et de  $\text{Mg(OH)}_2$ . En effet, lorsque le diamètre moyen du réactif solide  $\text{Ca(OH)}_2$  passe de  $143 \text{ }\mu\text{m}$  à  $17 \text{ }\mu\text{m}$ , on observe une augmentation notable du taux d'absorption de  $\text{SO}_2$ .

Nous montrons également l'effet de la géométrie du venturi, du débit d'enthalpie, de la vitesse du gaz au col du venturi, du centrage de l'alimentation basique et du volume géométrique de la colonne associée au venturi sur les capacités d'absorption de  $\text{SO}_2$ . Les résultats obtenus peuvent se résumer ainsi :

Le venturi  $V_1$  conduit à des valeurs légèrement supérieures et on peut penser que l'effet de la vitesse est quelque peu supérieur à celui du débit d'enthalpie, surtout dans le cas de la solution de NaOH. Un léger décentrage de l'alimentation de la phase liquide pénalise le dispositif, aussi bien du point de vue évaporation qu'absorption. Une bonne partie de l'absorption est réalisée au niveau du venturi mais l'adjonction d'un élément de la colonne est indispensable pour atteindre les valeurs maximales obtenues avec les conditions opératoires choisies.

Nous avons également cherché à préciser l'effet de l'excès de réactif basique R dans le cas des deux réactifs basiques étudiés, NaOH et  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ . Les expériences sont réalisées sur le dispositif C muni des venturi  $V_1$  et  $V_2$  et sur le dispositif B muni du venturi  $V_1$ . Pour les deux dispositifs, l'influence de l'excès R est similaire, le taux d'absorption augmente avec R. Cet accroissement peut être attribué à l'augmentation du produit du coefficient de transfert de matière (gaz-liquide ou gaz-solide) par la surface de transfert des gouttes de la solution de NaOH et des particules de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ .

Enfin, une comparaison des performances du dispositif C réalisées avec une suspension de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  à celles obtenues dans divers dispositifs décrits dans la littérature montre que le dispositif C de volume 25 l est plus performant que les dispositifs d'absorption par voie semi-sèche décrits par les auteurs.

Pour rendre compte des résultats expérimentaux des taux d'évaporation et d'absorption réactionnelle de  $\text{SO}_2$ , nous avons développé trois modèles simplifiés où les écoulements des différentes phases sont supposés parfaitement agités. De plus, au niveau de ces trois modèles, la résistance de transfert limitant les performances est la résistance diffusionnelle gaz-gouttes de liquide ou gaz-particules de solide.

Le modèle choisi permet de représenter correctement les taux d'évaporation d'eau pure et l'influence des paramètres opératoires. En particulier, il permet de préciser un ordre de grandeur du diamètre initial des gouttes de liquide et par suite, une valeur moyenne du coefficient de transfert thermique gaz-liquide caractéristique du phénomène d'évaporation.

Les modèles préconisés pour représenter les capacités d'absorption des dispositifs par la solution d'hydroxyde de sodium et la suspension d'hydroxyde de calcium traduisent correctement les résultats expérimentaux et ce d'autant mieux que toute la phase liquide se trouve dispersée sous forme de gouttes. En particulier, pour les dispositifs A et B, une partie du liquide peut apparaître sous forme de film liquide et dans ces conditions, on observe un accord moins satisfaisant entre les valeurs expérimentales et les valeurs déduites des modèles.

Les modèles permettent de rendre compte qualitativement de l'effet des paramètres opératoires étudiés mais pour les deux types d'absorption du  $\text{SO}_2$  (par une solution ou une suspension basique) ils permettent de rendre compte de l'influence de l'excès du réactif basique.

Ainsi, malgré leur simplicité, ces modèles permettent de rendre compte de l'interaction entre les capacités d'évaporation et d'absorption des dispositifs et du rôle du diamètre des particules par rapport à celui des gouttes de liquide dans le cas de l'absorption par une suspension réactionnelle.

L'objectif initial de la recherche était l'optimisation d'un dispositif d'absorption par voie semi-sèche à base d'un venturi haute énergie afin d'envisager son application industrielle. Pour aborder cet aspect, il nous fallait préciser certaines caractéristiques techniques du produit solide résiduel. L'absorption de  $\text{SO}_2$  par l'hydroxyde de sodium et de calcium conduit essentiellement à du sulfite pas ou peu hydraté. La proportion de sulfate est de l'ordre de 20 %. Avec la solution d'hydroxyde de sodium, la dimension moyenne des particules de solide formées dans l'absorbeur est de l'ordre de 13  $\mu\text{m}$ . De plus, les sels formés se déposent au voisinage du col et dans le divergent du venturi et conduisent, soit à une diminution du débit de gaz d'alimentation, soit à une augmentation de la puissance mécanique dégradée. L'importance du dépôt dépend de sa nature chimique mais aussi du matériau constituant le venturi.

En définitive, l'application industrielle du dispositif étudié ne pourra être envisagée qu'à la suite d'une étude complémentaire réalisée avec un appareil de plus grande taille (débit de gaz à traiter de l'ordre de 5000  $\text{Nm}^3/\text{h}$ ) et avec un effluent gazeux réel associant plusieurs polluants acides et des poussières.

## **INTRODUCTION GENERALE**

Il aura fallu près de deux siècles pour que les consciences des pays industrialisés accordent une importance croissante aux notions de protection de l'environnement. Tout se passe en effet comme si l'homme moderne découvrait la fragilité des grands équilibres de notre planète en voulant intervenir pour limiter la dégradation progressive de son cadre de vie. Parmi les nombreux accusés, les énergies fossiles traditionnelles (charbon, gaz, pétrole) et le nucléaire occupent le premier rang. Dans le même temps, paradoxe incontournable, l'homme du 20<sup>ème</sup> siècle n'est pas près de céder une once de son confort acquis. Dans cette équation subtile, alors que les scientifiques savent que les connaissances restent limitées et les modèles imprécis dès que les problèmes sont élevés au niveau planétaire, les médias enflamment les esprits, relancent des thèses alarmistes et souvent fantaisistes.

Une chose est sûre, le déploiement de nos industries sans prise en compte des aspects environnementaux menace notre air, notre eau, nos sols. Face à cette certitude, la conscience industrielle et scientifique internationale entame un mouvement de réaction stimulé par la sensibilité des opinions publiques. Parallèlement au développement des connaissances sur les mécanismes de pollution, les défenses s'organisent à coup d'innovations techniques et de nouvelles législations. Préserver les bienfaits et limiter les méfaits, sont les orientations dans lesquelles doivent s'engager les puissances industrielles.

Dans cette recherche vers un monde plus propre, l'incidence économique et politique est déterminante. Tout revient à savoir quel prix nous sommes prêts à payer pour réduire nos pollutions sans attenter à nos besoins vitaux d'énergie ou pour modifier radicalement notre cadre de vie.

Le traitement des effluents gazeux provenant de la combustion des combustibles (charbon-fuel-gaz...) et des déchets (ordures ménagères) devient de plus en plus nécessaire en raison de la présence de nombreux solutés polluants tels que : poussières, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, HF, HCl. En effet, la présence de ces polluants est à l'origine de nombreux dommages causés à l'environnement. On peut citer les principaux :

#### *a. Villes noires de poussières*

Aujourd'hui, heureusement, nous ne vivons plus dans ces cités noircies. Mais d'autres pays, pas si lointains connaissent encore ces situations peu brillantes : pays de l'Est, etc... Il convient de souligner sur le plan des poussières que toutes les énergies ne sont pas logées à la même enseigne. Les problèmes d'émission de poussières ont pu être résolus correctement dans le cas des combustibles solides. En revanche, on ne peut pas en dire autant des combustibles liquides employés dans le transport, le chauffage ou l'industrie.

### ***b. Transports***

L'automobile est le premier moyen de transport visé par les nouvelles réglementations ; la mise en place de pots catalytiques permet de réduire les émissions toxiques (imbrûlés et oxydes d'azote). Mais, que dire de l'aviation et surtout du transport maritime ? Savons nous en effet que les navires en transit en mer du Nord rejettent dans l'atmosphère une quantité de SO<sub>2</sub> et NO<sub>x</sub> comparable à celle de la Belgique et la Hollande réunies!

### ***c. Pluies acides***

Phénomène identifié depuis une trentaine d'années, les pluies acides regroupent l'ensemble des retombées au sol des différents composés acides présents dans l'atmosphère. Les principaux responsables de l'acidification des précipitations sont les oxydes de soufre SO<sub>2</sub> et les oxydes d'azote NO<sub>x</sub>. Dans certaines zones à activité de transport élevée (comme les villes), ou en activité industrielle concentrée, les seuils d'alerte fixés par les pouvoirs publics peuvent être atteints ou dépassés quand les conditions météorologiques deviennent défavorables. Les altérations rencontrées dans les forêts allemandes, vosgiennes, la pollution des lacs canadiens ou scandinaves mettent en évidence le fait que les polluants " voyagent ", très souvent fort loin de leurs lieux d'émission.

Dans certaines parties du globe, la sécheresse grandissante peut accentuer l'effet négatif des pluies acides. Il apparaît clairement aujourd'hui que la seule solution pour lutter contre le phénomène consiste à limiter la production des oxydes de soufre et des oxydes d'azote.

### ***d. Effet de serre***

Il faut d'abord rappeler que c'est grâce à l'effet de serre que la vie existe sur terre : il favorise des conditions climatiques douces. Les principaux gaz à effet de serre sont majoritairement la vapeur d'eau puis le dioxyde de carbone.

L'apport dans l'atmosphère des gaz à effet de serre produits par le développement de l'activité humaine sur terre et toutes les combustions qui s'y rattachent serait-il la cause d'un certain dérèglement climatique, ou d'un réchauffement de certaines régions du globe ? Rien n'est aujourd'hui maîtrisé en ce domaine. De plus, contrairement à la toxicité reconnue du SO<sub>2</sub> et des NO<sub>x</sub>, le CO<sub>2</sub>, totalement nécessaire à la vie n'est pas nuisible en soi. A l'opposé, la preuve de l'attaque de l'ozone par certains gaz, dont les chlorofluorocarbones (CFC) s'est vite soldée par des prises de décisions internationales visant à proscrire avant la fin du siècle l'usage de ces gaz.

Poussières, pluies acides, brouillard, incidences climatiques...à l'heure où les Etats réagissent sous la pression des mouvements écologiques, de la communauté scientifique, le monde

industriel s'engage dans de vastes programmes techniques pour abaisser les seuils de pollution énergétique. Si tout reste à faire, force est de constater qu'en 30 ans, ces pollutions ont diminué de façon spectaculaire dans les pays industrialisés.

Les acides sulfureux et sulfuriques (liés à la présence dans l'atmosphère de  $\text{SO}_2$  et  $\text{SO}_3$ ) sont à l'origine de près de 60 à 70 % de l'acidité des pluies d'où l'importance de l'élimination du dioxyde de soufre.

La recherche qui nous a été confiée s'inscrit dans ce cadre. La présence de dioxyde de soufre dans l'atmosphère est due essentiellement à la combustion des combustibles fossiles (solide, liquide et gazeux) ou à certains traitement métallurgiques.

Dans le chapitre I, nous présentons une revue des différents procédés de désulfuration industrialisés ou en développement en soulignant les spécificités de chacun. En particulier nous rappelons les trois grandes voies de l'élimination de  $\text{SO}_2$  dans les effluents à savoir : voie humide, voie sèche et voie semi-sèche. Notre recherche fait suite à l'étude initialement développée au laboratoire par BENACHOUR (1990), sur des dispositifs de traitement par voie semi-sèche à base d'un venturi haute énergie. Le choix d'un tel dispositif a été fait dans une perspective d'une meilleure dispersion de la solution ou de la suspension réactionnelle, d'une minimisation du volume du contacteur et de l'obtention de capacités d'absorption de  $\text{SO}_2$  importantes tout en conduisant à un résidu sec dont le stockage est plus aisé.

La dispersion de la solution ou de la suspension réactionnelle amorcée au préalable par l'intermédiaire d'une buse située en amont du col du venturi se poursuit au niveau du col et du divergent du venturi. Trois dispositifs expérimentaux ont été étudiés dans ce travail. Le venturi à haute énergie suivi du cyclone constitue le dispositif A de volume total 14,14 l. Afin d'accroître le temps de contact des phases réactionnelles, une colonne vide a été placée entre le venturi et le cyclone. Dans le dispositif B, de volume total 93,22 l, le venturi horizontal débouche à la base de la colonne disposée verticalement. Par contre, dans le dispositif C de volume total 82,20 l, le venturi et la colonne sont verticaux et l'écoulement des deux phases est à co-courant descendant. La description des dispositifs A, B et C utilisés et la présentation du protocole expérimental et des grandeurs mesurées ou déduites font l'objet du chapitre II.

Le chapitre III rapporte les mesures expérimentales relatives aux capacités d'évaporation d'eau pure et d'absorption réactionnelle de  $\text{SO}_2$  pour les trois dispositifs. Ces mesures nous permettent en particulier de préciser l'influence des paramètres opératoires étudiés et le dispositif de traitement optimal.

L'interprétation des capacités d'évaporation d'eau pure des dispositifs est effectuée à l'aide d'un modèle simplifié supposant que les écoulements des phases gazeuse et liquide dans le contacteur sont parfaitement agités. Ce modèle permet, en supposant que la résistance de l'absorption est limitée à la résistance diffusionnelle gaz-liquide-solide de rendre compte des taux d'absorption du dioxyde de soufre en présence d'une solution d'hydroxyde de sodium. Dans le cas de la suspension d'hydroxyde de calcium, il est également nécessaire d'admettre que l'écoulement de la phase solide est parfaitement agité et que les résistances globales de transfert se limitent à la résistance diffusionnelle gaz-solide. L'intérêt de ces modèles d'interprétation est de permettre de rendre compte qualitativement et quelquefois quantitativement de l'influence de certains paramètres opératoires comme l'excès de base par rapport au soluté acide et la dimension moyenne des particules de solide dans le cas de l'utilisation de l'hydroxyde de calcium. Ces diverses interprétations constituent le chapitre IV.

Le dispositif de traitement optimisé devant pouvoir être industrialisé, nous avons dans le chapitre V abordé certains aspects technologiques du solide résiduel tels que sa nature chimique et sa dimension moyenne et nous avons cherché à préciser le pouvoir incrustant du produit réactionnel conditionnant la période d'utilisation du dispositif avant son nettoyage.

Enfin, une conclusion générale rappelle les points essentiels de notre étude et présente les perspectives de développement industriels du dispositif de traitement C dans ses conditions optimales de fonctionnement.

## Chapitre I

### ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

I.1. INTRODUCTION .....	14
I.2. SOURCES DE DIOXYDE DE SOUFRE SO <sub>2</sub> .....	16
I.3. TECHNIQUES DE DESULFURATION DES COMBUSTIBLES.....	16
I.3.1. Désulfuration des combustibles avant la combustion .....	17
I.3.1.1. Combustibles solides	
I.3.1.2. Combustibles liquides .....	18
I.3.1.3. Combustibles gazeux .....	20
I.3.2. Désulfuration pendant la combustion .....	21
I.3.2.1. Injection du réactif alcalin dans un foyer classique de combustion (Furnace sorbent injection) .....	21
I.3.2.2. Les foyers à lit fluidisé.....	23
I.3.2.2.1 . Principe	
I.3.2.2.2 . Les différents types de lits fluidisés	
- lit dense sans recyclage	
- lit dense à recyclage contrôlé	
- lit circulant	
I.3.3. Désulfuration des gaz de combustion (FGD Process) .....	26
I.3.3.1. Les filtres de dépoussiérage.....	28
I.3.3.1.1. Electrofiltres ou filtres électrostatiques	
I.3.3.1.2. Filtres à manches	

I.3.3.2. Procédés de désulfuration des fumées par voie humide .....	30
(wet FGD systems)	
I.3.3.2.1. Procédés humides employant d'autres absorbants que Ca(OH) <sub>2</sub> ou CaCO <sub>3</sub>	
I.3.3.2.2. Procédés donnant des résidus valorisables (autre que le gypse)	
- procédé Walther	
- procédés Evergreen et Mitsui (Japon)	
- procédés Air-Industrie	
I.3.3.2.3. procédés régénératifs	
- procédé Welman Lord	
- procédés "Institut du Pétrole" Stackpol S et Stackpol SO <sub>2</sub>	
- procédé à la magnésie	
- procédé au citrate	
I.3.3.3. Procédés de désulfuration des fumées par voie sèche .....	35
(Dry FGD process)	
I.3.3.3.1. Quelques procédés secs	
- procédé Dry Gas	
- procédé Dry Gas	
- procédé Pechiney AI	
- procédé LUHR	
- procédé à lit fluidisé circulant	
I.3.3.4. Procédés de désulfuration des fumées par voie semi-sèche .....	37
(Wet dry FGD Systems)	
I.3.3.4.1. Quelques procédés semi-secs	
- procédé "Teller"	
- procédé DBA	
- procédé Dry Pac	
- procédé par atomisation	
I.3.3.5. Autres procédés de désulfuration des fumées.....	41
I.3.3.5.1. procédés par absorption physique sur charbon actif	
I.3.3.5.2. procédé par faisceaux d'électrons	
I.4. CONCLUSION .....	42
I.5. OBJECTIF DE NOTRE ETUDE	

## I.1. INTRODUCTION

Durant les cinq ou six dernières décennies, les phénomènes de pollution de l'air ont largement évolué. Ceux-ci se manifestaient initialement dans le cadre des complexes urbano-industriels, éventuellement de façon brutale, par exemple par des pointes de pollution liées à de fortes émissions industrielles sans ou avec très peu d'épuration et à des conditions météorologiques défavorables (Mc LLVAINE et coll., 1984).

Le traitement des effluents gazeux industriels suppose la connaissance des différents polluants atmosphériques. On peut citer : les gaz sulfureux, le monoxyde de carbone et des oxydes d'azote, les composés organiques à base de chlore ou de fluor, ainsi que les poussières. En effet, les émissions de l'ensemble des pays développés ont eu peu à peu une incidence sur les valeurs de fond dans l'atmosphère pour différents gaz avec toutes les répercussions que l'on connaît et qu'il convient d'étudier très sérieusement.

En Europe, la CEE a donné toute une série de directives des émissions. Le tableau (I-1) montre les valeurs limites d'émissions de poussières, de dioxyde de soufre et d'oxydes d'azote signalés dans le nouveau projet de directives européennes (CITEPA, 1985).

Les gaz sulfureux  $SO_x$  provoquent des effets très nocifs dans notre vie. Plus particulièrement, le dioxyde de soufre,  $SO_2$ , est un des polluants impliqués dans le phénomène des pluies acides. Il est donc très important de contrôler ce polluant en le convertissant en un produit moins nocif ou plus utile (TEWARI et coll., 1987).

Tableau (I-1) : Projet de directives européennes du mois d'avril 1985

Type de combustible	Puissance thermique ( $MW_{th}$ )*	Poussières ( $\frac{mg}{m^3}$ )	Dioxyde de soufre ( $\frac{mg}{m^3}$ )		Oxydes d'azote ( $\frac{mg}{m^3}$ )	
			à partir du 1.1.1985	après le 31.12.1995	à partir du 1.1.1985	après le 31.12.1995
Solide	> 300		< 400	< 250	< 650	< 200
	300-100	< 50	< 1200	< 1200	< 800	< 200
	< 100		< 2000	< 2000	< 800	< 400
Liquide	> 300		< 400	< 250		
	300-100	< 50	< 1700	< 1700	< 450	< 150
	< 100		< 1700	< 1700		
Gazeux	> 300					
	300-100	< 5		< 35	< 350	< 100
	< 100					

\*  $MW_{th}$  (Méga Watts thermiques) = 2,4-2,6 MW (MégaWatts)

La désulfuration des effluents gazeux n'est réellement mis en pratique que depuis une vingtaine d'années seulement. La figure (I-1) nous montre les émissions de SO<sub>2</sub> évaluées dans différents pays depuis 1970 avec les prévisions prévus jusqu'en 1990 (Group of experts, 1985).

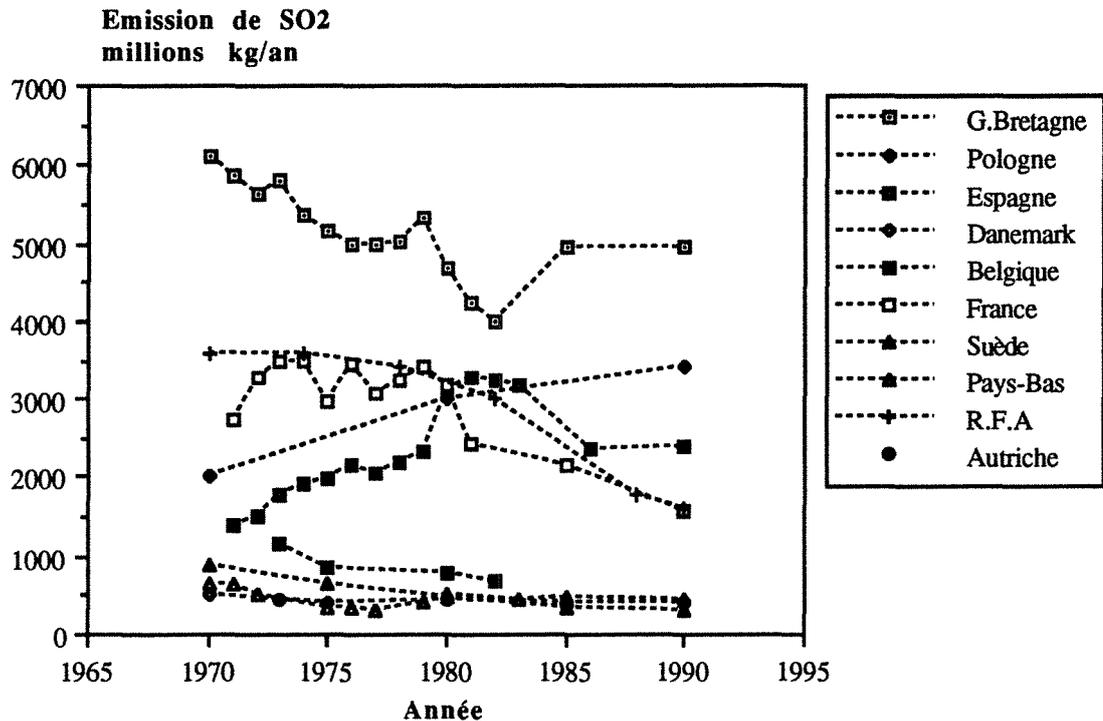


Figure (I-1) : Emissions de SO<sub>2</sub> mesurées dans différents pays industriels (groupe d'experts, 1985)

Ces prévisions, datant de 1985 ont été basées sur l'hypothèse qu'il n'y aurait pas d'implantation d'unités de désulfuration d'ici à la fin 1990, à l'exception des pays (Autriche, Danemark, RFA, Pays-Bas et Suède) où des installations de désulfuration de SO<sub>2</sub> sont en cours de construction ou déjà existantes.

La situation des équipements de désulfuration des effluents gazeux en 1982 rapportée lors du congrès UNIPEDE (Unipede Congress) par (Group of experts, 1985) montre que parmi tous les pays européens: *Autriche, Belgique, Danemark, France, R.F.A, Italie, Pays bas, Portugal, Espagne, Suède et Royaume Unis* trois seulement (*Autriche, RFA, Pays-Bas*) ont commencé la construction d'unités de désulfuration alors que deux pays seulement (*Autriche et RFA*) possédaient déjà des unités avancées de désulfuration des gaz.

## I.2. SOURCES DE DIOXYDE DE SOUFRE SO<sub>2</sub>

Les émissions de dioxyde de soufre proviennent majoritairement de la fabrication de l'acide sulfurique, de la combustion du charbon ou du fuel-oil (LAOHAVICHITRA et coll., 1982), des centrales thermiques, de la combustion domestique (charbon, bois, autres fuels), des unités pétrochimiques, des raffineries de pétrole, de l'industrie métallurgique (fusion d'un minerai) ainsi que des transports (MATROS et coll., 1988). Le tableau (I-3) résume les niveaux de SO<sub>2</sub> enregistrés dans différentes grandes villes mondiales (TEWARI et coll., 1987).

Tableau (I-3) : Niveaux de SO<sub>2</sub> enregistrés dans les grandes villes indiennes et dans d'autres grandes villes mondiales

Ville	Population (million) *	Niveau de pollution (mg/m <sup>3</sup> )	Niveau de pollution (ppm)
Bombay	8,2	0,175	0,513
Calcutta	9,17	0,09	0,264
Kanpur	1,69	0,126	0,369
Delhi	5,23	0,09	0,264
London	7,38	0,087	0,255
Tokyo	11,41	0,059	0,173
Chicago	7,09	0,135	0,396

\* (MAHAJAN, 1985) et (KHANNA, 1981).

Quand on sait que la teneur de SO<sub>2</sub> dans les villes industrielles est estimée à 0,15 ppm alors que son seuil de toxicité est de l'ordre de 5 ppm, il s'avère donc nécessaire de recourir soit aux techniques d'épuration des fumées, soit à la consommation de combustibles plus propres afin de pouvoir éviter les effets toxiques du dioxyde de soufre.

## I.3. TECHNIQUES DE DESULFURATION DES COMBUSTIBLES:

Le tableau (I-4) rappelle les teneurs en soufre des combustibles courants (CITEPA, 1985).

Tableau (I-4) : Teneurs en soufre des combustibles courants

Combustible	Teneur en soufre S (%)
Charbon français moyen	1,1
Fuel oil lourd ordinaire	3,5
Fuel oil lourd BTS (Basse Teneur en Soufre)	<2
Fuel oil lourd TBS (Très Basse teneur en Soufre)	<1
Gaz naturel	0

Celles-ci sont loin d'être acceptables car les teneurs en soufre des combustibles capables de satisfaire aux exigences "SO<sub>2</sub>" montrées dans le tableau (I-1) doivent respecter les valeurs résumées dans le tableau (I-5).

Tableau (I-5) : Valeurs limites du soufre exigées par le nouveau projet de directives européennes (1985)

Combustible utilisé	Installation de 50 à 300 MW <sub>th</sub>	Installation de plus de 300 MW <sub>th</sub>	
		avant 1995	après 1995
Combustibles solides	1,1%	0,25%	0,15%
Combustibles liquides	1,3%	0,3%	0,2%

Afin de réduire les émissions de SO<sub>2</sub> dans l'air, il faut donc envisager des techniques de désulfuration avant, pendant ou après la combustion des combustibles.

### ***1.3.1. DESULFURATION DES COMBUSTIBLES AVANT LA COMBUSTION***

#### ***1.3.1.1. Combustibles solides***

Le soufre contenu dans le charbon varie de 1 % à 7 %. Il apparaît sous deux formes principales: soufre organique et soufre minéral. Le dernier est essentiellement sous forme de pyrite (AKHTAR et coll.,1974). Le soufre organique occupe de 30 à 70 % du soufre total contenu dans le charbon (MILLER, 1986) et ne peut être éliminé que par une modification chimique de la structure du charbon. Le soufre pyriteux est souvent d'une taille microscopique. La pyrite est un minerai lourd avec une masse volumique de 5000 kg/m<sup>3</sup>. Le charbon a une masse

volumique maximale de 1700 kg/m<sup>3</sup>. Un avantage considérable lié à cette différence est que la plupart des techniques de purification du charbon utilise la séparation par gravité en conservant les fractions comprises entre 1400 et 1600 kg/m<sup>3</sup>.

Le degré de désulfuration obtenu par broyage (crushing) et séparation dépend de la quantité initiale de soufre contenu dans le charbon brut, de la fraction du soufre pyriteux par rapport à l'organique, de la distribution des tailles des pyrites et de la technique de séparation utilisée. En général, l'efficacité d'élimination de la pyrite augmente avec l'amélioration du niveau de l'écrasement du charbon et avec une faible gravité spécifique de séparation. Aujourd'hui, tous les procédés commerciaux de purification du charbon sont basés sur des méthodes physiques de séparation (ROLLIN, 1991). Celles-ci sont efficaces pour traiter la houille grasse à grand pourcentage de pyrite. L'application de ces méthodes permet d'éliminer de 35-50 % du soufre total contenu dans le charbon. Cet effet est donc limité (CAVAILLARO et coll., 1974) et nécessite la poursuite d'autres traitements.

Le tableau (I-5)' résume la composition typique du charbon courant utilisé comme combustible solide.

Composant	Valeur (%)
humidité	9,59
cendre	7,40
carbone	66,98
hydrogène	4,65
azote	1,48
soufre	3,32
chlore	0,06
oxygène	6,52

Tableau (I-5)' : Caractéristiques typiques d'un combustible solide (charbon courant).

### ***1.3.1.2. Combustibles liquides:***

Dans les combustibles liquides de raffinerie, le soufre est réparti dans les différentes fractions avec les teneurs moyennes suivantes (WALL, 1984) :

10,2% dans les différentes fractions gazeuses      40,2% dans les différentes fractions liquides  
 21,9% dans les produits solides (asphalte et coke)    27,7% du soufre élémentaire

Avec des catalyseurs du type cobalt molybdène imprégnés sur alumine, (YAVORSKY et coll., 1974) et sous pression d'hydrogène entre 20 et 50 bars et à des températures de 320 à 420 °C, les distillats moyens du pétrole (bases du gazole et du fuel domestique) libèrent leur soufre sous forme d'hydrogène sulfuré qui est isolé et transformé en soufre par la réaction de Claus (WALL, 1984). L'hydrogène est fourni par le reformage catalytique des coupes carburants. La figure (I-2) montre un schéma de principe de l'hydrodésulfuration catalytique des coupes pétrolières.

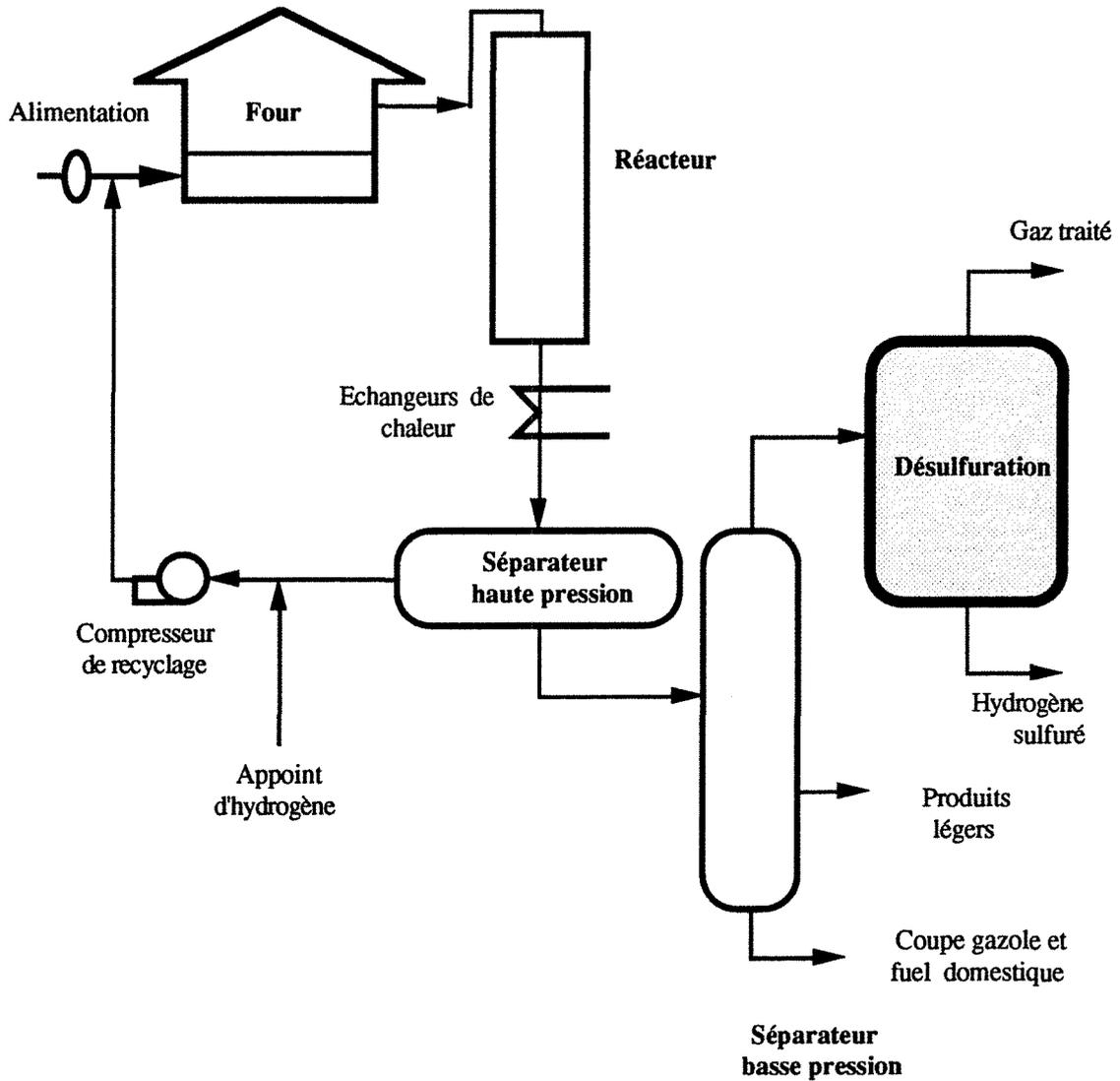


Figure (I-2) : Désulfuration des combustibles liquides

Ces unités d'hydrodésulfuration permettent de produire le gazole et le fuel domestique à moins de 0,3 % de soufre.

Dans certains pays (Japon, Vénézuéla) on désulfurise avec le même procédé des distillats lourds de pétrole que l'on mélange ensuite avec le résidu pour abaisser la teneur en soufre du fuel lourd (CITEPA, 1985) et même, dans certaines unités, on traite le résidu lui-même. Cette dernière opération est difficile et coûteuse : l'hydrogène, pour déloger le soufre au sein des grosses molécules aromatiques des résidus, est obligé de les détruire ce qui conduit à une consommation importante d'hydrogène. En conséquence l'hydrogène du reformage catalytique ne suffit plus. Il faut en produire par reformage à la vapeur d'eau de méthane ou de naphta. Enfin, les catalyseurs se désactivent rapidement par dépôt de carbone et surtout par l'action des métaux lourds contenus dans les résidus (vanadium, nickel) (WALL, 1984). Diverses méthodes sont utilisées pour augmenter la durée de vie du catalyseur, par exemple, la démétallisation périodique ou en continu (procédés à catalyseur circulant). Les conditions de traitement sont donc plus sévères qu'avec les coupes gazole.

### *1.3.1.3. Combustibles gazeux*

Les gaz des raffineries contenant essentiellement H<sub>2</sub>S sont traités par des solvants tels que les éthanolamines et l'hydrogène sulfuré extrait est transformé en soufre par la réaction catalytique de Claus:



C'est ainsi que les raffineries de pétrole produisent du soufre commercial. D'autre part, hormis le gaz, très rares sont les combustibles capables de satisfaire aux valeurs limites des installations de 300 MW<sub>th</sub> et plus. Seuls quelques combustibles solides et liquides conviennent pour les foyers de combustion de 50 à 300 MW<sub>th</sub>. En conséquence, la réduction de la pollution ne peut être obtenue qu'en utilisant un combustible moins polluant qui permet de réduire les consommations d'énergie, le volume des rejets étant directement lié à la consommation de combustible.

Le tableau (I-6) donne une comparaison entre les rejets moyens d'effluents gazeux de la chaufferie de l'usine Nestlé à Rumilly. Les résultats montrent ce qui a pu être obtenu après le remplacement de la chaufferie du fuel N°2 à 3,2 % de soufre par une chaufferie au gaz naturel (KNIPILER, 1991).

Mesures	Fuel	gaz
Débit moyen des effluents gazeux (Nm <sup>3</sup> /h)	15795	13735
Température moyenne des effluents gazeux (°C)	200	50
Dioxyde de soufre SO <sub>2</sub> (mg/Nm <sup>3</sup> )	5100	1,1
Oxyde d'azote NO <sub>x</sub> (ppm) à 3% d'O <sub>2</sub>	250	86

Tableau (I-6): Rejets moyens observés avec deux combustibles différents (gaz et fuel lourd)

### ***1.3.2. DESULFURATION PENDANT LA COMBUSTION***

Durant la combustion, le soufre est transformé en SO<sub>2</sub> qui est aussitôt fixé par un réactif alcalin sec (GRUBER, 1982). La désulfuration se fait essentiellement par alimentation du réactif alcalin dans deux types de foyers, à savoir :

1. un foyer classique à sable ou à buse (Furnace sorbent injection).
2. un foyer du type lit fluidisé (Fluidized bed combustion).

#### ***1.3.2.1. Injection du réactif alcalin dans un foyer classique de combustion (Furnace sorbent injection)***

L'injection directe dans la zone de combustion de réactifs à base de calcium (MILLER, 1986) ou de sodium (YEH et coll., 1982) piège le dioxyde de soufre pour former du sulfate de calcium ou de sodium mélangé aux cendres du charbon et de l'absorbant qui n'a pas réagi. Le solide est séparé du gaz par un système de contrôle des particules solides (électrofiltres ou filtres électrostatiques, filtres à manches). La figure (I-3) montre un schéma de principe de l'injection du réactif alcalin sec dans la zone de combustion.

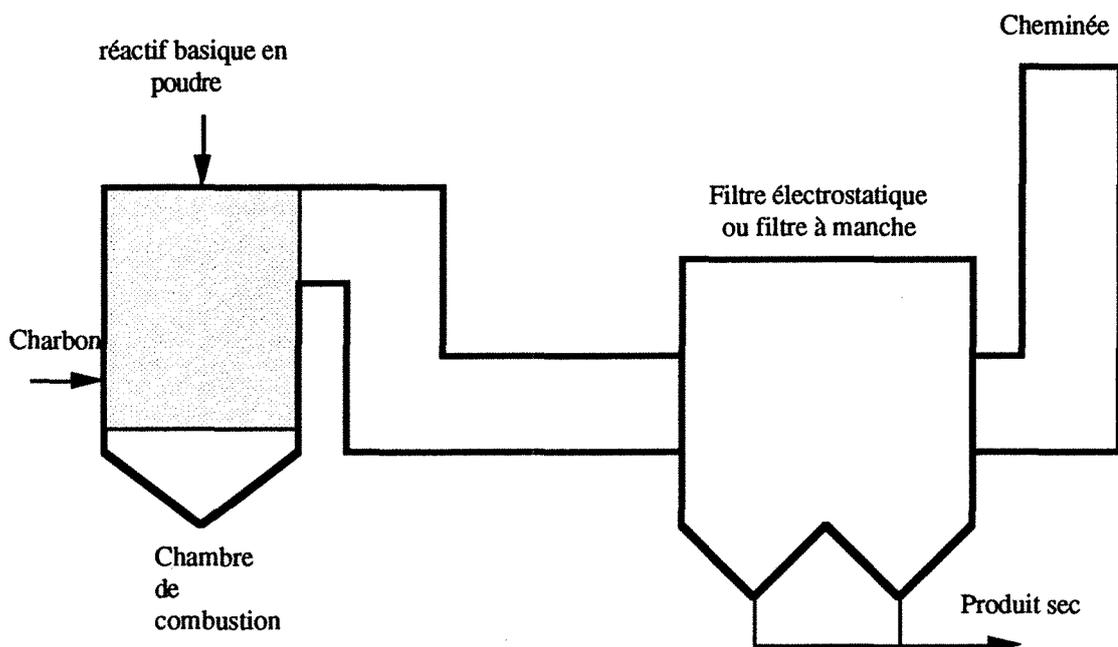


Figure (I-3): Schéma de principe du procédé de désulfuration par injection d'absorbant sec dans la chambre de combustion.

Le procédé est donc entièrement sec (LEE, 1988) et utilise des équipements classiques de stockage, de manutention et d'injection des matériaux absorbants. Le carbonate de calcium (limestone) est l'absorbant le plus utilisé pour ce type de procédé de traitement grâce à son prix et sa disponibilité dans le monde (JOZEWICZ et coll., 1987, KLINGSPOR et coll., 1984 et MURAMATSU et coll., 1984).

La température du foyer est de 800-1200 °C. Le produit de la réaction (base et SO<sub>2</sub>) est constitué en majorité de sulfate (MALONEY, 1980). Par ailleurs, ce procédé n'est pas encore bien développé (OFFEN et coll., 1987), son application peut être limitée par l'accroissement du solide dans la chambre de combustion et demande un contrôle sévère du solide ainsi qu'une manutention difficile des cendres produites.

Enfin, les techniques de foyers classiques (foyer à charbon pulvérisé, foyer ignifluide, foyer à projection) atteignent un rendement de désulfuration voisin de 50% (MILLER, 1986). Les valeurs ont déjà été confirmées par (MALONEY, 1980) qui a donné sur la figure (I-4) les résultats de désulfuration obtenus avec plusieurs absorbants.

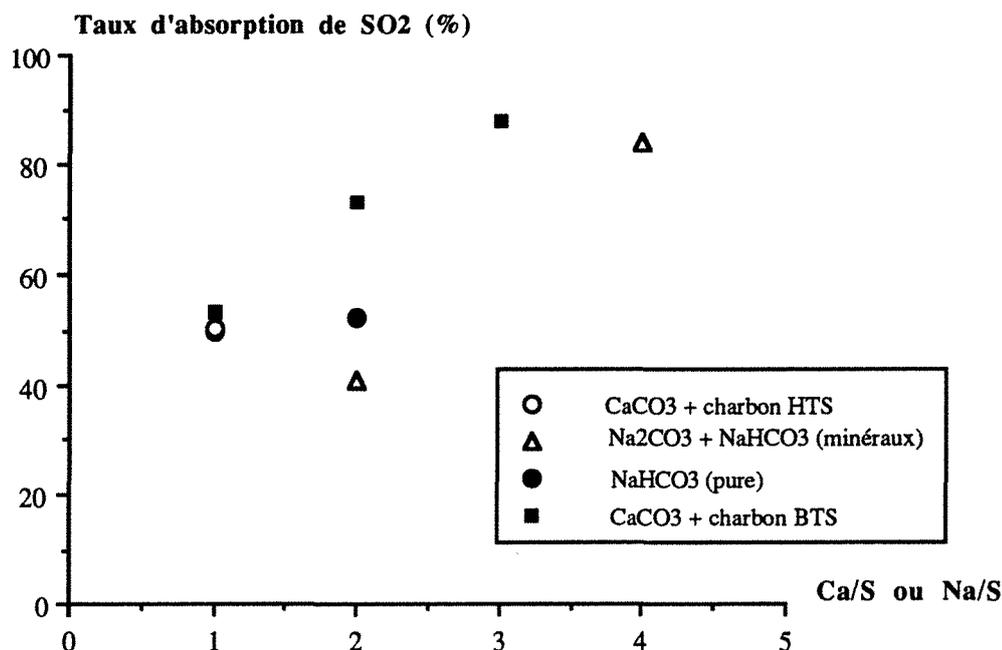


Figure (I-4) : Résultats de désulfuration obtenus par Maloney en fonction du rapport stoechiométrique  $Ca/S$  ou  $Na/S$ .

Pour atteindre un taux d'absorption de 90 %, il faut recycler le produit de la réaction et l'injecter à nouveau dans la chambre de combustion avec un absorbant frais (STAVDINGER et coll., 1991) ou il faut recourir au procédé plus récent des lits fluidisés circulants.

### *1.3.2.2. Les foyers à lit fluidisé*

#### **1.3.2.2.1. Principe**

La fluidisation est le procédé par lequel des particules de charbon sont maintenues en suspension à l'intérieur d'une enceinte au moyen d'un courant d'air ascendant soufflé à travers une grille fixe de répartition.

La vitesse des gaz doit se situer entre deux limites : la vitesse minimale de fluidisation en deçà de laquelle le solide se dépose en lit fixe, et la vitesse d'entraînement pneumatique. La majorité des particules solides est, après épuisement dans le lit fluidisé, entraînée hors du foyer par les fumées produites qui sont ensuite refroidies et dépoussiérées. La température du lit fluidisé est réglée (échangeur dans le lit, recyclage de fumées, combustion étagée par diverses injections d'air secondaire) de sorte que les cendres de charbon ne se ramollissent pas (de l'ordre de 850-900 °C) d'où le nom de lit fluidisé à cendres sèches ou encore lit fluidisé froid, ce qui permet par ailleurs de limiter la production d'oxyde d'azote.

L'introduction dans le lit fluidisé d'une quantité appropriée de réactifs permet de réaliser une désulfuration directe dans le foyer (HARTMAN et coll., 1991). Le bon contact entre solides et gaz réalisé dans les lits fluidisés permet d'obtenir des efficacités de désulfuration supérieures à 90 %.

#### **I.3.2.2.2. Les différents types de lits fluidisés**

##### **- lit dense sans recyclage**

Le SO<sub>2</sub> est absorbé dès sa formation sur le matériau alcalin en état de fluidisation dans le bas de la chaudière. Les chaudières d'une puissance inférieure à 30 MW<sub>th</sub> sont entièrement automatisées. La désulfuration est voisine de 60 % et les émissions de NO<sub>x</sub> sont faibles (MALONEY, 1980).

##### **- lit dense à recyclage contrôlé**

Le recyclage contrôlé des cendres permet de maintenir l'efficacité de la combustion et de la désulfuration en faisant varier le débit d'air de fluidisation. Ce lit est destiné pour des chaudières jusqu'à 30 MW<sub>th</sub>. La désulfuration est élevée, voisine de 90 % (HARTMAN et coll., 1988) et les émissions de NO<sub>x</sub> sont faibles.

##### **- lit circulant**

En augmentant la vitesse des gaz au delà de la vitesse de fluidisation, l'entraînement des particules s'accroît en créant au dessus du lit une zone diluée de plus en plus turbulente. Pour obtenir un temps de séjour suffisant des particules dans le réacteur, il faut procéder à une recirculation des solides en bas de la colonne fluidisée. Ce type de lit est convenable pour les chaudières de puissance > 50 MW<sub>th</sub>. Les émissions de NO<sub>x</sub> sont très faibles.

Par ailleurs, cette technologie est particulièrement adaptée aux charbons très soufrés (4,5 % de soufre). Le rendement de la réduction des polluants gazeux NO<sub>x</sub> et SO<sub>2</sub> est supérieur à 90 % dans un lit fluidisé circulant (WEISWEILER et coll., 1991). Afin de comprendre ce procédé, la figure (I-5) montre un schéma de principe de la chaudière à lit fluidisé circulant de la centrale Emile Huchet à Carling (France). La chaudière a été envisagée pour qu'elle soit capable de brûler une pulpe (mélange eau-charbon) contenant 65 % de solides en masse. Cette étude a montré que l'installation est un succès au niveau des émissions de polluants gazeux. Les émissions de SO<sub>2</sub> se situent autour de 250 mg/Nm<sup>3</sup> pour un rapport de Ca/S voisin de 1,9 (ROLLIN, 1991).

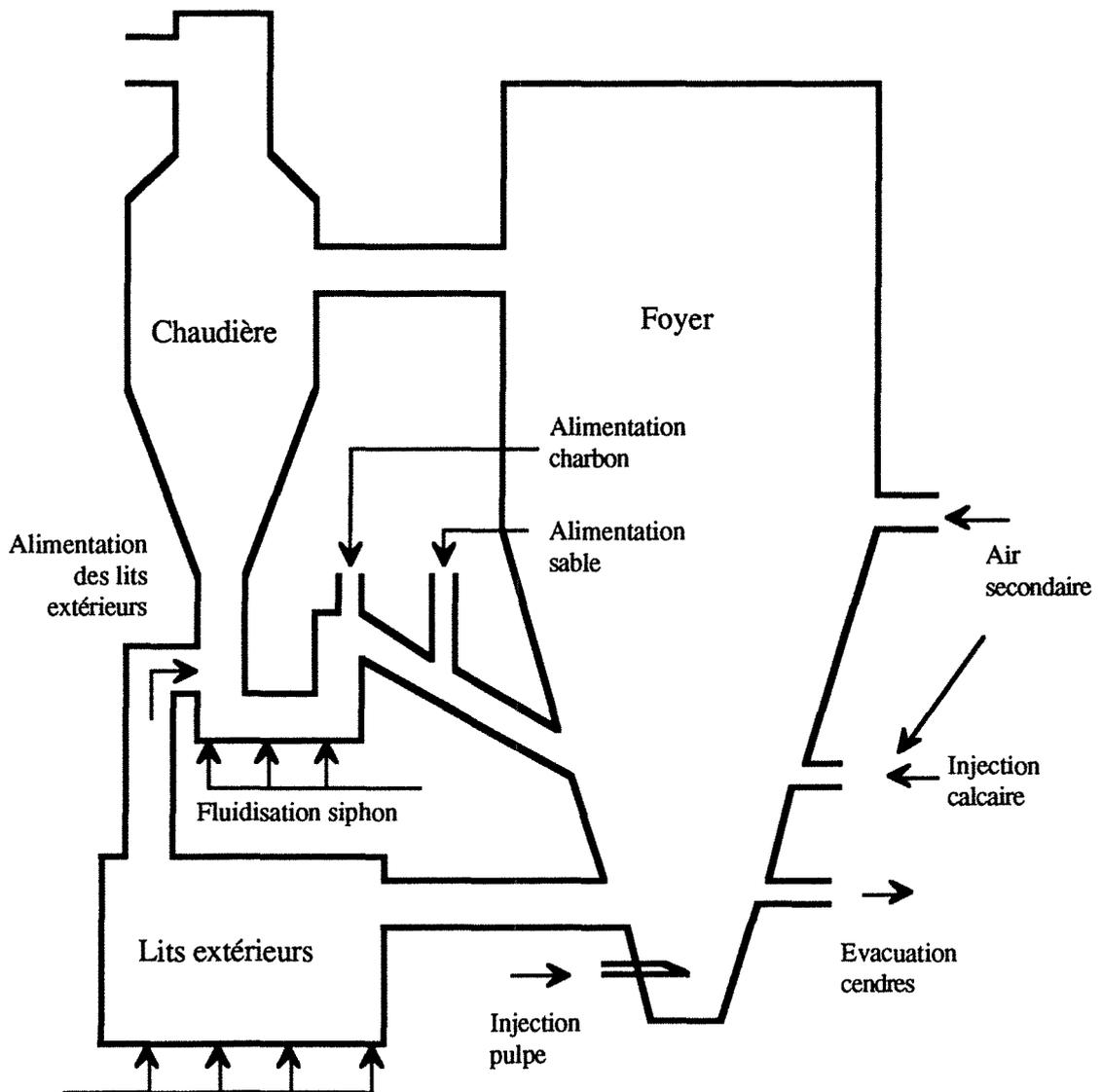


Figure (I-5) : Schéma de principe de la chaudière à lit fluidisé circulant.

Les procédés de désulfuration pendant la combustion nécessitant des températures modérées (800-1200 °C) permettent de limiter les émissions d'oxydes d'azote. En revanche, ils présentent un problème de déchets (sulfate de calcium ou de sodium, absorbant n'ayant pas réagi, cendres, ...) analogue à celui des procédés par traitement des gaz de combustion que nous allons présenter ci après.

Le tableau (I-7) résume la composition chimique des déchets des procédés de désulfuration pendant la combustion (KATZBERGER et coll., 1986).

Tableau (I-7) : Composition chimique des produits des procédés de désulfuration pendant la combustion

Composants chimiques	Produits solides obtenus dans un traitement dans une chambre de combustion classique.	Produits solides obtenus dans une combustion en lit fluidisé.
CaSO <sub>4</sub>	28 %	32 %
CaO	38 %	23 %
CaCO <sub>3</sub> , Ca(OH) <sub>2</sub>	-	-
H <sub>2</sub> O	1 %	1 %
SiO <sub>2</sub> , autres constituants et réactifs inertes	33 %	43 %

### 1.3.3. DESULFURATION DES GAZ DE COMBUSTION (FGD PROCESS)

Les procédés de ce type sont largement utilisés particulièrement aux Etats-Unis et au Japon. Les procédés utilisés aux USA sont résumés dans le tableau (I-8) (CITEPA, 1985).

Tableau (I-8) : Procédés de désulfuration des gaz de combustion utilisés aux USA

Procédés	Type de procédé	Nombre d'unités		Puissance totale des centrales équipées (MWe)
		sept 78	janv 83	
Carbonate de calcium	Procédé humide	54	103	51 662
Chaux	Procédé humide	29	32	13 736
Carbonate de sodium	Procédé humide	4	9	3 155
(Dual Alkali)	Procédé humide	3	6	2 288
Cendre alcaline	Procédé humide	14	13	5 493
(Spray drying)	Procédé semi-sec	1	18	6 353
Carbonate en solution	Procédé régénératif	1	1	100
(Wellman-Lord)	Procédé régénératif	6	8	2 074
Magnésie	Procédé régénératif	4	3	724
Citrate	Procédé régénératif	1	1	60
		117	194	85 645

Au Japon, on comptait en janvier 1983, 1366 unités de désulfuration des gaz de combustion. 96% des procédés sont humides et la plupart conduisent à une production de gypse. Les procédés de désulfuration des gaz traitent un gaz à la pression atmosphérique ou presque, ce qui implique des installations volumineuses.

Le composé à extraire ( $\text{SO}_2$ ) est dilué (de 2 à 10  $\text{g/Nm}^3$ ) et le gaz brûlé est poussiéreux, très chaud et corrosif. En revanche, le soufre se trouve sous forme simple et chimiquement très réactive (ABDULSATAR, 1977). Cet avantage compense les inconvénients ci-dessus, sans pour autant rendre les procédés "bon marché".

Selon la littérature, plus de cent procédés ont été ou sont étudiés dans le monde et bien sûr, un petit nombre seulement sont appliqués industriellement. Les procédés parvenus au stade industriel consistent tous à traiter les gaz de combustion avec un réactif alcalin qui fixe  $\text{SO}_2$  (HOFFMAN, 1981 et KOCHLER, 1974). Le concepteur de procédé tend à utiliser l'agent alcalin le plus actif possible : sels sodiques, ammoniac et magnésie. Mais ces produits sont chers et ne peuvent être rejetés avec les résidus (sauf cas exceptionnels). En règle générale, c'est le calcaire qui est préféré (moins cher), suivi de la chaux, plus réactive mais plus chère (BJERLE et coll., 1984). Certains procédés tournent la difficulté en régénérant l'agent d'extraction (cas des procédés régénératifs avec production de  $\text{SO}_2$  concentré ou d'acide sulfurique ou même de soufre) ou en valorisant les résidus comme engrais (sulfate et nitrate d'ammonium) ou comme matière première industrielle (sels d'extraction des pâtes à papier ou pour verreries).

Les principaux procédés de désulfuration des gaz peuvent être classés en trois familles:

- 1- procédés par voie humide : lavage des gaz refroidis après dépoussiérage par une suspension ou solution alcaline.
- 2- procédés par voie sèche : poudre sèche injectée dans le courant de gaz en principe avant dépoussiérage
- 3- procédés par voie semi-sèche : emploi de suspensions concentrées injectées dans les gaz chauds avant dépoussiérage.

Avant de développer ces procédés de traitement, il est important de présenter les principaux systèmes de dépoussiérage des fumées.

### ***1.3.3.1. Les filtres de dépolluissage***

#### **a . Electrofiltres ou filtres électrostatiques**

Le principe employé dans les électrofiltres industriels ou dans un précipitateur électrostatique consiste à utiliser les forces électriques pour charger et séparer les particules en suspension dans un gaz par attraction dans un champ électro magnétique. Le système d'élimination des poussières se caractérise par un haut degré d'efficacité combiné à une excellente fiabilité. Les rendements sont élevés et supérieurs dans tous les cas à 99 % (BRADLY, 1986). La perte de charge est faible, les coûts d'exploitation et d'entretien sont très réduits. Enfin, ils permettent une excellente récupération de poussières par voie sèche. Les valeurs limites d'émission de poussières dans les gaz résiduels rapportées à des conditions normalisées sont données dans le tableau (I-1). La figure (I-6) montre le schéma de principe des filtres électrostatiques.

#### **b . Filtres à manches**

Si les constructeurs de ce type de matériel développent des technologies quelques peu différentes (poussières collectées à l'extérieur ou à l'intérieur des manches), le principe de base reste le même. Il s'agit dans tous les cas de séparer les fumées et les gaz des particules en suspension. Les fumées traversent des manches constituées d'un média filtrant. Quant aux "gâteaux" de poussières, ils sont récoltés après décolmatage pneumatique à la base des trémies. Les poussières sont alors évacuées par voie pneumatique ou mécanique. Les filtres à manche se caractérisent par une vitesse de filtration élevée, un encombrement réduit pour une surface filtrante importante, une faible consommation d'air comprimé. Un fonctionnement séquentiel continu conduit à un résultat de filtration garanti. Enfin, ces filtres assurent une continuité de la réaction entre la base et le soluté acide (BERTON, 1987) lors d'une utilisation par voie semi-sèche. Le taux d'absorption de SO<sub>2</sub> dans les filtres à manche varie de 10 à 20 % (STRÖMBERG et coll., 1988). La figure (I-7) présente le schéma de principe des filtres à manches.

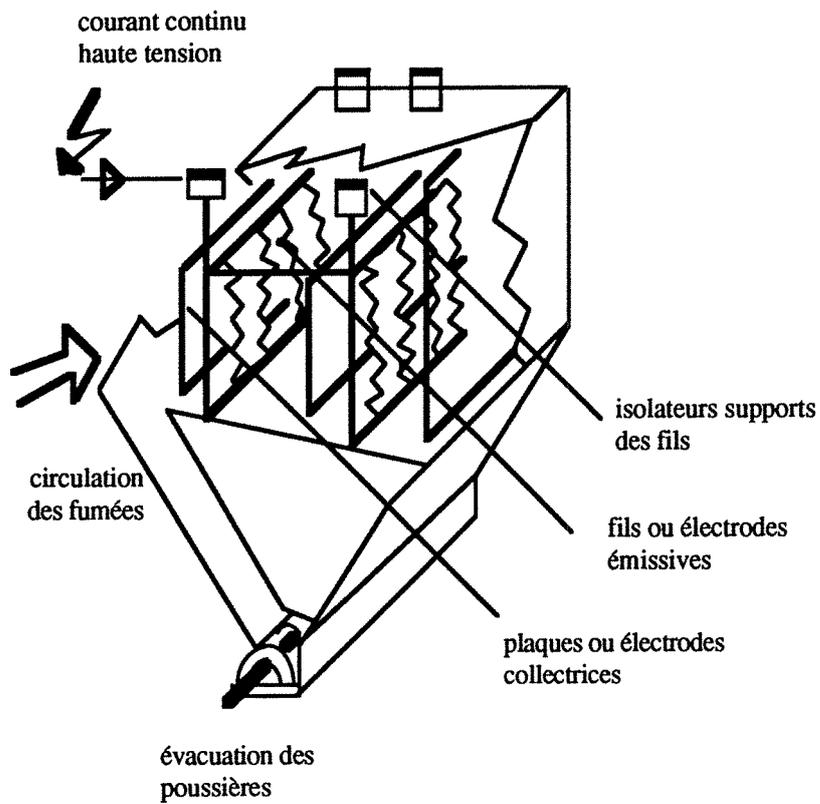
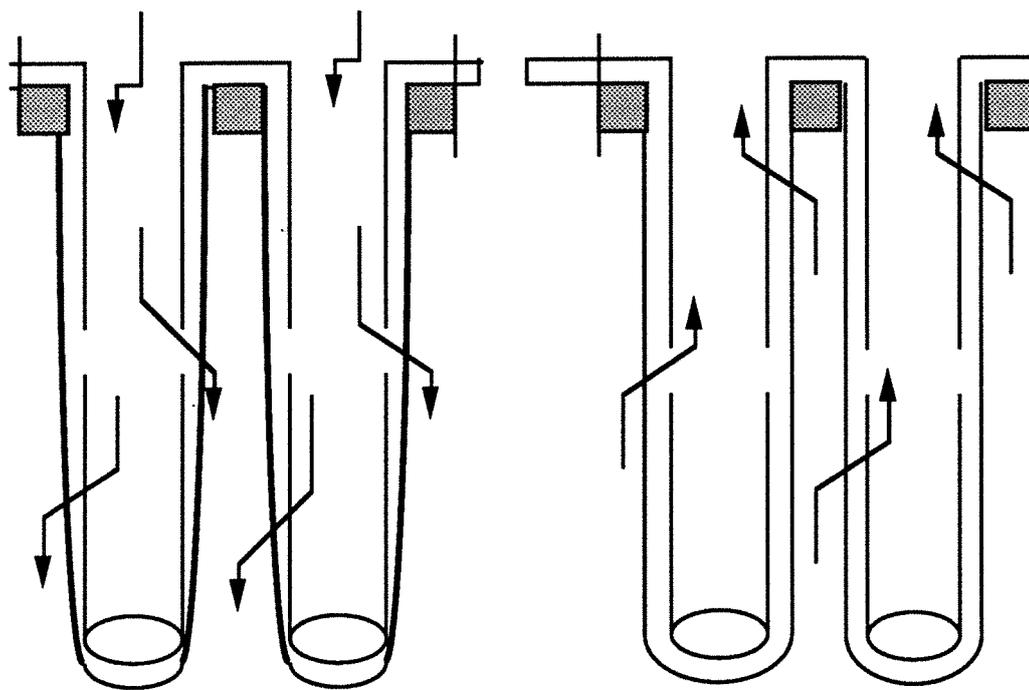


Figure (I-6) : Schéma de principe des électrofiltres.

**Chute et évacuation des poussières**

**Filtration des fumées**



**Cellule en décolmatage**

**Cellule en filtration**

Figure (I-7) : Schéma de principe des filtres à manches.

### 1.3.3.2. Procédés de désulfuration des fumées par voie humide (wet FGD systems)

Les procédés humides (wet scrubbing) sont les plus anciens et les plus répandus. Ils consistent à arroser les gaz brûlés par une solution ou suspension alcaline (REMILLIEUX, 1984).

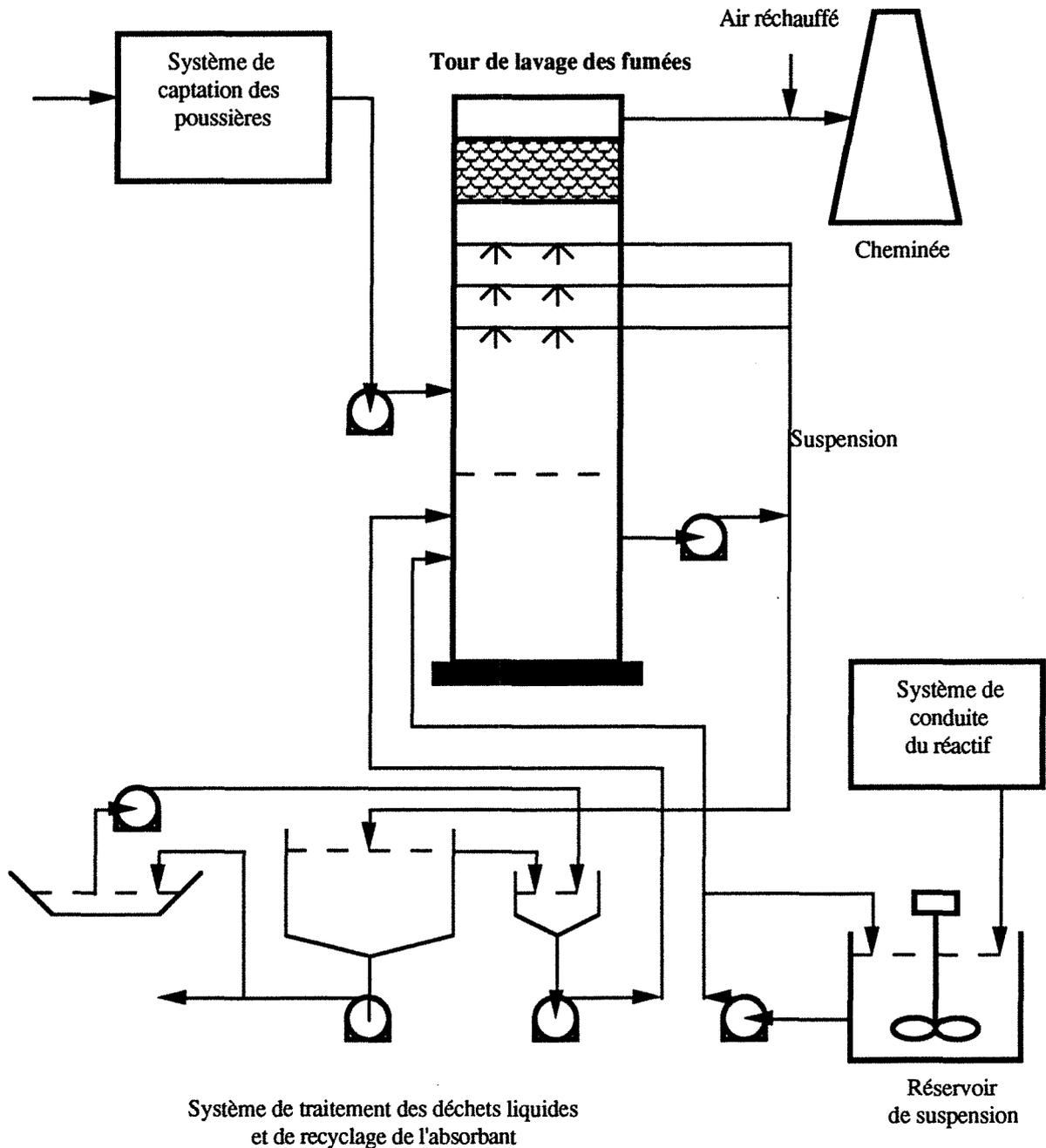


Figure (I-8) : Schéma de principe du procédé humide à base de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  ou de  $\text{CaCO}_3$

Les gaz de combustion sont donc totalement saturés durant l'opération de traitement (NAKAHIRA et coll., 1988). Quant aux produits de la réaction, ils sont rassemblés dans la phase liquide comme un précipité insoluble, (cas des bases de calcium) ou comme des espèces solubles, (cas des bases de sodium et de magnésium). La figure (I-8) montre quelques éléments d'un procédé humide à base des tours de pulvérisation du liquide.

Il est préférable d'éliminer les poussières contenues dans les effluents gazeux en amont des colonnes de traitement afin d'éviter l'augmentation potentielle des effets liés au frottement et au bouchage de la pompe de recyclage de l'absorbant, des vannes de communication, des tuyaux de canalisations ainsi que les buses d'injection des bases liquides. Les captations des cendres en amont des tours de lavage stabilise la qualité des déchets solides et permet de les vendre comme matériaux d'agrégats.

De plus, si la production et la vente du gypse sont envisagées, les cendres doivent être éliminées avant les tours de désulfuration afin d'obtenir un gypse pur. Dans certains cas, lorsque les cendres sont fortement basiques, le rassemblement des cendres humides améliore le procédé de désulfuration. La quantité de liqueur recirculée dépend de la concentration initiale de SO<sub>2</sub>, du taux d'absorption souhaité et de l'absorbant employé.

Pour un charbon à teneur en soufre de 1 % et une efficacité d'absorption de SO<sub>2</sub> de 90 %, la fraction approximative des débits volumiques du liquide par rapport aux débits volumiques du gaz (L/G) varie de 10 à 45 suivant l'absorbant utilisé. Le tableau (I-9) donne une idée générale sur les débits du liquide nécessaires dans les procédés humides de désulfuration des gaz.

Tableau (I-9): Rapport L/G en fonction de l'absorbant employé (MOSER, 1981)

Absorbant	Rapport liquide au gaz (L/G) gpm/10 <sup>3</sup> acfm	
Limestone CaCO <sub>3</sub>	45	Unité de 500 MWth qui brûle du charbon à 1 % du soufre
Lime Ca(OH) <sub>2</sub>	38	
Lime enrichit par une base de magnésium	22	
Bases du sodium ou du magnésium	10	

1 gpm = 3,785 l/min et 1 acfm = 0,0283 Nm<sup>3</sup>/min

A la sortie des tours de désulfuration, le gaz est saturé en eau et il traverse un système d'élimination des buées (mist eliminator) dans lequel le gaz se décharge des gouttes liquides. Avant d'arriver à la cheminée, le gaz est réchauffé afin d'abaisser son opacité et sa masse volumique et de retarder ainsi la condensation acide dans la cheminée.

Les procédés humides se caractérisent par une grande efficacité d'absorption de  $\text{SO}_2$  qui peut dépasser 95 % avec une dépense en carbonate légèrement supérieure à l'exigence de la réaction chimique (Ca/S voisin de 1). Mais les nombreuses difficultés de ces procédés ont été mentionnées:

entartrage, bouchages, corrosions. Ces dernières entraînent l'usage de matériaux coûteux. Leur inconvénient majeur est l'utilisation des grands débits d'eau pour assurer la saturation des effluents gazeux. De plus, la captation de  $\text{SO}_2$  est accompagnée par la formation des sels des réactifs alcalins restant en suspension ou en solution. Ceux-ci constituent un rejet liquide très difficile à éliminer et cher à traiter. Ce résidu d'extraction est pour l'essentiel un mélange de sulfate et de sulfite de calcium (VA'ZQUEZ et coll., 1988). Ce dernier sel est très gênant : il retient beaucoup d'eau et dégage de mauvaises odeurs. Le plus souvent, on opère une oxydation à l'air du résidu à l'intérieur ou à l'extérieur de l'unité pour n'avoir que du sulfate de calcium. Cette opération est évidemment indispensable pour la fabrication du gypse.

Les procédés humides de désulfuration des gaz de combustion sont nombreux et peuvent être classés selon l'agent d'extraction utilisé ou selon leurs résidus valorisables ou enfin selon leurs équipements des unités régénératives.

#### I.3.3.2.1. Procédés humides employant d'autres absorbants que $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ou $\text{CaCO}_3$

Certains procédés utilisent des **carbonates de sodium naturels** (trona : mélange de carbonate et de bicarbonate) en solution dans l'eau. L'efficacité d'absorption de  $\text{SO}_2$  par ce procédé est supérieure à 98 % (TEWARI et coll., 1987). Ce procédé est connu aux Etats-Unis. Par ailleurs, certains charbons américains ont des **cendres volantes alcalines** qui, lorsqu'elles sont en suspension dans l'eau servent de liqueur d'extraction. L'ajout du calcaire ou de la chaux est parfois conseillé. Le procédé Dual Alkali utilise du **sulfite de sodium** afin de fixer le  $\text{SO}_2$  sous forme de bisulfite. L'avantage du procédé est la présence d'une solution homogène où la réactivité du sulfite est importante ; par suite le procédé nécessite un recyclage plus faible de la solution d'extraction. Le sulfite est régénéré par réaction avec la chaux, avec formation d'un résidu sulfite/sulfate de calcium qui est rejeté après oxydation.

#### **I.3.3.2.2. Procédés donnant des résidus valorisables (autre que le gypse)**

Ces procédés utilisent des dérivés alcalins "forts" et donc très efficaces:

##### **- procédé Walther**

Ce procédé fixe par l'ammoniac à la fois les oxydes de soufre et les oxydes d'azote, ces derniers ayant été préalablement oxydés à l'ozone (NO-NO<sub>2</sub>). Les deux résidus : sulfate d'ammonium et nitrate d'ammonium sont utilisables comme engrais (VOLGIN et coll., 1968).

##### **- procédés Evergreen et Mitsui (Japon)**

Ces procédés extraient SO<sub>2</sub> à la soude et au carbonate de sodium et donnent du sulfate de sodium utilisé pour la fabrication des pâtes à papier ou en verrerie.

##### **- procédés Air-Industrie**

A l'usine de pâte à papier de Tartas en Gironde (France), les gaz de combustion des résidus d'extraction de la pâte (additionnés éventuellement de fuel lourd) sont, après dépoussiérage, traités à l'ammoniac dans des conditions de pH bien contrôlées et donnent du bisulfite d'ammonium utilisé pour l'attaque du bois.

##### **- MKK ammoniac process (Mitsubishi Kakoki Kaisha)**

Ce procédé fixe SO<sub>2</sub> à l'ammoniac et donne du sulfite d'ammonium utilisable comme engrais.

#### **I.3.3.2.3. Procédés régénératifs**

Le rejet de résidus dans la nature ne paraît guère acceptable dans le monde industriel. Les débouchés comme gypse sont limités. Les procédés régénératifs ont de l'avenir malgré leurs coûts élevés. Ils conduisent à de l'anhydride sulfureux qui peut être vendu liquéfié ou transformé en acide sulfurique ou en soufre par les procédés classiques de la chimie minérale.

##### **- procédé Welman Lord**

C'est de loin le plus répandu : 8 unités au début de 1983 aux Etats-Unis, une trentaine au total dans le monde. Il consiste à laver les gaz de combustion dépoussiérés par une solution de sulfite de sodium qui fixe SO<sub>2</sub> sous forme de bisulfite (même procédé que Dual Alkali). Souvent, les gaz doivent être prélavés pour retirer l'acide chlorhydrique et abaisser leur

température vers 55 °C. A la sortie de l'absorbeur, la solution passe dans un évaporateur à deux étages où SO<sub>2</sub> se sépare et le sulfite est régénéré. Le procédé affiche des taux d'extraction de SO<sub>2</sub> de plus de 90 %. Il convient pour les charges les plus sulfureuses et, au Japon au moins, ils sont considérés comme fiables.

#### **- procédés "Institut du Pétrole" Stackpol S et Stackpol SO<sub>2</sub>**

Ils consistent à traiter les gaz dépoussiérés par une solution ammoniacale. Dans Stackpol S, la saumure sulfite obtenue se dirige dans un évaporateur où elle se décompose partiellement en ammoniac, eau et oxydes de soufre. Le fond de l'évaporateur contenant les sulfites non décomposés et tous les sulfates est envoyé dans un réacteur où les derniers sont réduits par du soufre ce qui libère de l'ammoniac (recyclé) et du SO<sub>2</sub>. On peut passer du SO<sub>2</sub> au soufre en réduisant une partie de SO<sub>2</sub> en hydrogène sulfuré puis en utilisant la réaction de Claus. L'effluent gazeux est enfin incinéré par voie catalytique sans destruction de l'ammoniac qui est recyclé. Une variante dite "Stackpol SO<sub>2</sub>" donne du SO<sub>2</sub>. La saumure n'est pas décomposée mais acidifiée par du bisulfate d'ammonium qui libère SO<sub>2</sub> dans un évaporateur. Ensuite, le sulfate d'ammonium qui reste est transformé en bisulfate avec libération d'ammoniac. Le sulfate en excès est réduit par du soufre avec une nouvelle libération de SO<sub>2</sub> et d'ammoniac.

#### **- procédé à la magnésie**

L'hydroxyde de magnésium réagit bien avec l'anhydride sulfureux donnant du sulfite et du sulfate de magnésium. Les sels sont centrifugés, séchés et calcinés vers 800 °C en atmosphère réductrice redonnant MgO et SO<sub>2</sub>. L'addition d'un peu de coke permet de réduire les sulfates. On peut prélever les gaz pour enlever les acides forts (HCl, HF) et les cendres volantes non retenues par le dépoussiéreur. Malgré sa simplicité apparente, ce procédé semble avoir des sérieuses difficultés et ne se multiplie guère.

#### **- procédé au citrate**

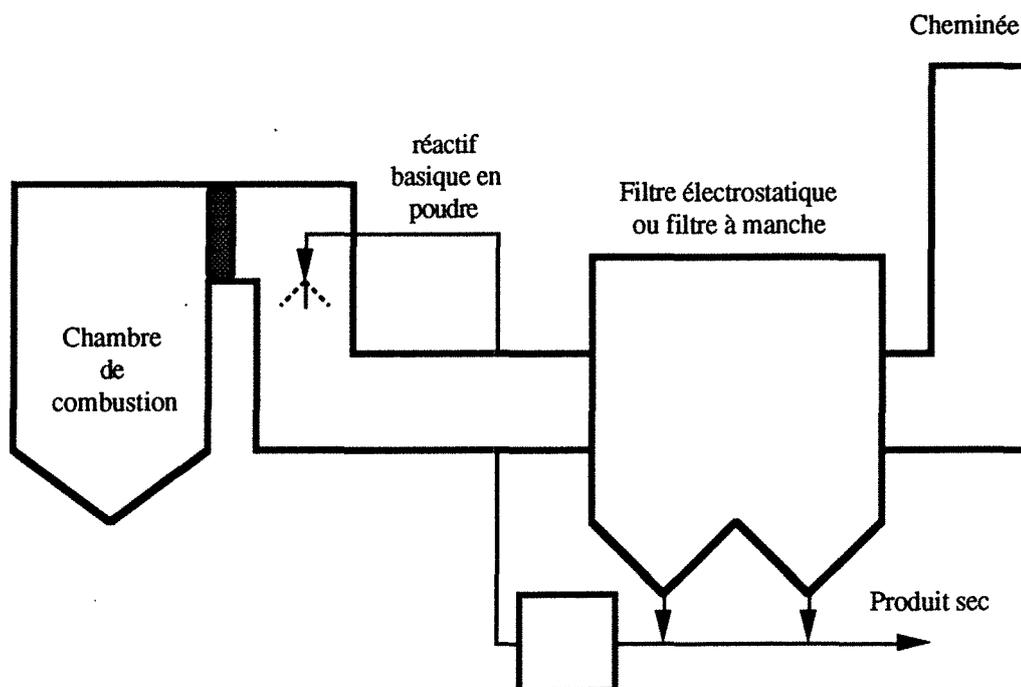
Le citrate de sodium absorbe SO<sub>2</sub> puis subit un entraînement à la vapeur d'eau qui libère SO<sub>2</sub>. Un pré lavage est souvent nécessaire pour éliminer HCl, HF et les cendres volantes. Le procédé aboutit à la production de soufre. Il ne semble pas que ce procédé en ait terminé avec ses difficultés de mise au point.

### ***1.3.3.3. Procédés de désulfuration des fumées par voie sèche (Dry FGD process)***

Il s'agit d'obtenir dans le courant gazeux non dépoussiéré une poudre alcaline très fine qui fixe  $\text{SO}_2$ , sans consommation d'eau (MARTIN et coll., 1981). Les sels sodiques de l'Ouest américain, Trona et Nahcolite conviennent pour un procédé sec, mais le déchet soluble dans l'eau n'est acceptable que dans les régions désertiques (YEH et coll., 1982). La figure (I-9) montre un schéma de principe des procédés secs.

Ces procédés sont caractérisés par un volume élevé de l'appareillage (coût de fonctionnement relativement élevé). De plus, l'absence de consommation d'eau et d'humidification du gaz conduit à envisager généralement des températures élevées supérieures à  $300\text{ }^\circ\text{C}$  (JOZEWICZ et coll., 1987).

Par contre, ils ont l'avantage de traiter les gaz à sec et d'éliminer donc les inconvénients liés aux traitements en milieu humide (gaz saturés, risques de corrosion, épuration des eaux) (JOFFRE, 1984). Globalement, l'absorption du dioxyde de soufre est moins efficace que dans les procédés humides et il est difficile d'obtenir des taux d'absorption élevés. Nous pouvons souligner qu'actuellement les procédés par voie sèche n'ont pas de développement équivalent à celui des procédés humides. Les diverses solutions proposées par les constructeurs ont pour objectif d'assurer le meilleur contact entre le réactif alcalin et le dioxyde de soufre afin de maximiser le taux d'absorption de  $\text{SO}_2$  pour un rapport acide/base le plus voisin possible du rapport stoechiométrique (JOZEWICZ et coll., 1988 et JORGENSEN et coll., 1987).



*Figure (I-9): Schéma de principe des procédés secs de traitement d'effluents gazeux*

### **I.3.3.3.1. Quelques procédés secs**

#### **- procédé Dry Gas : (Société Flakt Industrie)**

C'est le plus développé par le groupe Flakt. La chaux pulvérulente est introduite dans un réacteur où les gaz traités au préalable dans un précyclone circulent de bas en haut. Le contact intime entre les deux phases est assuré par une alternance de mise en vitesse et de détente des gaz.

#### **- procédé Pechiney AI : (Société Air Industrie)**

Ce procédé a été développé pour capter les composés fluorés à la sortie des cuves d'électrolyse d'alumine. On utilise comme réactif de l'alumine fraîche dans un réacteur venturi à flux vertical ascendant. L'alumine est recyclée plusieurs fois pour augmenter l'adsorption des gaz par le réactif. Le dépoussiéreur est à poches filtrantes. En variante, on peut capter HF dans l'industrie du verre par l'absorption au moyen d'hydrate de chaux. De même le procédé peut permettre de capter à sec des goudrons au moyen de coke de pétrole ou d'alumine.

#### **- procédé LUHR : (Société Genevet)**

Ce procédé a été développé pour épurer les gaz des incinérateurs des déchets industriels. Après refroidissement des gaz dans un échangeur à tubes, l'injection de chaux se fait dans un tambour de conditionnement, assurant un recyclage interne. Le dépoussiéreur est à manches filtrantes.

#### **- procédé à lit fluidisé circulant : (Société Lurgi)**

Ce procédé a été développé pour traiter les fumées d'incinération d'ordures ménagères. Le réactif est l'hydrate de chaux pulvérulent introduit à la base du réacteur. Les gaz circulent de bas en haut. Le contact intime gaz/réactif assurant l'adsorption est obtenu par un intense recyclage des poussières dans le réacteur. Le dépoussiéreur peut être électrostatique ou à manches.

#### ***1.3.3.4. Procédés de désulfuration des fumées par voie semi-sèche (Wet dry FGD Systems)***

Le concept "semi sec" apparu après l'injection sèche des matériaux alcalins est basé sur l'atomisation d'une suspension basique à faible quantité d'eau dans un réacteur (spray dryer) où le contact gaz/liquide/solide et l'absorption du SO<sub>2</sub> sont importants (SADA et coll., 1977). Au contraire du procédé humide où les effluents gazeux sont totalement saturés par une large quantité de liquide, le procédé semi-sec consiste à injecter dans le flux gazeux chaud des particules fines de l'absorbant basique en suspension (FARBER, 1983). La quantité du liquide introduite est soigneusement contrôlée, le gaz n'est donc pas saturé et son enthalpie sert à évaporer toute l'eau liquide de l'alimentation alcaline (KAPLAN et coll., 1980).

Les produits de la réaction sont rassemblés comme une poudre sèche simultanément avec les poussières dans les filtres à manches ou dans les filtres électrostatiques situés en aval de l'absorbeur (MAKANSI, 1989). Le temps de contact de l'ensemble (réactif et SO<sub>2</sub>) en présence d'eau est très court; c'est pourquoi, l'utilisation d'un absorbant très réactif est extrêmement importante et l'humidité relative de l'air est un paramètre déterminant (MARSH et coll., 1985). Les réactifs alcalins à base du sodium sont forts et les efficacités d'absorption du SO<sub>2</sub> dans les procédés semi-secs sont proches de celles réalisées par voie humide. Toutefois, plusieurs inconvénients sont liés à ce choix. Les sels basiques de sodium sont chers vis à vis de ceux au calcium. Les sulfite/sulfate de sodium produits par la réaction et retenus avec les cendres comme une poudre sèche sont solubles dans l'eau et présentent un problème réel de déchets (CHANG et coll., 1985). Depuis mi-1978, l'utilisation de la chaux (lime) dans les procédés semi-secs a démontré son efficacité. Malgré une faible réactivité, une alimentation avec un rapport stoechiométrique élevé de chaux s'avère économique (SHADMAN et coll., 1988). Ainsi, pour s'approcher de l'efficacité de l'absorption des procédés humides, un excès de base doit être ajouté dans l'absorbeur. Une fraction des solides retenus dans les filtres est recyclée avec le réactif frais préparé. Cette opération permet de minimiser la consommation du réactif et de profiter de la base contenue dans les cendres (GETLER et coll., 1979). La figure (I-10) montre le schéma de principe des procédés semi-secs.

Un autre paramètre important pour accroître l'efficacité d'absorption du SO<sub>2</sub> est la température de saturation adiabatique du gaz car la réactivité de la chaux augmente lorsque la température du gaz s'approche des conditions des procédés humides (SAMUEL et coll., 1983). En revanche, les filtres ne peuvent pas fonctionner dans le cas de gaz saturé ou proche de la saturation, en effet les particules piégées forment une couche solide dure sur la paroi des filtres et par suite entraîne l'obturation immédiate de ces derniers (JANKURA et coll., 1983). Ainsi, si la

température du gaz s'approche de la température de rosée, le gaz devra être réchauffé avant d'entrer dans les filtres.

Enfin, la température d'entrée du gaz est un facteur très important. En effet, avec une température d'entrée élevée du gaz, la quantité d'eau utilisée peut être augmentée d'où une amélioration de la capacité d'absorption du dispositif.

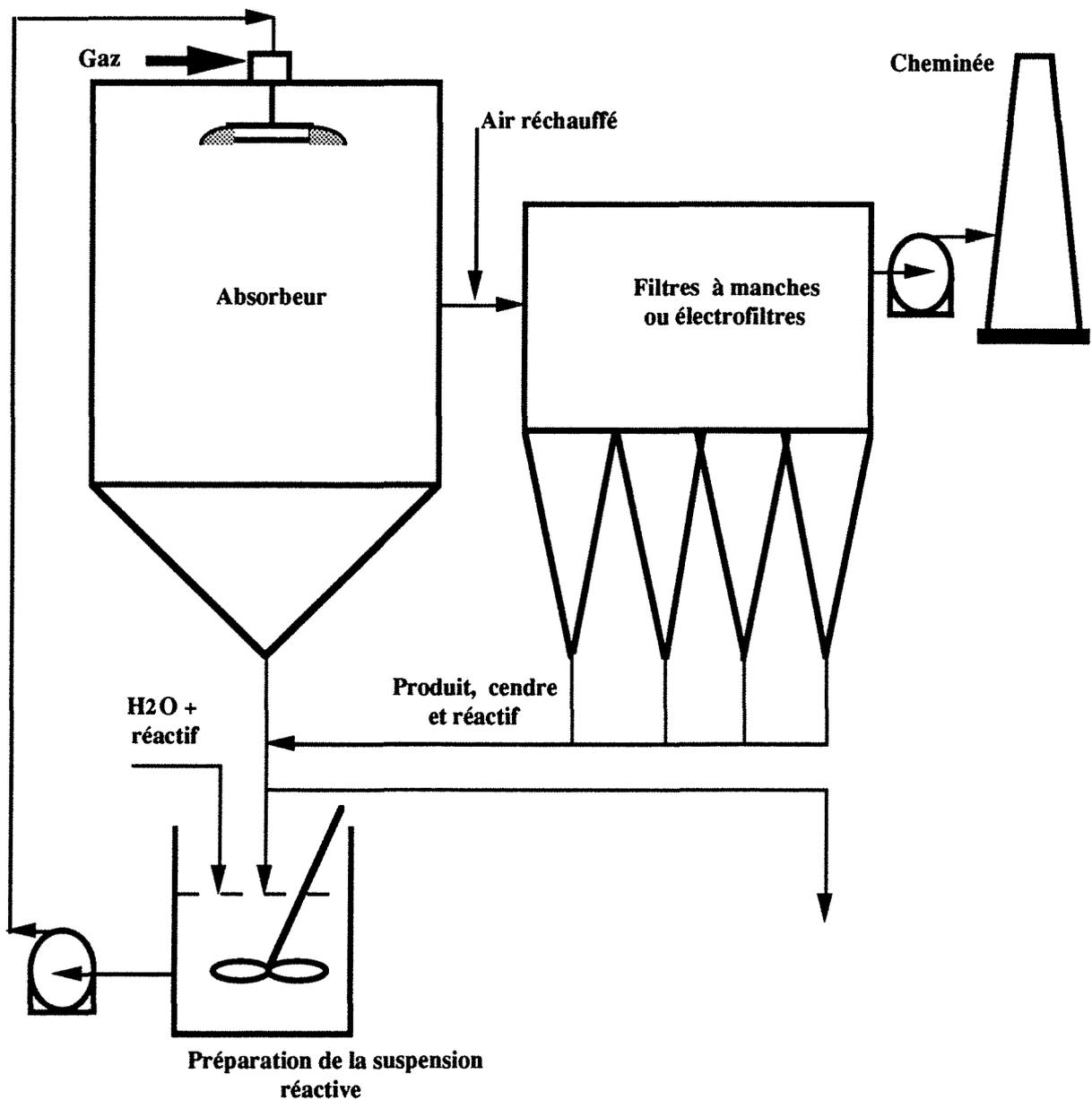


Figure (I-10): Schéma de principe des procédés semi-secs

Les résidus retirés de l'unité ne sont pas valorisables comme gypse car ils contiennent des cendres volantes. Il faut en général les oxyder avant rejet. Une étude faite par FELSVANG et

coll. 1983 montre qu'on peut oxyder une grande partie du sulfite lorsque l'alimentation gazeuse est composée des deux gaz  $SO_x$  et  $NO_x$ .

Le tableau (I-10) donne les compositions chimiques des produits secs d'un procédé semi-sec pour deux types d'effluents gazeux ( $SO_x$  et  $SO_x/NO_x$ )

Tableau (I-10) : Composition (wt %) des produits obtenus pour deux effluents gazeux contenant  $SO_x$  (en absence et en présence de  $NO_x$ )

Produits du procédé semi-sec	Absorption du $SO_x$	Absorption des $SO_x/NO_x$
Sulfite $CaSO_3 \cdot 1/2H_2O$	59	16
Sulfate $CaSO_4 \cdot 2H_2O$	16	43
Nitrate $Ca(NO_3)_2$	0	3
Chaux $Ca(OH)_2$	15	21
Cendres inertes	9	8
Humidité	1	1
Sulfite $Na_2SO_3$	0	9

Les procédés semi-sec sont plus économiques en investissement que les procédés humides (PREDICK, 1982). Ils provoquent moins de corrosions et de bouchages et consomment moins d'énergie (moins de 1 % de la production de la centrale). En revanche, le prix de la chaux rend le procédé peu économique pour les combustibles chargés en soufre. L'efficacité moyenne est de 85% , valeur un peu faible mais en général suffisante dans le cas des combustibles peu soufrés. Le tableau (I-11) résume le coût des procédés semi-secs et humides (PREDICK, 1982).

Tableau (I-11): Coûts des procédés humides et semi-sec,  $10^6$  \$. Le charbon brûlé contient 0,5 % S.

Coûts des procédés de désulfuration	300 MW <sub>th</sub>		750 MW <sub>th</sub>	
	Semi-sec	Humide	Semi-sec	Humide
Coût de construction	50	55	105	96
<b>Coût de fonctionnement</b>				
Energie et auxiliaires (pompes,buses, ..... etc)	5,6	6,4	12	13
Réactif	14,2	7,1	29,6	14
Exploitation et maintenance	40,8	52,6	49,8	61,6
Coût total	110,6	121,1	196,4	184,6

La figure (I-11) présente le coût total des unités de désulfuration des gaz par voie humide et semi-sèche en fonction de leurs puissances thermiques (PREDICK, 1982), les résultats relatifs au coût des procédés semi-secs pour les chaudières de puissance de 500 MW<sub>th</sub> ont été confirmés par FELSVANG et coll. 1983.

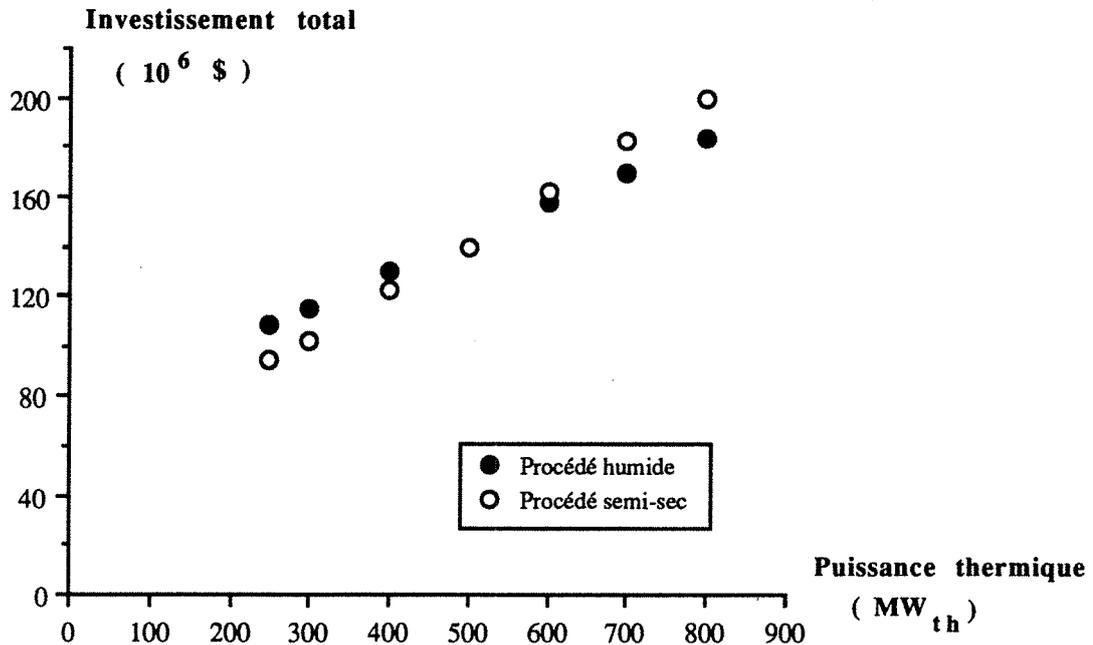


Figure (I-11) : Coût total en fonction de la puissance thermique des procédés humides et semi-secs.

Pour des unités de puissance inférieure à 400 MW<sub>th</sub> les procédés par voie semi-sèche sont plus économiques que les procédés humides. En revanche, au delà de 600 MW<sub>th</sub> les procédés par voie humide deviennent plus économiques.

#### I.3.3.4.1. Quelques procédés semi-secs

Parmi les procédés d'absorption semi secs, on peut citer :

- procédé "Teller" : (Société AAF)

Les gaz entrent dans un réacteur comprenant deux parties :

- un réacteur où la suspension de chaux ou de carbonate de sodium est pulvérisée. Le gaz et le réactif basique circulent à co-courant vers le haut de la colonne.

- un venturi sec dans lequel se poursuit la réaction de neutralisation. Quant aux produits de la réaction, des électrofiltres ou des filtres à manches sont installés en aval de l'absorbeur afin de capter les particules fines portées par le gaz.

**- procédé DBA : (Société Buttner)**

Le réacteur est à pulvérisateurs de suspension de lait de chaux. Le gaz et le réactif circulent de haut en bas à co-courant. Les poussières sèches sont recueillies à la base du réacteur.

**- procédé Dry Pac : (Société Flakt)**

Le lait de chaux et les gaz circulent de haut en bas, également à co-courant. Les poussières sèches sont recueillies à la base du réacteur.

**- procédé par atomisation : (Sociétés Niro Atomizer et Lurgi)**

La suspension d'hydrate de chaux est atomisée au sommet d'une tour et les deux phases circulent de haut en bas à co-courant. L'atomisation assure un contact intime gaz/réactif meilleur que celui obtenu par pulvérisation.

*1.3.3.5. Autres procédés de désulfuration des fumées*

**1.3.3.5.1. Procédés par absorption physique sur charbon actif**

La société Bergbau Forschung GmbH a développé un procédé dans lequel le gaz à traiter non dépoussiéré passe sur un lit mobile de grains de charbon activé vers 140 °C. Le SO<sub>2</sub> adsorbé forme avec l'oxygène de l'air et l'eau de l'acide sulfurique. Le charbon est régénéré vers 600 °C, libérant l'anhydride sulfurique (SO<sub>3</sub>), lui-même réduit en SO<sub>2</sub> par le carbone. Des pilotes ont fonctionné aux États-Unis et en Allemagne. Une unité industrielle est prévue en Allemagne (CITEPA, 1985).

**1.3.3.5.2. Procédé par faisceaux d'électrons**

La société japonaise (Ebara International) a mis au point un procédé qui consiste à injecter de l'ammoniac dans les gaz de combustion que l'on soumet ensuite à l'action ionisante d'un faisceau d'électrons (PALAZZOLO et coll., 1983). On obtient du sulfate et du nitrate d'ammonium valorisables comme engrais. Le "Department of Energy" des États-Unis a été intéressé par ce procédé, ainsi que plusieurs compagnies privées américaines. Concord

Scientific Corp.(Toronto) annonce un procédé analogue mais utilisant des rayons ultra-violetts au lieu d'électrons. L'avantage est de ne pas avoir besoins de protection particulière comme dans le cas de rayonnements X.

#### **I.4. CONCLUSION**

L'étude bibliographique précédente permet de connaître les principaux procédés de désulfuration des combustibles. Ils peuvent être classés en trois techniques différentes : désulfuration avant ou pendant ou après la combustion des combustibles.

Le traitement des combustibles solides et liquides avant la combustion est une solution intéressante. Toutefois de nos jours, l'élimination du soufre ne peut guère dépasser 50 % du soufre total contenu dans les combustibles. Cette technique a donc un effet limité et nécessite la poursuite d'autres traitements. De plus, très rares sont les combustibles solides ou liquides capables de satisfaire aux valeurs limites des installations de 300 MW<sub>th</sub> et plus. En conséquence, la réduction de pollution ne peut être obtenue avant la combustion qu'en utilisant un combustible moins polluant tel que le gaz naturel.

Par ailleurs, avec les différentes techniques de désulfuration pendant la combustion, bien que l'efficacité du lit fluidisé avec recirculation des solides puisse dépasser 90 %, son fonctionnement reste quelquefois délicat. L'efficacité de la technique d'injection du réactif alcalin reste inférieure à 60 % mais elle présente l'avantage d'un investissement initial modéré. Dans tous les cas, les déchets obtenus avec la désulfuration pendant la combustion se composent en majorité de sulfate. Le problème du stockage des déchets reste difficile surtout si le rapport Ca/S est élevé et si les combustibles sont pauvres (forte teneur en cendres).

#### **I.5. OBJECTIF DE NOTRE ETUDE**

L'étude des traitements des effluents gazeux après la combustion permet de cerner les principaux avantages et inconvénients des trois types de procédés.

Les procédés de désulfuration par voie humide sont relativement performants mais ils réclament de lourds investissements. De plus, ils font apparaître un rejet liquide difficile à éliminer et/ou à stocker.

Le traitement par voie sèche est moins efficace que le traitement par voie humide et il nécessite des appareils à temps de contact plus élevés fonctionnant à des températures supérieures à

300°C. Toutefois, il conduit à un rejet solide facilement stockable. Pour les petites puissances, les procédés semi-secs sont plus économiques en investissement que les procédés humides. Ils consomment moins d'énergie et sont pratiquement aussi efficaces que les procédés humides. Néanmoins dans les procédés semi-secs la pulvérisation ou l'atomisation de la solution ou de la suspension réactionnelle est primordiale et le temps de contact doit être suffisant. La géométrie de l'appareil de traitement joue un rôle important pour espérer obtenir en amont des filtres à manches des taux d'absorption de SO<sub>2</sub> de l'ordre de 60 à 80 %.

Le tableau (I-12) est une tentative de classement des procédés de traitement des effluents gazeux de combustion contenant SO<sub>2</sub>. Le trajet vertical "voie humide, voie sèche, voie semi-sèche, etc..." traduit le souci de réduire la consommation d'eau et plus généralement la quantité de rejets liquide et solide. Le déplacement de gauche à droite dans le tableau (I-12) traduit les tentatives envisagées pour résoudre le problème des rejets .

Tableau (I-12) : Classification des principaux procédés de désulfuration des gaz de combustion.

Type du procédé de désulfuration	A rejet	Avec valorisation des résidus	Régénératifs (donnant SO <sub>2</sub> ou S ou H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> )
<p><b>Procédés par voie humide</b></p> <p>Lavage des gaz refroidis après dépeussierage par une suspension ou une solution alcaline</p>	<p>Carbonate de calcium Chaux Carbonates de sodium naturels (USA) Cendres volantes alcalines (Dual-Alkali) au sulfite de sodium. Le rejet est du sulfate de calcium</p>	<p>Production de gypse (Shiyoda et S.H.L) Sulfate de sodium pour verrerie, industrie du papier (procédés Mitsui et Evergreen, Japon) Sulfate d'ammonium + nitrate d'ammonium pour engrais (Walther, France) Sulfate d'ammonium pour engrais (MKK, Japon) Bisulfite d'ammonium pour pâte à papier (Air-Industrie)</p>	<p>Sulfite de sodium (Welman Lord) Ammoniac, soufre, dioxyde de soufre (IFP Stackpol S et SO<sub>2</sub>) Citrate de sodium Magnésie Mg(OH)<sub>2</sub></p>

Type du procédé de désulfuration	A rejet	Avec valorisation des résidus	Régénératifs (donnant SO <sub>2</sub> ou S ou H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> )
<p><b>Voie sèche</b></p> <p>Poudre sèche injectées dans le courant de gaz chauds avant dépolluierage (Procédés efficaces pour HCl et HF, moins efficace pour SO<sub>2</sub>)</p>	<p>Carbonate de calcium</p> <p>Carbonate et bicarbonate de sodium naturels</p> <p>Cendres volantes alcalines</p>		
<p><b>Voie semi-sèche (Spray drying)</b></p> <p>Emploi de suspensions concentrées injectées dans les gaz chauds avant dépolluierage</p>	<p>Chaux en général (Lime)</p> <p>Carbonate de calcium (Limestone)</p> <p>Sels sodiques naturels</p>	<p>Valorisation difficile (mélange de sulfates et cendres)</p>	
<p><b>Oxydation catalytique</b></p> <p>Emploi du charbon actif et lavage à l'eau</p>		<p>Production d'acide sulfurique H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (Bergbau Forschung)</p>	
<p><b>Bombardement électronique en présence de NH<sub>3</sub></b></p>		<p>Production de sulfate et de nitrate d'ammonium (Ebara et Concord Scientific)</p>	

En définitive, si on souhaite avoir la maîtrise complète du soufre contenu dans les combustibles et éviter le rejet de SO<sub>2</sub> dans l'atmosphère on peut affirmer que parmi les trois actions possibles le traitement des gaz de combustion reste de loin le plus efficace. Parmi les trois voies envisageables, les procédés semi-secs semblent intéressants car leur efficacité peut être élevée

tout en aboutissant à un rejet solide limité. C'est pourquoi, dans cette étude nous avons cherché à poursuivre le travail initié par BENACHOUR (1990).

L'absorption du  $\text{SO}_2$  est envisagée dans un dispositif dont un des éléments est un venturi à haute énergie où la phase gazeuse à traiter est mise au contact avec la solution ou la suspension basique réactionnelle (VIRKAR et coll., 1975 et HADJIDAKIS, 1983). Le débit d'enthalpie du gaz et le débit d'eau sont choisis pour permettre une évaporation de l'eau (KHARRAT, 1986) et conduire à un résidu sec. L'utilisation d'un venturi pour assurer la dispersion et les contacts gaz-liquide-solide n'est pas originale en soi puisque certaines études antérieures concernant les procédés humides (ATAY et coll., 1987, RAVINDRAM et coll., 1986, ROBERTS et coll., 1981 et LEITH et coll., 1985) et semi-secs (BERTON, 1987) mettent en œuvre un venturi à jet ou à haute énergie.

Notre recherche est donc une optimisation d'un dispositif à base d'un venturi et un approfondissement de sa connaissance en vue de son utilisation à l'échelle industrielle.

## **Chapitre II**

### **MONTAGES EXPERIMENTAUX**

Les dispositifs étudiés sont constitués par une association en série d'un venturi haute énergie avec une colonne vide et un cyclone. L'association du venturi et du cyclone dont le but essentiel est d'assurer une séparation du solide ou du liquide contenus dans la phase gazeuse constitue le dispositif A.

Afin d'accroître le temps du contact gaz-liquide, une colonne cylindrique vide est placée en aval du venturi. Dans le deuxième dispositif B, le venturi horizontal débouche à la base de la colonne disposée verticalement. Dans le troisième dispositif C, le venturi et la colonne sont verticaux et l'écoulement des deux phases est à co-courant descendant. Les schémas des dispositifs expérimentaux sont présentés respectivement sur les figures (II-1), (II-2) et (II-3). Les volumes respectifs des dispositifs A, B, C sont : 14,14 l, 93,22 l et 82,203 l.

Rappelons que les dispositifs A et B sont similaires à ceux étudiés par BENACHOUR (1990). En revanche, le dispositif C est celui que nous avons plus particulièrement examiné dans cette recherche dans la mesure où il permet, comme nous le verrons ci après, d'atteindre des performances très supérieures à celles des deux précédents dispositifs.

Les mesures sur les dispositifs expérimentaux ont été effectuées avec deux venturis  $V_1$  et  $V_2$ . Le diamètre du col du venturi  $V_2$  est égal à 1,17 fois le diamètre du col du venturi  $V_1$ . Un ventilateur alimente le dispositif en air. Le débit d'air  $Q_G$  a été compris entre 85-120 Nm<sup>3</sup>/h.

Un réchauffeur muni d'une régulation de température P.I.D assure le chauffage du gaz d'alimentation.

Une pompe péristaltique de type VERDER alimente les dispositifs en eau ou en solution de soude ou en suspension de chaux.

L'eau, la solution de soude ou la suspension de chaux sont introduites en amont du col du venturi par l'intermédiaire d'une buse dont le diamètre de l'orifice est de 1 mm.

Une bouteille fournit l'anhydride sulfureux et la teneur de SO<sub>2</sub> dans l'air d'alimentation a été fixée voisine de 500 ppm (en volume).

A la sortie du dispositif, un cyclone sépare les phases solide et liquide de la phase gazeuse (KOCH et coll., 1977). En aval du cyclone, le gaz traité est auto-aspiré dans un venturi à jet fonctionnant avec une solution diluée d'hydroxyde de sodium (concentration de 0,1 mole environ) dont l'objectif est d'éliminer le SO<sub>2</sub> résiduel.

Pour éviter la formation des dépôts de NaOH au col du venturi à jet, un échangeur de chaleur sous forme de serpentin permet de refroidir la solution réactionnelle et donc d'éviter l'obturation du col du venturi par un dépôt de sel qui provoquerait immédiatement une chute du débit gazeux alimentant le dispositif par suite d'un accroissement de la perte de charge du circuit situé en aval du ventilateur.

- |                                   |  |
|-----------------------------------|--|
| 1 - Réchauffeur                   | 8 - Bac du réactif basique             |
| 2 - Ventilateur                   | 9 - Cuve de recirculation              |
| 3 - Manomètre                     | 10 - Pompe de recirculation            |
| 4 - Débitmètre de SO <sub>2</sub> | T - Prise de température               |
| 5 - Venturi                       | H - Prise d'humidité                   |
| 6 - Cyclone                       | P - Prise d'analyse de SO <sub>2</sub> |
| 7 - Pompe péristaltique           |  |

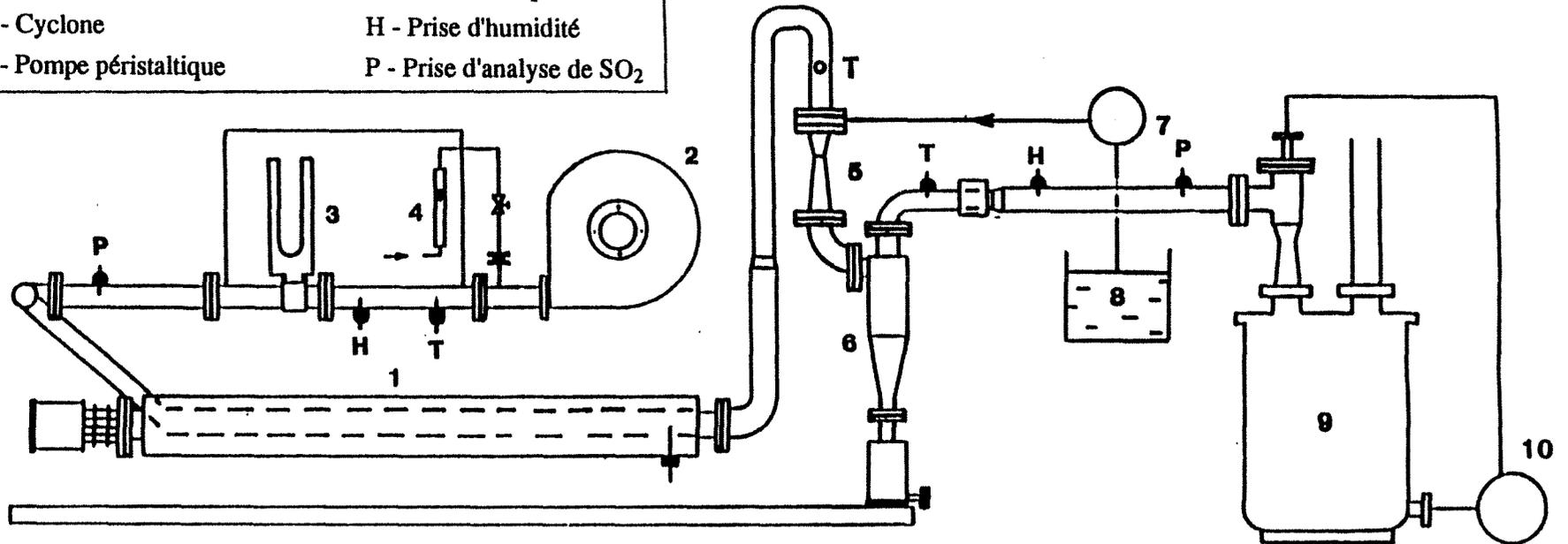


Figure (II-1) : Schéma du dispositif A

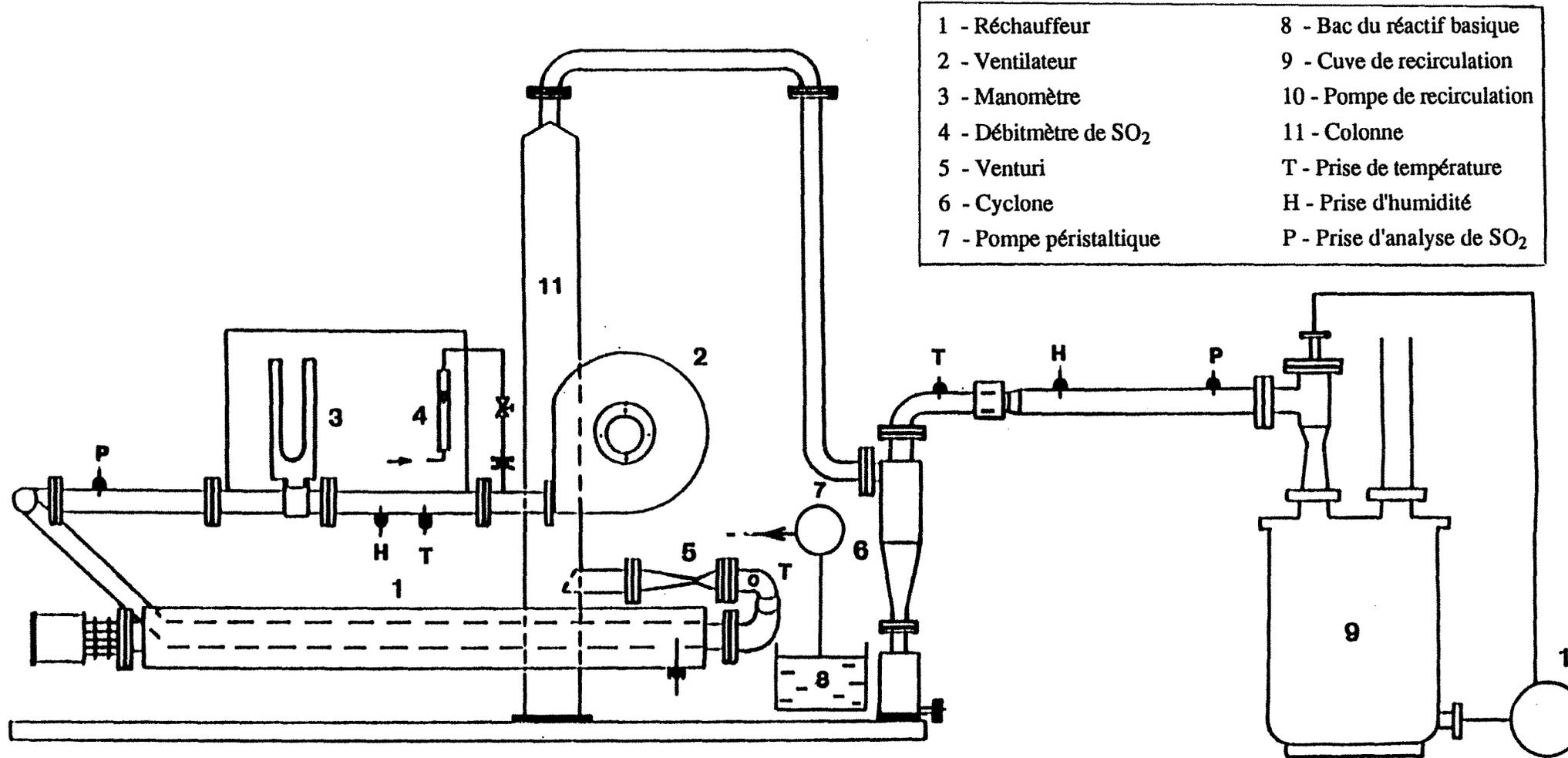


Figure (II-2) : Schéma du dispositif B

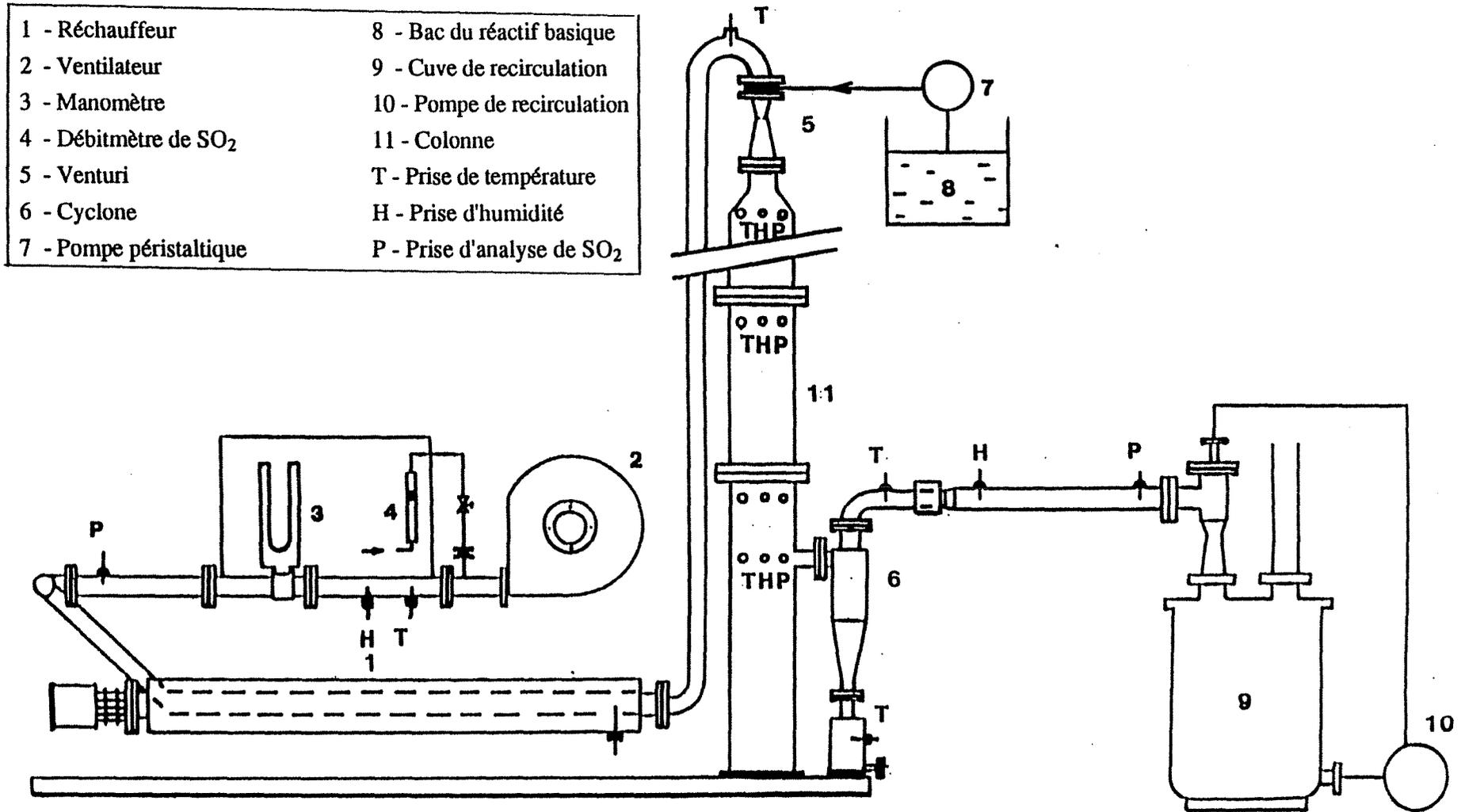


Figure (II-3) : Schéma du dispositif C

Le montage C est muni de prises de températures, d'humidités et de teneurs en  $\text{SO}_2$  à l'entrée du dispositif, à la sortie du venturi (niveau 1), après 25 l (niveau 2) et 49,5 l (niveau 3) et à la sortie du dispositif. Les trois mesures (niveaux 1, 2 et 3) n'ont été faites que sur ce dispositif. Pour les deux autres dispositifs, les grandeurs ne sont mesurées qu'à l'entrée et à la sortie des dispositifs.

La figure (II-4) montre la position des prises de mesure effectuées sur le dispositif expérimental C.

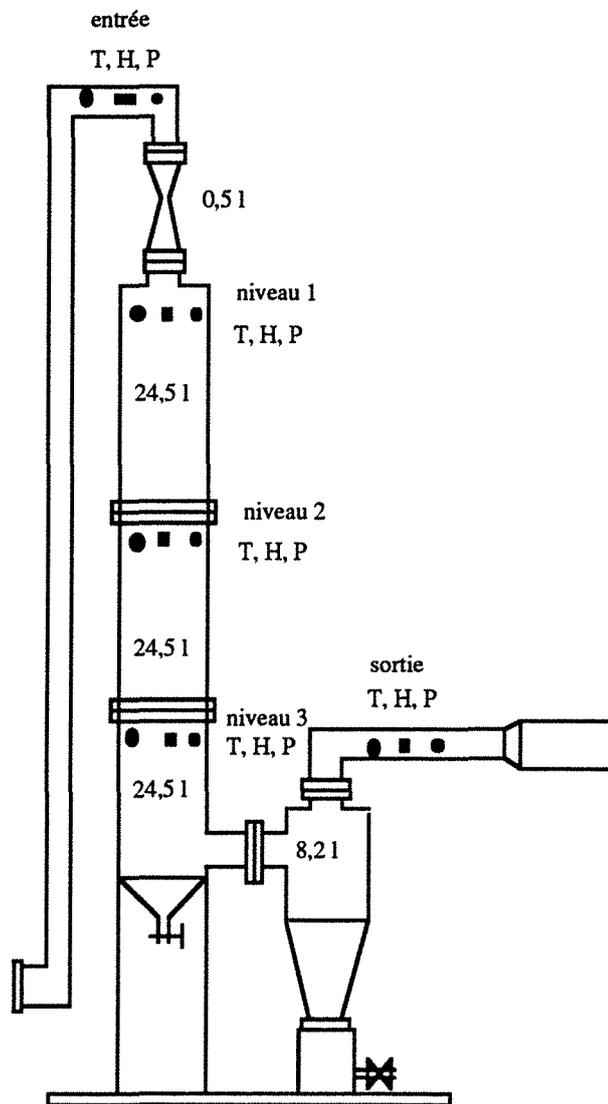


Figure (II-4) : Dispositif C avec les position des prises de température, d'humidité et de teneur en  $\text{SO}_2$

Les grandeurs mesurées sont les suivantes :

- la température de l'air extérieur avant chauffage notée  $T_0$
- la température de l'air chaud à l'entrée du venturi notée  $T_E$
- la température de l'air chaud à la sortie du venturi (niveau 1) notée  $T_1$
- la température de l'air chaud après 25 l de volume du dispositif (niveau 2) notée  $T_2$

- la température de l'air chaud après 49,5 l de volume du dispositif (niveau 3) notée  $T_3$
- la température de l'air chaud à la sortie du cyclone notée  $T_S$
- la température ambiante du laboratoire notée  $T_{ext}$
- la température de l'eau d'alimentation notée  $T_{LE}$

Toutes les températures  $T_0$ ,  $T_E$ ,  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $T_3$ ,  $T_S$  sont mesurées à l'aide de thermocouples du type chromel-alumel, alors que  $T_{LE}$  et  $T_{ext}$  sont obtenues par l'intermédiaire de thermomètres à mercure.

Les thermocouples utilisés pour mesurer les températures  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_3$  sont protégés de l'eau par une couverture métallique en acier inoxydable. Celle-ci est tapissée sur sa paroi intérieure par du téflon. Cette protection permet d'isoler les thermocouples des gouttes d'eau portées par l'air (PAPADAKIS et coll., 1982 et 1988). La figure (II-5) montre le schéma de principe de la protection des thermocouples utilisés.

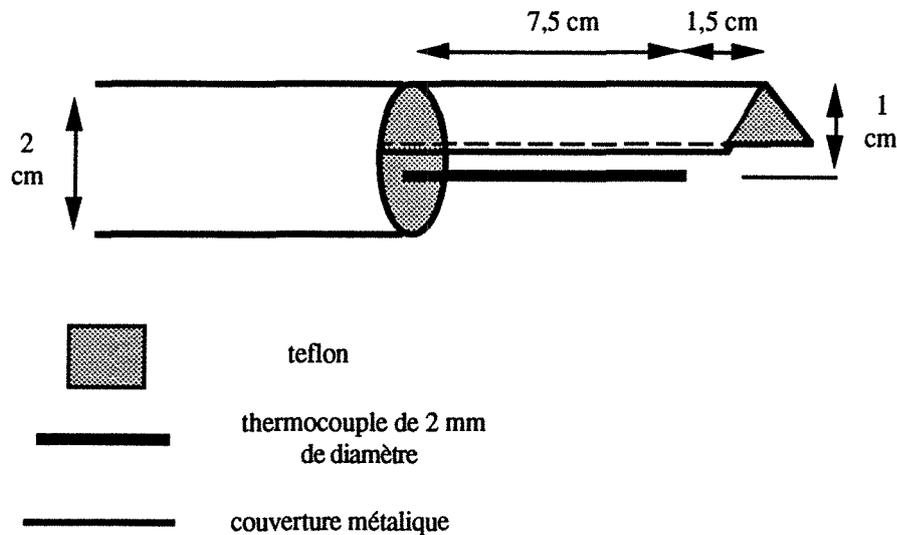


Figure (II-5) : Schéma de principe de la protection du thermocouple

En dehors des températures, on mesure en ppm les teneurs en anhydride sulfureux :

- à l'entrée du dispositif notée  $P_E$
- au niveau 1, notée  $P_1$
- au niveau 2, notée  $P_2$
- au niveau 3, notée  $P_3$
- à la sortie du cyclone, notée  $P_S$

Les teneurs en  $SO_2$  sont déterminées à l'aide d'un analyseur de  $SO_2$  du type BINOS (LEYBOLD-HERAEUS) dont le principe est basé sur une mesure spectrophotométrique par absorption sélective du  $SO_2$  en infrarouge.

Nous mesurons également les grandeurs suivantes :

- l'humidité relative de l'air à l'entrée du dispositif,  $\epsilon_E$ , avec sa température sèche  $t_E$
- les humidités relatives après alimentation d'eau : au niveau 1,  $\epsilon_1$ , au niveau 2,  $\epsilon_2$ , au niveau 3,  $\epsilon_3$  et à la sortie du dispositif,  $\epsilon_S$ , avec leurs températures sèches  $t_1$ ,  $t_2$ ,  $t_3$  et  $t_S$ .

Les humidités relatives et les températures sèches sont lues sur un hygromètre du type VASALA HMP 135 Y, dont le principe est basé sur la variation de la capacité d'un condensateur en film mince de polymère. Grâce aux tables de l'air humide (CETIAT, 1975), connaissant les humidités relatives et les températures sèches, on peut déduire les humidités absolues de l'air à l'entrée du dispositif,  $W_E$ , et au niveau 1,  $W_1$ , au niveau 2,  $W_2$ , au niveau 3,  $W_3$ , et à la sortie du cyclone  $W_S$ .

Quel que soit le dispositif, le protocole expérimental se déroule de la manière suivante. Le débit volumique d'air  $Q_G$  (compris entre 85 et 120 Nm<sup>3</sup>/h) et la température d'entrée du gaz  $T_E$  (comprise entre 160 et 230 °C) étant choisis, on met en route le ventilateur et le réchauffeur. Le régime permanent thermique pour l'écoulement gazeux est obtenu après environ 2 heures. On introduit alors le débit volumique  $Q_L$  ou le débit massique  $L_E$  d'eau. Le régime permanent thermique diphasique gaz-liquide est obtenu après environ 25 à 35 minutes suivant la valeur de  $Q_L$ .

Les figures (I-1), (I-2) et (I-3) de l'annexe I traduisent cette atteinte du régime thermique permanent dans le cas du dispositif C muni du venturi  $V_1$ .

Les figures (I-4), (I-5) et (I-6) de la même annexe correspondent aux températures relevées à différents niveaux sur le dispositif C muni du venturi  $V_2$ .

Après établissement du régime permanent thermique gaz-liquide, nous relevons les mesures hygrométriques et nous recueillons éventuellement le liquide contenu dans le bac de réception (cas du montage A) ou dans le bas de la colonne (cas des dispositifs B et C).

La teneur en SO<sub>2</sub> à l'entrée du venturi  $P_E$  étant fixée, nous coupons l'alimentation en eau et la remplaçons simultanément par une alimentation de la solution de soude ou de la suspension de chaux de concentration déterminée. Nous mesurons la teneur en SO<sub>2</sub> à la sortie du venturi (niveau 1),  $P_1$ , avant le début de la chute du débit gazeux d'alimentation due aux dépôts de solide réactionnel apparaissant au col et dans le divergent du venturi. Pour réaliser la mesure,  $P_2$ , au niveau 2, on arrête le fonctionnement de traitement afin de nettoyer le venturi et le préparer à une autre manipulation. Puis, on recommence les étapes précédentes, le régime thermique de l'air chaud seul, puis avec l'alimentation d'eau ; ensuite les mesures hygrométriques à l'entrée du venturi et au niveau 2 pour accéder finalement à la mesure de la teneur de SO<sub>2</sub> à ce niveau.

Cette chaîne d'opérations est répétée pour le niveau 3 et la sortie de cyclone. A chaque étape la durée d'alimentation de SO<sub>2</sub>, de l'ordre de plusieurs minutes est suffisamment grande vis à vis

du temps de passage de la phase gazeuse dans le dispositif ( $\tau_G$  reste inférieur à 0,34 s pour le dispositif A et à 2,5 s pour les dispositifs B et C) pour que l'on puisse considérer que le fonctionnement de l'absorbeur dans son ensemble a déjà atteint l'état stationnaire correspondant aux conditions opératoires choisies.

Les dispositifs A, B et C sont réalisés en polyester armé de fibres de verre avec une dispersion de noir de carbone dans le polymère. On obtient ainsi un matériau résistant aux acides et conservant une bonne stabilité chimique à des températures légèrement inférieures à 300 °C. Néanmoins, pour maintenir des gradients de température élevés dans le matériau, il s'avère nécessaire de ne pas isoler thermiquement les éléments chauds du dispositif. Par suite, les pertes thermiques avec le milieu extérieur sont loin d'être négligeables. Nous les avons évaluées pour les trois dispositifs expérimentaux dans le cas où l'alimentation gazeuse est effectuée à 200 °C et en absence d'alimentation d'eau.

Les débits d'enthalpie du gaz à l'entrée et à la sortie des dispositifs sont respectivement égaux à :

$$\begin{aligned}\dot{H}_{GE} &= G (C_{P_{\text{air}}} T_E + \Lambda_{(0)} W) \\ \dot{H}_{GS} &= G (C_{P_{\text{air}}} T_S + \Lambda_{(0)} W)\end{aligned}$$

où

G: débit massique d'air sec (kg/s).

W: humidité absolue de l'air (kg d'eau/kg d'air sec).

$T_E$ : a température de l'air à l'entrée du venturi (°C).

$T_S$ : a température de l'air à la sortie du cyclone (°C).

$\Lambda_{(0)}$ : a chaleur latente de vaporisation de l'eau à 0 °C égale à  $2502,36 \cdot 10^3$  J/kg.

$C_{P_{\text{air}}}$ : a chaleur spécifique moyenne de l'air humide égale à  $1,045 \cdot 10^3$  J kg<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup>.

Par suite, le débit de pertes thermiques est tel que:

$$Q = \dot{H}_{GE} - \dot{H}_{GS}$$

et le taux de pertes thermiques:

$$\eta (\%) = 100 \frac{Q}{\dot{H}_{GE}}$$

La figure (II-6) montre le taux de pertes thermiques pour un même débit d'enthalpie alimentant les dispositifs A, B et C.

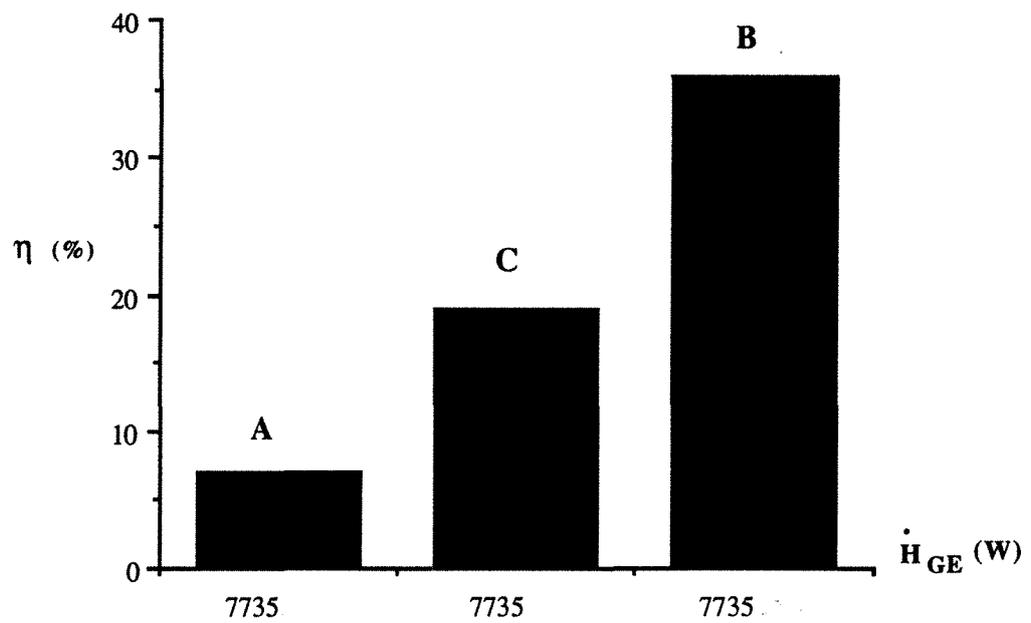


Figure (II-6) : Taux de pertes thermiques en fonction du débit d'enthalpie alimentant les dispositifs A, B, C.  
 ( $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

Le matériau choisi ne permet pas d'envisager une isolation thermique mais il est évident qu'avec un matériau de nature différente (acier inoxydable, par exemple) l'isolation thermique du venturi et surtout de la colonne permettrait d'accroître les performances des dispositifs.

## Chapitre III

### RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.1. ETUDE DES CAPACITES D'EVAPORATION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX .....	58
III.1.1. Introduction	
III.1.2. Détermination du taux d'évaporation	
III.1.3. Résultats expérimentaux et analyse de l'influence de certains paramètres opérateurs et géométriques	
<i>III.1.3.1. Comparaison globale entre les trois dispositifs.....</i>	<i>59</i>
<i>III.1.3.2. Effet du débit liquide d'alimentation en eau pure.....</i>	<i>61</i>
<i>III.1.3.3. Effet du diamètre du col du venturi</i>	
<i>III.1.3.4. Effet du volume géométrique de la colonne associée au venturi.....</i>	<i>62</i>
<i>III.1.3.5. Effet de la position de la buse d'alimentation du liquide .....</i>	<i>65</i>
<i>III.1.3.6. Effet du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi.....</i>	<i>68</i>
III.1.4. Conclusions .....	72
III.2. ETUDE DES CAPACITES D'ABSORPTION DE SO <sub>2</sub> DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX	
III.2.1. Introduction	
III.2.2. Détermination des taux de conversion (ou d'absorption) du SO <sub>2</sub>	
III.2.3. Résultats expérimentaux et analyse de l'influence de certains	

paramètres opératoires et géométriques.....	74
<i>III.2.3.1. Comparaison globale entre les trois dispositifs</i>	
<i>III.2.3.2. Influence du débit volumique d'alimentation en solution ou suspension basique .....</i>	<i>76</i>
<i>III.2.3.3. Influence de la nature du réactif basique .....</i>	<i>77</i>
<i>III.2.3.4. Influence d'un ajout de NaOH dans une suspension d'hydroxyde de calcium .....</i>	<i>78</i>
<i>III.2.3.5. Influence du diamètre du col du venturi.....</i>	<i>80</i>
<i>III.2.3.6. Influence du volume géométrique de la colonne associée au venturi .....</i>	<i>82</i>
<i>III.2.3.7. Effet de la position de la buse d'alimentation de la solution basique.....</i>	<i>83</i>
<i>III.2.3.8. Effet du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi.....</i>	<i>84</i>
<i>III.2.3.9. Effet du rapport stoechiométrique R.....</i>	<i>87</i>
<i>III.2.3.10. Effet de la différence de température ( <math>\Delta T_{SA}</math> ) .....</i>	<i>89</i>
<i>III.2.3.11. Effet du diamètre des particules de <math>Ca(OH)_2</math>.....</i>	<i>90</i>
<b>III.2.4. Comparaison des performances du dispositif C avec certains résultats de la littérature .....</b>	<b>91</b>
<b>III.2.5. Conclusions .....</b>	<b>94</b>

## III.1. ETUDE DES CAPACITES D'EVAPORATION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

### III.1.1. INTRODUCTION

Lors de l'absorption réactionnelle de  $\text{SO}_2$  par un solide alcalin, l'expérience montre que l'humidité du gaz permet d'améliorer considérablement le taux d'absorption de  $\text{SO}_2$  (BLYTHE et coll., 1983). Dans les procédés d'absorption semi-secs, on humidifie le gaz tout en obtenant un résidu solide sec. Il est donc logique de penser que les capacités d'absorption de  $\text{SO}_2$  de ces dispositifs sont étroitement liées à celles d'évaporation (GUSTKE et coll., 1983). C'est pourquoi, dans une première étape on s'est intéressé aux capacités d'évaporation des dispositifs expérimentaux et au rôle de certains paramètres opératoires et géométriques. Ces études ont été réalisées avec une alimentation d'eau pure. Les capacités d'évaporation seront exprimées, soit en fonction des paramètres étudiés, soit en fonction de l'humidité relative de l'air à la sortie du dispositif dans la mesure où le montage ne permet pas toujours de réaliser une analyse indépendante de chacun des paramètres étudiés.

### III.1.2. DETERMINATION DU TAUX D'EVAPORATION

Pour les trois dispositifs munis des venturis  $V_1$  et  $V_2$ , nous avons réalisé différentes expériences pour une gamme de débit d'eau pure comprise entre 2 et 10 kg/h et une température d'entrée du gaz  $T_E$  égale à 200 °C. Pour cette température, la température du mélange gazeux à la sortie du dispositif est proche de la température de saturation adiabatique de l'air d'alimentation mais les humidités relatives restent faibles ce qui permet de penser qu'il sera encore possible d'augmenter les capacités d'évaporation et d'absorption réactionnelle de  $\text{SO}_2$  de ces dispositifs (RANZ et coll., 1952).

En fonction des paramètres étudiés, les débits d'alimentation de gaz (air) sont restés compris entre 85,5 et 120,1  $\text{Nm}^3/\text{h}$ . Pour des conditions opératoires fixées (venturi, température d'entrée, débits massiques d'air chaud et d'eau), les grandeurs mesurées sont :

- les températures  $T_E, T_S, T_{LE}, T_{ext}$  pour les dispositifs A, B, C et les températures  $T_1, T_2, T_3$  pour le dispositif C.
- le débit massique d'eau recueillie dans le bac,  $L_r$ , durant la mise en régime permanent thermique diphasique gaz-liquide,
- l'humidité absolue de l'air à l'entrée  $W_E$  (connaissant  $\epsilon_E$  et  $t_E$ ),
- l'humidité absolue de l'air à la sortie  $W_S$  (connaissant  $\epsilon_S$  et  $t_S$ ).

Par suite, nous évaluons :

- le débit d'eau évaporée :  $L_V = G.(W_S - W_E)$  où  $G$  est le débit massique d'air sec,
- le taux d'évaporation :  $\alpha = \frac{L_V}{L_E}$  où  $L_E$  est le débit massique d'eau alimentée

- l'humidité relative  $\epsilon$  à la sortie du dispositif à la température  $T_S$ , déduite de  $W_S$  et des tables de l'air humide.

### **III.1.3. RESULTATS EXPERIMENTAUX ET ANALYSE DE L'INFLUENCE DE CERTAINS PARAMETRES OPERATOIRES ET GEOMETRIQUES**

#### **III.1.3.1. Comparaison globale entre les trois dispositifs**

Avant d'entreprendre une étude plus détaillée du rôle de certains paramètres, nous comparons dans ce paragraphe les capacités d'évaporation d'eau pure des trois dispositifs munis du venturi  $V_1$  en fonction du débit massique d'alimentation d'eau pure. Le débit d'air varie légèrement en fonction du dispositif mais il reste compris entre 85,5 et 97,67 Nm<sup>3</sup>/h.

Rappelons que le dispositif A est constitué du venturi  $V_1$  placé verticalement et d'un cyclone placé à la sortie du venturi. Son volume géométrique total est de 14,14 litres. Le dispositif B est obtenu en intercalant entre le venturi (horizontal) et le cyclone une colonne verticale alimentée à co-courant ascendant et son volume total est de 93,22 litres. Enfin, dans le dispositif C, le venturi et la colonne sont verticaux et l'alimentation des phases se fait à co-courant descendant. Le volume total du dispositif C est de 82,20 litres.

Les valeurs des taux d'évaporation obtenues dans les trois dispositifs sont résumées dans les tableaux (II-1), (II-2) et (II-3) de l'annexe II.

Les représentations des taux d'évaporation  $\alpha$  et de l'humidité relative  $\epsilon$  en fonction du débit liquide d'alimentation (figures III-1 et III-2) montrent clairement que :

- les capacités d'évaporation du venturi  $V_1$  ne sont pas suffisantes pour assurer une évaporation complète du débit liquide même pour des débits très inférieurs au débit théorique d'eau partiellement évaporable en fonctionnement adiabatique (de l'ordre de 7,5 kg/h, voir annexe IV)
- l'introduction d'une colonne vide entre le venturi et le cyclone permet d'accroître les capacités d'évaporation mais le dispositif B où l'écoulement diphasé subit un changement brutal d'orientation est défavorable vis à vis du dispositif C où les écoulements restent parallèles lorsqu'on passe du venturi à la colonne.

En définitive, le dispositif C est de loin le plus favorable (augmentation de  $\alpha$  et de  $\epsilon$ ). Aussi dans ce qui suit, les influences des paramètres opératoires et géométriques seront étudiées essentiellement sur ce dispositif.

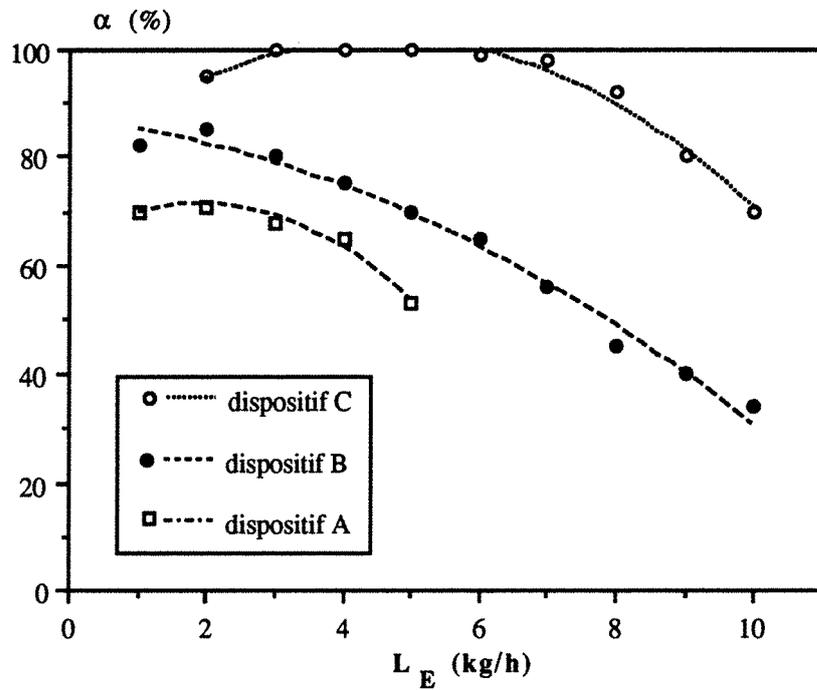


Figure (III-1) : Comparaison des taux d'évaporation pour les trois dispositifs (venturi  $V_1$ ,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=85,5$  et  $97,67$  Nm<sup>3</sup>/h)

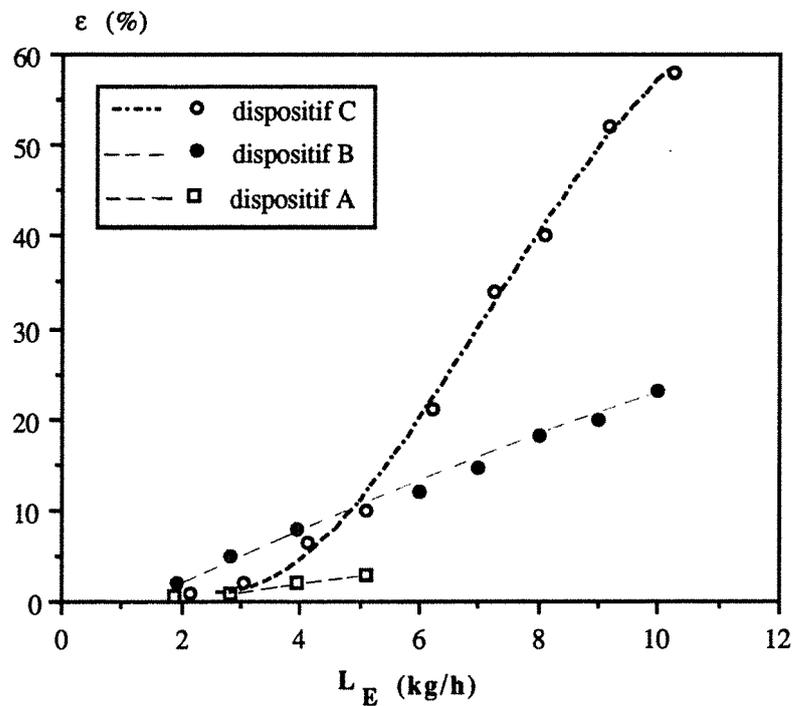


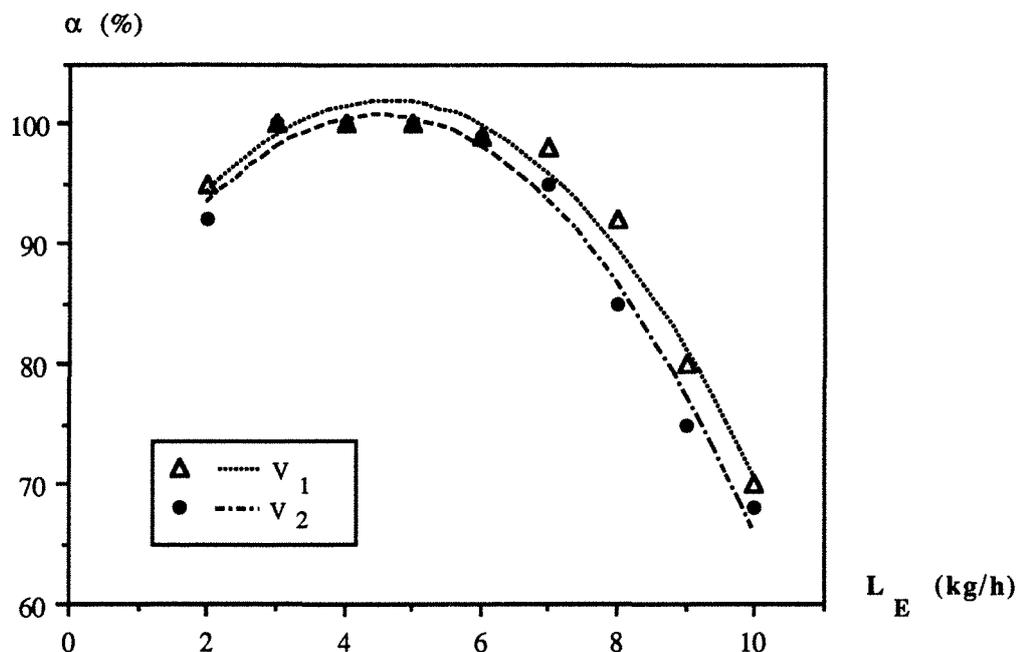
Figure (III-2) : Comparaison des humidités relatives de l'air à la sortie pour les trois dispositifs (venturi  $V_1$ ,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=85,5$  et  $97,67$  Nm<sup>3</sup>/h)

### III.1.3.2. Effet du débit liquide d'alimentation en eau pure

Pour le dispositif C, le débit théorique maximal d'eau pure susceptible d'être évaporé en fonctionnement adiabatique est voisin de 7,5 kg/h (voir annexe IV). La figure (III-1) montre que le taux d'évaporation est voisin de 1 (aux erreurs de mesure près) pour les débits massiques compris entre 3 et 7 kg/h, ce qui confirme la grande efficacité de ce dispositif sur le plan évaporation (voir chapitre IV). Pour les débits liquides inférieurs à 3 kg/h, la capacité d'évaporation est moins importante car dans ces conditions l'alimentation du liquide par la buse ordinaire ne se fait plus par l'intermédiaire d'un jet liquide centré et comme nous le verrons ci-après, le décentrage se traduit par une réduction des capacités d'évaporation. Pour ces débits liquides, il est possible d'accroître les capacités d'évaporation en alimentant le liquide par l'intermédiaire d'une buse de pulvérisation. Toutefois, ceci ne présente pas d'intérêt car, comme nous le verrons plus loin, les capacités d'absorption augmentent avec l'humidité de l'air et on a donc intérêt à faire fonctionner le dispositif avec un débit d'eau le plus voisin du débit maximum d'évaporation adiabatique.

### III.1.3.3. Effet du diamètre du col du venturi

Avec la buse ordinaire B<sub>1</sub>, la pulvérisation du liquide, bien qu'amorcée au niveau de la buse, se fait essentiellement au col du venturi et dépend donc de la vitesse du gaz dans cette zone. Deux séries d'expériences sur les venturis V<sub>1</sub> et V<sub>2</sub> ont été effectuées avec le dispositif C. L'aire du col du venturi V<sub>2</sub> est égale à 1,36 fois celle du venturi V<sub>1</sub>. Les taux d'évaporation correspondants sont résumés dans les tableaux (II-3) et (II-4) de l'annexe II et reportés sur la figure (III-3).



Figure(III-3) : Variation du taux d'évaporation en fonction de la géométrie du venturi.  
( $T_E=200$  °C, dispositif C,  $Q_G=97,67$  et  $111,6$  Nm<sup>3</sup>/h)

Le remplacement du venturi  $V_1$  par le venturi  $V_2$  modifie peu les capacités d'évaporation du dispositif. Cette pseudo indépendance est due à l'action de deux paramètres jouant en sens inverse. Avec le venturi  $V_2$ , le débit d'enthalpie est supérieur ( $Q_{G2} > Q_{G1}$ ) mais la vitesse au col est plus petite ( $\frac{Q_{G2}}{Q_{G1}} < 1,36$ ). Le taux d'évaporation augmentant avec le débit d'enthalpie (BENACHOUR, 1990) et avec la vitesse du gaz au col du venturi (voir plus loin), les deux effets se compensent du point de vue évaporation. En revanche, avec le venturi  $V_1$ , l'humidité relative du gaz est nettement supérieure à celle obtenue avec le venturi  $V_2$  (figure III-4) ce qui est favorable sur le plan absorption. Nous confirmerons ce point ci-après.

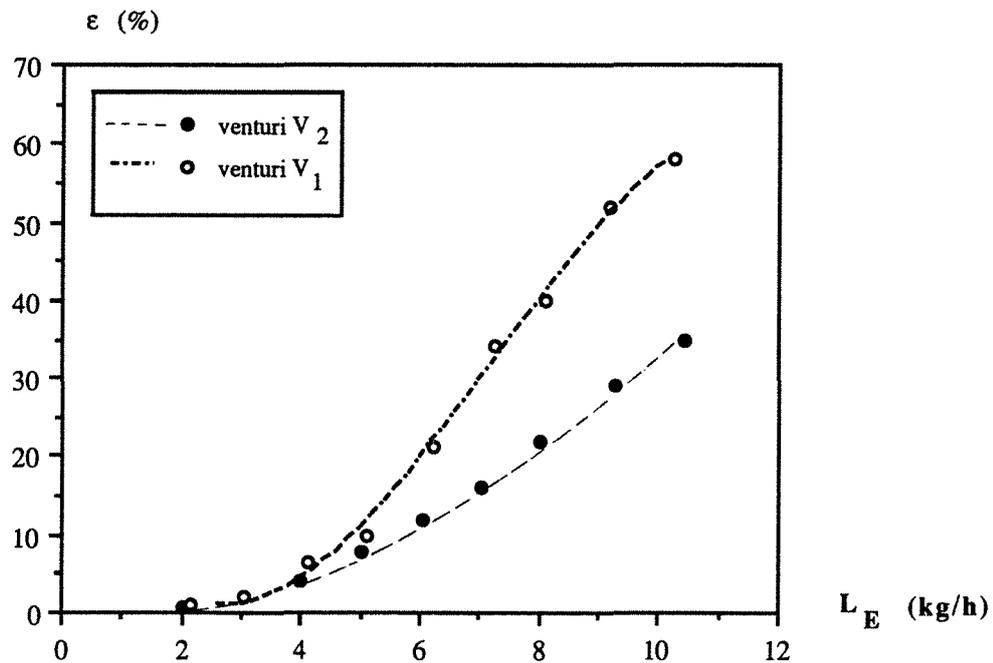


Figure (III-4) : Variation de l'humidité relative de l'air à la sortie du dispositif C muni des venturis  $V_1$  et  $V_2$ .  
 ( $T_E=200$  °C, dispositif C,  $Q_G=97,67$  et  $111,6$   $Nm^3/h$ )

#### III.1.3.4. Effet du volume géométrique de la colonne associée au venturi

La colonne du dispositif C est constituée de trois éléments de volume de 24,5 litres. Les humidités absolues et les teneurs en  $SO_2$  sont mesurées à la sortie des deux premiers éléments et en aval du cyclone. Dans la mesure où le débit d'alimentation d'air dépend des pertes de charge observées dans le dispositif pour préciser l'influence du volume géométrique associé au venturi, nous avons également mesuré les capacités d'évaporation dans deux dispositifs déduits de C en éliminant :

- un élément de colonne de 24,5 litres, soit le dispositif C' (figure III-5-a).
- un élément de volume de 24,5 litres et le cyclone, soit le dispositif C'' (figure III-5-b).

Les taux d'évaporation ont été mesurés sur les trois dispositifs munis du venturi  $V_1$  aux différents points de mesure indiqués sur les figures (III-5-a) et (III-5-b).

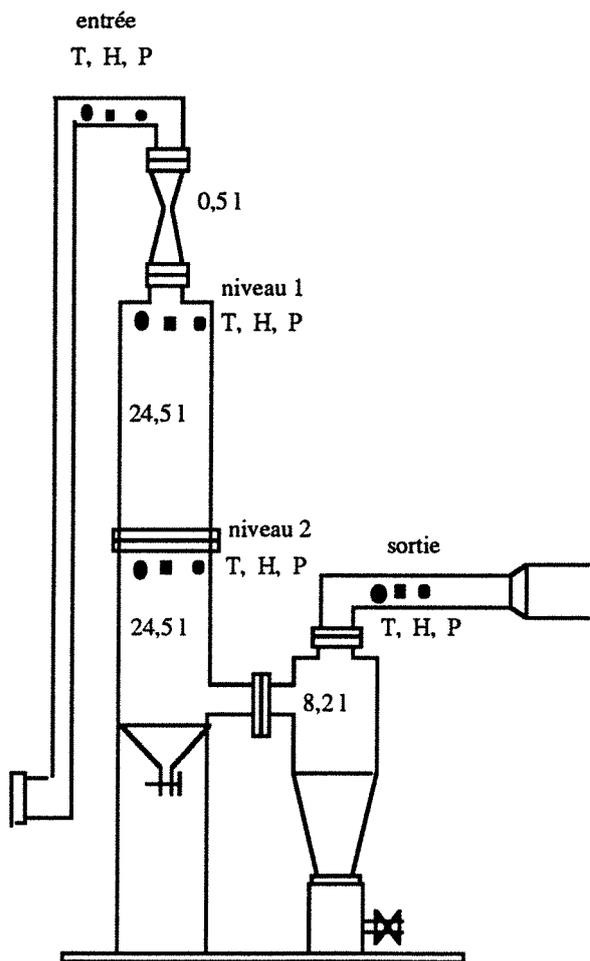


Figure (III-5-a) : Schéma et prises de mesure du dispositif C' (volume total = 57,70 litres) .

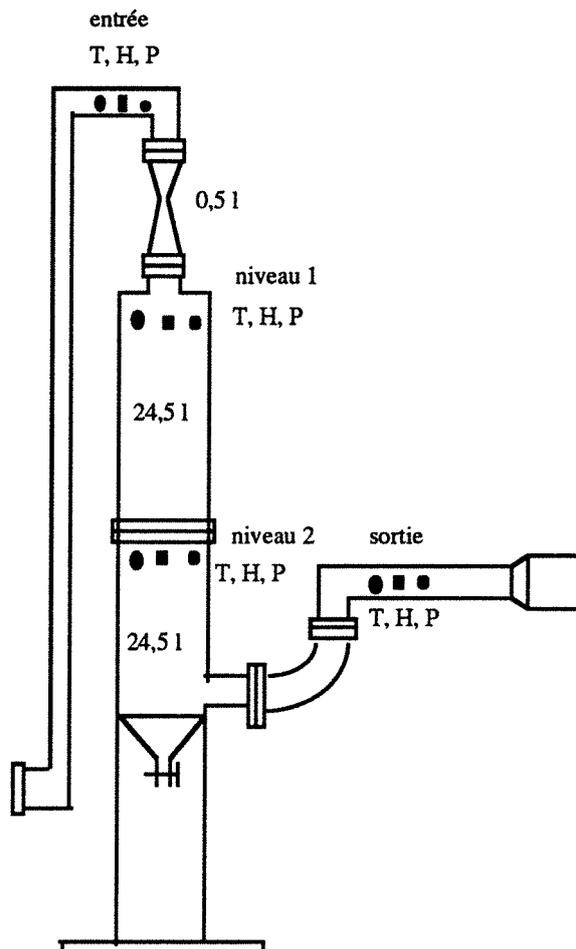


Figure (III-5-b) : Schéma et prises de mesure du dispositif C'' (volume total = 49,5 litres).

Les valeurs des taux d'évaporation obtenues dans les dispositifs C, C' et C'' aux différents points de mesure et pour un débit liquide d'alimentation d'eau pure de 8 litres/heure sont résumées dans le tableau (II-5) de l'annexe II et reportées sur la figure (III-6).

La figure (III-6) et la figure (III-7) donnant l'humidité relative de l'air montrent clairement qu'en réduisant le volume du dispositif C, on améliore le taux d'évaporation car on augmente à la fois le débit d'enthalpie et la vitesse du gaz au sein du venturi. De plus, si l'adjonction d'une colonne de 24,5 litres permet d'accroître notablement les capacités d'évaporation de l'ensemble, il n'en est pas de même pour le deuxième élément de colonne qui, dans les conditions opératoires envisagées pourrait être éliminé. En définitive, pour des conditions de débit de gaz de l'ordre de  $100 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , et une température d'entrée de gaz de  $200 \text{ }^\circ\text{C}$ , le volume géométrique optimal à associer au venturi  $V_1$  ne doit pas être supérieur à 24,5 litres.

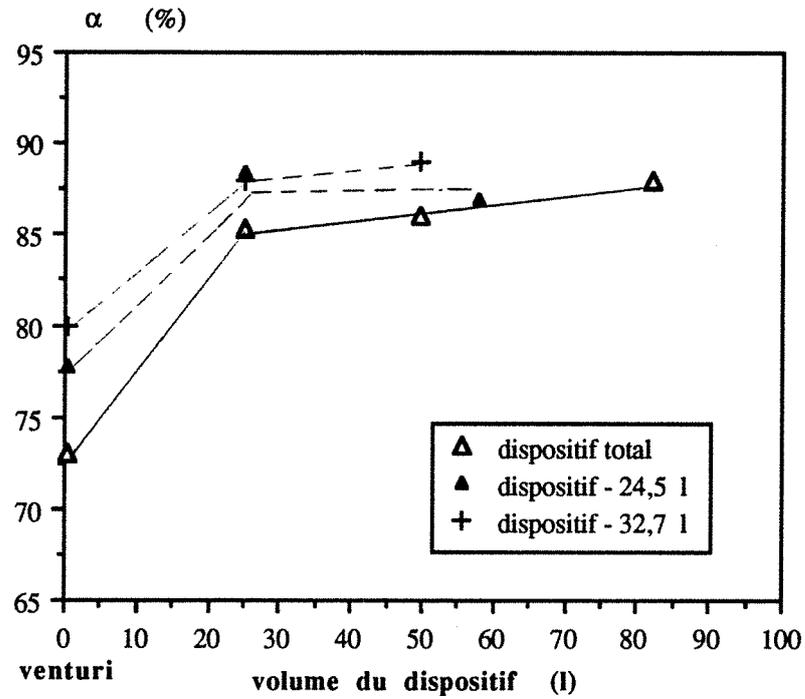


Figure (III-6) : Variation du taux d'évaporation dans les trois dispositifs C, C' et C''  
 ( $Q_G=97,67 - 101 - 103 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ,  $L_E=8 \text{ kg/h}$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ ).

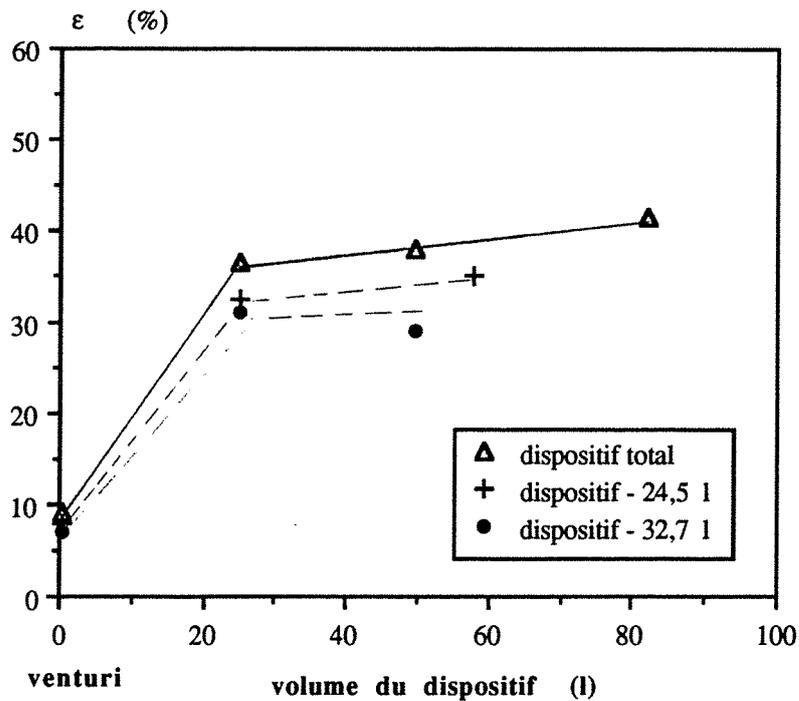


Figure (III-7) : Variation de l'humidité de l'air dans les trois dispositifs C, C', C''  
 ( $Q_G=97,67 - 101 - 103 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ,  $L_E=8 \text{ kg/h}$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ ).

Ce résultat établi dans le cas du débit d'eau pure de 8 kg/h a été confirmé sur le dispositif C pour l'ensemble des débits liquides (tableaux II-6 de l'annexe II et figure III-8).

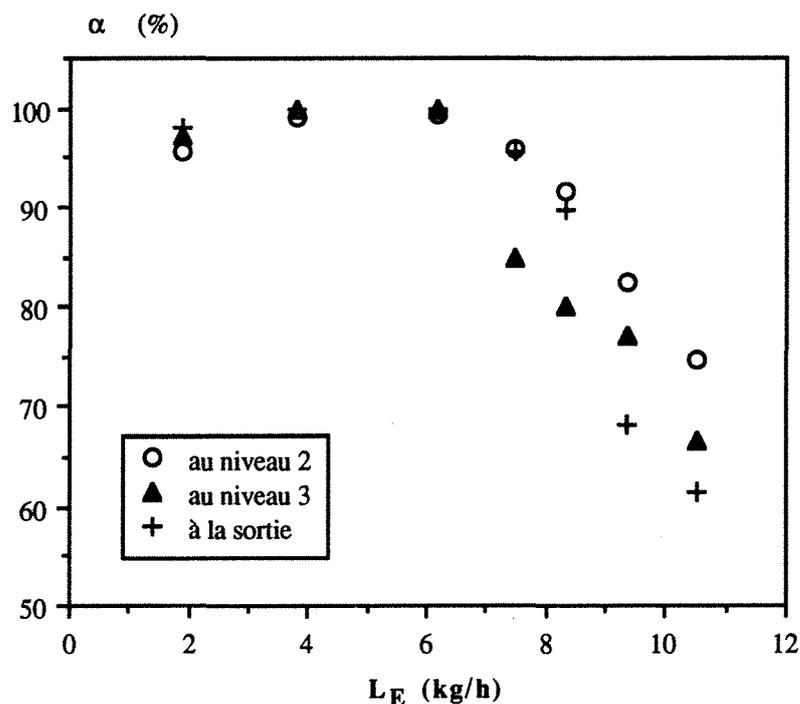


Figure (III-8) : Variation du taux d'évaporation du dispositif C en fonction du débit liquide d'alimentation aux points de mesure 2, 3 et sortie. ( $Q_G=111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_2$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ ).

Tant que le taux d'évaporation est supérieur à 90 %, on n'observe aucune différence entre les capacités du niveau 2 ( $V=25 \text{ l}$ ), du niveau 3 ( $V=49,5 \text{ l}$ ) et celle mesurée à la sortie du dispositif. Pour les débits d'eau supérieurs, on observe une diminution du taux d'évaporation car la vaporisation n'est pas totale et le refroidissement de l'air provoque probablement une condensation et donc une diminution apparente du taux d'évaporation

### III.1.3.5. Effet de la position de la buse d'alimentation du liquide

Diverses expériences ont été réalisées avec le dispositif C muni des venturis  $V_1$  ou  $V_2$  afin de mettre en évidence l'effet de la buse d'alimentation du liquide par rapport au col du venturi sur les capacités d'évaporation.

La buse d'alimentation a été placée :

- soit à 10 cm du col du venturi (figure III-9-a)
- soit à 4 cm du col du venturi (figure III-9-b)



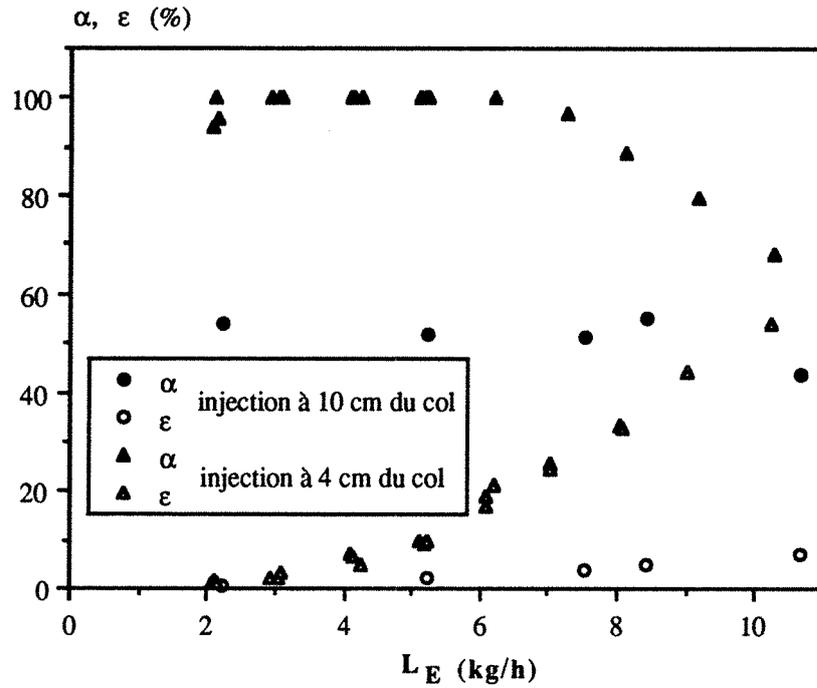


Figure (III-10) : Effet de la position de la buse d'alimentation dans le dispositif C ( $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

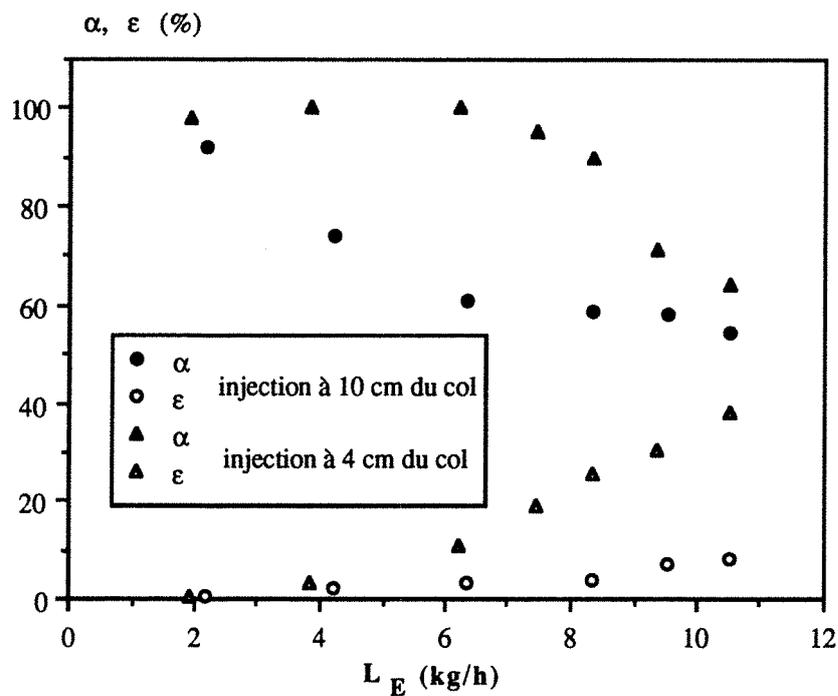


Figure (III-11) : Effet de la position de la buse d'alimentation dans le dispositif C ( $Q_G=111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_2$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

Les valeurs du taux d'évaporation obtenues dans le dispositif C muni du venturi  $V_1$  et de la buse  $B_2$  dont l'orifice est positionné, soit à 10 cm du col, soit à 4 cm du col, données dans les tableaux (II-9) et (II-10) de l'annexe II, sont reportées sur la figure (III-12).

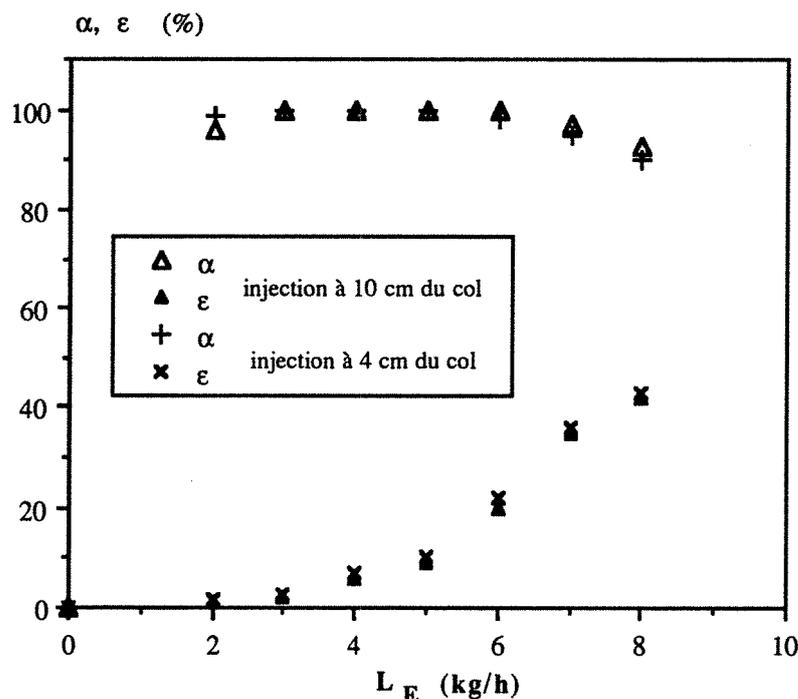


Figure (III-12) : Effet de la position de la buse d'alimentation dans le cas du dispositif C muni du venturi  $V_1$  et de la buse  $B_2$ . ( $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

On constate d'une part, qu'il n'existe aucune différence entre les deux positions de la buse et d'autre part que les résultats d'évaporation sont similaires à ceux obtenus dans le cas d'une buse simple. Le premier point confirme la nécessité d'un bon centrage du jet liquide au voisinage du col du venturi et le deuxième point nous permet d'affirmer que l'essentiel de l'atomisation et de l'évaporation de l'eau se fait au col et en aval du col et que l'alimentation de la solution ou de la suspension peut être effectuée à l'aide d'un simple orifice dont les risques de bouchage sont plus limités en présence d'une suspension.

### III.1.3.6. Effet du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi

Pour les débits de liquide inférieurs à 7 kg/h les taux d'évaporation étant proches de un, nous avons cherché à préciser l'influence du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi avec les débits liquides pour lesquels les taux d'évaporation peuvent devenir inférieurs à 95 %. Pour le dispositif C (volume réduit à 49,5 litres) muni du venturi  $V_1$ , nous avons précisé les taux d'évaporation pour des débits gazeux variables entre 96,32 et 120,09  $\text{Nm}^3/\text{h}$ , la température d'entrée étant fixée à 200  $^\circ\text{C}$ .

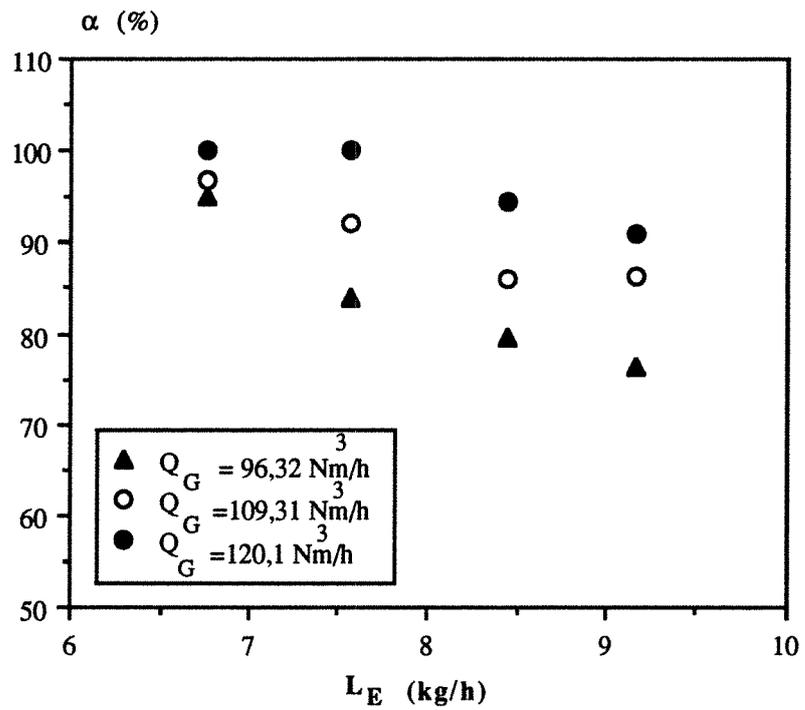


Figure (III-13) : Effet du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi sur le taux d'évaporation du dispositif C muni du venturi  $V_1$ .

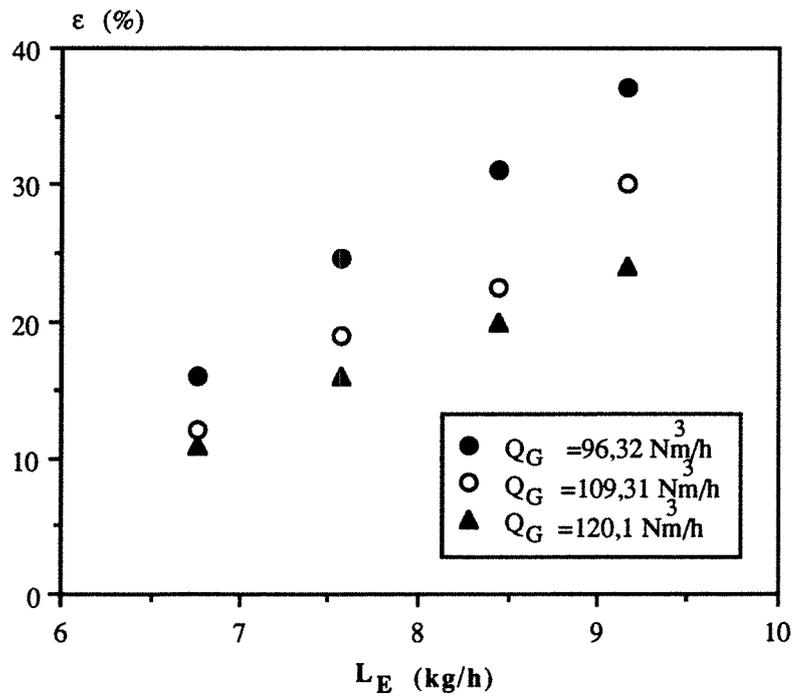


Figure (III-14) : Effet du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi sur l'humidité relative de l'air à la sortie du dispositif C muni du venturi  $V_1$ .

Les valeurs obtenues, résumées dans les tableaux (II-11), (II-12) et (II-13) de l'annexe II, sont reportées sur la figure (III-13).

Lorsqu'on augmente le débit d'enthalpie et la vitesse du gaz au col du venturi, on augmente le taux d'évaporation mais on diminue l'humidité relative du gaz à la sortie du dispositif (figure III-14).

Pour préciser l'influence de la vitesse du fluide au col du venturi, nous reportons sur les figures (III-15), (III-16) les valeurs des taux d'évaporation et des humidités relatives mesurées sur le dispositif C muni du venturi  $V_1$  et  $V_2$  pour des débits d'alimentation gazeux voisins ( $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$  pour le venturi  $V_1$  et  $Q_G=98,93 \text{ Nm}^3/\text{h}$  pour le venturi  $V_2$ ). Les valeurs obtenues sont données dans les tableaux (II-3) et (II-14) de l'annexe II.

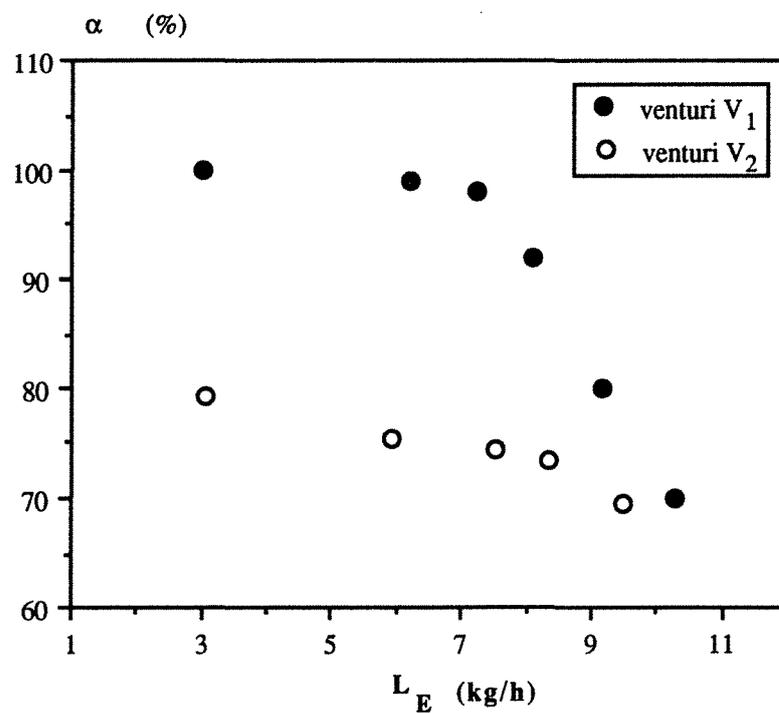


Figure (III-15) : Influence de la vitesse du gaz au col du venturi sur le taux d'évaporation à la sortie.  
(vitesse  $v_{G1}=1,34 v_{G2}$ , venturi  $V_1$  et  $V_2$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ , dispositif C)

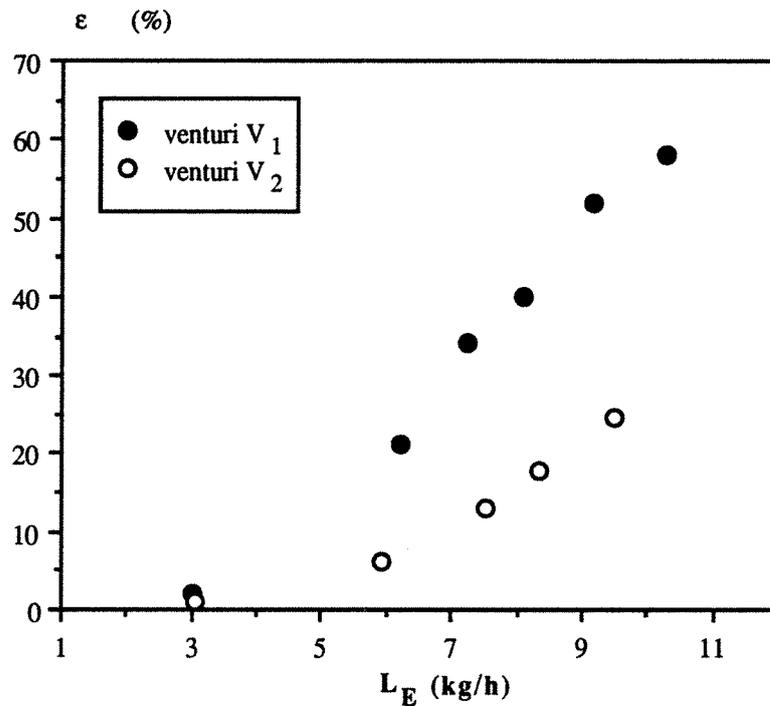


Figure (III-16) : Influence de la vitesse du gaz au col du venturi sur l'humidité relative à la sortie.  
(vitesse  $v_{G1}=1,34 v_{G2}$ , venturi  $V_1$  et  $V_2$ ,  $T_E=200$  °C, dispositif C)

Les figures (III-15) et (III-16) montrent clairement l'influence sensible de la vitesse du gaz au col du venturi sur le taux d'évaporation et l'humidité relative de l'air.

En définitive, si l'on cherche à analyser simultanément l'influence du débit d'enthalpie et de la vitesse au col du venturi sur le taux d'évaporation, on peut dire que l'augmentation de la vitesse au col du venturi est préférable car on peut obtenir le même taux d'évaporation que par un accroissement d'enthalpie tout en produisant un gaz plus humide. Toutefois, la puissance mécanique dégradée augmente très rapidement en fonction de la vitesse du gaz au col du venturi (SEYMOUR, 1970). Ainsi, pour des débits gazeux variables entre 98 et 111 Nm<sup>3</sup>/h, les puissances mécaniques dégradées dans le dispositif C muni respectivement des venturis  $V_1$  et  $V_2$  sont comprises entre 138 et 224 W, 98 et 123 W. Si le dispositif C muni du venturi  $V_1$  est considéré comme optimal pour un débit de gaz à traiter de l'ordre de 98 Nm<sup>3</sup>/h, pour des débits de gaz supérieurs, il faudra accroître le diamètre du venturi car on réduira la puissance mécanique dégradée tout en conservant un taux d'évaporation élevé.

### **III.1.4. CONCLUSIONS**

Pour des conditions opératoires voisines, les capacités d'évaporation augmentent notablement du dispositif A au dispositif C qui permet d'évaporer à plus de 90 % un débit d'eau pure de 8 kg/heure avec une humidité relative de l'air de 40 %. Pour ce même débit, le taux d'évaporation obtenu dans le dispositif B de volume voisin n'est que de 44 %.

Pour le dispositif C, il suffit d'associer au venturi de volume 0,5 l un élément de colonne de 24,5 l pour obtenir un taux d'évaporation maximal. L'adjonction d'un volume supplémentaire ne permet pas d'accroître le taux d'évaporation par suite de la diminution du débit d'air et de l'augmentation des pertes thermiques. .

L'alimentation du liquide dans le dispositif C peut se faire par une buse ordinaire à condition que le jet liquide issu de la buse soit dirigé sur l'axe de symétrie du venturi.

Pour le dispositif C, le choix du venturi  $V_1$  est préférable à celui du venturi  $V_2$  pour un débit gazeux de 97,67 Nm<sup>3</sup>/h car il permet d'augmenter le taux d'évaporation et l'humidité de gaz dans le dispositif.

Signalons que l'évaporateur conçu est d'une grande efficacité puisqu'il permet d'évaporer un débit liquide de l'ordre de 7,3 kg/heure avec un temps de contact du gaz dans le dispositif inférieur à 1 s. Comme nous l'indiquerons ci-après (Chapitre IV), les coefficients de transfert déduits des mesures d'évaporation d'eau pure sont très élevés.

## III.2. ETUDE DES CAPACITES D'ABSORPTION DE SO<sub>2</sub> DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

### III.2.1. INTRODUCTION

Après avoir précisé les capacités d'évaporation des trois dispositifs expérimentaux, nous allons dans ce qui suit présenter leurs performances dans le cas d'une absorption réactionnelle de dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>) dans une solution ou une suspension basique. Il s'agit d'éliminer au mieux le dioxyde de soufre tout en obtenant un résidu sec facilement stockable. Les études expérimentales effectuées nous permettent de préciser également l'influence des paramètres géométriques et opératoires étudiés précédemment sur les capacités d'évaporation.

### III.2.2. DETERMINATION DES TAUX DE CONVERSION (OU D'ABSORPTION) DU SO<sub>2</sub>

Les teneurs en SO<sub>2</sub> exprimées en ppm sont mesurées à l'entrée (P<sub>E</sub>) et à la sortie du dispositif (P<sub>S</sub>) par l'intermédiaire d'un analyseur de SO<sub>2</sub> du type Binos 100 commercialisé par la société Leybold-Heraeus. Connaissant P<sub>E</sub> et P<sub>S</sub>, les débits molaires de SO<sub>2</sub> à l'entrée et à la sortie sont égaux à:

$$F_E = \frac{Q_G P_T 10^{-6}}{22,4 \cdot 10^{-3}} P_E \quad \text{et} \quad F_S = \frac{Q_G P_T 10^{-6}}{22,4 \cdot 10^{-3}} P_S$$

où P<sub>T</sub> est la pression totale dans l'absorbeur supposée constante et égale à 1 atm.

Le taux de conversion, X, de SO<sub>2</sub> est par suite égal à :

$$X = \frac{F_E - F_S}{F_E} = \frac{P_E - P_S}{P_E}$$

La teneur en SO<sub>2</sub> étant fixée à l'entrée (généralement 500 ppm), la mesure de la teneur à la sortie du dispositif (ou en certains points du dispositif) est effectuée juste avant le début de la diminution du débit d'alimentation de la phase gazeuse liée au dépôt de solide apparaissant au niveau du venturi et de la colonne. Le temps de fonctionnement du dispositif est néanmoins suffisant pour que l'on puisse admettre que le fonctionnement du dispositif soit stationnaire. Les études de dépôt et leur influence sur le débit d'air d'alimentation en fonction de la nature du col et du venturi sont présentées dans le chapitre V.

L'absorption réactionnelle de SO<sub>2</sub> sera étudiée avec trois absorbants basiques : NaOH, Ca(OH)<sub>2</sub> et Mg(OH)<sub>2</sub>. Les stoechiométries des réactions de neutralisation s'écrivent respectivement :



Si nous désignons par R le rapport caractérisant l'excès de base par rapport à SO<sub>2</sub> (R=1 pour des débits stoechiométriques), dans le cas le plus général, on a :

$$R = \frac{\text{débit molaire de base}}{v (\text{débit molaire de SO}_2)}$$

Pour les trois bases étudiées v = 1 pour Ca(OH)<sub>2</sub> et Mg(OH)<sub>2</sub> et v = 2 pour NaOH.

En dehors de l'étude de l'influence du rapport R sur le taux d'absorption, toutes les autres expériences sont réalisées dans des conditions où le rapport R est constant et égal à 1,25.

### **III.2.3. RESULTATS EXPERIMENTAUX ET ANALYSE DE L'INFLUENCE DE CERTAINS PARAMETRES OPERATOIRES ET GEOMETRIQUES**

#### **III.2.3.1. Comparaison globale entre les trois dispositifs**

Nous comparons dans ce paragraphe les capacités d'absorption des trois dispositifs munis du venturi V<sub>1</sub>. Les dispositifs sont alimentés par un débit gazeux dont la température d'entrée est de 200 °C et dont le débit, variable légèrement avec le dispositif, est resté compris entre 85,5 et 97,67 Nm<sup>3</sup>/h. La teneur en SO<sub>2</sub> dans l'air d'alimentation est fixée à 500 ppm. L'absorption est réalisée, soit dans une solution d'hydroxyde de sodium, soit dans une suspension d'hydroxyde de calcium. Les concentrations en NaOH et Ca(OH)<sub>2</sub> sont adaptées au débit volumique de liquide et de suspension afin que le débit molaire de base (de 4,77 à 5,45 mole/h pour NaOH et de 2,385 à 2,725 mole/h pour Ca(OH)<sub>2</sub>) permette d'obtenir un rapport R égal à 1,25. Les absorptions sont donc réalisées avec un léger excès de base. Pour des débits volumiques de base compris entre 2 et 10 l/h, les taux d'absorption obtenus dans les trois dispositifs résumés dans les tableaux (III-1), (III-2), (III-3), (III-4), (III-5) et (III-6) de l'annexe III sont reportés en fonction du débit volumique de base sur les figures (III-17) pour Ca(OH)<sub>2</sub> et (III-18) pour NaOH.

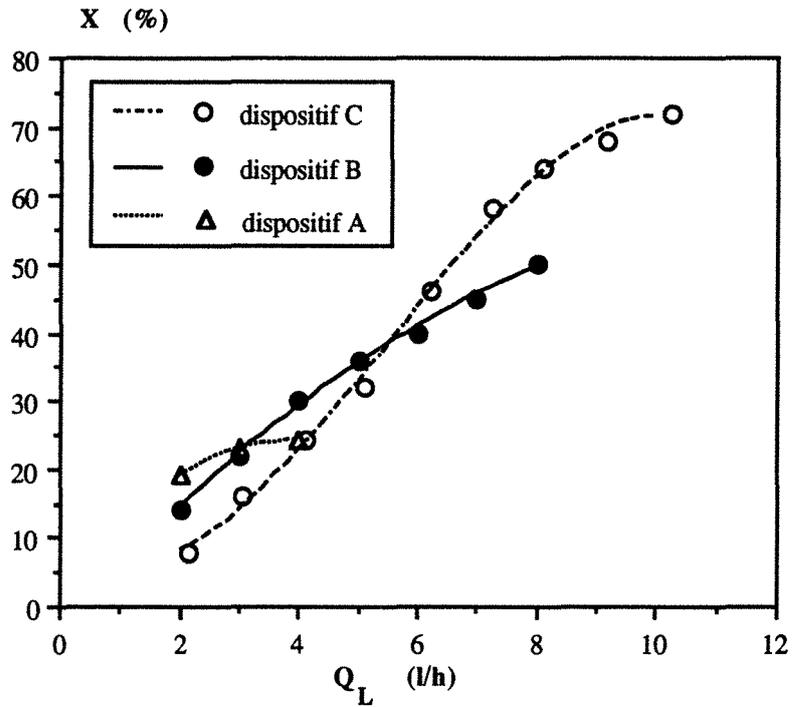


Figure (III-17) : Comparaison des capacités d'absorption des trois dispositifs en présence d'une suspension de  $Ca(OH)_2$ . ( $R=1,25$ , venturi  $V_1$ ,  $Q_G=85,5$  et  $97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

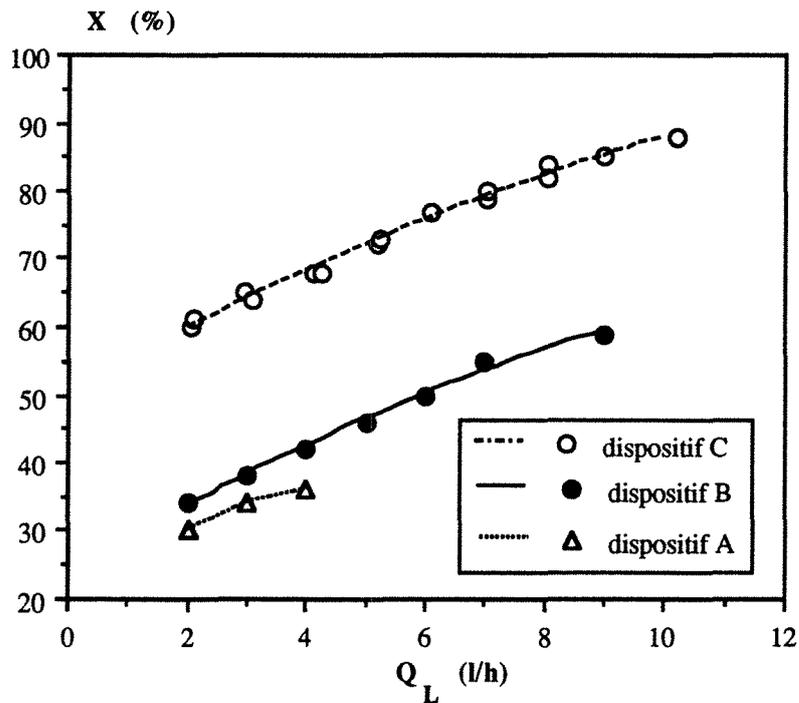


Figure (III-18) : Comparaison des capacités d'absorption des trois dispositifs en présence d'une solution de  $NaOH$ . ( $R=1,25$ , venturi  $V_1$ ,  $Q_G=85,5$  et  $97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

D'une manière générale, le taux d'absorption augmente lorsqu'on passe du dispositif A au dispositif C. Le domaine d'utilisation du dispositif C permettant d'obtenir un résidu solide sec est plus élevé et il induit des taux d'absorption plus élevés dans la mesure où le taux d'absorption augmente avec le débit volumique de la solution ou de la suspension basique. Notons cependant que pour des conditions opératoires identiques, les différences sont plus prononcées dans le cas de la solution d'hydroxyde de sodium. Nous reviendrons sur ce point ci-après.

### ***III.2.3.2. Effet du débit volumique d'alimentation en solution ou suspension basique***

Les points expérimentaux des figures (III-17) et (III-18) montrent clairement que pour le domaine des débits volumiques étudiés (de 2 à 10 l/h) le taux d'absorption de  $\text{SO}_2$  augmente avec le débit volumique d'alimentation du réactif basique. Toutefois les résultats obtenus avec une base essentiellement solide  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ , sont très différents de ceux obtenus avec l'hydroxyde de sodium.

Comme nous le verrons dans l'interprétation des résultats expérimentaux en présence d'une solution basique, l'atomisation du liquide par le gaz conduit à des gouttes dont le diamètre moyen est probablement indépendant du débit liquide. Lorsqu'on augmente le débit d'alimentation, on accroît la rétention liquide et la surface de transfert conformément aux observations de FONTEIX (1978). Par suite, il paraît logique d'observer un accroissement du taux d'absorption. Dans le cas de la suspension basique, la réaction a lieu non seulement sur les gouttes de liquide basique mais également sur les particules solides basiques. Le rapport R étant constant, on peut supposer que la rétention du solide dans l'absorbant est constante et indépendante du débit  $Q_L$ . Une augmentation de  $Q_L$  va non seulement augmenter le nombre de gouttes de solution basique mais aussi l'humidité absolue et relative de l'air extérieur. Or, les auteurs ayant étudié l'absorption de  $\text{SO}_2$  par un absorbant alcalin solide (JOZEWICZ, 1987 et HARTMAN et coll., 1979) ont montré que l'absorption de  $\text{SO}_2$  s'accroît rapidement avec l'humidité du gaz extérieur. Dans ces conditions, l'accroissement du taux d'absorption en fonction du débit volumique de suspension est due aux deux effets précédents et nous pouvons dire que l'effet de l'humidité relative du gaz semble dans le cas de la suspension de chaux beaucoup plus prononcé que celui lié à l'augmentation du volume et de la surface des gouttes de solution basique.

Ces différences de comportement entre les deux réactifs basiques permettent également de comprendre pourquoi dans le cas de la suspension d'hydroxyde de calcium les différences observées sur les trois dispositifs sont faibles. Pour des conditions opératoires fixées, les rétentions solide et liquide sont voisines et l'influence du taux d'évaporation du liquide est faible sur le taux d'absorption. En revanche, dans le cas de la solution d'hydroxyde de sodium,

les capacités d'absorption sont étroitement liées à celles d'évaporation (augmentation du transfert gaz-liquide, diminution de la taille des gouttes etc....) et les différences observées entre les trois dispositifs sont plus prononcées.

### III.2.3.3. Effet de la nature du réactif basique

Avec le dispositif C et pour un débit d'air  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , une température d'entrée  $T_E=200^\circ\text{C}$  et une teneur en  $\text{SO}_2$  de 500 ppm, nous avons mesuré les taux d'absorption pour trois réactifs alcalins : une solution d'hydroxyde de sodium, une suspension d'hydroxyde de calcium et une suspension d'hydroxyde de magnésium. Les deux derniers réactifs sont de loin les plus couramment envisagés pour l'absorption de  $\text{SO}_2$  par voie semi-sèche et sèche. Les résultats résumés dans les tableaux (III-3), (III-6) et (III-7) de l'annexe III sont reportés sur la figure (III-19) en fonction du débit liquide d'alimentation. Toutes ces mesures correspondent à un rapport R égal à 1,25.

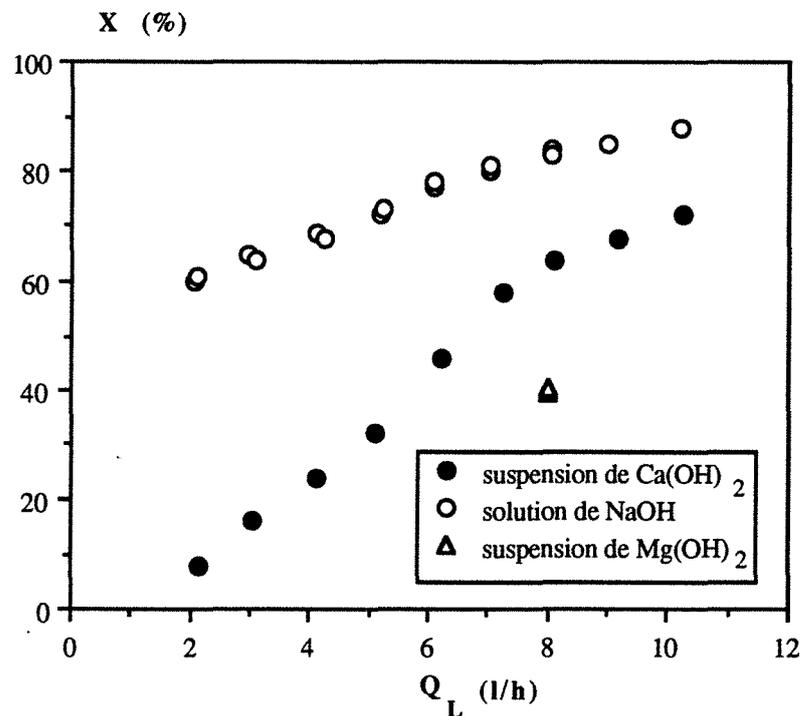


Figure (III-19) : Influence de la nature du réactif basique. ( $R=1,25$ , venturi  $V_1$ ,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $T_E=200^\circ\text{C}$ , dispositif C)

Pour des conditions opératoires identiques, les taux d'absorption en présence d'une solution de soude sont nettement supérieurs à ceux obtenus avec une suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$  et de  $\text{Mg(OH)}_2$ . Les résultats de la soude et de la chaux sont tout à fait conformes à ceux rapportés par JANKURA et coll. (1983). Par contre, les taux de conversion obtenus avec une suspension de  $\text{Mg(OH)}_2$  sont inférieurs à ceux trouvés avec une suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$ . Pourtant

Mg(OH)<sub>2</sub> est considérée comme une base plus active que la chaux (SADA et coll., 1977 et 1983). De plus, ZANE EGAN et coll. (1986) trouvent des valeurs des taux de conversion de SO<sub>2</sub> de l'ordre de 75 % avec une suspension de Mg(OH)<sub>2</sub> dont le rapport stoechiométrique est de 1,25. Ce résultat est probablement dû au temps de séjour du gaz dans leur absorbeur (de l'ordre de 40 secondes) et à l'influence de la dimension moyenne des particules d'hydroxyde (voir ci après).

#### *III.2.3.4. Effet d'un ajout de NaOH dans une suspension d'hydroxyde de calcium*

Les paragraphes précédents montrent que l'augmentation des taux d'absorption de la suspension de chaux peut être provoquée en superposant à la réaction avec la base solide humide la réaction d'absorption avec un réactif soluble comme l'hydroxyde de sodium (ROCHELLE et coll., 1977). L'addition de NaOH à une suspension de chaux a déjà été étudiée par YOON et coll. (1988), qui ont montré un effet favorable. D'autres additifs ont également été envisagés. Ainsi KARLESSON et coll. (1983) et ROCHELLE et coll. (1982) ont mélangé du chlorure de calcium à la suspension de chaux, tandis que LAOHAVICHITRA et coll. (1982) et SADA et coll. (1982) ont ajouté de l'hydroxyde ou du sulfite de magnésium à la suspension de Ca(OH)<sub>2</sub> et de CaCO<sub>3</sub>.

En ce qui nous concerne, nous avons effectué sur les trois dispositifs expérimentaux A, B et C diverses séries d'expériences d'absorption de SO<sub>2</sub> avec une suspension de chaux préparée avec un rapport R=1,25 à laquelle on a ajouté un débit molaire de soude tel que le rapport molaire R

$$R = \frac{\text{débit molaire de soude}}{2 (\text{débit molaire de SO}_2)} \text{ est égal à } 0,15.$$

Les résultats expérimentaux obtenus, résumés dans les tableaux (III-8), (III-9), (III-10) de l'annexe III sont reportés sur les figures (III-20), (III-21), (III-22).

L'influence de la soude est plus prononcée dans le cas des dispositifs A et B pour lesquels les taux d'absorption en présence de Ca(OH)<sub>2</sub> sont faibles. En particulier, pour les dispositifs A et B, on peut atteindre des valeurs voisines de celles trouvées avec une alimentation en soude pure. Pour le dispositif C, l'effet semble moins prononcé mais dans les conditions de ces expériences, la position de la buse (voir plus loin) n'était pas optimale et les écarts entre les deux réactifs basiques (surtout aux petits débits du liquide) étaient faibles. Malgré ces limitations, ces expériences mettent en évidence les deux types d'absorption de SO<sub>2</sub> à savoir l'absorption par des gouttes de base et l'absorption par un solide alcalin poreux. L'addition de soude permet d'accentuer le premier type d'absorption et de se rapprocher des performances observées avec une alimentation constituée uniquement par une solution d'hydroxyde de sodium.

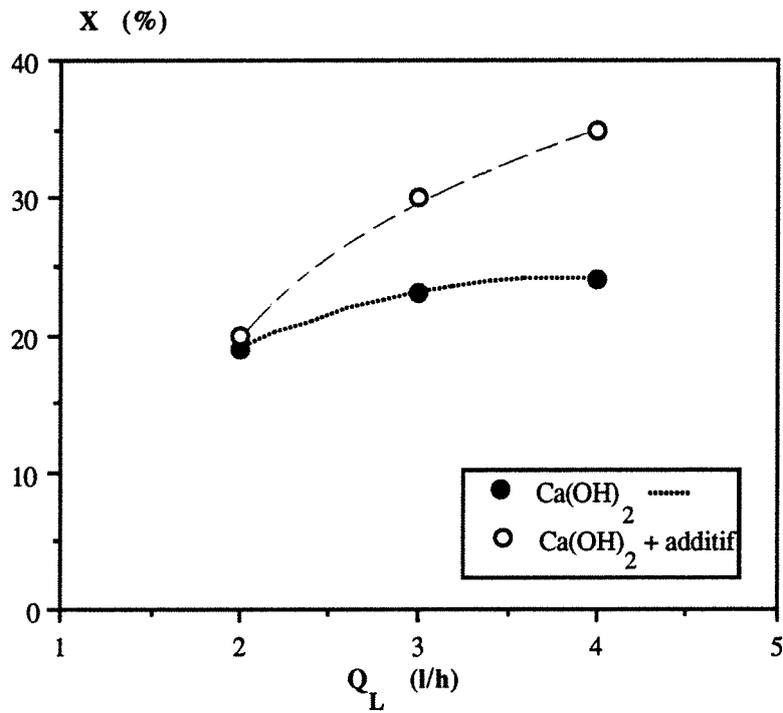


Figure (III-20) : Effet de l'addition de soude sur l'absorption de  $\text{SO}_2$  par une suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$  dans le dispositif A. ( $Q_G = 85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ,  $T_E = 200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

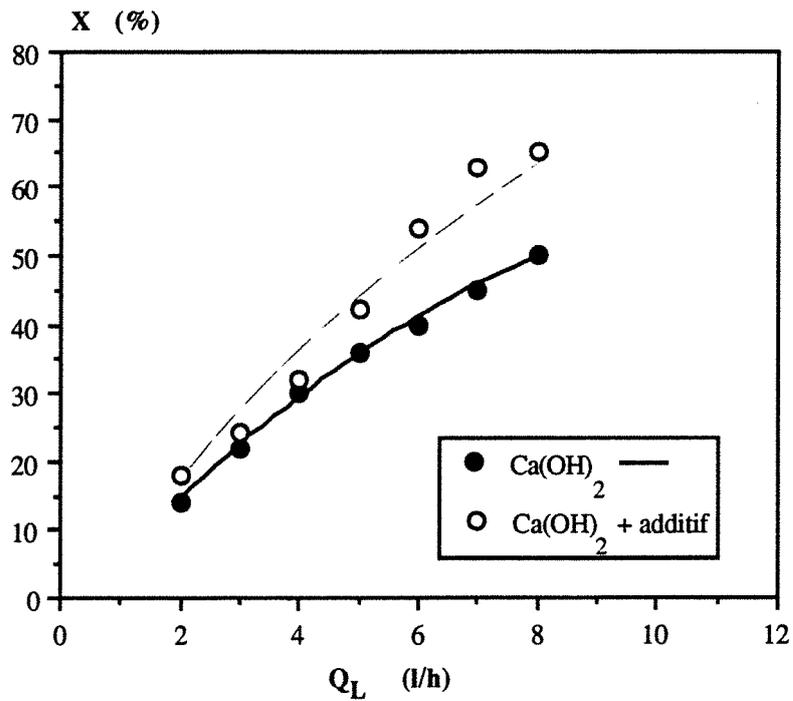


Figure (III-21) : Effet de l'addition de soude sur l'absorption de  $\text{SO}_2$  par une suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$  dans le dispositif B. ( $Q_G = 85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ,  $T_E = 200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

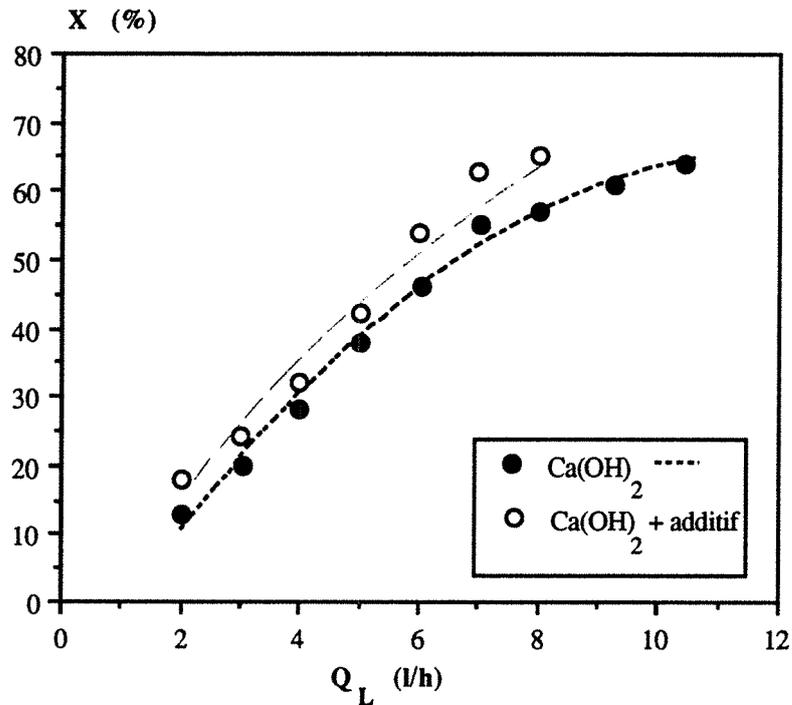


Figure (III-22) : Effet de l'addition de soude sur l'absorption de  $\text{SO}_2$  par une suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$  dans le dispositif C. ( $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

### III.2.3.5. Effet du diamètre du col du venturi

Dans le dispositif C muni des venturis  $V_1$  et  $V_2$ , deux séries d'expériences d'absorption réactionnelle ont été réalisées avec la solution de soude et la suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$ . Les débits volumiques des réactifs basiques ont été choisis entre 2 et 10 l/h et le rapport stœchiométrique R a été maintenu à 1,25.

Les résultats obtenus avec les deux venturis, résumés dans les tableaux (III-3), (III-6), (III-11) et (III-12) de l'annexe III, sont reportés sur les figures (III-23) et (III-24).

En remplaçant le venturi  $V_1$  par le venturi  $V_2$ , on augmente le débit d'enthalpie mais on diminue la vitesse du gaz au col du venturi. Le rôle de la vitesse du gaz au col du venturi semble être plus important que celui du débit d'enthalpie dans le cas de l'hydroxyde de sodium conformément aux résultats observés sur le taux d'évaporation. En revanche, dans le cas de la suspension d'hydroxyde de calcium, les deux effets semblent se compenser et les écarts observés sur le taux d'absorption restent faibles. Toutefois pour les grands débits de liquide, l'augmentation de l'humidité de l'air avec le venturi  $V_1$  semble jouer un rôle prépondérant sur le taux d'absorption de  $\text{SO}_2$  conformément aux observations de BJERLE et coll. (1984), qui indiquent que l'absorption de  $\text{SO}_2$  par la chaux solide  $\text{Ca(OH)}_2$  ne peut se poursuivre qu'au delà d'une humidité relative de l'air supérieure à 20 %.

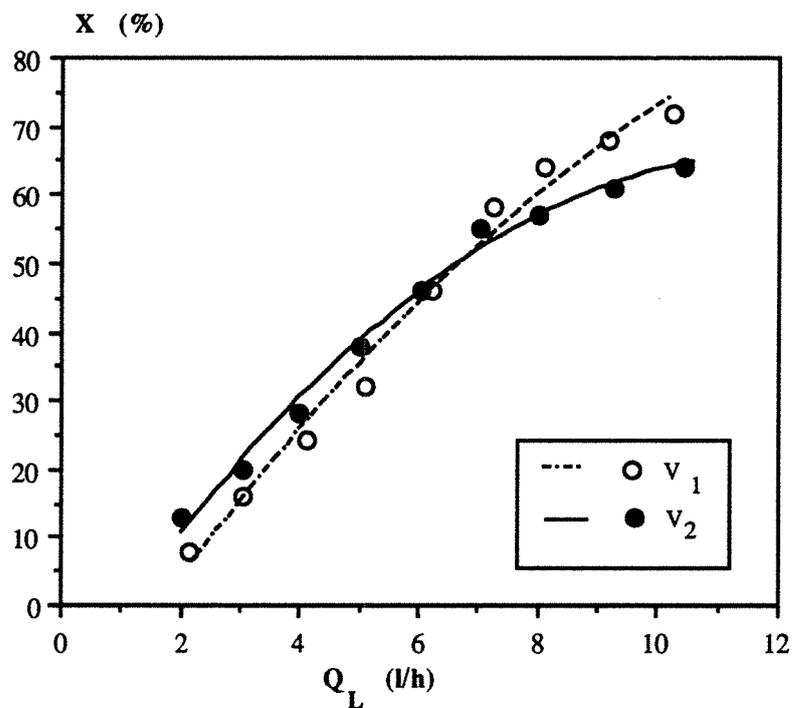


Figure (III-23) : Effet de la géométrie du venturi sur l'absorption de  $SO_2$  en présence d'une suspension de  $Ca(OH)_2$ . ( $Q_G=97,67$  et  $111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$  et  $V_2$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

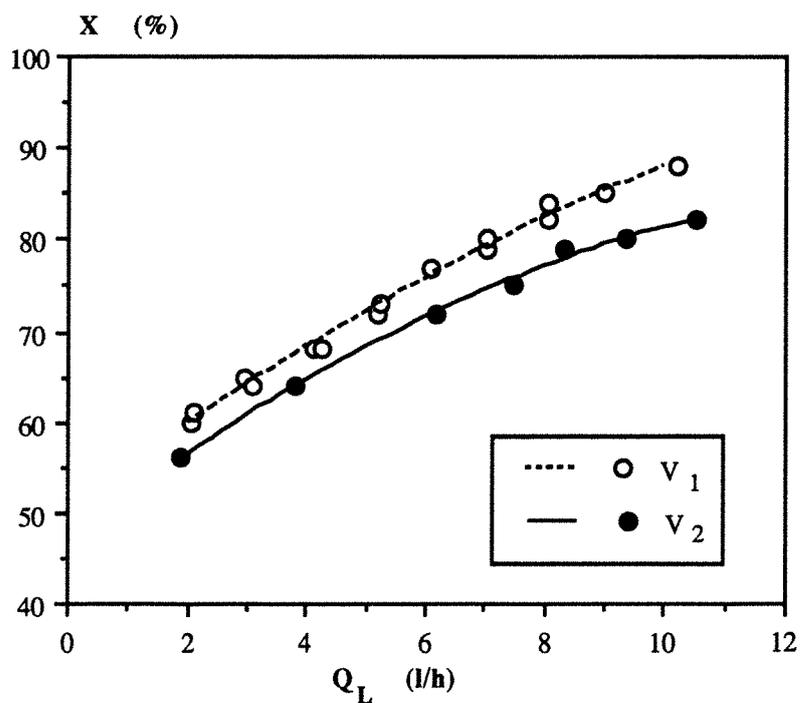


Figure (III-24) : Effet de la géométrie du venturi sur l'absorption du  $SO_2$  en présence d'une solution de  $NaOH$ . ( $Q_G=97,67$  et  $111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$  et  $V_2$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

### III.2.3.6. Effet du volume géométrique de la colonne associée au venturi

Le débit volumique de suspension ou de solution étant fixé à 8 l/heure, des expériences d'absorption sont réalisées sur les trois dispositifs C, C', C'' et les taux d'absorption sont déterminés aux différents points de mesure (4 points pour le dispositif C, 3 points pour les dispositifs C' et C''). Les résultats des mesures, rapportées dans le tableau (III-13) de l'annexe III, sont reportés sur la figure (III-25) en fonction du volume géométrique relatif aux prélèvements.

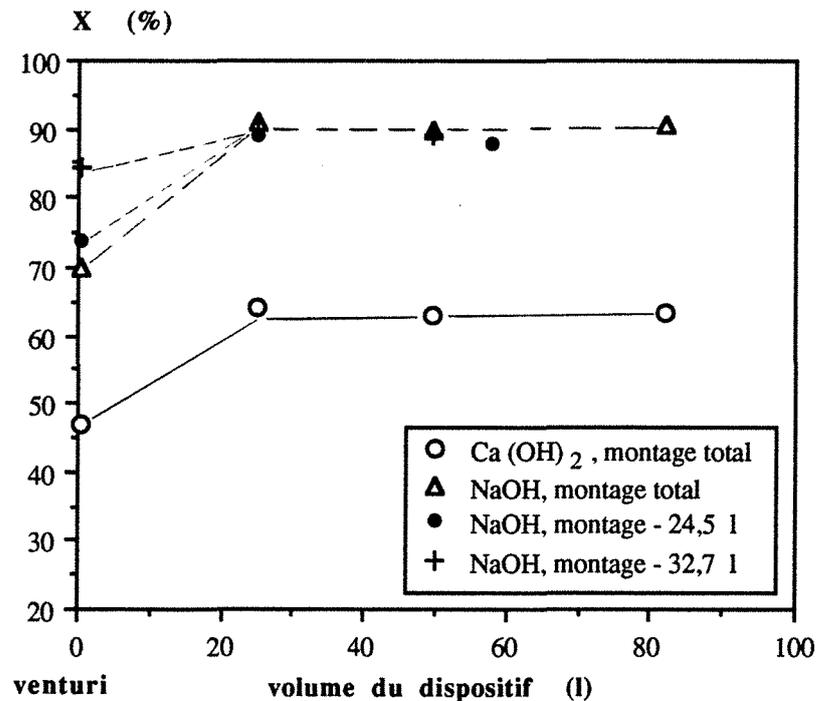


Figure (III-25) : Variation du taux d'absorption de SO<sub>2</sub> dans les trois dispositifs C, C' et C''  
( $Q_G=97,67 - 101 - 103 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ,  $Q_L=8 \text{ l/h}$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

Comme dans le cas de l'évaporation, on constate que le taux d'absorption maximal est atteint dès que le volume de la colonne associée au venturi  $V_1$  est égal à 24,5 l. Cet effet est observé aussi bien dans le cas de la solution d'hydroxyde de sodium que pour la suspension d'hydroxyde de calcium.

En définitive, une bonne partie de l'absorption réactionnelle est réalisée au sein du venturi mais l'adjonction d'un volume de colonne de l'ordre de 24,5 l semble indispensable d'une part pour assurer l'évaporation de l'eau et d'autre part, pour atteindre la valeur maximale du taux d'absorption observée sur le dispositif étudié.

### III.2.3.7. Effet de la position de la buse d'alimentation de la solution basique

Pour le dispositif C de volume total 82,20 l muni du venturi  $V_1$  ou  $V_2$ , nous avons cherché à préciser l'influence de la position de la buse d'alimentation d'une solution d'hydroxyde de sodium sur les capacités d'absorption de  $SO_2$  du dispositif. Comme dans le cas des expériences d'évaporation, l'extrémité de la buse d'alimentation est située soit à 10 cm soit à 4 cm du col. Les résultats obtenus avec les deux venturis, résumés dans les tableaux (III-6), (III-12), (III-14) et (III-15) de l'annexe III sont reportés sur les figures (III-26) et (III-27).

Comme dans le cas de l'étude des capacités d'évaporation, la position à 4 cm du col conduit à des valeurs plus élevées du taux d'évaporation et l'écart est d'autant plus important que le débit liquide d'alimentation est faible et donc que le jet liquide n'est pas d'une part symétrique par rapport à l'axe du venturi et d'autre part, mal pulvérisé à la sortie de la buse.

La dispersion initiale du liquide surtout pour les faibles débits permettrait d'accroître les taux d'absorption. Les effets de cette pulvérisation initiale dans un absorbeur à base de venturi ont déjà été signalés par USHIDA et coll. (1973) et ATAY et coll. (1987), dans le cas d'absorption de  $SO_2$  par une solution de NaOH.

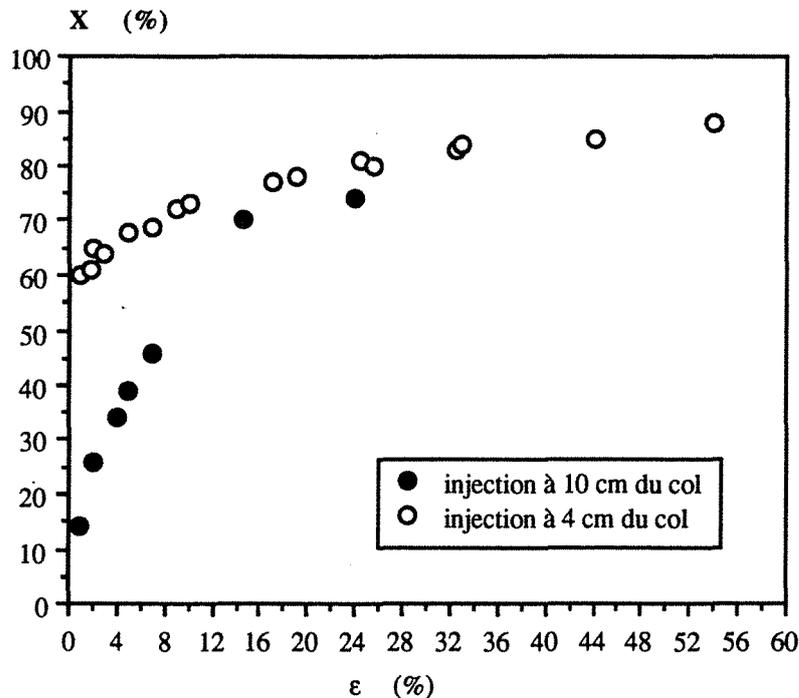


Figure (III-26) : Effet de la position de la buse d'alimentation de NaOH sur l'absorption de  $SO_2$  dans le dispositif C muni du venturi  $V_1$ . ( $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $R=1,25$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ , dispositif C)

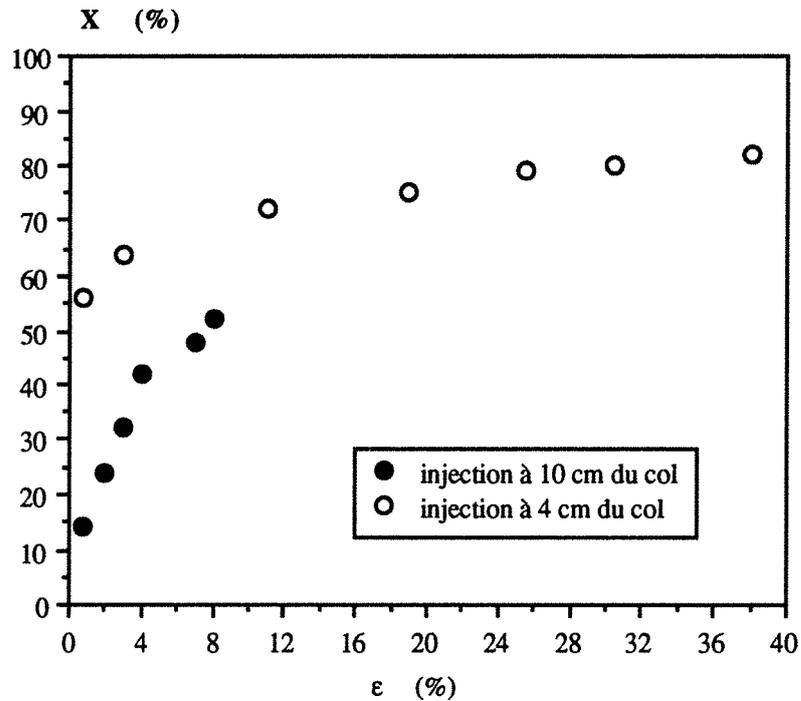


Figure (III-27) : Effet de la position de la buse d'alimentation de NaOH sur l'absorption de  $SO_2$  dans le dispositif C muni du venturi  $V_2$ . ( $Q_G=111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $R=1,25$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ , dispositif C)

### III.2.3.8. Effet du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi

Pour le dispositif (de volume réduit à 49,5 l) muni du venturi  $V_1$ , nous avons précisé le taux d'absorption de  $SO_2$  lorsque le débit gazeux varie entre 96,32 et 120,09  $\text{Nm}^3/\text{h}$ . La température et la teneur en  $SO_2$  du gaz d'alimentation sont fixées à 200  $^\circ\text{C}$  et 500 ppm. Pour des débits volumiques de solution de NaOH variant entre 6 et 10 l/h, les résultats obtenus à la sortie du dispositif, résumés dans les tableaux (III-16), (III-17), (III-18) de l'annexe III, sont reportés sur les figures (III-28) et (III-29) en fonction de  $Q_L$  et de l'humidité relative du gaz à la sortie de l'absorbeur.

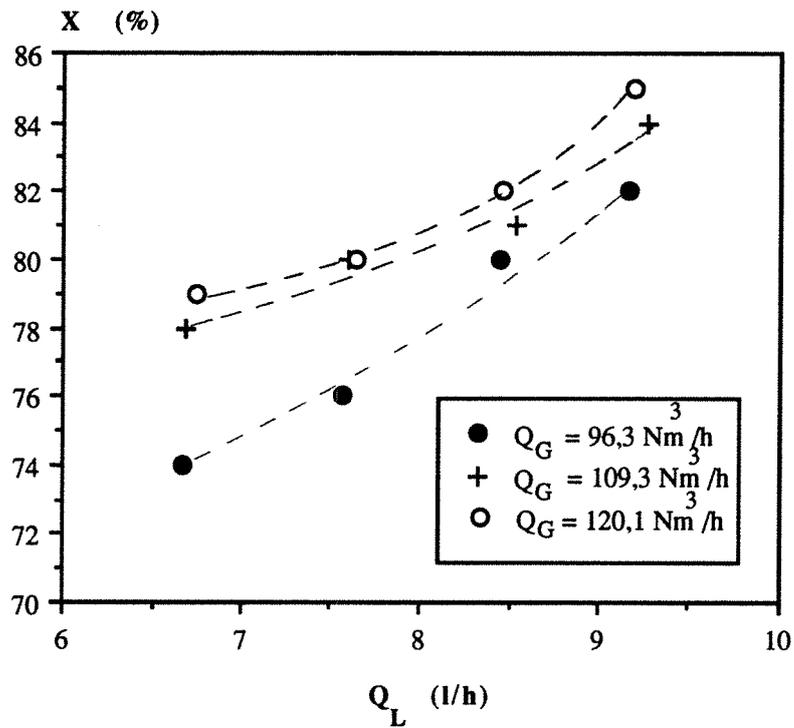


Figure (III-28) : Effet du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi sur les taux d'absorption de  $\text{SO}_2$ . ( $R=1,25$ , venturi  $V_1$ ,  $T_E=200$  °C, dispositif C")

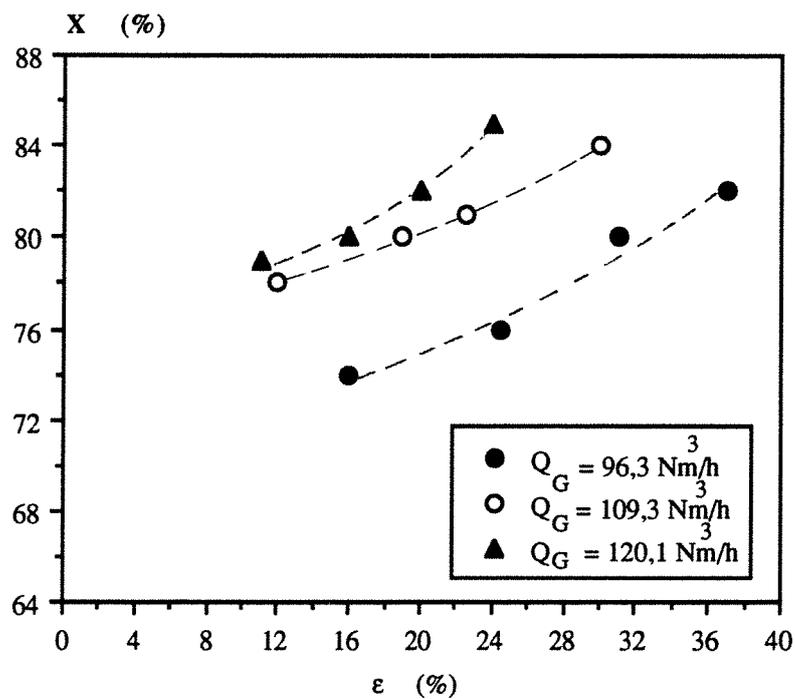


Figure (III-29) : Effet du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi sur le taux d'absorption de  $\text{SO}_2$ . ( $R=1,25$ , venturi  $V_1$ ,  $T_E=200$  °C, dispositif C")

Un accroissement du débit gazeux (donc du débit d'enthalpie et de la vitesse du gaz au col du venturi) améliore le taux d'absorption. Mais cet accroissement reste limité car en augmentant le débit de gaz, on diminue à la fois l'humidité relative de l'air extérieur et le temps de passage du gaz (et donc du liquide) dans le contacteur. Une analyse plus fine de l'influence du débit de gaz au niveau du venturi (tableau III-19 de l'annexe III) montre que dans le cas du venturi  $V_1$  le taux d'absorption maximum est obtenu pour un débit de  $103 \text{ Nm}^3/\text{h}$ . Au delà de ce débit, la variation du taux d'absorption devient négligeable (figure III-30).

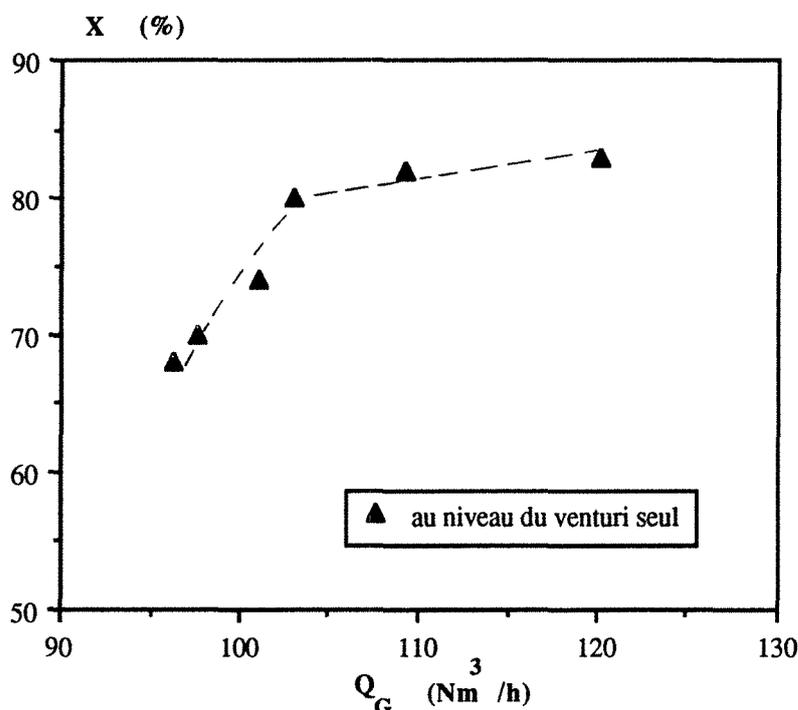


Figure (III-30) : Effet du débit gazeux sur le taux d'absorption de  $\text{SO}_2$  au niveau du venturi  $V_1$  seul. ( $R=1,25$ ,  $Q_L \# 8 \text{ l/h}$ , venturi  $V_1$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

L'effet de la vitesse au col du venturi est étudié en comparant les résultats obtenus sur le dispositif C muni des venturis  $V_1$  et  $V_2$  pour des débits d'alimentation en air voisins ( $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$  pour le venturi  $V_1$  et  $Q_G=98,93 \text{ Nm}^3/\text{h}$  pour le venturi  $V_2$ ).

Les valeurs des taux d'absorption de  $\text{SO}_2$  dans une solution de  $\text{NaOH}$ , résumées dans les tableaux (III-17) et (III-20) de l'annexe III, sont reportées sur la figure (III-31).

Pour un débit de gaz à traiter de l'ordre de  $98 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , l'influence de la vitesse du gaz au col du venturi, lorsqu'on remplace le venturi  $V_1$  par le venturi  $V_2$  est très nette et similaire à celle observée sur les capacités d'évaporation. En définitive, le dispositif C muni du venturi  $V_1$  semble être optimal pour des débits de gaz à l'entrée de l'ordre de  $98 \text{ Nm}^3/\text{h}$  dans la mesure où la puissance mécanique dégradée dans le dispositif reste raisonnable.

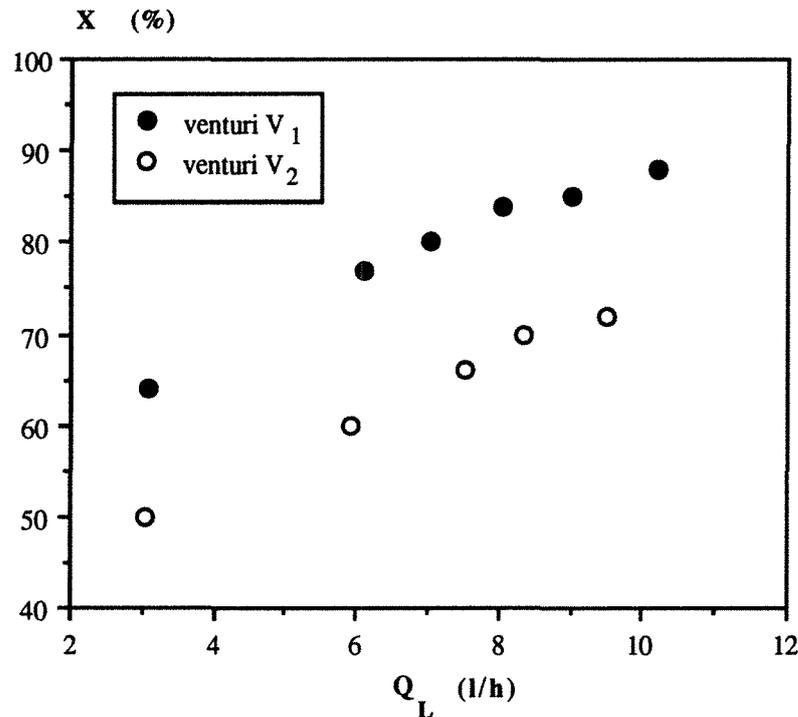


Figure (III-31) : Influence de la vitesse du gaz au col du venturi sur le taux d'absorption de  $SO_2$ .  
 ( $v_{G1}=1,34 v_{G2}$ ,  $R=1,25$ ,  $T_E=200$  °C, dispositif C)

### III.2.3.9. Effet du rapport stœchiométrique R

La plupart des travaux sur l'absorption du  $SO_2$  par voie semi-sèche se contentent de donner le taux d'absorption sur l'ensemble du dispositif comprenant l'absorbeur (spray dryer) et les filtres à manches. Seuls SAMUEL et coll. (1983), STRÖMBERG et coll. (1988) et YOON et coll. (1988) donnent des valeurs relatives à l'absorbeur et à l'ensemble du dispositif de traitement. Pour ces auteurs, un des paramètres qui modifie notablement le taux d'absorption du  $SO_2$  dans les filtres à manches est le rapport R. Lorsque R est inférieur à 1, tout le réactif basique est consommé dans l'absorbeur (RUIZ-ALSOP et coll., 1986) et la réaction dans les filtres à manche est limitée. En revanche, pour des valeurs de R supérieures à 1, une grande partie du réactif basique va se retrouver sur les filtres à manches et la réaction d'absorption du  $SO_2$  dans les filtres peut devenir importante (BLYTHE et coll., 1983).

En définitive, l'effet du rapport R sur le taux d'absorption de l'absorbeur peut-être limité mais nous avons cherché à le préciser dans le cas des deux réactifs basiques NaOH et  $Ca(OH)_2$ .

Les expériences ont été réalisées sur le dispositif C muni du venturi V<sub>2</sub> et sur le dispositif B muni du venturi V<sub>1</sub>. Le débit d'air à 200 °C avec une teneur en  $SO_2$  de 500 ppm est égal à 111,6 Nm<sup>3</sup>/h pour le dispositif C et 85,5 Nm<sup>3</sup>/h pour le dispositif B. Le débit volumique de solution en suspension basique est fixé dans ces expériences à 7 l/heure.

Les valeurs expérimentales résumées dans les tableaux (III-21), (III-22), (III-23), (III-24) de l'annexe III sont reportées sur les figures (III-32) et (III-33).

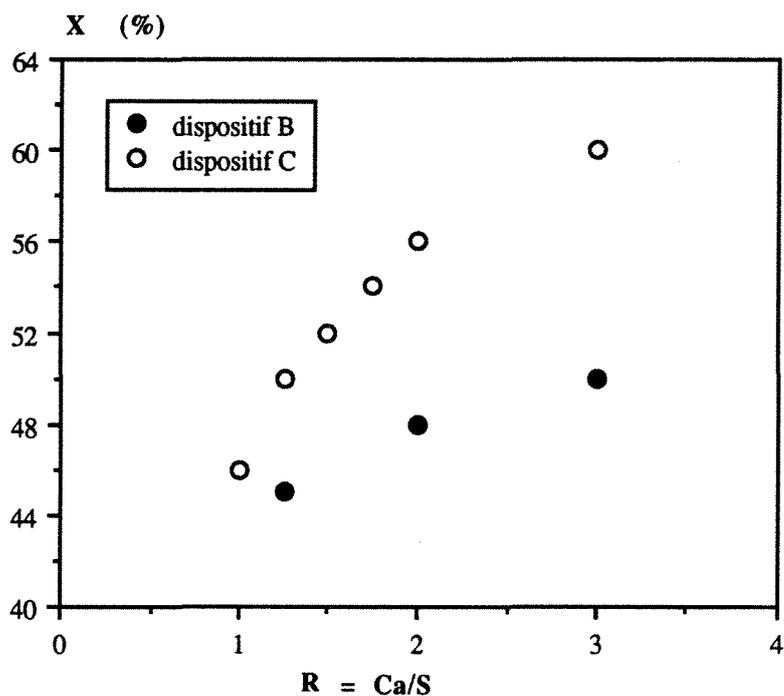


Figure (III-32) : Influence du rapport  $R$  sur le taux d'absorption de  $SO_2$  par une suspension de  $Ca(OH)_2$ .  
 ( $Q_G=111,6$  et  $85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $\epsilon=17\%$ , venturi  $V_1$  et  $V_2$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

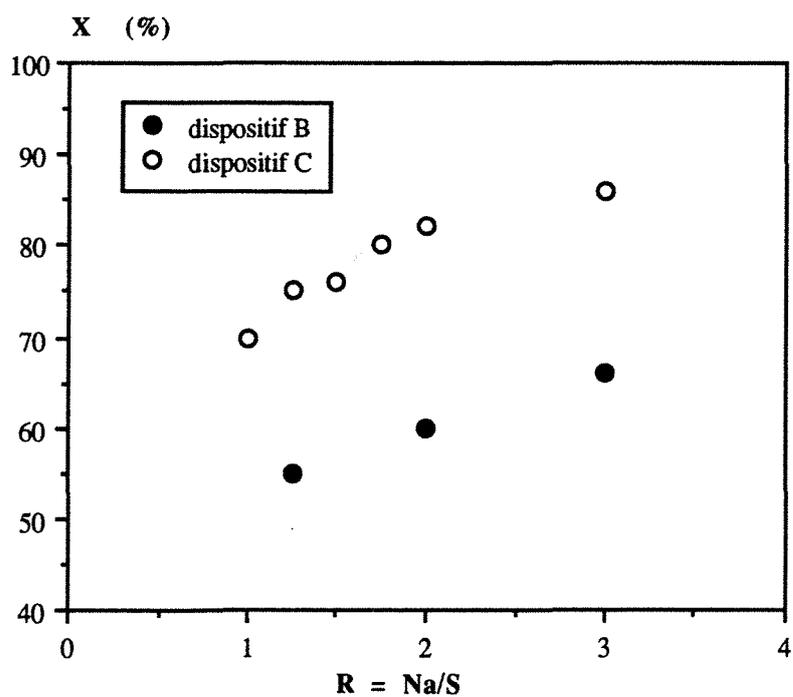


Figure (III-32) : Influence du rapport  $R$  sur le taux d'absorption de  $SO_2$  par une solution de  $NaOH$ .  
 ( $Q_G=111,6$  et  $85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $\epsilon=17\%$ , venturi  $V_1$  et  $V_2$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

Bien que les taux d'absorption pour les deux réactifs basiques ne soient pas identiques, l'influence du rapport stœchiométrique R semble similaire pour les deux réactifs basiques : le taux d'absorption augmente avec R. Dans le chapitre IV, nous justifierons l'influence du rapport R sur le taux d'absorption de SO<sub>2</sub> pour les deux réactifs basiques.

### III.2.3.10. Effet de la différence de température : température sèche-température de saturation adiabatique ( $\Delta T_{SA}$ )

Pour comparer les performances des dispositifs d'absorption par voie semi-sèche, les auteurs introduisent, soit l'humidité relative de l'air, soit la différence de température entre la température sèche et la température de saturation adiabatique de l'air à la sortie de l'absorbeur (PALAZZOLO et coll., 1983). L'effet de  $\Delta T_{SA}$  sur le taux d'absorption de SO<sub>2</sub> est plus important dans l'absorbeur que sur les filtres manche (ROBERTS et coll., 1980). Plus la différence  $\Delta T_{SA}$  est faible, plus est élevée la capacité d'absorption de l'absorbeur (HORN et coll., 1984) et dans ces conditions, la concentration résiduelle de SO<sub>2</sub> alimentant les filtres est faible (BJERLE et coll., 1984).

D'après STRÖMBERG et coll. (1988), en présence d'une suspension de Ca(OH)<sub>2</sub>, l'absorption de SO<sub>2</sub> sera optimale si la différence de température  $\Delta T_{SA}$  se situe entre 10 et 20°C.

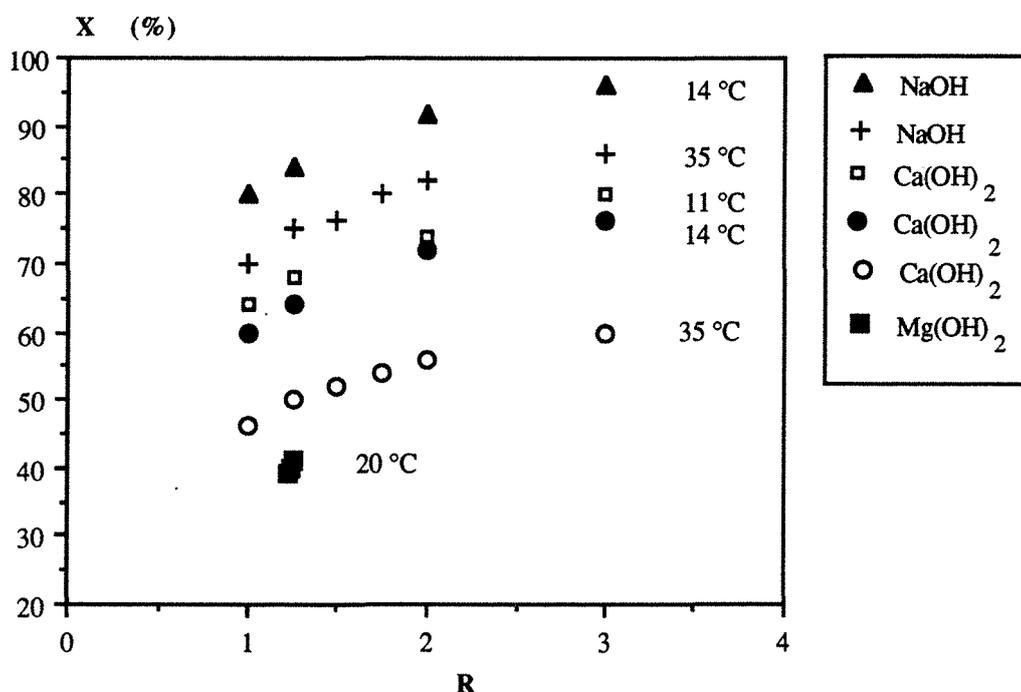


Figure (III-34) : Influence de  $\Delta T_{SA}$  sur le taux d'absorption de SO<sub>2</sub>.  
( $Q_G=111,6$  et  $97,67$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\alpha=80-90$  %, dispositif C, venturi V<sub>1</sub> et V<sub>2</sub>, T<sub>E</sub>=200 °C)

Pour valider l'influence de ce paramètre sur les capacités d'absorption du dispositif C, nous avons effectué des expériences avec les trois réactifs basiques pour des débits gazeux compris

entre 97,67 et 111,6 Nm<sup>3</sup>/h et pour des débits liquides de solution et de suspension compris entre 7 et 9 l/heure. Les résultats obtenus, résumés dans les tableaux (III-25) et (III-26) de l'annexe III, sont reportés en fonction du rapport R sur la figure (III-34).

Pour la solution de soude et la suspension de Ca(OH)<sub>2</sub>, la diminution de  $\Delta T_{SA}$  correspond à un accroissement du taux d'absorption de SO<sub>2</sub>. L'influence de  $\Delta T_{SA}$  est similaire à celle de Q<sub>L</sub> puisque l'augmentation de Q<sub>L</sub> conduit à une diminution de  $\Delta T_{SA}$  dans les conditions optimales de l'absorbeur. Ces conditions correspondent à une évaporation totale de l'eau avec un air saturé à la sortie de l'absorbeur.

#### *III.2.3.11. Effet du diamètre des particules de Ca(OH)<sub>2</sub>*

En présence d'une solution d'hydroxyde de sodium, pour des conditions opératoires fixées, lorsqu'on remplace le venturi V<sub>1</sub> par le venturi V<sub>2</sub>, il est probable que l'on modifie la dimension moyenne des gouttes du liquide obtenues au niveau du col du venturi. L'accroissement de la vitesse du gaz au col du venturi doit probablement provoquer une diminution de la taille moyenne des gouttes et donc un accroissement du transfert gaz-liquide. Pour vérifier en partie ce point, nous avons cherché dans le cas de la suspension de Ca(OH)<sub>2</sub> à préciser le rôle de la dimension moyenne des particules de chaux. L'effet de la taille des particules d'hydroxyde de calcium a été abordé par plusieurs auteurs d'une part pour montrer la formation d'agglomérats (KLINGSPOR et coll., 1983 et JOZEWICZ et coll., 1987) et d'autre part pour vérifier que le taux d'absorption de SO<sub>2</sub> augmente avec la diminution de la taille des matériaux alcalins recyclés (KLINGSPOR, 1987).

Les expériences sont effectuées dans le dispositif C muni du venturi V<sub>1</sub>. L'air à 200 °C est alimenté avec un débit de 97,67 Nm<sup>3</sup>/h et une teneur en SO<sub>2</sub> de 500 ppm. Le débit volumique de suspension est choisi voisin de 8 l/h. Les particules de Ca(OH)<sub>2</sub> de diamètre moyen 19 µm ont été tamisées pour obtenir 6 classes de diamètres moyens respectifs : 143 µm, 103 µm, 65µm, 48 µm, 40 µm et 17 µm (tableau III-27 de l'annexe III).

Les taux d'absorption de SO<sub>2</sub> ont été mesurés à la sortie du venturi et à la sortie du dispositif C. Les résultats résumés dans le tableau (III-27) de l'annexe III sont reportés sur la figure (III-35). Lorsque le diamètre moyen des particules de Ca(OH)<sub>2</sub> passe de 143 à 30 µm, on observe une augmentation notable du taux d'absorption de SO<sub>2</sub>. On peut donc affirmer que la réaction d'absorption n'est pas limitée par la réaction chimique mais plutôt par les transferts diffusionnels apparaissant au niveau des particules d'hydroxyde (transfert externe et/ou interne).

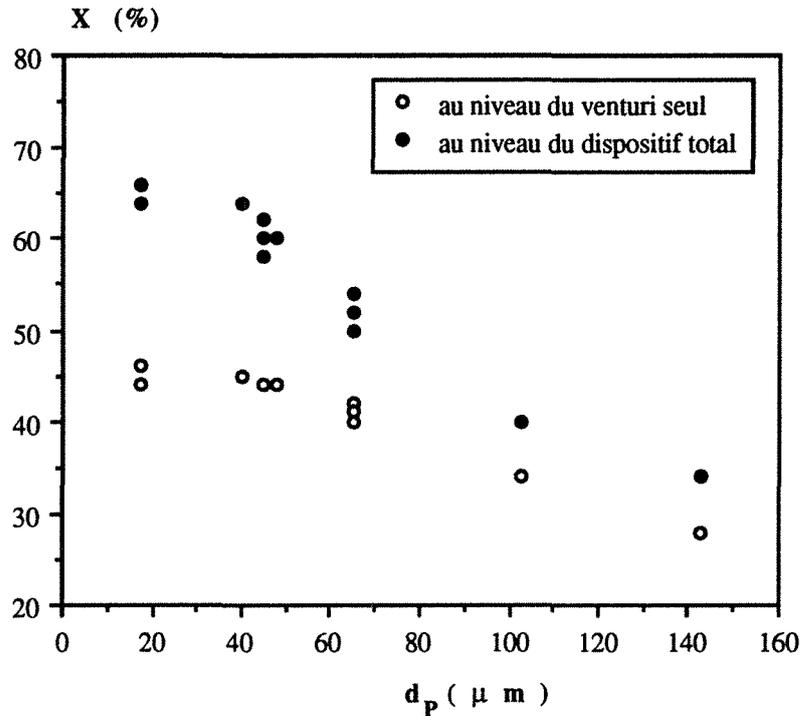


Figure (III-35) : Effet de la dimension moyenne des particules de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  sur l'absorption de  $\text{SO}_2$  dans le dispositif C. ( $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{lh}$ ,  $\alpha=90 \%$ , dispositif C, venturi  $V_1$ ,  $\Delta T_{SA}=15 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $\varepsilon=45\%$ ,  $Q_G \# 8 \text{ l/h}$ ,  $T_E=200 \text{ }^\circ\text{C}$ )

Signalons que LEE (1983), a obtenu dans des conditions semblables un taux de conversion de  $\text{SO}_2$  de 50 % avec une suspension de chaux dont le diamètre moyen initial des particules était de  $6 \mu\text{m}$ .

#### III.2.4. COMPARAISON DES PERFORMANCES DU DISPOSITIF C AVEC CERTAINS RESULTATS DE LA LITTERATURE

La plupart des procédés d'absorption par une voie semi-sèche mettant en œuvre une suspension de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ , notre comparaison portera sur les travaux réalisés avec ce réactif basique. De plus, nous nous limiterons aux études où les mesures d'absorption ont été effectuées en amont et en aval des filtres. Les mesures en amont peuvent être considérées comme celles représentatives de l'absorbeur. En définitive, nos valeurs expérimentales sont confrontées à celles données dans les travaux de YOON et coll. (1988), STRÖMBERG et coll. (1988), KLINGSPOR. (1987) et BLYTHE et coll. (1983), dont certaines conditions opératoires sont indiquées dans le tableau (III-1).

Tableau (III-1) : Conditions opératoires des dispositifs d'absorption par voie semi-sèche utilisés par différents auteurs .

Auteurs	Température d'entrée du gaz chaud °C $T_E$ (°C)	Concentration de $SO_2$ à l'entrée $P_E$ (ppm)	Temps du passage du gaz $\tau_G$ (s)	Débit gazeux $Q_G$ (Nm <sup>3</sup> /h)
YOON et coll. (1988)	150	1500	1,7 - 2	298 - 408
STRÖMBERG (1988)	150	1000	16	800
KLINGSPOR (1987)	150	1000	8	1,5
BLYTHE et coll. (1983)	167	400	8 - 6	11000 - 15300
Notre travail	200	500	1,8	100

Le temps de passage  $\tau_G$  est calculé en divisant le volume géométrique de l'absorbant par le débit volumique de gaz évalué dans les conditions de température de l'alimentation.

La comparaison de nos résultats à ceux obtenus par les auteurs précédents est effectuée sur les figures (III-36), (III-37) et (III-38) où les taux de conversion de  $SO_2$  sont reportés en fonction du rapport R ou de l'humidité relative de l'air  $\epsilon$ . Les résultats des auteurs précédents sont résumés dans les tableaux (III-28), (III-29), (III-30) et (III-31) de l'annexe III.

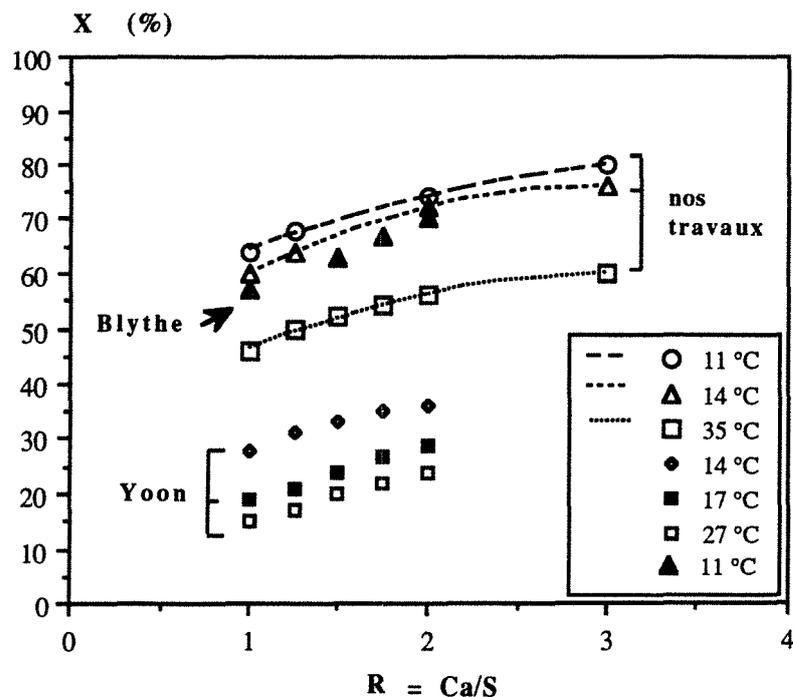


Figure (III-36) : Comparaison de nos résultats à ceux obtenus par YOON et coll et BLYTHE

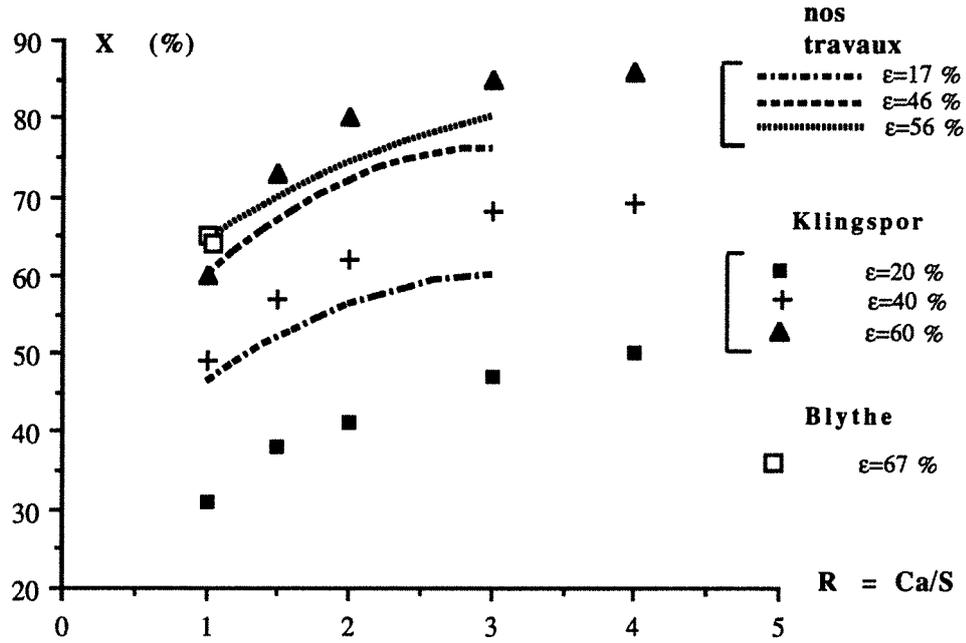


Figure (III-37) : Comparaison de nos résultats à ceux obtenus par KLINGSPOR et BLYTHE

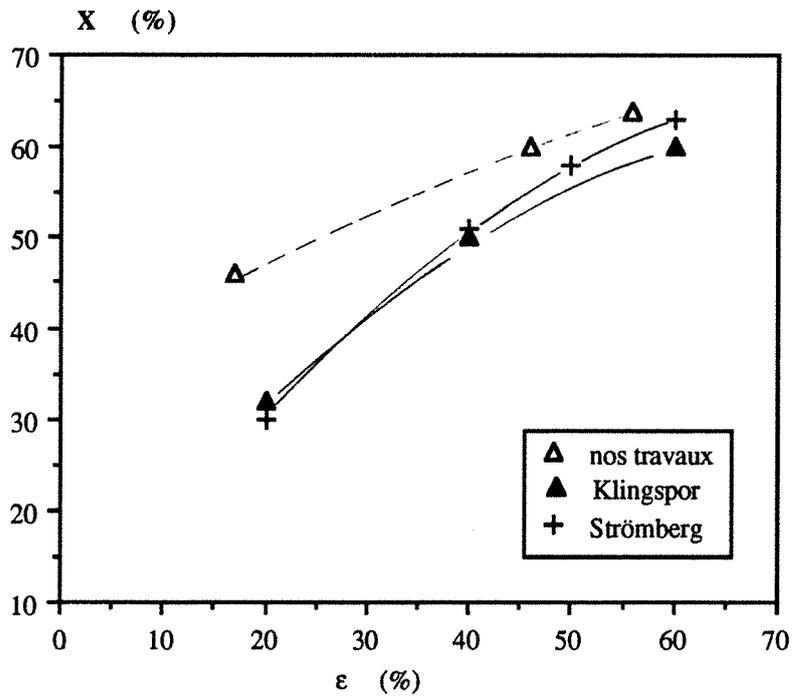


Figure (III-38) : Comparaison de nos résultats à ceux obtenus par KLINGSPOR et STRÖMBERG ( $R=1,25$ ).

Les performances de notre dispositif sont nettement supérieures à celles obtenues par YOON et supérieures à celles des autres auteurs pour des  $\Delta T_{SA}$  élevés ou des humidités relatives faibles.

Lorsque les humidités relatives deviennent très élevées, nos valeurs se rapprochent de celles de KLINGSPOR, STRÖMBERG et BLYTHE mais il est peu probable que dans ces conditions, le solide obtenu soit sec. De plus, les temps de passage du gaz dans les dispositifs sont de 3 à 8 fois plus grands que dans le dispositif C de volume total de 82,20 l. Or nous avons vu qu'un volume total de 25 l était suffisant pour l'obtention d'un taux d'absorption voisin. En définitive, cette comparaison avec des dispositifs d'absorption de SO<sub>2</sub> par voie semi-sèche montre clairement que le dispositif C de volume optimal voisin de 25 l semble très supérieur aux dispositifs d'absorption décrits dans la littérature tout en conduisant à un résidu solide sec.

### *III.2.5. CONCLUSIONS*

Pour des conditions opératoires voisines, les capacités d'absorption du SO<sub>2</sub> en présence de NaOH augmentent lorsqu'on passe du dispositif A au dispositif C. Pour la suspension d'hydroxyde de calcium, l'amélioration n'est sensible qu'aux débits volumiques élevés de suspension pour lesquels l'humidité relative de l'air au contact des particules est supérieure à 20%.

Le taux d'absorption en présence d'une solution d'hydroxyde de sodium est plus élevé que celui obtenu en présence d'une suspension de Ca(OH)<sub>2</sub>. Pour des conditions opératoires correspondant à un débit volumique de réactif basique de 8 l/h, le taux d'absorption passe de 65 % à 83 % lorsqu'on remplace la suspension de chaux par une solution d'hydroxyde de sodium.

Pour le dispositif C, il suffit d'associer au venturi de volume 0,5 l un élément de colonne de 24,5 l pour obtenir un taux d'absorption maximal pour des conditions opératoires fixées.

Comme dans le cas de l'évaporation, l'atomisation du liquide peut être effectuée à l'aide d'une buse ordinaire à condition que le jet liquide soit dirigé dans l'axe de symétrie du venturi.

Pour le dispositif C, le taux d'absorption augmente avec le débit d'air d'alimentation mais pour un venturi donné, il existe un débit maximal au delà duquel l'accroissement du débit gazeux s'avère inutile. Dans le cas étudié, le dispositif C muni du venturi V<sub>1</sub> conduit à des performances supérieures à celles du dispositif C muni du venturi V<sub>2</sub> lorsque le débit de gaz à traiter est de l'ordre de 98 Nm<sup>3</sup>/h.

De plus, les expériences avec la suspension de chaux nous ont permis de montrer que la réaction d'absorption est limitée par les résistances diffusionnelles externe et/ou interne et de confirmer la supériorité de notre dispositif vis à vis de certains absorbeurs de SO<sub>2</sub> par voie semi-sèche décrits dans la littérature.

## Chapitre IV

### INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

#### IV.1. MODELISATION DES CAPACITES D'EVAPORATION DES DISPOSITIFS..... 97

IV.1.1. Hypothèses simplificatrices

IV.1.2. Présentation du modèle

IV.1.3. Calcul des coefficients de transferts globaux  $US'$  et  $h_G S$  .....101

IV.1.4. Calcul de la rétention liquide dans l'absorbeur .....104

IV.1.5. Application du modèle aux capacités d'évaporation des dispositifs.....105

IV.1.5.1. Evaluation des caractéristiques globales de transfert de chaleur  
 $h_G S$  et  $US'$

IV.1.5.2. Calcul du temps critique d'évaporation réduit. Prévision qualitative  
du modèle sur l'influence de certains paramètres opératoires..... 107

*a. Influence du débit liquide d'alimentation*

*b. Influence de la géométrie du venturi*

*c. Influence du débit d'enthalpie*

IV.1.5.3. Evaluation des temps critiques d'évaporation, du temps de passage  
du liquide en l'absence d'évaporation et du coefficient de transfert  
convectif moyen caractéristique de l'échange thermique entre les  
gouttes d'eau et la phase gazeuse ..... 110

a. Estimation du temps critique d'évaporation  $t_C$  et du temps de passage  $\tau_L$

b. Estimation du coefficient moyen de transfert gaz-liquide  $h_G$

IV 1.5.4. Estimation d'un intervalle de variation pour le rayon initial des  
gouttes de liquide ..... 113

a. Etude bibliographique

b. Estimation du rayon initial des gouttes à partir du rayon moyen du  
solide réactionnel

#### IV.2. MODELISATION DES CAPACITES D'ABSORPTION DES DISPOSITIFS

EN PRESENCE D'UNE SOLUTION D'HYDROXYDE DE SODIUM .....	115
IV 2.1. Présentation du modèle	
IV.2.2. Application du modèle d'absorption du SO <sub>2</sub> par une solution d'hydroxyde de sodium.....	118
IV.2.2.1. Calcul du temps critique de début de solidification $\theta'$ et comparaison des trois dispositifs	
IV 2.2.2. Prévion qualitative des paramètres opératoires sur le taux d'absorption du dioxyde de soufre pour une solution d'hydroxyde de sodium.....	119
<i>a. Influence du débit liquide d'alimentation</i>	
<i>b. Influence de la géométrie du venturi</i>	
<i>c. Influence du débit d'enthalpie</i>	
<i>d. Influence de l'excès d'hydroxyde de sodium R</i>	
IV.3. MODELISATION DES CAPACITES D'ABSORPTION DU DISPOSITIF EN PRESENCE D'UNE SUSPENSION D'HYDROXYDE DE CALCIUM.....	125
IV.3.1. Présentation du modèle	
IV.3.2. Application du modèle d'absorption de SO <sub>2</sub> par une suspension d'hydroxyde de calcium. Prévions qualitative et quantitative des performances en fonction des principaux paramètres opératoires .....	127
<i>IV.3.2.1. Influence du débit volumique</i>	
<i>IV.3.2.2. Influence du rayon initial des particules <math>r_p</math> .....</i>	130
<i>IV.3.2.3. Influence de l'excès de base R.....</i>	131
IV.4. CONCLUSION.....	133

## IV.1. MODELISATION DES CAPACITES D'EVAPORATION DES DISPOSITIFS

### IV.1.1. HYPOTHESES SIMPLIFICATRICES

Pour rendre compte des taux d'évaporation d'eau dans les dispositifs et déduire certaines caractéristiques globales de transfert thermique, nous supposons que :

- l'écoulement de la phase gazeuse est homogène (parfaitement agité) à la température  $T_S$  avec l'humidité absolue  $W_S$ .
- l'écoulement de la phase liquide est homogène et la température du liquide est uniforme et égale à  $T_{LS}$ .
- l'équilibre thermodynamique à l'interface gaz-liquide est réalisé. Dans ces conditions, l'humidité de l'air au contact de l'interface liquide est égale à celle d'un air saturé à la température de l'interface, soit  $W^* = W^o(T^*)$
- la résistance au transfert thermique est localisée en phase gazeuse. La température de l'interface ( $T^*$ ) est donc égale à celle du liquide  $T_{LS}$ .
- les pertes thermiques se font uniquement par la phase gazeuse.

### IV.1.2. PRESENTATION DU MODELE

Le venturi provoque une dispersion du liquide en gouttes de rayon uniforme  $r_o$  dont la distribution des âges et des temps de séjour en l'absence d'évaporation est  $\frac{1}{\tau_L} \exp \frac{-t}{\tau_L}$ .

$\tau_L$  représente le temps de passage de la phase liquide dans l'absorbeur en absence d'évaporation.

Au niveau d'une goutte d'eau supposée sphérique, le bilan de matière entre les âges  $t$  et  $t + dt$  s'écrit :

$$-\frac{dm}{dt} = k_W \cdot 4\pi \cdot r_g^2 \cdot (W^* - W) \quad (IV-1)$$

$m$ : masse de la goutte liquide (kg), soit  $m = \rho_L \frac{4}{3} \pi \cdot r_g^3$

$k_W$  : conductance globale de transfert de matière ( $\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ).

$r_g$ : rayon de la goutte liquide à l'âge  $t$  (m).

$W^*$ : humidité absolue de l'air saturé à la température de l'interface  $T^*$  égale à celle du liquide  $T_{LS}$  (kg d'eau/kg d'air sec).

$W_S$ : humidité absolue de l'air à la température de sortie  $T_S$  (kg d'eau/kg d'air sec).

$\rho_L$ : densité volumique de l'eau ( $\text{kg m}^{-3}$ ).

L'équation (IV-1) s'écrit:

$$-\rho_L \cdot \frac{d}{dt} \left( \frac{4}{3} \pi r_g^3 \right) = k_W \cdot 4 \pi r_g^2 \cdot (W^* - W_S) \quad (\text{IV-2})$$

soit :

$$-\frac{dr_g}{dt} = \frac{k_W}{\rho_L} \cdot (W^* - W_S) \quad (\text{IV-3})$$

Le coefficient de transfert  $k_W$  dépend de  $r_g$ . Si nous admettons pour l'estimation de  $k_W$  une corrélation du type  $\frac{k_W}{\rho_L} = a \cdot r_g^{-0,5}$ , il nous faut préciser la constante  $a$ .

Pour une particule sphérique de diamètre  $d_p$ , le coefficient de transfert  $k_p$  peut être évalué à l'aide de la relation proposée par SKELLAND (1967).

$$\text{Sh} = 0,74 \cdot (\text{Re}_p)^{0,5} \cdot (\text{Sc})^{0,33} \quad (\text{IV-4})$$

avec

$$\text{Sh} = \frac{k \cdot d_p}{D} \quad \text{nombre de Sherwood}$$

$$\text{Re}_p = \frac{\rho \cdot u \cdot d_p}{\mu} \quad \text{nombre de Reynolds}$$

$$\text{Sc} = \frac{\mu}{\rho \cdot D} \quad \text{nombre de Schmidt}$$

$u$ : vitesse du fluide.

$\rho$ ,  $\mu$  : respectivement masse volumique et viscosité du fluide.

$D$ : diffusivité moléculaire de la vapeur d'eau dans le fluide.

En appliquant la relation (IV-4) au cas des gouttes d'eau dans l'air, on obtient :

$$k_p = \frac{0,74 D}{2} \cdot \left( \frac{2 \rho u}{\mu} \right)^{0,5} \cdot \left( \frac{\mu}{\rho D} \right)^{0,33} \cdot r_g^{-0,5} \quad (\text{IV-5})$$

Dans la mesure où  $k_W = k_p \cdot \rho$ , le coefficient  $a$  est égal à

$$a = 0,37 \cdot D \frac{\rho}{\rho_L} \cdot \left( \frac{2 \rho u}{\mu} \right)^{0,5} \cdot \left( \frac{\mu}{\rho D} \right)^{0,33} \quad (\text{IV-6})$$

Dans cette relation,  $u$  sera fixé arbitrairement à la vitesse de l'air au col du venturi.

Par suite, l'équation du bilan s'écrit :

$$-\frac{dr_g}{dt} = a \cdot r_g^{-0,5} \cdot (W^* - W_S)$$

Dans l'échangeur  $W^*$  et  $W_S$  étant constants, l'évolution de  $r_g$  en fonction du temps est telle que:

$$\frac{r_o^{1,5} - r_g^{1,5}}{1,5} = a \cdot (W^* - W_S) \cdot t \quad \text{où } r_o \text{ est le rayon initial des gouttes du liquide.}$$

soit :

$$r_g^{1,5} = r_o^{1,5} - 1,5 a (W^* - W_S) \cdot t \quad (\text{IV-7})$$

Par ailleurs, pour une goutte, le taux d'évaporation  $\alpha$  au bout du temps  $t$  est tel que:

$$\alpha = \frac{\frac{4}{3} \pi r_o^3 - \frac{4}{3} \pi r_g^3}{\frac{4}{3} \pi r_o^3} = 1 - \left(\frac{r_g}{r_o}\right)^3 \quad (\text{IV-8})$$

de (IV-7) et (IV-8), on déduit le taux d'évaporation d'une goutte à l'instant  $t$ , soit :

$$\alpha = \frac{3 \cdot a \cdot (W^* - W_S)}{r_o^{1,5}} \cdot t - \frac{2,25 \cdot a^2 \cdot (W^* - W_S)^2}{r_o^3} \cdot t^2 \quad (\text{IV-9})$$

La distribution des âges internes de la phase liquide  $I(t) = \frac{1}{\tau_L} (1 - F(t))$  étant identique à la

distribution des temps de séjour dans le cas d'un écoulement homogène, le taux d'évaporation moyen de l'eau à la sortie du dispositif est tel que :

$$\alpha_{\text{moy}} = \int_0^{t_c} \alpha I(t) dt + \int_{t_c}^{\infty} I(t) dt \quad (\text{IV-10})$$

$t_c$  est le temps critique au bout duquel la goutte est totalement évaporée ( $r_g = 0$ ), soit :

$$t_c = \frac{r_o^{1,5}}{1,5 a (W^* - W_S)} \quad (\text{IV-11})$$

En tenant compte de la relation (IV-9), on obtient :

$$\alpha_{\text{moy}} = \frac{1}{\tau_L} \frac{3 a (W^* - W_S)}{r_o^{1,5}} \int_0^{t_c} t \exp - \frac{t}{\tau_L} dt$$

$$- \frac{1}{\tau_L} \frac{2,25 a^2 (W^* - W_S)^2}{r_o^3} \int_0^{t_c} t^2 \exp - \frac{t}{\tau_L} dt + \frac{1}{\tau_L} \int_{t_c}^{\infty} \exp - \frac{t}{\tau_L} dt$$

Le résultat de l'intégration donne :

$$\alpha_{\text{moy}} = \exp - \frac{t_C}{\tau_L} + \frac{2}{t_C} \{ \tau_L - (t_C - \tau_L) \exp - \frac{t_C}{\tau_L} \} - \frac{1}{t_C^2} \{ 2 \tau_L^2 - (2 \tau_L^2 + 2 \tau_L t_C + t_C^2) \exp - \frac{t_C}{\tau_L} \}$$

$$\alpha_{\text{moy}} = \frac{2\tau_L}{t_C} + \frac{2\tau_L^2}{t_C^2} \exp - \frac{t_C}{\tau_L} - \frac{2\tau_L^2}{t_C^2}$$

En introduisant le temps réduit :

$$\theta = \frac{t_C}{\tau_L}$$



le taux d'évaporation moyen devient:

$$\alpha_{\text{moy}} = \frac{2}{\theta} - \frac{2}{\theta^2} (1 - \exp - \theta) \quad (\text{IV-12})$$

Par ailleurs, au niveau de chaque goutte d'eau, en négligeant les termes de chaleur sensible, on peut écrire que la chaleur fournie par le gaz sert à évaporer le liquide, soit :

$$h_G (T_S - T_{LS}) = k_W (W^* - W_S) \Lambda (T_{LS})$$

$h_G$  est le coefficient de transfert convectif caractérisant l'échange thermique entre la phase gazeuse et la goutte d'eau.

$\Lambda (T_{LS}) = \Lambda (T^*)$  est la chaleur latente de vaporisation de l'eau à la température de l'interface  $T^*$ .

D'après MAYREW et ROGERS (1986), on peut écrire que:

$$\Lambda(T^*) = \Lambda(0) - 2,428 T^* \quad (\text{kJ/kg})$$

$\Lambda(0)$ : chaleur latente de vaporisation de l'eau à 0 °C.

En phase gazeuse, en admettant que l'analogie de CHILTON-COLBURN (1934) s'applique et que le critère de Lewis est voisin de 1, les coefficients de transfert thermique  $h_G$  et de matière  $k_W$  sont tels que:  $h_G \# k_W C_{P_{\text{air}}}$ . Par suite, le bilan thermique permet de relier les températures aux humidités absolues par la relation:

$$C_{P_{\text{air}}} (T_S - T^*) = (W^* - W_S) \Lambda (T^*) \quad (\text{IV-13})$$

$C_{P_{\text{air}}}$ : chaleur spécifique moyenne de l'air ( $\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$ )

### V.1.3. CALCUL DES COEFFICIENTS DE TRANSFERTS GLOBAUX US' ET $h_{GS}$

Le schéma (IV-1) résume les grandeurs caractéristiques de l'évolution du système représenté par le modèle décrit précédemment.

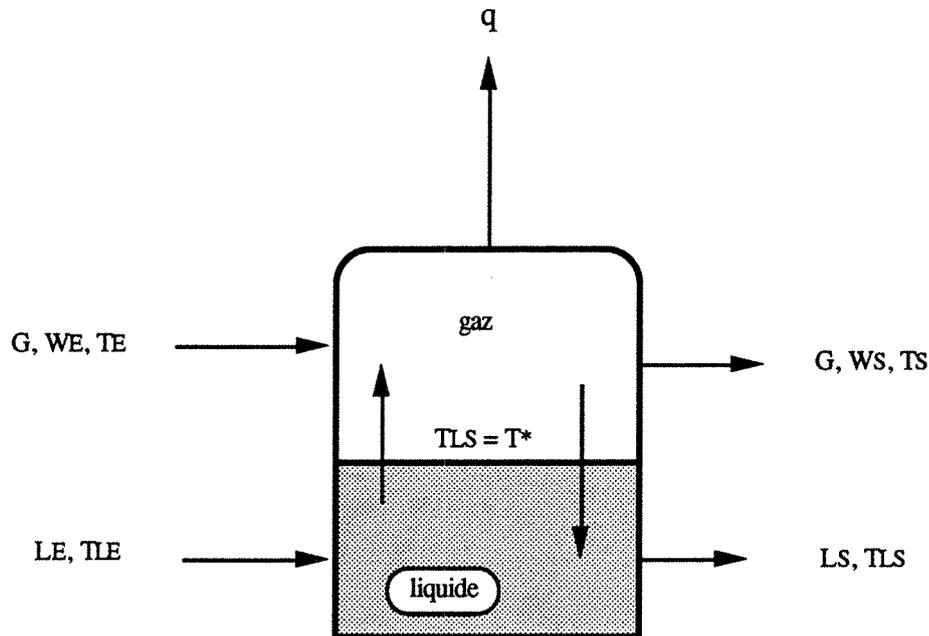


Figure (IV-1): Schéma du réacteur dans le cas du modèle développé (parfaitement agité).

$T_{LS}$ : température de l'eau à la sortie du dispositif égale à la température de l'interface ( $^{\circ}\text{C}$ )

$L_S$ : débit d'eau à la sortie du dispositif (kg/h).

$T_{LE}$ : température de l'eau d'alimentation ( $^{\circ}\text{C}$ ).

$q$ : débit de chaleur échangé avec le milieu extérieur à la température  $T_{\text{ext}}$  (W).

Les bilans d'enthalpie et de matière du dispositif avec les hypothèses relatives au modèle s'écrivent:

- bilan global d'enthalpie sur l'ensemble du dispositif

$$G (H_{GS} - H_{GE}) + L_S H_{LS} - L_E H_{LE} = US' (T_{\text{ext}} - T_S) \quad (\text{IV-14})$$

où

$$\begin{aligned} H_{GS} &= C_{P_{\text{air}}} T_S + W_S (\Lambda(0) + C_{P_e^v} T_S) & \} \\ H_{GE} &= C_{P_{\text{air}}} T_E + W_E (\Lambda(0) + C_{P_e^v} T_E) & \} \\ H_{LS} &= C_{P_e^l} T_{LS} & \} \\ H_{LE} &= C_{P_e^l} T_{LE} & \} \end{aligned} \quad (\text{IV-15})$$

où

$C_{P_e^v}$ : chaleur spécifique massique de la vapeur d'eau ( $J\ kg^{-1}\ K^{-1}$ ).

$C_{P_e^l}$ : chaleur spécifique massique de l'eau liquide ( $J\ kg^{-1}\ K^{-1}$ ).

- bilan de matière de l'eau sur l'ensemble du dispositif :

$$L_S - L_E = G (W_E - W_S) \quad (IV-16)$$

de (IV-14), (IV-15) et (IV-16) on obtient:

$$US' = \frac{G \{ C_{P_{air}} (T_S - T_E) - (W_S - W_E) C_{P_e^l} T_{LS} + (W_S - W_E) \Lambda(0) \} + L_E C_{P_e^l} (T_{LS} - T_{LE})}{T_{ext} - T_S} \quad (IV-17)$$

$S'$ : surface d'échange gaz-paroi ( $m^2$ )

$U$ : coefficient de transfert de chaleur global entre le gaz et le milieu extérieur ( $W\ m^{-2}\ K^{-1}$ )

- bilan de matière de l'eau en phase gazeuse :

$$G (W_S - W_E) - k_W S (W^* - W_S) = 0 \quad \text{ou} \quad L_E \alpha_{moy} - k_W S (W^* - W_S) = 0 \quad (IV-18)$$

- bilan d'enthalpie en phase gazeuse :

$$G (H_{GS} - H_{GE}) - L_E \alpha_{moy} h_e^v(T^*) = \Phi + U S' (T_{ext} - T_S)$$

où

$\Phi$  est le débit de chaleur échangé entre l'ensemble des gouttes d'eau et la phase gazeuse. Ce débit est tel que :

$$\Phi = G (H_{GS} - H_{GE}) - L_E \alpha_{moy} h_e^v(T^*) - US' (T_{ext} - T_S)$$

sachant que:  $h_e^v(T^*) = C_{P_e^l} T^* + \Lambda(T^*)$ , le débit  $\Phi$  peut être écrit :

$$\Phi = G C_{P_{air}} (T_S - T_E) + G \Lambda(0) (W_S - W_E) + G C_{P_e^v} (W_S T_S - W_E T_E) - L_E \alpha_{moy} (C_{P_e^l} T^* + \Lambda(0) - 2,428 T^*) - U S' (T_{ext} - T_S) \quad (IV-19)$$

De même,  $\Phi$  peut être posé égal à :

$$\Phi = h_G S (T^* - T_S) = h_G S (T_{LS} - T_S) \quad (IV-20)$$

Connaissant  $\Phi$  pour calculer  $h_G$ , il faut estimer la valeur de la surface d'échange  $S$  entre le gaz et le liquide. Celle-ci est déduite par le raisonnement suivant. Le nombre de gouttes ayant un âge compris entre  $t$  et  $t+dt$  est tel que :

$$dn = \frac{V_L I(t) dt}{\frac{\pi d_o^3}{6}} \quad (IV-21)$$

où

$V_L$ : volume total de liquide dans le dispositif en l'absence d'évaporation.

$I(t)$ : distribution des âges du liquide dans le dispositif en l'absence d'évaporation.

On admet que ce nombre reste identique en présence d'évaporation. Par suite, la surface des gouttes dont l'âge est compris entre  $t$  et  $t+dt$  est :

$$dS = \frac{4\pi r_g^2 V_L I(t) dt}{\frac{\pi d_o^3}{6}} = \frac{24 r_g^2}{d_o^3} Q_L \tau_L \frac{1}{\tau_L} \exp - \frac{t}{\tau_L} dt$$

et  $S$  est la somme de toutes les surfaces élémentaires relatives à des gouttes dont l'âge est inférieur ou égal à  $t_c$ , d'où :

$$S = \int_0^{t_c} \frac{3 r_g^2}{r_o^3} Q_L \tau_L \frac{1}{\tau_L} \exp - \frac{t}{\tau_L} dt$$

soit:

$$S = \frac{3 Q_L \tau_L}{r_o^3} r_{\text{moy}}^2 \quad (IV-22)$$

Le calcul de la surface totale est donc relié à celui de la valeur moyenne du carré des rayons des gouttes. De la relation (IV-7), on déduit :

$$r_g = \{ r_o^{1,5} - 1,5 a (W^* - W_S) \cdot t \}^{0,667}$$

puis

$$r_g^2 = \{ r_o^{1,5} - 1,5 a (W^* - W_S) \cdot t \}^{1,334}$$

d'où

$$r_{\text{moy}}^2 = \int_0^{t_c} \{ r_o^{1,5} - 1,5 a (W^* - W_S) \cdot t \}^{1,334} \frac{1}{\tau_L} \exp - \frac{t}{\tau_L} dt \quad (IV-23)$$

Cette expression est calculée numériquement par la méthode des trapèzes. Connaissant  $r_{\text{moy}}^2$ ,

on déduit S par la relation (IV-22), puis  $h_G$  connaissant  $\Phi$ ,  $T_{LS}$  et  $T_S$ . Le coefficient de transfert  $h_G$  déterminé par la relation (IV-20) est un coefficient de transfert moyen sur l'ensemble des gouttes en cours d'évaporation.

#### IV.1.4. CALCUL DE LA RETENTION LIQUIDE DANS L'ABSORBEUR

La rétention du liquide,  $\sigma$ , est par définition le rapport entre le volume du liquide et le volume géométrique du dispositif. A partir du nombre de gouttes de liquide dont l'âge est compris entre  $t$  et  $t+dt$ , soit :

$$dn = \frac{V_L I(t) dt}{\frac{\pi d_o^3}{6}}$$

le volume des gouttes dont l'âge est compris entre  $t$  et  $t+dt$  est :

$$\begin{aligned} dV &= \frac{\frac{\pi d_g^3}{6} V_L I(t) dt}{\frac{\pi d_o^3}{6}} \\ &= \frac{r_g^3}{r_o^3} Q_L \tau_L \frac{1}{\tau_L} \exp - \frac{t}{\tau_L} dt \end{aligned}$$

Le volume total s'obtient en sommant les valeurs élémentaires sur l'ensemble des gouttes dont l'âge est inférieur ou égal à  $t_C$ , d'où :

$$V = \frac{Q_L \tau_L}{r_o^3} \int_0^{t_C} r_g^3 \cdot \frac{1}{\tau_L} \exp - \frac{t}{\tau_L} dt = \frac{Q_L \tau_L}{r_o^3} r_{\text{moy}}^3 \quad (\text{IV-24})$$

En tenant compte de l'expression de  $r_g$ , la valeur moyenne de  $r_g^3$  s'écrit :

$$r_{\text{moy}}^3 = \int_0^{t_C} \{ r_o^{1,5} - 1,5 a (W^* - W_S) \cdot t \}^2 \frac{1}{\tau_L} \exp - \frac{t}{\tau_L} dt$$

En introduisant le temps réduit  $\theta = \frac{t_C}{\tau_L}$ , on aboutit à :

$$r_{\text{moy}}^3 = r_o^3 \left\{ 1 - \frac{2}{\theta} + \frac{2}{\theta^2} (1 - \exp - \theta) \right\} \quad (\text{IV-25})$$

d'où

$$\sigma = \frac{V}{V_{\text{géométrique}}} = \frac{Q_L \tau_L}{V_{\text{géométrique}}} \left\{ 1 - \frac{2}{\theta} + \frac{2}{\theta^2} (1 - \exp - \theta) \right\}$$

$\frac{Q_L \tau_L}{V_{\text{géométrique}}}$  représente la rétention de la phase liquide en l'absence d'évaporation, soit  $\sigma_0$ .

Par suite, le taux d'évaporation  $\alpha$  peut être posé égal à :

$$\alpha = \frac{\sigma_0 - \sigma}{\sigma_0} = 1 - \frac{\sigma}{\sigma_0} = \frac{2}{\theta} - \frac{2}{\theta^2} (1 - \exp -\theta)$$

On retrouve bien le résultat établi précédemment. On aurait pu donc évaluer la rétention de liquide directement à partir de la connaissance du taux d'évaporation moyen, soit :

$$\sigma = \sigma_0 (1 - \alpha) \quad \text{(IV-26)}$$

avec

$$\sigma_0 = \frac{Q_L \tau_L}{V_{\text{géométrique}}}$$

#### **IV.1.5. APPLICATION DU MODELE AUX CAPACITES D'EVAPORATION DES DISPOSITIFS**

##### **IV.1.5.1. Evaluations des caractéristiques globales de transfert de chaleur $h_G S$ et $US'$**

A partir des bilans de matière et d'enthalpie (relations IV-14, IV-16, IV-18 et IV-19), de la relation donnant l'humidité de l'air à l'équilibre, des grandeurs mesurées  $W_S$ ,  $T_S$  et des grandeurs d'entrée, on peut déterminer par une méthode itérative les produits  $h_G S$  et  $US'$ .

Les figures (IV-2) et (IV-3) résument respectivement les valeurs obtenues pour ces deux grandeurs pour les dispositifs A, B et C munis des venturis  $V_1$  et pour des conditions opératoires voisines. Des résultats semblables pour d'autres conditions opératoires sont donnés dans l'annexe IV.

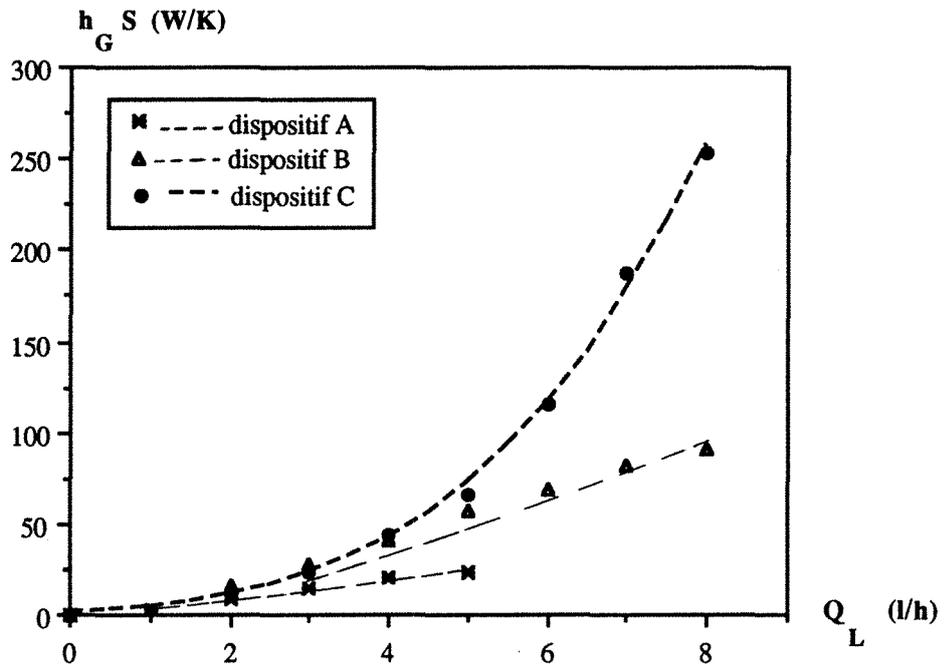


Figure (IV-2) : Courbes  $h_G S$  en fonction du débit d'alimentation d'eau.  
 (montages A, B et C,  $Q_G = 85,5 - 97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

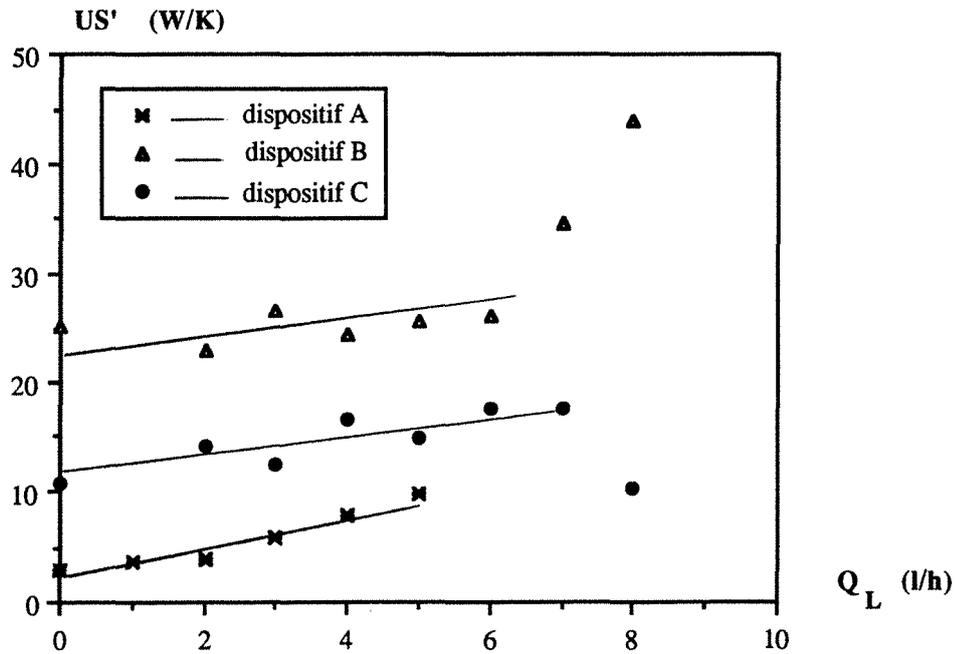


Figure (IV-2) : Courbes  $US'$  en fonction du débit d'alimentation d'eau.  
 (montages A, B et C,  $Q_G = 85,5 - 97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

D'une manière générale les courbes donnant  $h_G S$  en fonction de  $Q_L$  suivent une loi puissance du type :  $h_G S = z Q_L^m$

Les conductances  $h_G S$  du dispositif C sont supérieures à celles des deux dispositifs A et B conformément aux capacités d'évaporation observées dans les trois dispositifs. En ce qui concerne les échanges thermiques avec le milieu extérieur, dans les domaines de débits liquides étudiés, les conductances de transfert  $US'$  augmentent très légèrement avec le débit liquide et elles sont d'autant plus élevées que la surface au contact du milieu extérieur est plus importante.

**IV.1.5.2. Calcul du temps critique d'évaporation réduit. Prévion qualitative du modèle sur l'influence de certains paramètres opératoires**

De même, à partir des valeurs de  $\alpha_{moy}$  et de la relation (IV-12), il est possible d'évaluer le temps critique réduit  $\theta = t_C / \tau_L$ . Une comparaison des temps critiques réduits  $\theta$  des trois dispositifs en fonction du débit liquide (figure (IV-4)) montre que les temps critiques d'évaporation du dispositif C sont plus faibles que ceux des dispositifs B et A et confirme la supériorité du dispositif C dans la mesure où le taux d'évaporation est une fonction monotone décroissante du temps critique  $\theta$  (figure (IV-5)).

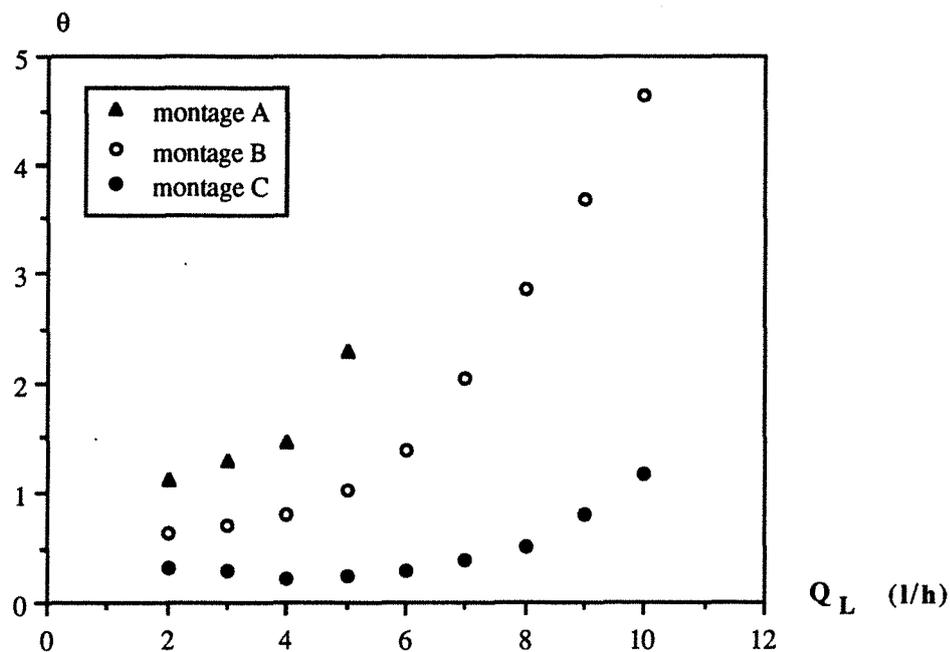


Figure (IV-4) : Comparaison des temps critiques d'évaporation (dispositifs A, B et C munis du venturi  $V_1$ ).

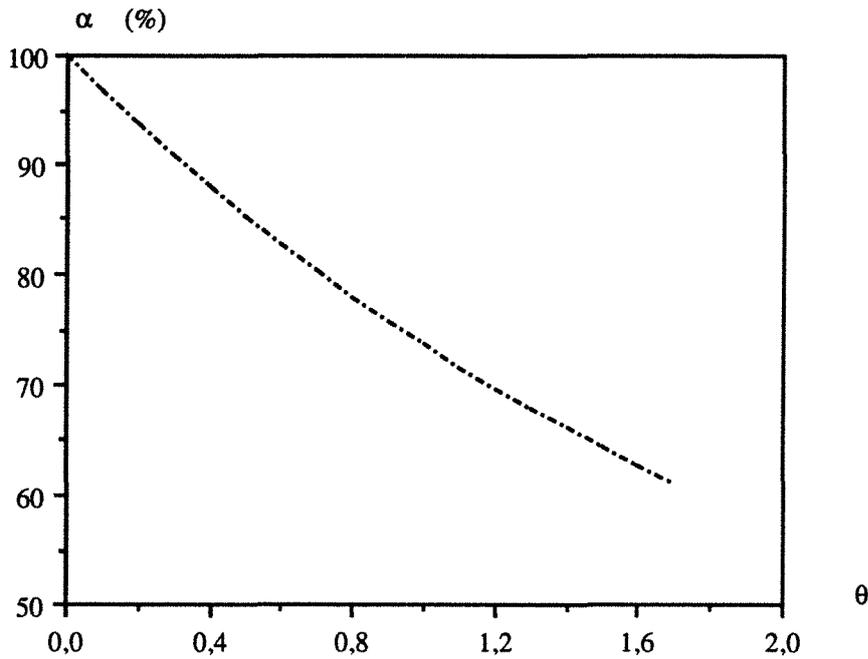


Figure (IV-5) : Variation du temps critique  $\theta$  en fonction des taux d'évaporation (relation IV-12).

Voyons désormais comment le modèle proposé permet de prévoir qualitativement l'influence des principaux paramètres opératoires étudiés sur le taux d'évaporation  $\alpha_{\text{moy}}$  ou sur le temps d'évaporation réduit.

#### a. Influence du débit liquide d'alimentation

Le débit volumique et la température du gaz étant fixés, lorsqu'on augmente  $Q_L$ , on peut penser qu'on ne change pas le rayon initial des gouttes d'eau et par suite, le temps critique d'évaporation  $t_c$ . En revanche, la rétention liquide dans le contacteur doit augmenter. On peut penser qu'elle est proportionnelle à  $Q_L^\beta$  où l'exposant  $\beta$  est inférieur ou égal à 1. Dans ces conditions,  $\tau_L = V_L/Q_L$  doit soit rester constant, soit diminuer avec  $Q_L$ . De même,  $\theta$  doit, soit être constant, soit augmenter avec  $Q_L$ . C'est ce que l'on observe dans la figure (IV-4) pour les débits liquides inférieurs aux débits maximaux correspondant à une saturation adiabatique.

### b. Influence de la géométrie du venturi

Les débits de gaz et de liquide étant fixés, si on remplace le venturi  $V_1$  par le venturi  $V_2$ , on réduit la vitesse du gaz au col du venturi et en conséquence on augmente le rayon initial des gouttes du liquide. Le coefficient  $a$  diminue,  $r_o$  augmente et compte tenu de la relation (IV-11)  $t_C$  augmente. L'influence de  $r_o$  sur  $\tau_L$  existe sûrement mais elle doit être faible. Par suite,  $\theta$  augmente et dans ces conditions, le taux d'évaporation diminue.

### c. Influence du débit d'enthalpie

La température d'entrée étant fixée, la variation du débit d'enthalpie correspond à une variation du débit de gaz. Lorsqu'on augmente le débit de gaz, on augmente le coefficient  $a$  et on diminue le temps critique  $t_C$ . De plus, à  $Q_L$  fixé lorsqu'on augmente  $Q_G$ , on diminue le temps de passage  $\tau_L$ . Le temps critique  $\theta$  est donc le rapport de deux grandeurs qui diminuent avec  $Q_G$ . D'après la relation (IV-6),  $a$  est proportionnel à  $Q_G^{0,5}$ . De même, en négligeant la vitesse relative des gouttes de liquide dans le gaz, le temps de passage  $\tau_L$  est sensiblement inversement proportionnel à  $Q_G$ . Par suite,  $\theta$  est proportionnel à  $r_o^{1,5} Q_G^{-0,5}$ . Expérimentalement la variation du temps réduit  $\theta$  en fonction du débit gazeux  $Q_G$  (figure IV-6) conduit à une variation de  $r_o$  en fonction de  $Q_G$  selon une loi puissance  $r_o \sim Q_G^f$  dont l'exposant  $f$  est de l'ordre -3.

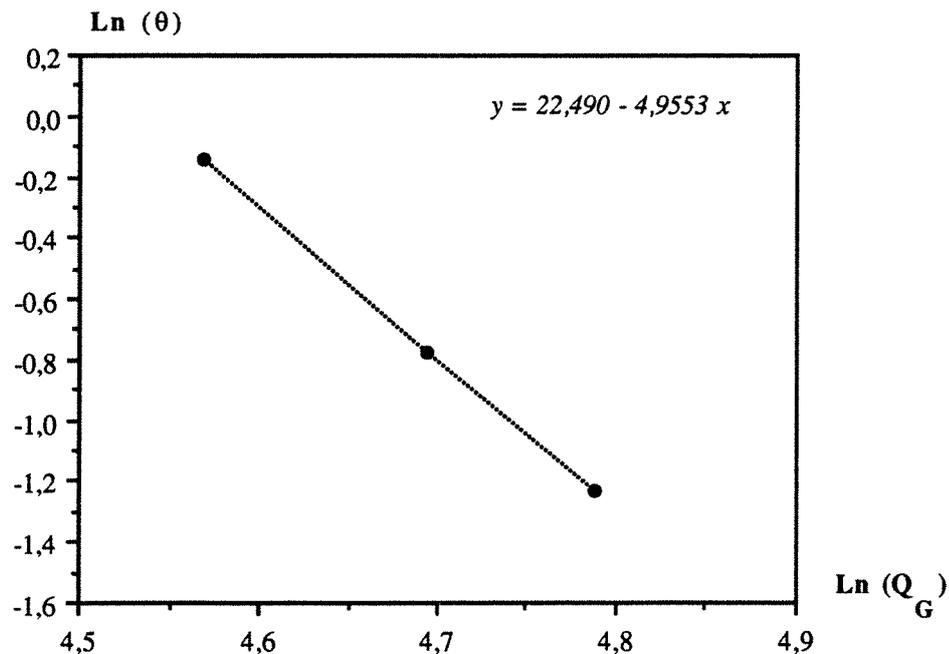


Figure (IV-6) : Variation du temps critique en fonction du débit d'enthalpie (dispositif C,  $Q_L$  # 9 l/h, Venturi  $V_1$ ).

**IV.1.5.3. Evaluation des temps critiques d'évaporation, du temps de passage du liquide en l'absence d'évaporation et du coefficient de transfert convectif moyen caractéristique de l'échange thermique entre les gouttes d'eau et la phase gazeuse**

**a. Estimation du temps critique d'évaporation  $t_C$  et du temps de passage  $\tau_L$**

L'analyse globale du dispositif permet en particulier d'évaluer l'humidité de l'air en équilibre avec les gouttes d'eau à la température moyenne  $T_{LS}$ , soit  $W^*$ . La relation (IV-11) permet alors, connaissant  $r_o$  d'évaluer le temps critique  $t_C$ . Puis, connaissant  $\theta$ , on en déduit  $\tau_L$ . Ces deux temps dépendent donc de la valeur initiale du rayon des gouttes d'eau. Nous n'avons pas pu mesurer le rayon  $r_o$  mais dans le paragraphe IV.1.5.4, nous essayerons de justifier un intervalle de variation vraisemblable pour le rayon  $r_o$ . A titre d'exemple, nous donnons sur les figures (IV-7) et (IV-8) les valeurs expérimentales des temps  $t_C$  et  $\tau_L$  en fonction de  $Q_L$  pour différentes valeurs de  $r_o$  dans le cas du dispositif C. Des courbes semblables concernant les dispositifs A et B sont données dans l'annexe IV.

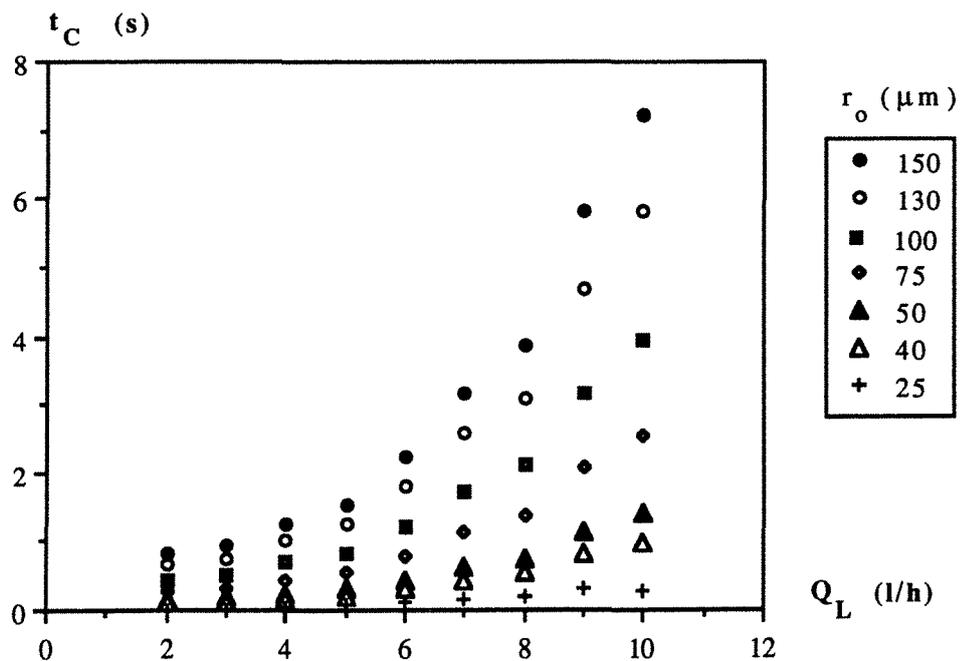


Figure (IV-7) : Variation de  $t_C$  en fonction de  $Q_L$  pour différentes valeurs initiales du rayon des gouttes de liquide (montage C,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ).

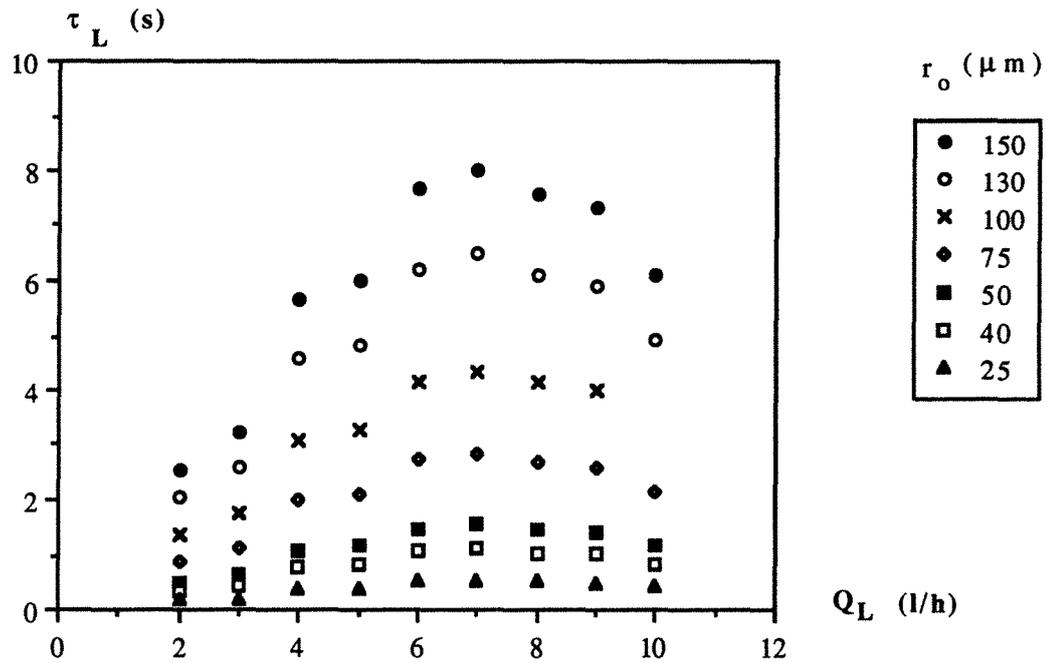


Figure (IV-8) : Variation de  $\tau_L$  en fonction de  $Q_L$  pour différentes valeurs initiales du rayon des gouttes de liquide (montage C,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ).

L'augmentation de  $t_C$  en fonction de  $Q_L$  semble logique puisqu'on diminue la différence  $W^* - W_S$  dans la mesure où on humidifie de plus en plus l'air.

De même, l'accroissement de  $\tau_L$  en fonction de  $Q_L$  semble logique pour un écoulement diphasique gaz-liquide où le débit de gaz est maintenu constant. L'existence d'un maximum et d'une décroissance pour les débits liquides les plus élevés, pour lesquels le taux d'évaporation moyen est inférieur à un, est probablement liée au modèle choisi qui doit évaluer par excès le temps critique réduit.

#### b. Estimation du coefficient moyen de transfert gaz-liquide $h_G$

Connaissant  $h_G S$ , on déduit  $h_G$  en calculant l'intégrale donnée par la relation (IV-23) et la surface d'échange  $S$  par la relation (IV-22). Ces deux relations font intervenir le rayon initial des gouttes d'eau et la surface d'échange  $S$  est par suite dépendante de ce paramètre. Sur la figure (IV-9), nous donnons la valeur de  $S$  en fonction du dispositif C muni du venturi  $V_1$ . Par suite, nous déduisons les valeurs du coefficient de transfert  $h_G$ . Les résultats obtenus pour le dispositif C sont reportés sur la figure (IV-10).

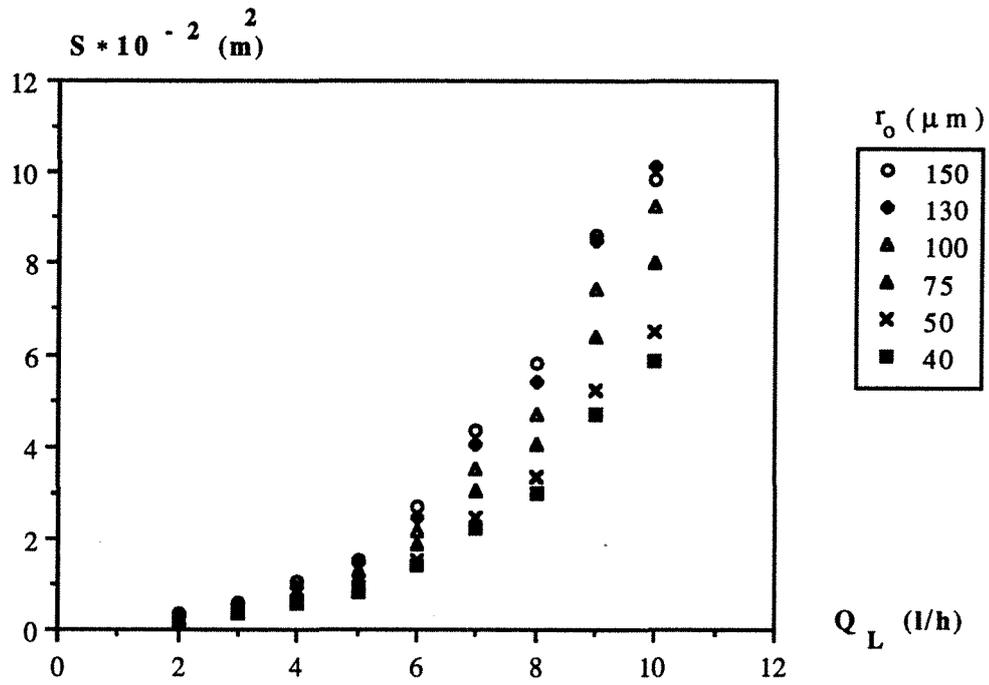


Figure (IV-9) : Variation de la surface totale des gouttes en fonction du débit de liquide pour différentes valeurs initiales du rayon des gouttes de liquide. (montage C,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

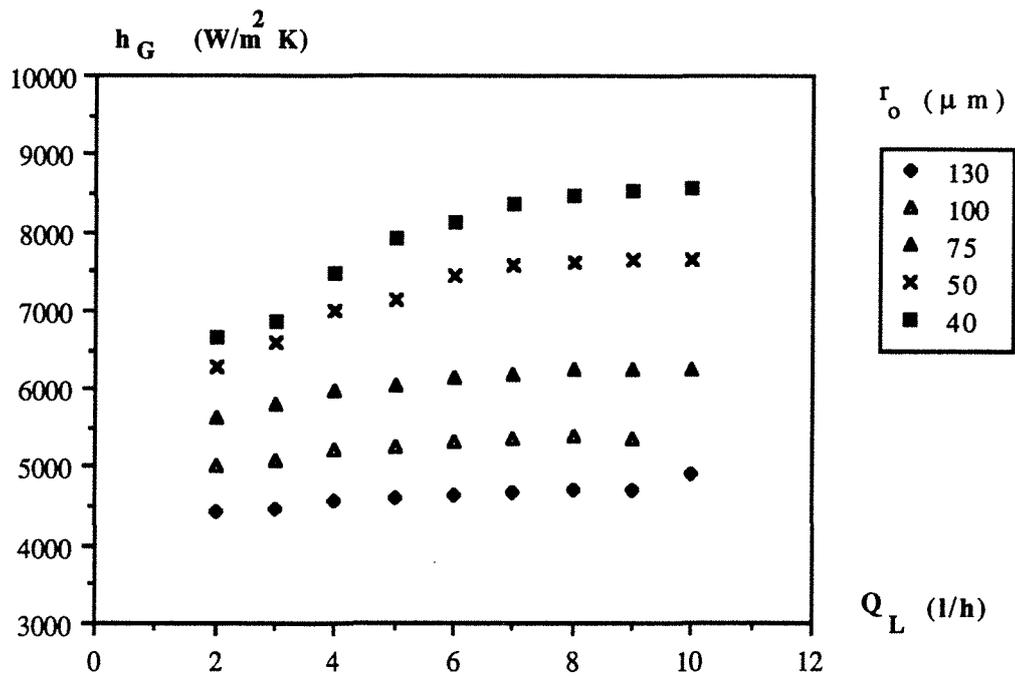


Figure (IV-10) : Variation du coefficient moyen de transfert gaz-liquide  $h_G$  en fonction du débit liquide, pour différentes valeurs initiales du rayon des gouttes du liquide. (montage C,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

La surface d'échange augmente avec  $Q_L$  de manière sensible conformément aux observations de LARSON (1985) et KAGUEL et coll. (1988). En revanche, l'augmentation du coefficient moyen de transfert de chaleur avec  $Q_L$  est beaucoup moins prononcée surtout aux plus grandes valeurs du rayon initial, ce qui paraît logique dans la mesure où dans ces conditions, les variations du rayon initial en fonction du débit liquide peuvent être supposées négligeables.

#### ***IV.1.5.4. Estimation d'un intervalle de variation pour le rayon initial des gouttes de liquide***

La connaissance du rayon moyen des gouttes d'eau aurait nécessité une technique de mesure soit par l'intermédiaire d'une caméra ultra rapide, soit par l'intermédiaire d'un dispositif à fibres optiques en admettant toutefois que ces dispositifs puissent être placés sur notre montage expérimental.

N'ayant pas eu à notre disposition ces techniques expérimentales, notre estimation sera basée sur une étude bibliographique et sur une mesure du diamètre moyen du produit solide obtenu dans le cas de l'absorption du  $SO_2$  par une solution d'hydroxyde de sodium.

##### **a. Etude bibliographique**

Différents auteurs ayant développé des absorbeurs de  $SO_2$  par voie semi-sèche ont indiqué des valeurs du diamètre initial des gouttes de la solution basique. Ainsi BJERLE et coll. (1984) ont évalué le diamètre moyen initial d'une solution d'hydroxyde de sodium à 100  $\mu m$ . De même, SHILLING et coll. (1986) ont trouvé dans le cas d'une suspension d'hydroxyde de calcium que les gouttes d'un diamètre initial supérieur à 100  $\mu m$  constituaient un pourcentage faible et négligeable dans leur absorbeur. Enfin, dans leurs travaux, BLYTHE et coll. (1983) ont utilisé des diamètres initiaux des gouttes compris entre 50 et 100  $\mu m$ . En définitive, nous pouvons penser suite à ce rappel de travaux que les gouttes générées par le venturi doivent avoir un rayon initial voisin de 50  $\mu m$ .

##### **b. Estimation du rayon initial des gouttes à partir du rayon moyen du solide réactionnel**

Dans le cas de l'absorption de  $SO_2$  par la solution d'hydroxyde de sodium, la répartition granulométrique du produit obtenu (voir chapitre V) conduit à un diamètre moyen de 13  $\mu m$ . En admettant que le produit obtenu est du sulfite de sodium hydraté ( $Na_2SO_3 \cdot 7H_2O$ ) dont la masse volumique est de 1561  $kg/m^3$ , on peut avoir un ordre de grandeur du diamètre initial des gouttes d'hydroxyde de sodium en admettant qu'il n'y ait pas de phénomène d'agglomération et que tout l'hydroxyde de sodium initial est transformé en sulfite.

Pour le débit de solution de 8 l/heure de concentration initiale en hydroxyde de 0,6812 mole/l et donc de concentration potentielle en sulfite de 0,3406 mole/l la conservation du sulfite conduit à la relation :

$$0,3406 \frac{\pi d_o^3}{6} = \frac{1561 \pi (13)^3}{252 \cdot 6} \text{ d'où } d_o = 34 \mu\text{m}$$

Cette valeur est nettement inférieure aux valeurs indiquées dans la littérature mais dans nos conditions opératoires, les vitesses au niveau du col sont très élevées et peuvent donc engendrer des gouttes initiales dont le diamètre est inférieur à 50  $\mu\text{m}$ .

En définitive, en tenant compte de la répartition granulométrique des produits réactionnels et des données de la littérature sur les dimensions des produits obtenus dans les absorbeurs par voie semi-sèche, on peut penser que le rayon initial des gouttes d'hydroxyde de sodium est de l'ordre de 25  $\mu\text{m}$ .

Pour ce rayon initial et pour le dispositif C en présence du venturi  $V_1$ , nous avons donné sur les figures (IV-7) et (IV-8) les variations du temps critique d'évaporation et du temps de passage des gouttes liquides en l'absence d'évaporation. Pour cette valeur initiale du rayon des gouttes ces deux temps inférieurs à la seconde varient peu en fonction du débit liquide d'alimentation.

De même sur la figure (IV-11), nous donnons les valeurs correspondantes du coefficient de transfert moyen  $h_G$ . Le coefficient de transfert thermique  $h_G$  est considérablement augmenté lorsqu'on passe du dispositif A au dispositif C, confirmant ainsi l'efficacité du dispositif C.

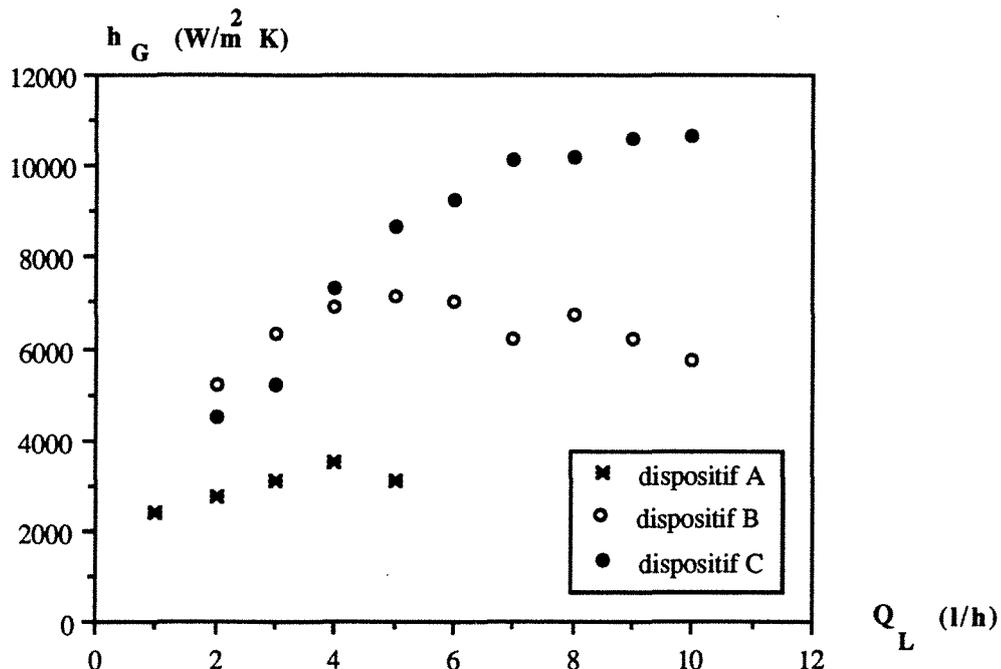


Figure (IV-11) : Comparaison des coefficients de transfert thermique des trois dispositifs munis du venturi  $V_1$  ( $Q_G \# 85,5 - 97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ,  $r_O = 25 \mu\text{m}$ ).

Lors de l'interprétation des résultats expérimentaux d'absorption du SO<sub>2</sub> par l'hydroxyde de sodium, nous admettons que pour un débit d'air chaud de 97,67 Nm<sup>3</sup>/h, le rayon initial des gouttes d'hydroxyde de sodium est de 25 μm.

## IV.2. MODELISATION DES CAPACITES D'ABSORPTION DES DISPOSITIFS EN PRESENCE D'UNE SOLUTION D'HYDROXYDE DE SODIUM

### IV 2.1. PRESENTATION DU MODELE

Le venturi provoque une dispersion de la solution basique en gouttes de rayon uniforme  $r_0$  dont la distribution des temps de séjour en l'absence d'évaporation est  $\frac{1}{\tau_L} \exp \frac{-t}{\tau_L}$ . Au niveau d'une goutte, l'absorption du SO<sub>2</sub> fait apparaître deux étapes consécutives :

- une première étape où la goutte reste à l'état liquide et durant laquelle on observe une diminution de sa taille.
- une deuxième étape où la goutte contient à la fois du solide et du liquide, la proportion de liquide diminuant au cours du temps alors que celle du solide augmente. Toutefois, au cours de cette étape, la dimension de la particule solidifiée reste constante.

La distribution des rayons initiaux des gouttes étant uniforme, le temps d'apparition de la phase solide dans les gouttes est identique et nous le poserons égal à  $t'_C$ . Il est évident que ce temps critique de solidification est inférieur au temps critique d'évaporation.

Au cours de la première étape, l'absorption réactionnelle du dioxyde de soufre dans une solution d'hydroxyde de sodium étant une réaction instantanée, il est donc logique d'admettre que la résistance de transfert gaz-liquide est limitée seulement par la résistance de transfert gaz-liquide du côté gaz caractérisé par un coefficient de transfert convectif  $k_G$ .

Pour la deuxième étape, la formation d'une phase solide peut faire apparaître une résistance diffusionnelle de transfert interne. Malheureusement, cette dernière va évoluer au cours du temps et son estimation dans ces conditions n'est pas simple. Aussi, nous supposerons que durant toute cette deuxième étape le phénomène d'absorption est limité uniquement par la résistance de transfert gaz-liquide et que la réaction se poursuit au delà du temps d'évaporation c'est à dire en présence d'un solide. Cette hypothèse est nécessaire pour trouver à partir des résultats expérimentaux des temps critiques de solidification inférieurs au temps critique d'évaporation. L'absorption du SO<sub>2</sub> par le solide est possible car l'air est humide et l'hydroxyde de sodium en excès. Enfin, pour simplifier au maximum l'évolution des gouttes

solidifiées au cours de la deuxième étape, nous supposons que leur rayon est constant et égal au rayon des gouttes au bout d'un temps d'évaporation  $t'_C$ .

Avec les hypothèses précédentes, au cours de la première étape la densité de flux de  $SO_2$  absorbé entre les âges  $t$  et  $t+dt$  au niveau d'une goutte de rayon  $r_g$  s'écrit :

$$\varphi = k_G (C_G - 0) \quad (IV-27)$$

où  $C_G$  est la concentration moyenne de  $SO_2$  au sein de l'absorbeur égale à celle à la sortie dans la mesure où le dispositif d'absorption est supposé parfaitement agité.  $k_G$  est le coefficient de transfert convectif gaz-liquide qui dépend de  $r_g$ .

Comme dans le cas de l'évaporation, on peut écrire que :

$$k_G = a' \cdot r_g^{-0,5} \quad (IV-28)$$

où

$$a' = 0,37 \cdot D_{SO_2/air} \cdot \left(\frac{2 \rho u}{\mu}\right)^{0,5} \cdot \left(\frac{\mu}{\rho D_{SO_2/air}}\right)^{0,33} \quad (IV-29)$$

$D_{SO_2/air}$  est la diffusivité de  $SO_2$  dans l'air à la température d'entrée (200 °C). D'après DANIELL, (1985) elle est égale à  $5,5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ .

Le nombre de gouttes de liquide dont l'âge est compris entre  $t$  et  $t+dt$  étant égal à :

$$dn = \frac{V_L I(t) dt}{\frac{\pi d_o^3}{6}} = \frac{Q_L \exp - \frac{t}{\tau_L} dt}{\frac{4}{3} \pi r_o^3}$$

Le débit molaire de  $SO_2$  absorbé par les gouttes dont l'âge est compris entre 0 et  $t'_C$  est tel que :

$$\phi_1 = \int_0^{t'_C} k_G C_G \frac{Q_L \exp - \frac{t}{\tau_L} 4 \pi r_g^2}{\frac{4}{3} \pi r_o^3} dt = \frac{3 a' C_G Q_L}{r_o^3} \int_0^{t'_C} r_g^{1,5} \left( \exp - \frac{t}{\tau_L} \right) dt \quad (IV-30)$$

Tant que la goutte reste liquide nous allons supposer que la variation de  $r_g$  en fonction du temps est identique à celle observée lors de l'évaporation de l'eau pure, soit :

$$r_g^{1,5} = r_o^{1,5} \left( 1 - \frac{t}{t'_C} \right) \quad (IV-31)$$

Par suite :

$$\phi_1 = \frac{3 a' C_G Q_L}{r_o^{1,5}} \int_0^{t'_C} \left( 1 - \frac{t}{t'_C} \right) \left( \exp - \frac{t}{\tau_L} \right) dt \quad (\text{IV-32})$$

En introduisant les deux temps critiques réduits  $\theta = \frac{t_C}{\tau_L}$  et  $\theta' = \frac{t'_C}{\tau_L}$ , le calcul de l'intégrale conduit à :

$$\phi_1 = \frac{3 a' \tau_L C_G Q_L}{r_o^{1,5}} \left[ (1 - \exp - \theta') \left( 1 - \frac{1}{\theta} \right) + \frac{\theta'}{\theta} \exp - \theta' \right] \quad (\text{IV-33})$$

Au cours de la deuxième étape, le rayon  $r_g$  reste constant et égal à  $[r_o^{1,5} (1 - \frac{t'_C}{t_C})]^{1/1,5}$ . De même, la densité de flux transféré avec les gouttes dont l'âge est supérieur à  $t'_C$  est constante. Par suite, le débit molaire de  $\text{SO}_2$  absorbé par les gouttes dont l'âge est supérieur à  $t'_C$  est tel que :

$$\phi_2 = \frac{3 a' C_G Q_L}{r_o^{1,5}} \left( 1 - \frac{t'_C}{t_C} \right) \int_{t'_C}^{\infty} \left( \exp - \frac{t}{\tau_L} \right) dt \quad (\text{IV-34})$$

Soit :

$$\phi_2 = \frac{3 a' \tau_L C_G Q_L}{r_o^{1,5}} \left( 1 - \frac{\theta'}{\theta} \right) \exp - \theta'$$

Par suite, le débit de  $\text{SO}_2$  absorbé dans le dispositif est égal à :

$$\phi = \phi_1 + \phi_2 = \frac{3 a' \tau_L C_G Q_L}{r_o^{1,5}} \left\{ \left[ (1 - \exp - \theta') \left( 1 - \frac{1}{\theta} \right) + \frac{\theta'}{\theta} \exp - \theta' \right] + \left( 1 - \frac{\theta'}{\theta} \right) \exp - \theta' \right\} \quad (\text{IV-35})$$

En introduisant les concentrations de  $\text{SO}_2$  à l'entrée et à la sortie du dispositif, nous avons :

$$\phi = Q_G (C_{Go} - C_G) \quad (\text{IV-36})$$

En égalant les deux expressions du débit de  $\text{SO}_2$  absorbé, il est possible d'évaluer la concentration de  $\text{SO}_2$  à la sortie du dispositif ou le taux de conversion de  $\text{SO}_2$ ,  $X = 1 - \frac{C_G}{C_{Go}}$  en fonction des temps critiques réduits  $\theta$  et  $\theta'$ . On obtient :

$$X = \frac{\frac{3 a' \tau_L Q_L}{Q_G r_o^{1,5}} \left\{ \left[ (1 - \exp - \theta') \left( 1 - \frac{1}{\theta} \right) + \frac{\theta'}{\theta} \exp - \theta' \right] + \left( 1 - \frac{\theta'}{\theta} \right) \exp - \theta' \right\}}{1 + \frac{3 a' \tau_L Q_L}{Q_G r_o^{1,5}} \left\{ \left[ (1 - \exp - \theta') \left( 1 - \frac{1}{\theta} \right) + \frac{\theta'}{\theta} \exp - \theta' \right] + \left( 1 - \frac{\theta'}{\theta} \right) \exp - \theta' \right\}} \quad (\text{IV-37})$$

Pour des conditions opératoires fixées, les capacités d'évaporation nous permettent d'évaluer le temps critique réduit d'évaporation  $\theta$ .

$r_0$  étant fixé, l'analyse de l'évaporation permet d'évaluer le temps de passage  $\tau_L$  en l'absence d'évaporation. Le coefficient  $a'$  étant connu à partir des mesures expérimentales des taux d'absorption de  $SO_2$ , la relation (IV-37) permet donc d'estimer le temps critique réduit  $\theta'$  et par suite le temps critique de début de solidification  $t'_C$ .  $\theta'$  étant indépendant de  $r_0$ , d'après la relation (IV-11)  $t_C$  est proportionnel à  $r_0^{1,5}$ . Par suite,  $\tau_L$  est proportionnel à  $r_0^{-1,5}$  et dans ces conditions la relation (IV-37) montre que  $\theta'$  est également indépendant de  $r_0$ . En revanche, comme  $t_C$ , le temps critique de début de solidification  $t'_C$  dépend de  $r_0$ .

#### IV.2.2. APPLICATION DU MODELE D'ABSORPTION DU $SO_2$ PAR UNE SOLUTION D'HYDROXYDE DE SODIUM

##### IV.2.2.1. Calcul du temps critique de début de solidification $\theta'$ et comparaison des trois dispositifs

A partir des résultats expérimentaux d'absorption obtenus sur les deux dispositifs B et C, la relation (IV-37) permet pour des conditions opératoires fixées d'évaluer le temps critique réduit  $\theta'$ .  $\theta'$  étant indépendant du rayon initial des gouttes  $r_0$ , la figure (IV-12) reporte les résultats obtenus pour les dispositifs B et C munis du venturi  $V_1$  en fonction du débit de solution  $Q_L$ .

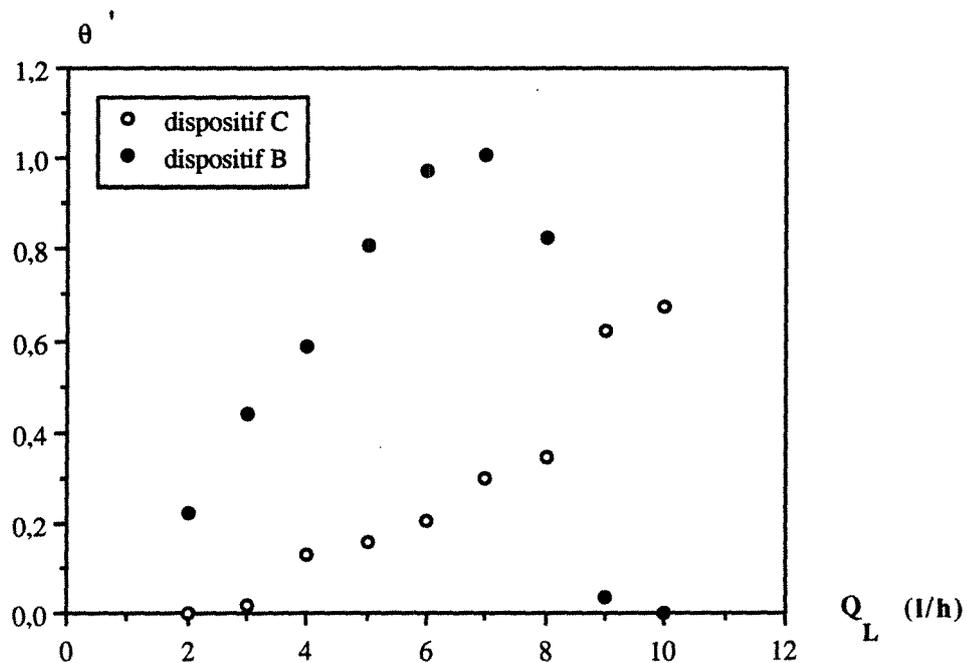


Figure (IV-12) : Comparaison des temps critiques de début de solidification pour les trois dispositifs munis du venturi  $V_1$ . ( $Q_G \# 85,5 - 98 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

Comme  $\theta$ , pour des conditions opératoires fixées et des débits de liquide inférieurs à 7 l/h, le temps réduit  $\theta'$  du dispositif C est plus petit que celui du dispositif B.

A partir de la relation (IV-37), le calcul des dérivées de X par rapport à  $\theta$  et  $\theta'$  montre que X est une fonction décroissante de  $\theta$  et  $\theta'$ . On confirme donc la supériorité du dispositif C vis à vis du dispositif B.

Avec le dispositif B pour des débits de liquide supérieurs à 7 l/h, on constate une diminution du temps critique réduit  $\theta'$ . De même, dans le cas du dispositif A, le modèle choisi ne permet pas de représenter les résultats expérimentaux pour des valeurs de  $\theta'$  comprises entre 0 et  $\theta$ . Ces observations traduisent l'inadéquation du modèle dans ces deux cas. A notre avis dans ces conditions et pour les géométries correspondantes, toute la phase liquide réactionnelle ne doit pas se trouver sous forme de gouttes indépendantes.

Suite au changement brutal d'orientation, une partie du liquide doit apparaître sur la paroi sous forme d'un film et dans le cas de l'absorption par la solution d'hydroxyde de sodium, l'épaisseur du film devenant plus faible que le diamètre moyen des gouttes, on observe une augmentation du coefficient de transfert gaz/liquide et par suite du taux d'absorption du  $\text{SO}_2$ .

Dans ce qui suit, nous allons montrer comment le modèle proposé permet de prévoir qualitativement l'influence des principaux paramètres opératoires étudiés sur le taux d'absorption du dioxyde de soufre.

#### ***IV 2.2.2. Prévion qualitative des paramètres opératoires sur le taux d'absorption du dioxyde de soufre pour une solution d'hydroxyde de sodium***

##### **a. Influence du débit liquide d'alimentation**

Le débit volumique et la température du gaz étant fixés, lorsqu'on augmente  $Q_L$ , on peut penser que l'on ne change pas le rayon initial des gouttes et par suite les temps critiques d'évaporation et de début de solidification  $t_C$  et  $t'_C$ . Pour les faibles valeurs de  $r_0$ , le temps de passage  $\tau_L$  est sensiblement constant. Dans ces conditions  $\theta$  et  $\theta'$  sont constants et X ne dépend que de  $Q_L$  selon une loi du type :

$$X = \frac{\zeta Q_L}{1 + \zeta Q_L} \quad (\text{IV-38})$$

qui est une fonction croissante de  $Q_L$ .

En cherchant à interpréter les résultats obtenus sur les dispositifs B et C par une loi de ce type, on trouve des valeurs optimales de  $\zeta$  de l'ordre 0,18 pour le dispositif B et 0,60 pour C. Celles-ci permettent de représenter de manière relativement satisfaisante les valeurs expérimentales dans la mesure où le temps de passage du liquide en l'absence d'évaporation n'est pas rigoureusement constant (figure IV-13).

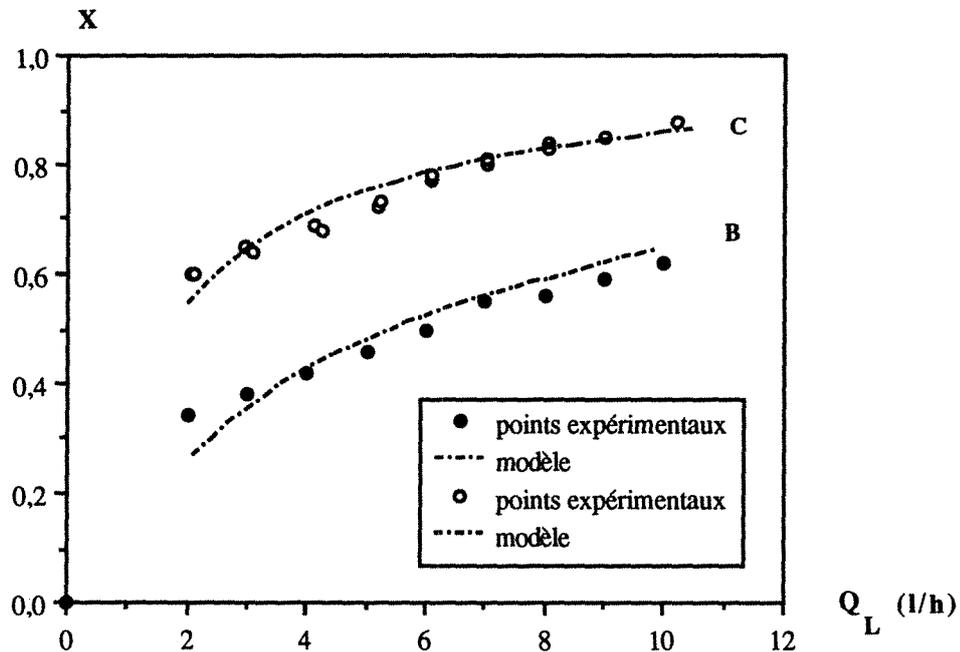


Figure (IV-13) : Comparaison des valeurs expérimentales du taux d'absorption avec les valeurs déduites du modèle d'absorption. (dispositifs C et B,  $Q_G \# 85 - 98 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

La constante  $\zeta$  calculée dans le cas du dispositif A est de l'ordre de 0,165. la figure (IV-14) reporte les résultats d'absorption de ce dispositif muni du venturi  $V_1$ . Le modèle permet de représenter qualitativement l'influence de  $Q_L$  mais la représentation reste grossière puisque comme nous l'avons indiqué précédemment, la phase liquide n'est probablement plus dispersée sous forme de gouttes.

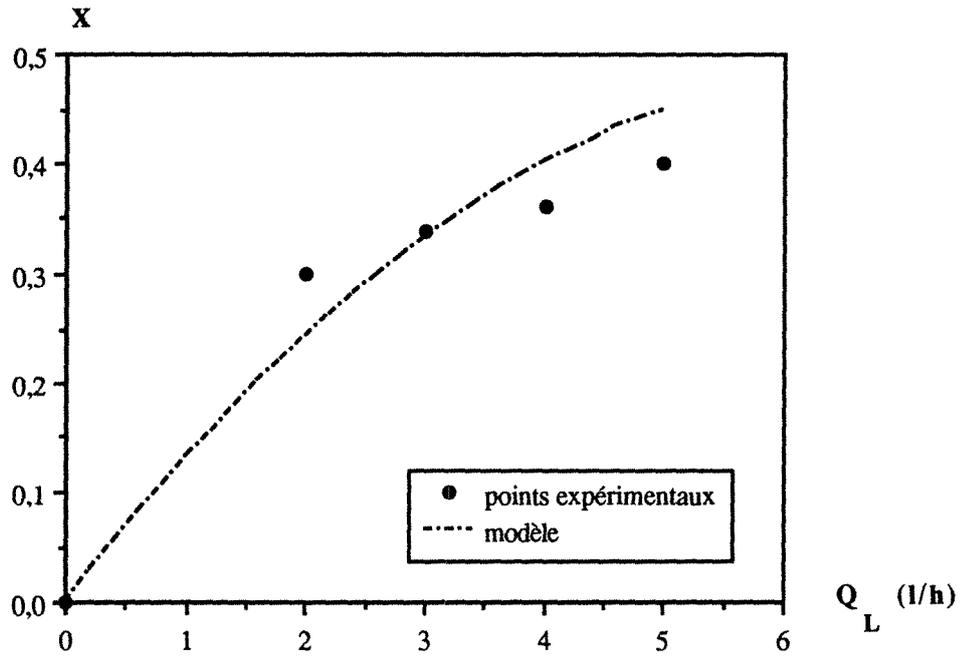


Figure (IV-14) : Comparaison des valeurs expérimentales du taux d'absorption avec les valeurs déduites du modèle d'absorption. (dispositif A,  $Q_G \# 85 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

### b. Influence de la géométrie du venturi

Les débits de gaz et de liquide étant fixés, si on remplace le venturi  $V_1$  par le venturi  $V_2$ , on réduit la vitesse du gaz au col du venturi et en conséquence on augmente le rayon initial des gouttes du liquide. Le coefficient  $a'$  diminue,  $r_0$  augmente donc compte tenu de la relation (IV-11),  $t_C$  et par suite  $t'_C$  augmentent aussi.

En fonction de  $r_0$ , le temps de passage du liquide  $\tau_L$  croît légèrement mais on peut penser que cette augmentation ne compense pas celle de  $t_C$  et  $t'_C$  et dans ces conditions,  $\theta$  et  $\theta'$  augmentent lorsqu'on remplace le venturi  $V_1$  par le venturi  $V_2$ . Les paramètres  $a'$ ,  $\tau_L$ ,  $Q_L$ ,  $Q_G$  et  $r_0$  étant fixés et le taux d'absorption  $X$  étant une fonction décroissante de  $\theta$  et  $\theta'$ , on observe donc une diminution du taux de conversion lorsqu'on remplace le venturi  $V_1$  par le venturi  $V_2$ .

$X$  étant de la forme :

$$X = \frac{N}{1+N} \quad (\text{IV-39})$$

la diminution de  $X$  provoque celle de la grandeur  $N$ .

La figure (IV-15) reporte les valeurs de la grandeur  $N$  pour le dispositif C muni du venturi  $V_1$  et  $V_2$  en fonction du débit liquide de la solution d'hydroxyde de sodium. En définitive, le modèle permet de rendre compte qualitativement de l'influence de la nature du venturi.

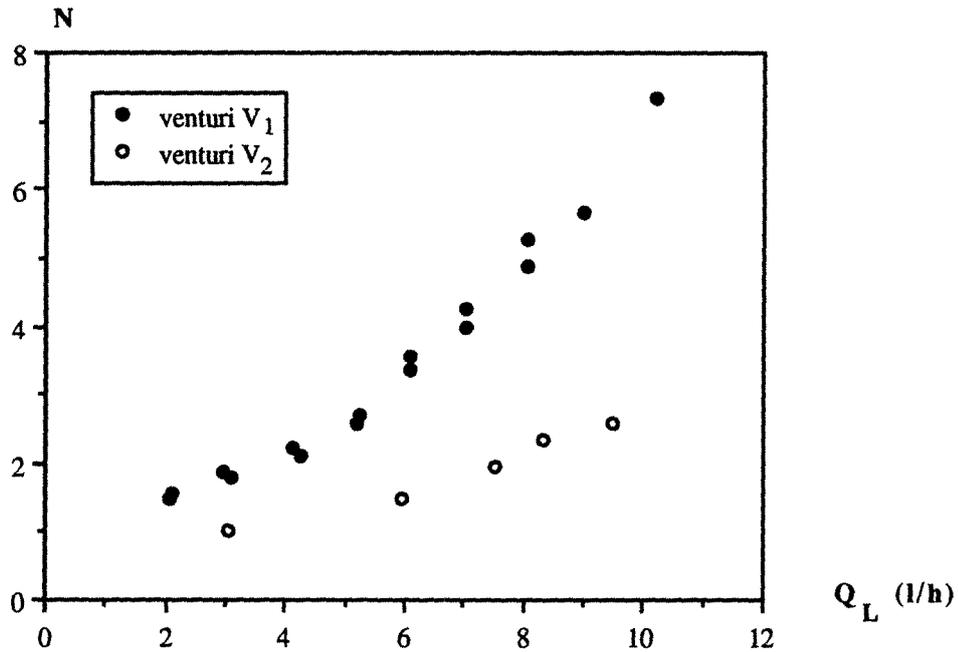


Figure (IV-15) : Influence de la géométrie du venturi sur le taux d'absorption de  $SO_2$   
(dispositif C,  $Q_G$  # 98 Nm<sup>3</sup>/h)

### c. Influence du débit d'enthalpie

La température d'entrée du gaz étant fixée, la variation du débit d'enthalpie correspond à une variation du débit de gaz. Lorsqu'on augmente le débit de gaz, on augmente le coefficient  $a'$  et on diminue le rayon initial  $r_0$ . Dans ces conditions, on diminue les temps critiques  $t_C$  et  $t'_C$ . De plus, à  $Q_L$  fixé lorsqu'on augmente  $Q_G$ , on diminue le temps de passage  $\tau_L$ . L'influence de  $Q_G$  sur  $t_C$  étant plus forte que celle sur  $\tau_L$  globalement  $\theta$  diminue avec  $Q_G$ . On peut, par suite penser qu'il en sera de même pour  $\theta'$  dans la mesure où les temps critiques  $t_C$  et  $t'_C$  sont reliés.  $\theta$  et  $\theta'$  diminuant avec  $Q_G$  et  $a'$  augmentant avec  $Q_G$ , le numérateur  $N$  apparaissant dans l'expression du taux d'absorption augmente avec  $Q_G$ . Il en résulte une augmentation du taux d'absorption  $X$ .

La figure (IV-16) rapporte les valeurs du numérateur  $N$  pour le dispositif C muni du venturi  $V_1$  en fonction de  $Q_G$ .

Comme dans le cas précédent, le modèle permet de rendre compte qualitativement de l'influence de la nature du venturi.

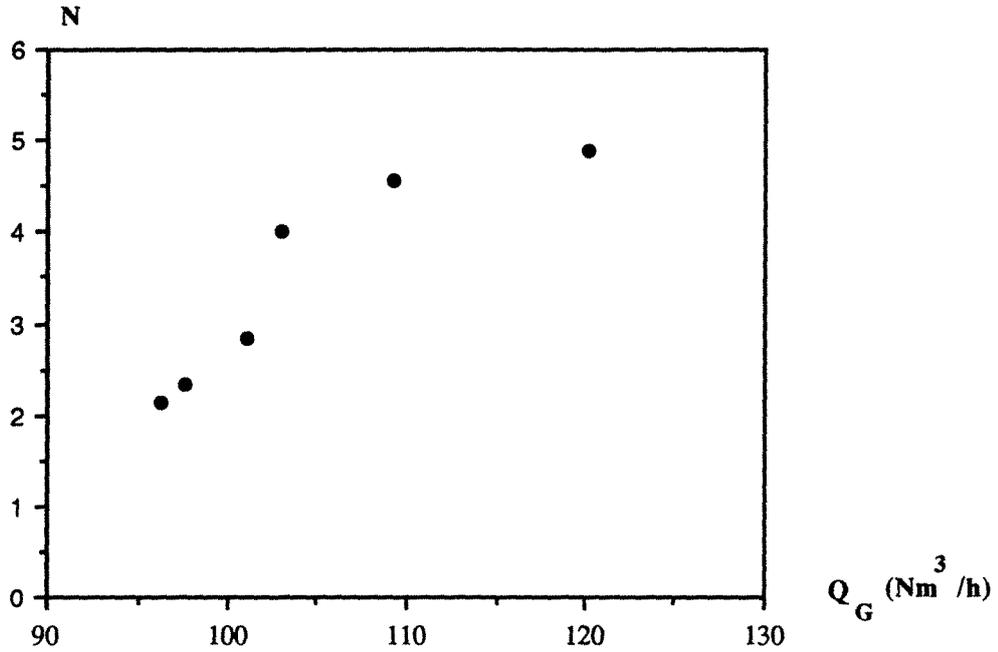


Figure (IV-16) : Influence du débit d'enthalpie sur le taux d'absorption de  $SO_2$ . (dispositif C, venturi  $V_1$ )

#### d. Influence de l'excès d'hydroxyde de sodium R

$Q_G$  et  $Q_L$  étant fixés, lorsqu'on change la concentration en hydroxyde de sodium, on peut penser que l'on ne modifie pas le temps critique d'évaporation  $t_C$  et le temps de passage  $\tau_L$ .

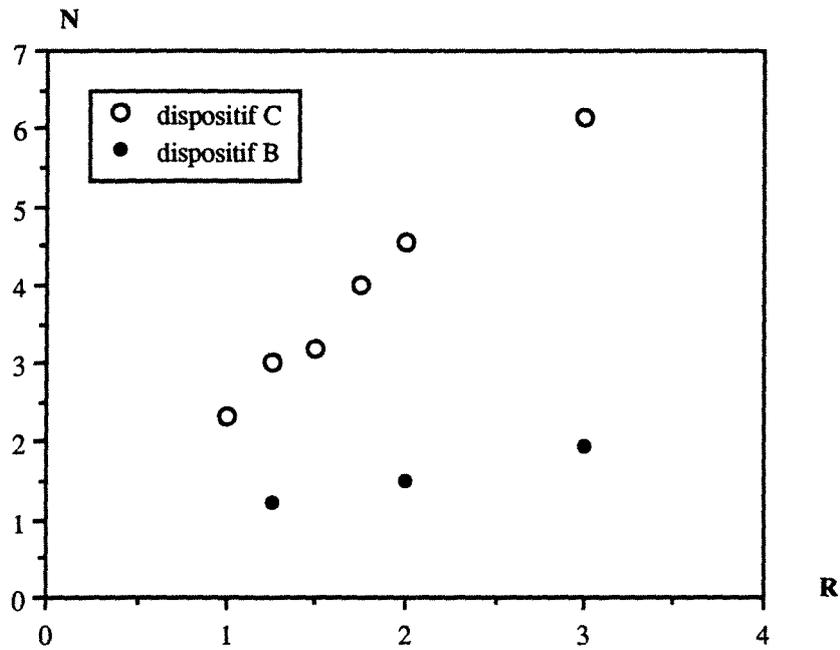


Figure IV-17) : Influence de l'excès de base sur le taux d'absorption de  $SO_2$ . (dispositifs B et C,

$$Q_G = 85,5 - 111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}, Q_L = 7 \text{ l/h, venturi } V_2 \text{ et } V_2)$$

Dans ces conditions, le temps réduit  $\theta$  est constant. En revanche, le temps critique de début de solidification  $t'_C$  diminue et il en sera de même pour le temps réduit  $\theta'$ .  $\theta'$  diminuant, le numérateur  $N$  augmente et provoque une augmentation du taux de conversion.

La figure (IV-17) rapporte les valeurs de  $N$  pour les dispositifs B et C munis des venturis  $V_1$  et  $V_2$  en fonction de  $R$ . Le modèle permet de rendre compte qualitativement de l'influence de l'excès de base  $R$ .

La température des gouttes de liquide étant pratiquement constante, il en sera de même pour la concentration à saturation à partir de laquelle la goutte devient solide. Si  $r_0$  et  $r'_C$  désignent les rayons de la goutte à l'état initial et au début de la solidification on a :

$$\left(\frac{r'_C}{r_0}\right)^3 = \frac{C_0}{C_S} = \left(1 - \frac{t'_C}{t_C}\right)^2$$

$\frac{C_0}{C_S}$  étant proportionnel à  $R$ , la relation précédente montre que :

$\frac{t'_C}{t_C}$  est proportionnel à  $(1 - \lambda \sqrt{R})$ . Par suite, il en sera de même pour  $\theta'$ . Nous avons porté sur la figure (IV-18) le temps critique  $\theta'$  en fonction de  $\sqrt{R}$ . La variation observée sur l'intervalle d'excès étudié est bien linéaire conformément aux prévisions du modèle.

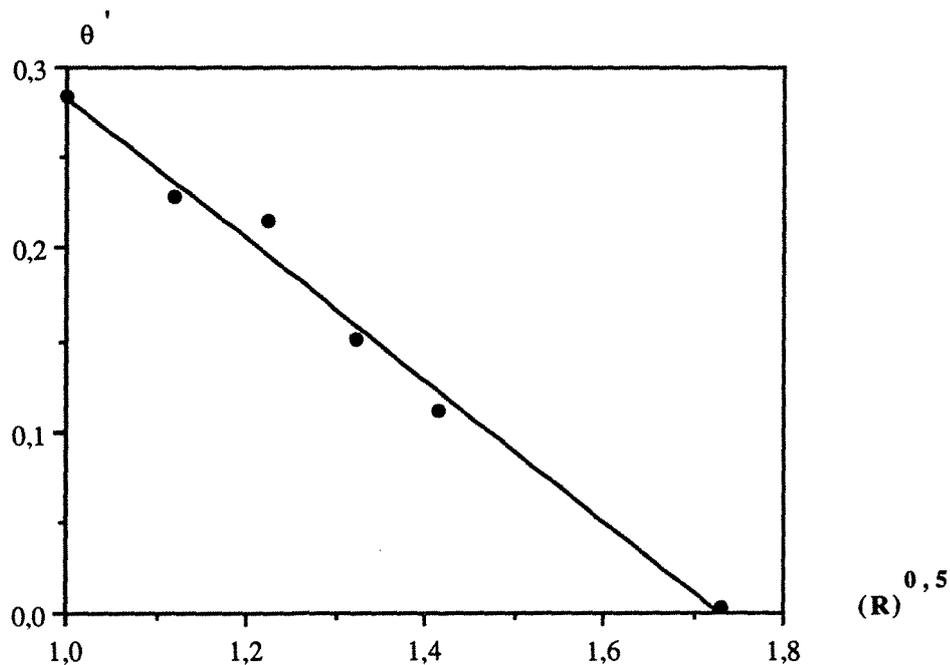


Figure (IV-18) : Variation du temps critique  $\theta'$  en fonction du rapport d'excès stoechiométrique  $R$ .  
( $Q_L$  # 7 l/h -  $r_0 = 25 \mu\text{m}$ , montage C, venturi  $V_2$ )

### IV.3. MODELISATION DES CAPACITES D'ABSORPTION DU DISPOSITIF EN PRESENCE D'UNE SUSPENSION D'HYDROXYDE DE CALCIUM

#### IV.3.1. PRESENTATION DU MODELE

L'analyse granulométrique de la suspension d'hydroxyde de calcium (chapitre V) montre que le diamètre moyen des particules est de 19  $\mu\text{m}$ . Dans ces conditions, ce diamètre est inférieur au diamètre initial des gouttes de liquide que nous avons supposé de l'ordre de 50  $\mu\text{m}$  lorsque le débit de gaz est de l'ordre de 98  $\text{Nm}^3/\text{h}$ . L'absorption de  $\text{SO}_2$  a lieu simultanément sur les gouttes de liquide et sur les particules de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  du moins tant que ces particules sont suffisamment humides. La solubilité de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  dans l'eau étant faible ( $C \# 1,673 \text{ g/l}$  à 30  $^\circ\text{C}$ ), nous allons admettre que l'absorption a lieu essentiellement sur les particules de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  humides, c'est à dire incluses dans une goutte de liquide comme le suggère le schéma de la figure (IV-19).

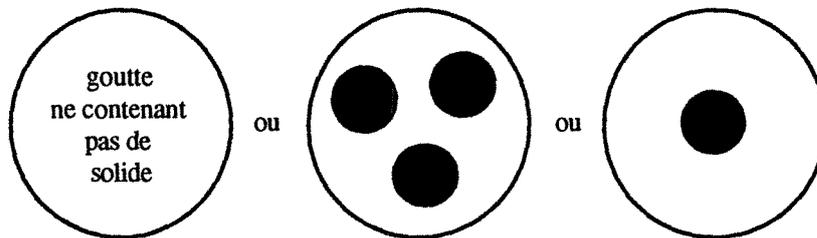


Figure (IV-19) : Répartition des particules d'hydroxyde de calcium dans les gouttes de liquide.

Les gouttes de solution qui contiennent des particules de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  participent à l'absorption alors que la contribution des gouttes de liquide ne contenant pas de particules solides est négligeable. Toutefois, pour simplifier l'analyse théorique nous admettrons que les gouttes qui contiennent des particules solides contiennent toutes le même nombre de particules solides.

Au niveau d'une particule solide entourée de liquide, nous admettrons que la résistance principale est la résistance diffusionnelle entre la phase gazeuse et les particules solides imprégnées et recouvertes d'un film liquide de faible épaisseur. Au niveau d'une particule solide, la densité de flux de  $\text{SO}_2$  absorbé est :

$$\varphi = k_G (C_G - 0)$$

où  $k_G$  est le coefficient de transfert convectif gaz-liquide qui dépend du rayon  $r_p$  des particules solides, soit :

$k_G = a' r_p^{-0,5}$  où  $a'$  est la valeur donnée par la relation (IV-29). Le nombre de gouttes de liquide dont l'âge est compris entre  $t$  et  $t+dt$  étant égal à :

$$dn = \frac{V_L I(t) dt}{\frac{\pi d_o^3}{6}} = \frac{Q_L \exp - \frac{t}{\tau_L} dt}{\frac{4}{3} \pi r_o^3} \quad (\text{IV-40})$$

le débit molaire de SO<sub>2</sub> absorbé par les gouttes dont l'âge est compris entre t et t+dt est tel que:

$$d\phi = k_G \cdot C_G \cdot 4 \pi r_p^2 \cdot \psi \cdot \frac{Q_L \cdot \exp - \frac{t}{\tau_L}}{\frac{4}{3} \pi r_o^3} dt$$

$$d\phi = \frac{3 a' r_p^{1,5} Q_L \psi}{r_o^3} \exp - \frac{t}{\tau_L} dt \quad (\text{IV-41})$$

Le coefficient  $\psi$  est le produit du nombre moyen de particules de solide dans une goutte par la fraction de gouttes d'âge t contenant des particules solides. Admettons que  $\psi$  soit indépendant de l'âge t.  $r_p$  étant constant, l'intégration de la relation (IV-41) permet d'évaluer le débit de SO<sub>2</sub> absorbé à condition d'intégrer la relation jusqu'au temps  $t_c$  correspondant au temps critique d'évaporation de la goutte de rayon initial  $r_o$ . On aboutit à :

$$\phi = \frac{3 a' r_p^{1,5} Q_L \psi \tau_L}{r_o^3} (1 - \exp - \theta)$$

En tenant compte de l'expression de  $\phi$  à partir des concentrations de SO<sub>2</sub> à l'entrée et à la sortie de l'absorbateur, le taux d'absorption de SO<sub>2</sub> en présence d'une suspension de chaux déduit du modèle présenté est donné par la relation :

$$X = \frac{\frac{3 a' r_p^{1,5} \tau_L \psi Q_L}{Q_G r_o^3} (1 - \exp - \theta)}{1 + \frac{3 a' r_p^{1,5} \tau_L \psi Q_L}{Q_G r_o^3} (1 - \exp - \theta)} \quad (\text{IV-42})$$

A partir des valeurs expérimentales du taux d'évaporation, on peut estimer le temps critique réduit  $\theta$ . Se donnant  $r_p$  ( $r_p = 9,5 \mu\text{m}$ ) les valeurs expérimentales du taux d'absorption permettent pour chaque valeur de  $r_o$  d'évaluer la constante  $\psi$ .

La figure (IV-20) présente la variation de  $\psi$  en fonction de  $Q_L$  pour différents rayons initiaux des gouttes dans le cas du dispositif C muni du venturi  $V_1$ . On constate que  $\psi$  est pratiquement indépendant du débit liquide. Le nombre de gouttes liquides augmentant avec  $Q_L$  (la rétention liquide  $V_L = Q_L \tau_L$  augmente avec  $Q_L$ ) cette hypothèse ne peut être vraisemblable que si chacune des particules solides est recouverte d'un film liquide et que si tout le liquide participe au

transfert. Dans ces conditions  $\psi$  doit être voisin de 1 et d'après la figure (IV-20), pour le dispositif C le rayon initial des gouttes liquide doit être voisin de 25  $\mu\text{m}$ .

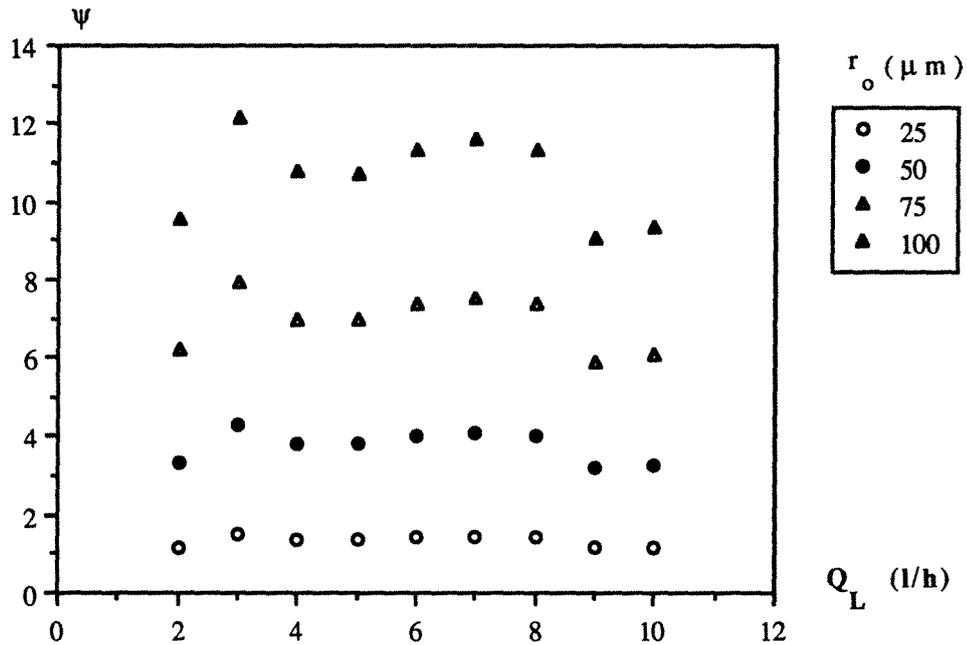


Figure (IV-20) : Variation de la constante  $\psi$  en fonction du débit volumique de suspension de chaux (montage C,  $Q_G = 97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ ).

### IV.3.2. APPLICATION DU MODELE D'ABSORPTION DE $\text{SO}_2$ PAR UNE SUSPENSION D'HYDROXYDE DE CALCIUM. PREVISIONS QUALITATIVE ET QUANTITATIVE DES PERFORMANCES EN FONCTION DES PRINCIPAUX PARAMETRES OPERATOIRES

#### IV.3.2.1. Influence du débit volumique

En fixant  $r_o = 25 \mu\text{m}$ ,  $r_p = 9,5 \mu\text{m}$  et en se donnant la valeur de  $\psi$  la relation (IV-42) permet connaissant  $\theta$  d'évaluer le taux d'absorption de  $\text{SO}_2$  dans les trois dispositifs A, B et C munis du venturi  $V_1$  pour des débits de l'air compris entre 85 - 98  $\text{Nm}^3/\text{h}$  et pour chaque débit en suspension.

La courbe théorique obtenue avec le dispositif C pour une valeur de la constante  $\psi$  égale à 1,33 est reportée sur la figure (IV-21). Dans le domaine étudié le modèle représente de façon très satisfaisante les résultats expérimentaux.

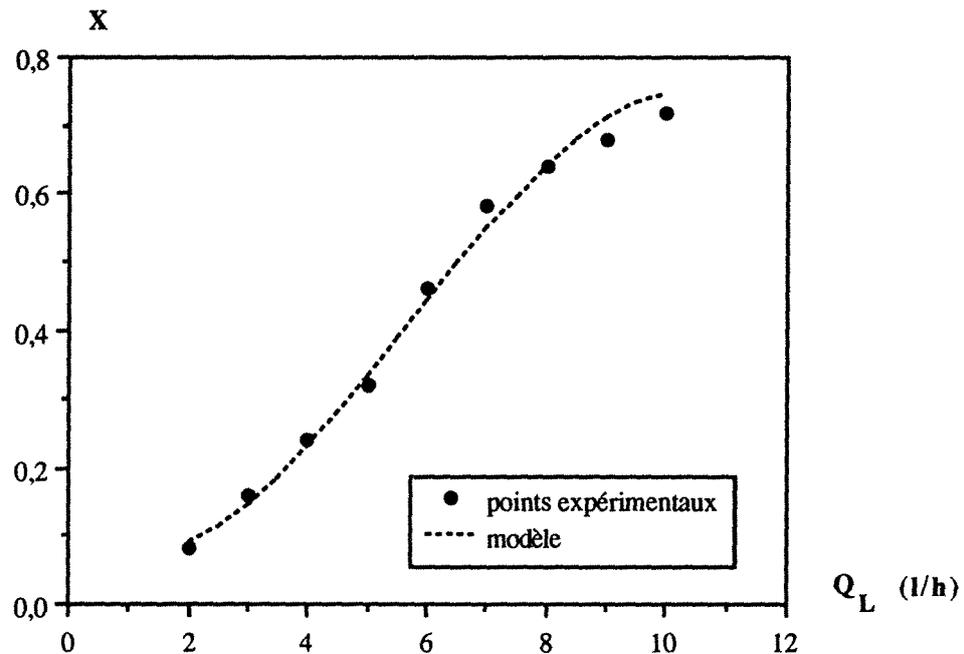


Figure (IV-21) : Influence du débit volumique de suspension d'hydroxyde de calcium. Comparaison des résultats expérimentaux avec la courbe théorique déduite du modèle. (dispositif C, venturi  $V_1$ )

Avec le dispositif B, avec une valeur de  $\psi$  optimisée de l'ordre de 2 (figure IV-12 de l'annexe IV) et pour des débits de suspension allant de 2 à 7 l/h, le modèle représente bien les résultats expérimentaux (figure IV-22). Toutefois, au delà de 7 l/h, il serait nécessaire d'accroître la constante  $\psi$ . En réalité, ce modèle ne représente pas correctement les résultats expérimentaux car dans le dispositif, au delà d'un certain débit, toute la phase liquide réactionnelle n'est pas sous forme de gouttes et un film de liquide doit se former sur les parois par suite du changement d'orientation entre le venturi et la conduite cylindrique.

La figure (IV-23) montre une comparaison des résultats expérimentaux du dispositif A avec les valeurs calculées par la relation (IV-42) dans le cas où la constante  $\psi$  est égale à 4 (voir figure IV 13 de l'annexe IV).

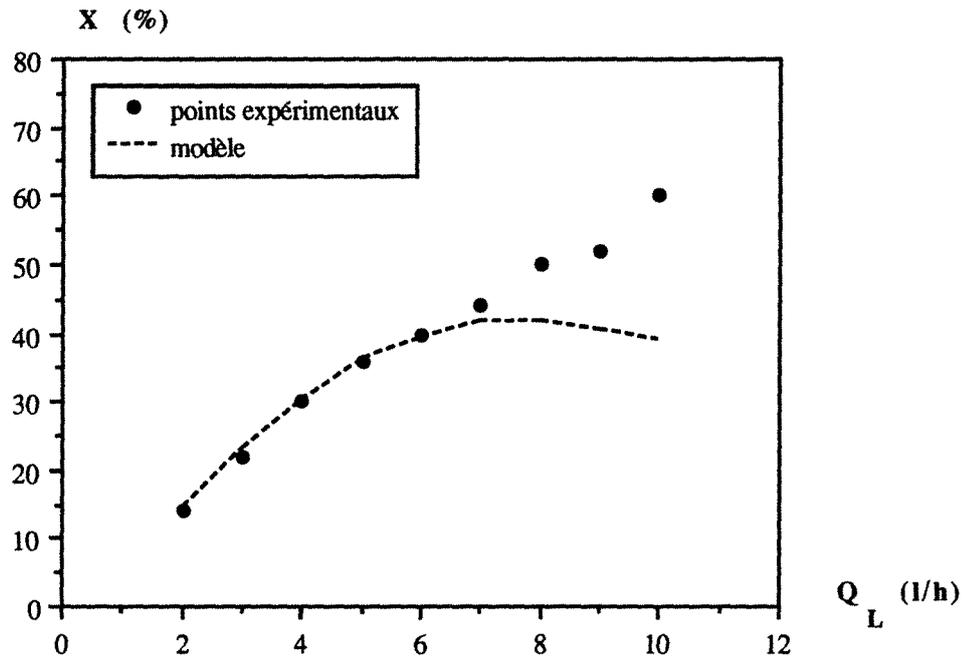


Figure (IV-22) : Influence du débit volumique de suspension d'hydroxyde de calcium. Comparaison des résultats expérimentaux avec la courbe théorique déduite du modèle. (dispositif B, venturi  $V_1$ )

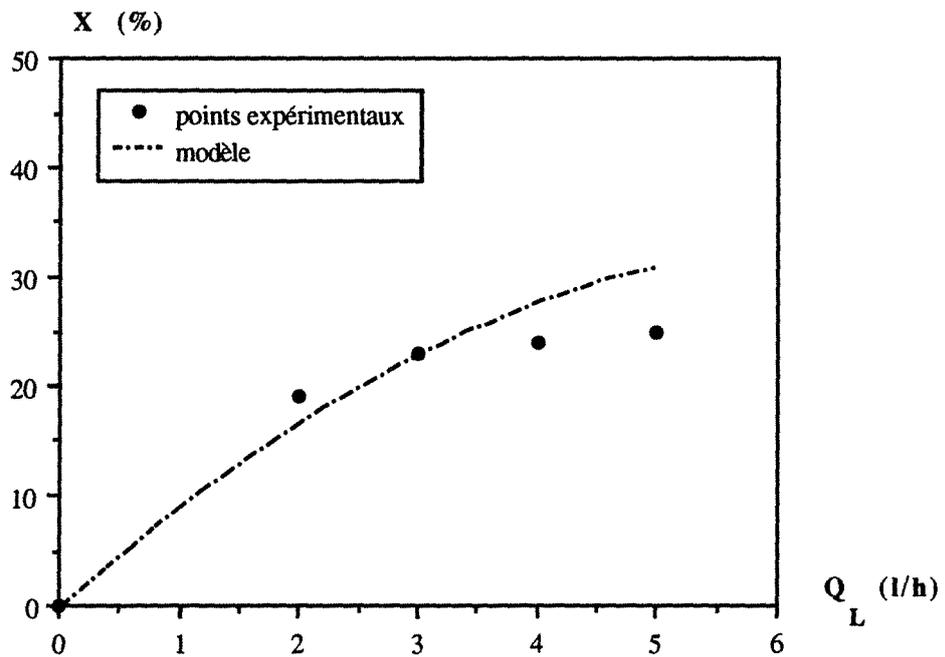


Figure (IV-23) : Influence du débit volumique de suspension d'hydroxyde de calcium. Comparaison des résultats expérimentaux avec la courbe théorique déduite du modèle. (dispositif A, venturi  $V_1$ )

Ici encore, le modèle ne représente pas bien les résultats expérimentaux car comme dans le cas du dispositif B, l'évaporation n'étant pas totale, une partie de la phase liquide dans le réacteur doit apparaître sous forme de film et pas uniquement sous forme de gouttes.

#### IV.3.2.2. Influence du rayon initial des particules $r_p$

Dans le chapitre III, nous avons montré que le diamètre moyen du réactif solide joue un rôle sensible sur le taux d'absorption de  $\text{SO}_2$  (figure III-35) lorsque le diamètre varie de  $143 \mu\text{m}$  à  $15 \mu\text{m}$ .

D'après la relation (IV-42), si  $\psi$  est indépendant de  $r_p$ , une augmentation du rayon conduirait à une augmentation de  $X$  ce qui serait en contradiction avec les résultats expérimentaux. En réalité,  $\psi$  diminue car le diamètre des particules peut devenir supérieur au diamètre des gouttes de liquide. De plus, à débit volumique de solide constant, la rétention solide augmente peut-être, mais le nombre de particules solides dans l'absorbeur ne peut que diminuer. Supposons que le volume des particules solides soit indépendant du rayon  $r_p$ . Si  $n_p^*$  désigne le nombre de particules solides pour un rayon de  $9,5 \mu\text{m}$ , le nombre de particules pour un rayon  $r_p$  quelconque (exprimé en  $\mu\text{m}$ ) est tel que :

$$\frac{n_p}{n_p^*} = \left( \frac{9,5}{r_p} \right)^3$$

Par suite, le coefficient  $\psi$  dans le cas des rayons  $r_p$  supérieurs à  $9,5 \mu\text{m}$  est tel que :

$\psi = \left( \frac{9,5}{r_p} \right)^3 \cdot \psi(r_p=9,5 \mu\text{m})$ . Si nous prenons pour  $\psi(r_p=9,5 \mu\text{m})$  la valeur optimisée du dispositif C, soit (1,33), le taux de conversion est donné par la relation :

$$X = \frac{\frac{4 a' r_p^{1,5} \tau_L \left( \frac{9,5}{r_p} \right)^3 Q_L}{Q_G r_O^3} (1 - \exp - \theta)}{1 + \frac{4 a' r_p^{1,5} \tau_L \left( \frac{9,5}{r_p} \right)^3 Q_L}{Q_G r_O^3} (1 - \exp - \theta)} \quad (\text{IV-43})$$

L'application de la relation (IV-43) montre que pour des valeurs de  $r_p$  nettement supérieures à  $9,5 \mu\text{m}$  le taux de conversion calculé est inférieur aux valeurs expérimentales. Cette différence est due probablement au fait que la rétention solide dans l'absorbeur augmente avec le diamètre et que le coefficient  $\psi$  est évalué par défaut par la relation (IV-43). De toute manière, le modèle permet de rendre compte qualitativement de l'influence de la taille des particules d'hydroxyde de calcium, dans la mesure où il postule que la résistance de transfert est localisée à l'interface gaz-réactif solide humide.

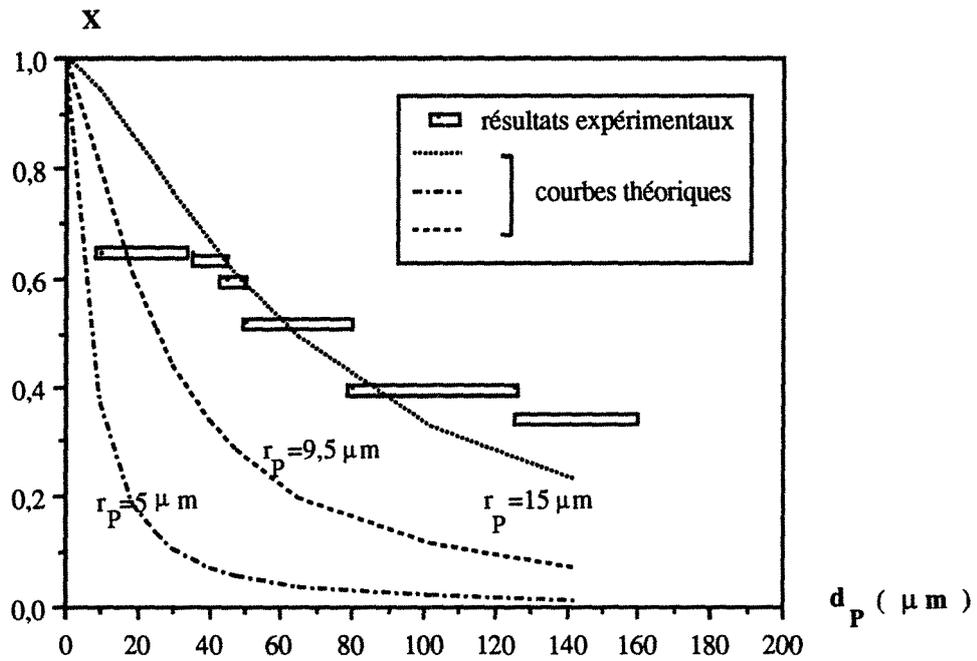


Figure (IV-24) : Influence du diamètre des particules d'hydroxyde de calcium. Comparaison des résultats expérimentaux avec la courbe théorique déduite du modèle. (montage C,  $Q_L = 8 \text{ l/h}$ ,  $Q_G = 97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

#### IV.3.2.3. Influence de l'excès de base R

Les débits de gaz et de liquide étant fixés, l'augmentation de l'excès R correspond à un accroissement du débit volumique de solide  $Q_p$ . En admettant que la fraction des gouttes contenant des particules de chaux est égale à 1, la constante  $\psi$  représente le nombre de particules par goutte de liquide. Il nous faut exprimer  $\psi$  en fonction de l'excès R.

Si nous supposons que les vitesses du gaz et du solide sont identiques, on a :

$$\frac{Q_G}{\Omega (1-\beta_p)} = \frac{Q_p}{\Omega \beta_p} \text{ où } \beta_p \text{ est la rétention de solide.}$$

$$Q_G \gg Q_p \text{ d'où } \beta_p \approx \frac{Q_p}{Q_G}$$

$$\text{le volume du solide est tel que : } V_p = V \beta_p = V \frac{Q_p}{Q_G}$$

où V est le volume géométrique de l'absorbeur.

L'excès d'hydroxyde de calcium par rapport au dioxyde de soufre est tel que :

$$R = \frac{F_{Ca(OH)_2}}{F_{SO_2}} = \frac{\rho_P Q_P}{Q_G C_{G0} M_P}$$

où

$\rho_P$  est la masse volumique de la chaux.

$M_P$  est la masse molaire de la chaux.

$C_{G0}$  est la concentration de  $SO_2$  à l'entrée de l'absorbeur.

Dans ces conditions :

$$V_P = \frac{V C_{G0} M_P}{\rho_P} R$$

et

$$\psi = \frac{n_P}{n_g} = \frac{V_P \frac{4}{3} \pi r_o^3}{\frac{4}{3} \pi r_P^3 V_L} = \frac{r_o^3 V C_{G0} M_P R}{r_P^3 \rho_P Q_L \tau_L}$$

En calculant  $\psi$  pour  $R = 1,25$ ,  $r_o = 25 \mu m$ ,  $C_{G0} = 500 \text{ ppm}$ ,  $Q_L = 7 \text{ l/h}$  et  $r_P = 9,5 \mu m$ , nous trouvons que  $\psi \approx 1,9$ . Ce résultat est le même que celui calculé à partir de l'équation (IV-42) dans le cas du dispositif C muni du venturi  $V_2$  (figure IV-14 de l'annexe IV). Nous confirmons ainsi l'ordre de grandeur du diamètre initial des gouttes de liquide dans le cas du dispositif C.

En définitive, le taux d'absorption de  $SO_2$  est donné en fonction de  $R$  par la relation :

$$X = \frac{3 a' V C_{G0} M_P R (1 - \exp - \theta)}{Q_G r_P^{1,5} \rho_P} \left( 1 + \frac{3 a' V C_{G0} M_P R (1 - \exp - \theta)}{Q_G r_P^{1,5} \rho_P} \right)$$

Tous les autres paramètres étant fixés,  $X$  est une fonction croissante de  $R$ . Nous portons sur la figure (IV-25), les valeurs expérimentales et calculées du taux d'absorption de  $SO_2$  obtenues avec le dispositif C muni du venturi  $V_2$  en fonction de l'excès de base  $R$ . La courbe déduite du modèle traduit correctement le sens de variation mais ne représente pas parfaitement le rôle de l'excès de base.

Pour les valeurs élevées de l'excès, les taux de conversion expérimentaux sont plus faibles et cette diminution est due probablement à une agglomération des particules d'hydroxyde de calcium qui conduit à une diminution de la surface d'échange gaz-solide et donc globalement du coefficient  $\psi$ .

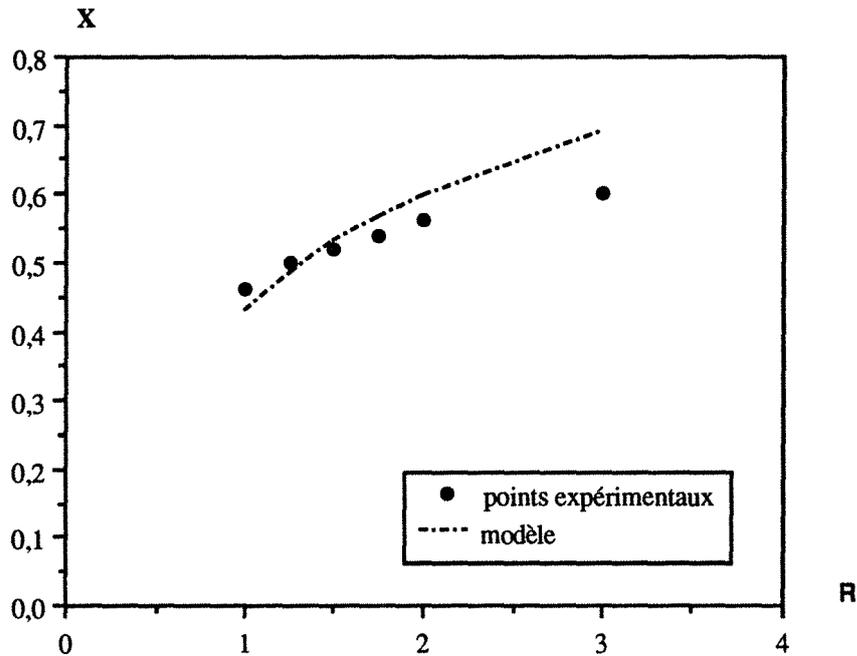


Figure (IV-25) : Influence du rapport d'excès  $R$ . Comparaison des résultats expérimentaux avec la courbe théorique déduite du modèle. (montage C,  $Q_L = 7 \text{ l/h}$ ,  $Q_G = 97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_2$ )

#### IV.4. CONCLUSION

L'introduction d'un modèle d'évaporation et de deux modèles d'absorption du  $\text{SO}_2$  où la résistance de transfert est limitée à la résistance diffusionnelle de transfert gaz-gouttes ou gaz particules solides permet de représenter de manière très satisfaisante les capacités d'évaporation des dispositifs ainsi que leur taux d'absorption en présence d'une solution de  $\text{NaOH}$  ou une suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$ .

Les taux d'absorption sont étroitement liés aux capacités d'évaporation ( $X$  est toujours fonction de  $\theta$ ) et ils sont d'autant plus importants que les capacités d'évaporation sont élevées surtout dans le cas de la solution d'hydroxyde de sodium. Pour l'hydroxyde de calcium, elles dépendent du rayon moyen des particules d'hydroxyde.

La modélisation nous permet d'affirmer que dans les conditions optimales d'utilisation du dispositif C, muni du venturi  $V_1$  ( $Q_G = 98 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ), le rayon moyen des gouttes de liquide est de l'ordre de  $25 \mu\text{m}$ . De plus, dans le cas des particules d'hydroxyde de calcium de rayon moyen  $9,5 \mu\text{m}$ , on peut dire que les gouttes de liquide de rayon moyen  $25 \mu\text{m}$  contiennent en moyenne une particule, le liquide formant une couche superficielle sur la particule de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$ .

Enfin, pour le dispositif B au delà de débits de liquide ou de suspension supérieurs à 7 l/h et pour le dispositif A, toute la phase liquide réactionnelle ne se trouve pas sous forme de gouttelettes indépendantes. Une partie du liquide est probablement sous forme d'un film liquide et dans ces conditions, le modèle préconisé ne permet pas de représenter correctement les résultats expérimentaux.

## Chapitre V

### CARACTERISTIQUES TECHNIQUES DU RESIDU SOLIDE

V.1. INTRODUCTION.....	136
V.2. NATURE CHIMIQUE DU RESIDU SOLIDE	
V 2.1. Méthodes d'analyse physique .....	136
V.2.1.1. La microscopie électronique à balayage (SEM)	
V.2.1.2. La spectroscopie dispersive X (EDS)	
V.2.1.3. La calorimétrie différentielle à balayage (DSC)	
V.2.1.4. Diffractions de rayons X.....	138
V.2.2. Méthodes d'analyse chimique	
V.2.2.1. Dosage iodométrique direct	
V.2.2.2. Dosage iodométrique indirect	
V.2.3. Résultats .....	140
V.3. CARACTERISTIQUES GEOMETRIQUES ET INCRUSTANTES DES REACTIFS ET DES PRODUITS SOLIDES.....	141
V.3.1. Caractéristiques géométriques	
V.3.2. Caractéristiques incrustantes des produits réactionnels.....	142

## V.1. INTRODUCTION

L'objectif de notre étude confiée initialement par la société SAPS Anticorrosion était d'optimiser le dispositif conçu en vue de son utilisation à l'échelle industrielle. Si, sur le plan performance nous pouvons affirmer que le dispositif C muni du venturi  $V_1$  peut être considéré comme efficace, la mise en oeuvre du dispositif à l'échelle industrielle nécessite la connaissance de certaines caractéristiques techniques du résidu solide, en particulier :

- sa nature chimique pour son devenir ultérieur
- sa nature incrustante pour prévoir un nettoyage continu ou périodique des différents éléments du dispositif..

Dans ce qui suit, nous rapportons les valeurs de ces deux caractéristiques techniques mesurées sur le dispositif C.

## V.2. NATURE CHIMIQUE DU RESIDU SOLIDE

Les produits des réactions de  $SO_2$  avec l'hydroxyde de sodium et l'hydroxyde de calcium peuvent être identifiés soit par des méthodes d'analyses physiques ou chimiques. Dans ce qui suit, nous décrivons tout d'abord plusieurs méthodes physiques envisagées dans la littérature puis nous indiquons deux méthodes d'analyse chimique que nous avons utilisées dans le cas de nos produits solides obtenus lors de l'absorption du  $SO_2$  par l'hydroxyde de sodium et l'hydroxyde de calcium. De façon plus concrète, il s'agit de préciser les fractions de sulfite et de sulfate associées à la base résiduelle.

### V 2.1. METHODES D'ANALYSE PHYSIQUE

#### V.2.1.1. *La microscopie électronique à balayage (SEM)*

Le microscope électronique est un instrument permettant d'examiner la surface du solide. La surface à étudier est irradiée par un faisceau d'électrons. Lorsque ces derniers entrent en collision avec la surface de l'échantillon solide, différents types de signaux sont produits. La variation des émissions des électrons secondaires est utilisée pour produire des images des composants de l'échantillon. Cette méthode a été utilisée par RUIZ-ALSOP (1986), pour caractériser les particules de  $Ca(OH)_2$  dans le produit de la réaction. L'auteur a observé que les particules de  $Ca(OH)_2$  qui subissent une réaction avec  $SO_2$  possèdent des formes régulières

sphériques alors que les particules de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  non transformées présentent une forme irrégulière.

#### ***V.2.1.2. La spectroscopie dispersive X (EDS)***

Lors d'un bombardement électronique, on s'intéresse aux rayons X émis. Ces derniers sont analysés sur le plan énergétique et l'analyse quantitative des éléments choisis (Ca, S, Cl,...) dépend de l'intensité des émissions X relatives aux éléments. La concentration s'obtient par étalonnage à partir d'échantillons dont on connaît la composition et qui sont soumis aux mêmes bombardements que l'échantillon à analyser. La spectroscopie dispersive X est limitée car elle n'est pas capable d'identifier des éléments qui ont un poids moléculaire inférieur à celui du sodium.

#### ***V.2.1.3. La calorimétrie différentielle à balayage (DSC)***

La calorimétrie à balayage permet de suivre la différence entre les enthalpies d'un échantillon et d'une référence inerte en fonction de la température. L'apparition d'une variation d'enthalpie sous forme d'un pic traduit une transformation chimique endo- ou exothermique de l'échantillon. RUIZ-ALSOP (1986), a utilisé ce dispositif dans le cas du produit d'absorption de  $\text{SO}_2$  par l'hydroxyde de calcium. Pour un produit solide sec, trois pics apparaissent, à savoir :

- entre 120 °C et 140 °C le pic du gypse ( $\text{CaSO}_4$ )
- entre 150 °C et 170 °C le pic du sulfate de calcium hémihydraté ( $\text{CaSO}_4, 1/2 \text{H}_2\text{O}$ )
- entre 350 °C et 430 °C le pic du sulfite de calcium hémihydraté ( $\text{CaSO}_3, 1/2 \text{H}_2\text{O}$ )

#### ***V.2.1.4. Diffraction de rayons X***

C'est une méthode utilisée pour caractériser les réactifs et les produits solides cristallisés de la réaction. La dispersion des rayons X est provoquée par l'atmosphère électronique des atomes. Les spectres de diffraction permettent d'identifier les molécules et de déterminer leur structure atomique et moléculaire. La diffraction X sur  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  fait apparaître huit pics à partir desquels il est possible de calculer la distance inter atomique et les angles de diffraction. Le sulfite et le sulfate de calcium conduisent à des spectres différents.

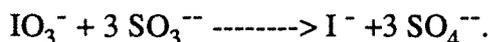
Toutes ces méthodes aident à mettre en évidence la transformation de l'hydroxyde de calcium par le dioxyde de soufre. Certaines d'entre elles peuvent être quantitatives. Toutefois, elles nécessitent toutes un dispositif analytique spécifique que le laboratoire ne possède pas. En revanche, les méthodes chimiques sont plus faciles à mettre en oeuvre et ce sont les seules qui ont été envisagées pour analyser quantitativement les produits solides obtenus dans le dispositif de traitement C.

## V.2.2. METHODES D'ANALYSE CHIMIQUE

### V.2.2.1. Dosage iodométrique direct

La concentration de sulfite de sodium ou de calcium est mesurée par un dosage iodométrique direct dont le protocole opératoire est le suivant : 1 gramme de solide réactionnel est dissout dans 100 ml d'eau distillée ( les solubilités de  $\text{Na}_2\text{SO}_3$  et  $\text{CaSO}_3$  à 25 °C sont respectivement 182 et 0,0414 g/l ). Un échantillon de 2 ml de cette solution est dilué dans 50 ml d'eau distillée. On ajoute 1 ml d'acide acétique concentré avec quelques gouttes d'empois d'amidon comme indicateur. Après agitation du mélange, l'échantillon est dosé avec une solution titrée d'iodate de potassium 0,05 M jusqu'au virage de la solution du transparent au bleu, preuve de la formation d'iode en présence d'empois d'amidon.

La stœchiométrie globale de la réaction étant :



v est le volume d'iodate versé (exprimé en ml), la masse de sulfite de sodium non hydratée (exprimée en grammes) contenue dans un gramme d'échantillon est donné par la relation:

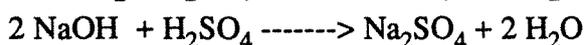
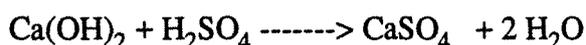
$$m_{\text{Na}_2\text{SO}_3} = \frac{3.0,05 \text{ v} \cdot 10^{-3} \cdot 100 \cdot 126}{2} = 0,945 \text{ v}$$

De même, la masse de sulfite de calcium non hydraté contenue dans un gramme d'échantillon est donnée par la relation:

$$m_{\text{CaSO}_3} = \frac{3.0,05 \text{ v} \cdot 10^{-3} \cdot 100 \cdot 120}{2} = 0,90 \text{ v}$$

La concentration d'hydroxyde de sodium et de calcium est mesurée par un dosage acide-base avec une solution titrée d'acide sulfurique 0,5 M en présence de phénolphtaleine. Le dosage est

effectué sur un échantillon de 5 ml de solution. Les réactions mises en jeu lors de ces dosages sont :



et les masses d'hydroxyde de sodium et de calcium contenues dans un gramme d'échantillon sont données par les relations :

$$m_{\text{NaOH}} = \frac{2.0,05 \text{ v}' \cdot 10^{-3} \cdot 100 \cdot 40}{5} = 0,80 \text{ v}'$$

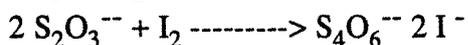
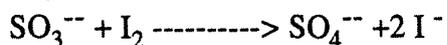
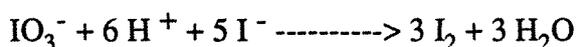
$$m_{\text{Ca(OH)}_2} = \frac{0,05 \text{ v}' \cdot 10^{-3} \cdot 100 \cdot 74}{5} = 0,74 \text{ v}'$$

v' est le volume d'acide versé exprimé en ml.

Connaissant les masses de sulfite et d'hydroxyde, la masse de sulfate est déduite par différence.

#### V.2.2.2. Dosage iodométrique indirect

La concentration de sulfite dans les solutions peut être mesurée par un dosage indirect. On ajoute à 2 ml de la solution 10 ml d'une solution d'iodate de potassium ( $\text{KIO}_3$ ) 0,05 M et 10 ml d'une solution d'iodate de potassium (KI) 0,301 M. Après ajout de 50 ml d'eau distillée, 1 ml d'acide acétique concentré et 2 à 3 gouttes d'empois d'amidon, l'iode ainsi formé est dosé par une solution de thiosulfate ( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ ) 0,01 M. Les réactions mises en jeu sont :



Si v'' est le volume de la solution de thiosulfate versée, les masses de sulfite de sodium et de calcium contenues dans un gramme de solide sont données par les relations:

$$m_{\text{Na}_2\text{SO}_3} = \frac{3 \cdot 10 \cdot 10^{-3} \cdot 0,05 - \text{v}'' \cdot 10^{-3} \cdot 0,01 \cdot 2}{2} \cdot 100 \cdot 126 = 9,45 - 0,126 \text{ v}''$$

$$m_{\text{CaSO}_3} = \frac{3 \cdot 10 \cdot 10^{-3} \cdot 0,05 - \text{v}'' \cdot 10^{-3} \cdot 0,01 \cdot 2}{2} \cdot 100 \cdot 120 = 9 - 0,12 \text{ v}''$$

Les résultats obtenus avec les deux méthodes de dosage sont pratiquement identiques et l'écart est inférieur à 1 %.

### V.2.3. RESULTATS

Les fractions massiques moyennes en base résiduelle, sulfite et sulfate sont données sur les deux représentations de la figure (V-1).

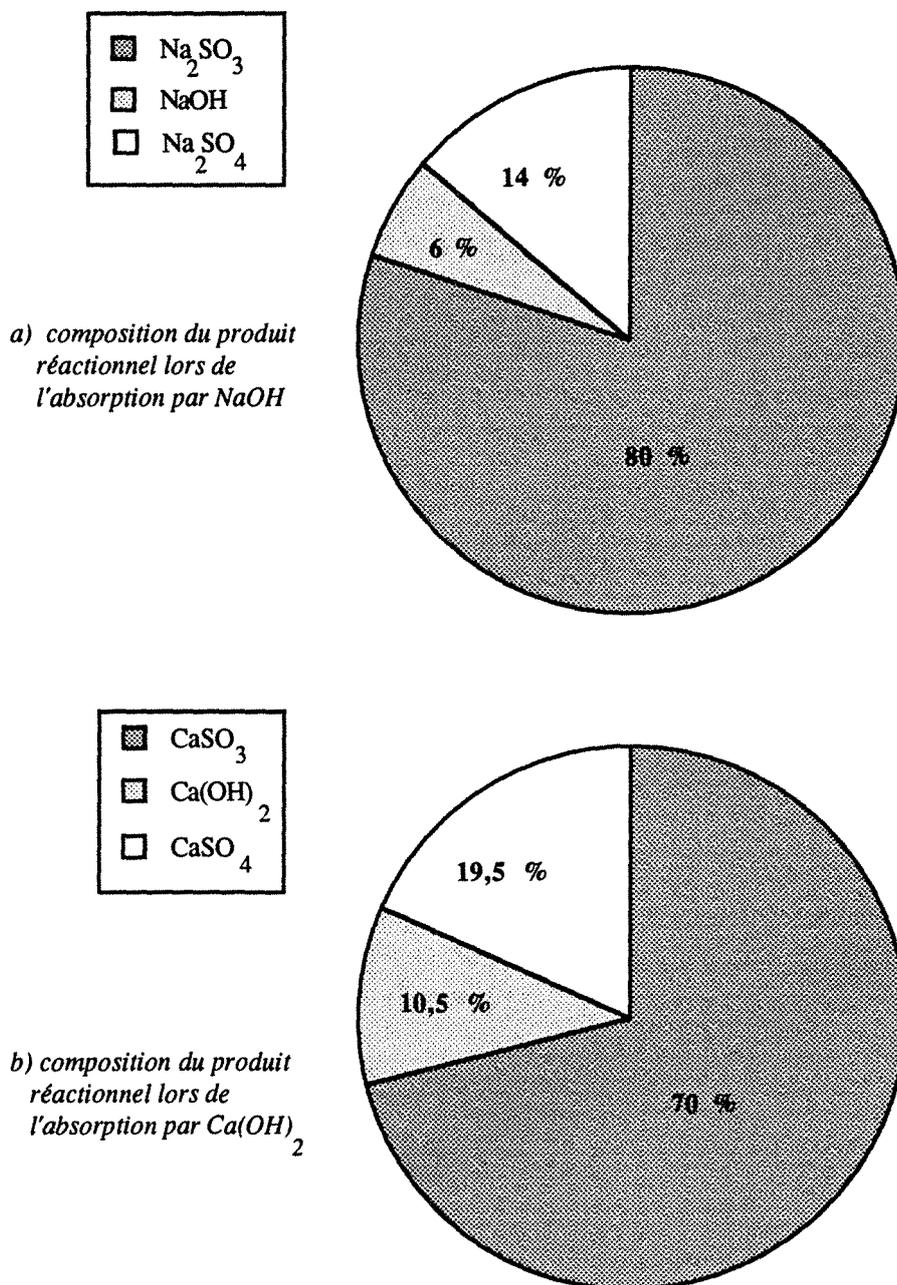


Figure (V-1) : Compositions du produit solide effectuées avec les méthodes iodométriques directe et indirecte.

Dans la mesure où la proportion de sulfate n'a pas été mesurée directement, sa fraction massique est estimée avec peu de précision. Toutefois, nous pouvons affirmer que le dioxyde

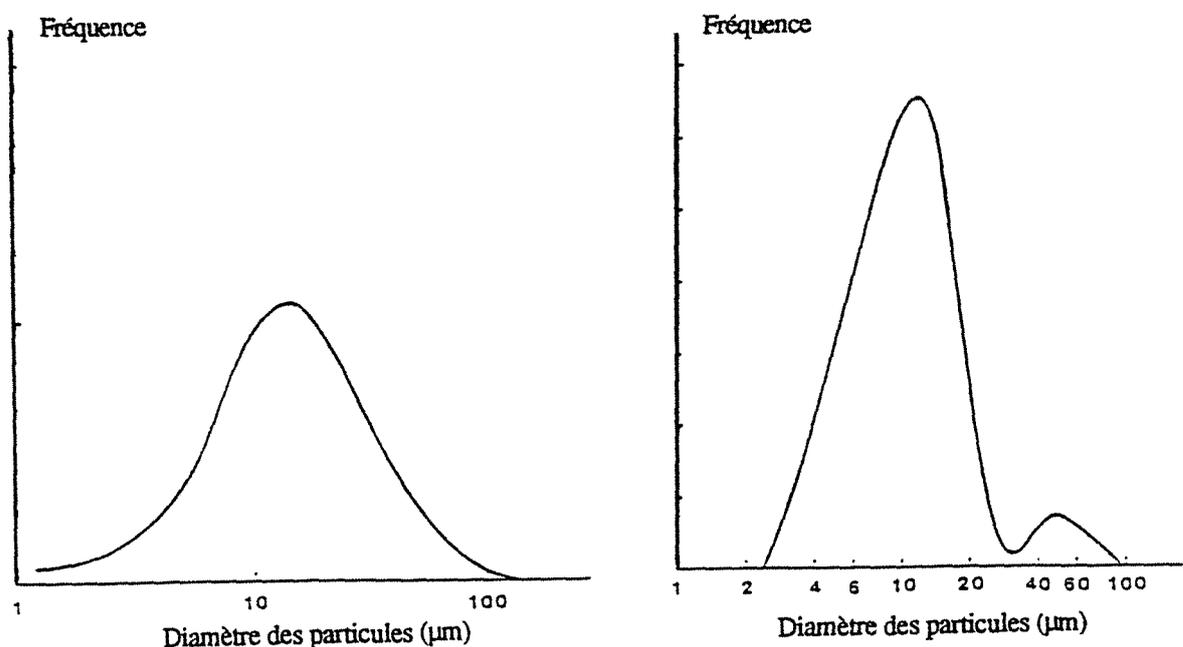
de soufre est transformé préférentiellement sous forme de sulfite et que probablement, le sulfite formé n'est pas ou peu hydraté.

### V.3. CARACTERISTIQUES GEOMETRIQUES ET INCRUSTANTES DES REACTIFS ET DES PRODUITS SOLIDES

#### V.3.1. CARACTERISTIQUES GEOMETRIQUES

La distribution des tailles des particules de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  a été réalisée au LSGC-ENSIC à l'aide d'un appareil du type Malvern. Les tailles du produit solide de la réaction entre le  $\text{SO}_2$  et la solution d'hydroxyde de sodium ont été mesurées par le centre de recherche Laffarge Coppée de La Verpillière à l'aide d'un granulomètre du type Coulter<sup>R</sup>. Les deux systèmes d'analyse sont basés sur des mesures de diffraction d'un rayonnement laser.

La répartition granulométrique pour l'hydroxyde de calcium utilisé et le produit solide résultant de l'absorption de  $\text{SO}_2$  par  $\text{NaOH}$  sont donnés sur les figures (V-2).



a) cas du  $\text{Ca}(\text{OH})_2$

b) cas du produit de la réaction  
de  $\text{SO}_2 + \text{NaOH}$

Figure (V-2) : Répartition granulométrique obtenue pour  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  et pour le produit de réaction de  $\text{SO}_2$  avec la solution d'hydroxyde de sodium

La répartition granulométrique de  $\text{Ca(OH)}_2$  (figure V-2.a) conduit à un diamètre moyen de  $19\mu\text{m}$  et plus de 90 % en volume de la chaux correspond à un diamètre inférieur à  $50\mu\text{m}$ . En ce qui concerne le produit de la réaction, la répartition granulométrique est beaucoup plus dispersée car les particules s'accumulent sur la paroi pour former une couche rigide qui ne désintègre pas lors de la mise en suspension (figure V-2.b). Toutefois le diamètre moyen de solide obtenu est de l'ordre de  $13\mu\text{m}$  et sans la formation du dépôt, le diamètre moyen obtenu serait plutôt de l'ordre de  $10\mu\text{m}$ .

### **V.3.2. CARACTERISTIQUES INCRUSTANTES DES PRODUITS REACTIONNELS**

Les solides formés au col et au divergent du venturi se déposent sur les parois et provoquent un dépôt qui conduit, soit à une diminution du débit si le ventilateur n'est pas à vitesse variable, soit à une augmentation de la perte de charge si le débit peut être maintenu constant. Ce dépôt dépend probablement de la nature du produit formé, de la nature du venturi et certainement des conditions opératoires.

Le ventilateur joint au dispositif n'étant pas à vitesse variable, la formation du dépôt va se traduire par une diminution du débit d'air alimenté.

Les expériences sont effectuées sur le dispositif C muni du venturi  $V_1$ . Le débit d'air initial à  $200\text{ }^\circ\text{C}$  est de l'ordre de  $100\text{ Nm}^3/\text{h}$ . Le dépôt est étudié en introduisant une solution ou une suspension aqueuse avec un débit volumique de l'ordre de 7 à 8 litres/heure pour lequel on a vérifié que l'évaporation était pratiquement totale. Les concentrations en réactif sont choisies pour correspondre à une absorption de  $\text{SO}_2$  dont la teneur est de l'ordre de 500 ppm avec un excès de réactif basique de 1,25. Les réactifs envisagés, solutions et suspensions, sont :  $\text{Na}_2\text{SO}_3$ ,  $\text{NaCl}$ ,  $\text{CaSO}_4$ ,  $\text{CaCl}_2$ ,  $\text{Ca(OH)}_2$

Les évaporations sont conduites dans le venturi  $V_1$  réalisé soit en acier inoxydable, soit dans un bloc de téflon. Les courbes donnant les variations du débit massique d'air en fonction du temps pour les deux types de venturis sont données respectivement sur les figures (V-3) et (V-4). De ces deux figures, on peut tirer les enseignements suivants :

- l'épaisseur du dépôt semble se stabiliser au cours du temps dans la mesure où le débit d'air peut être maintenu constant durant plusieurs heures.
- les sels de sodium sont plus incrustants que les sels de calcium.

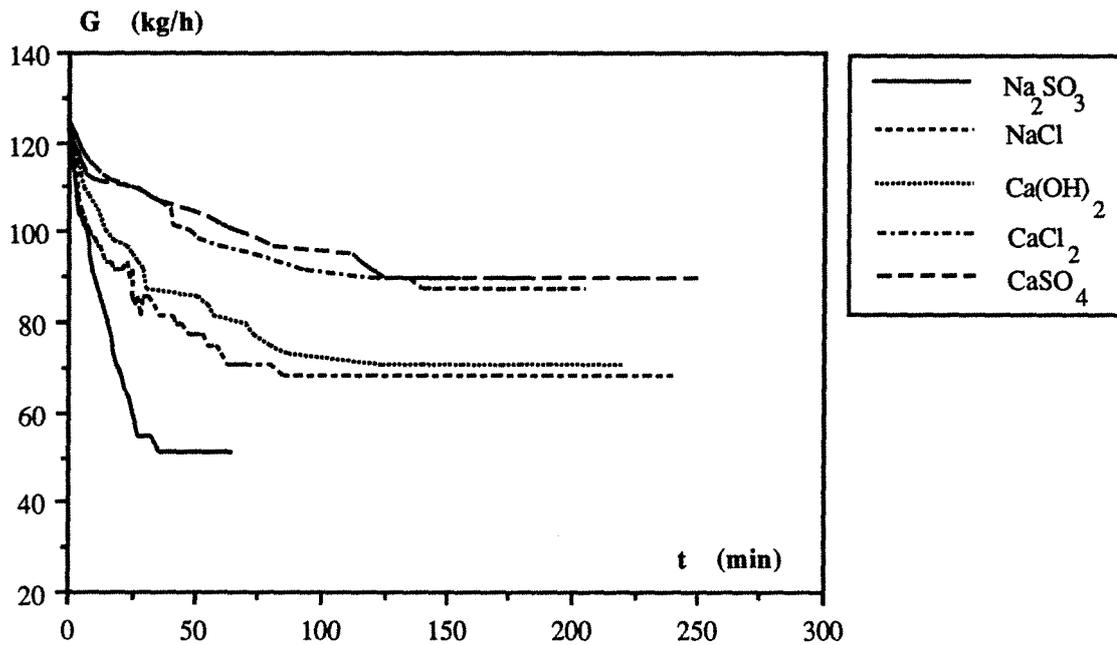


Figure (V-3) : Variation du débit d'air lors de l'évaporation d'une solution ou d'une suspension dans le dispositif C muni d'un venturi  $V_1$  en acier inoxydable.

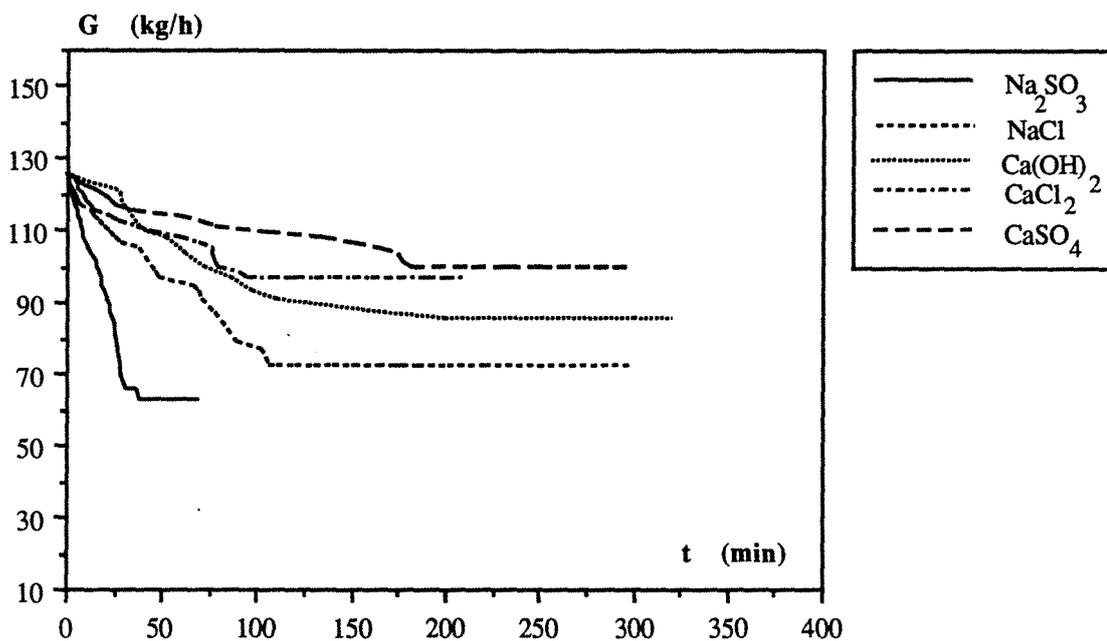


Figure (V-4) : Variation du débit d'air lors de l'évaporation d'une solution ou d'une suspension dans le dispositif C muni d'un venturi  $V_1$  en téflon.

De plus, si nous comparons les résultats obtenus avec les deux venturis pour la solution de sulfite de sodium et la suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$ , on constate (figure V-5) que l'épaisseur des dépôts solides formés dans le venturi en téflon est légèrement inférieure à celle observée avec

l'acier inoxydable. Les écarts restent faibles mais ils peuvent être suffisants pour justifier industriellement l'emploi du téflon vis à vis d'un acier inoxydable dans la mesure où les investissements peuvent être compensés par la réduction des frais de fonctionnement.

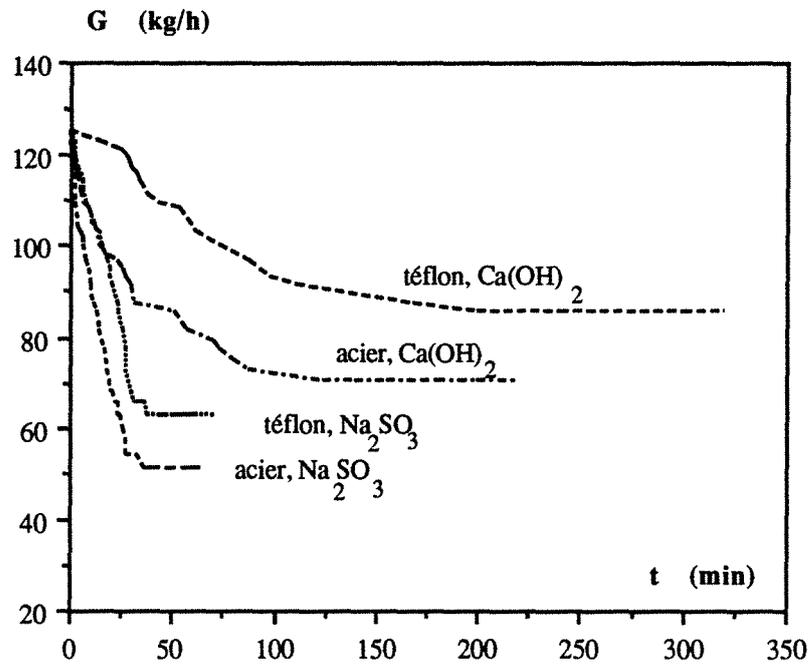


Figure (V-5) : Comparaison des variations des débits d'air obtenus lors de l'évaporation en fonction de la nature du venturi  $V_1$  équipant le dispositif C.

## **CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES**

A la suite des travaux de BENACHOUR (1990), nous avons cherché à améliorer les performances du dispositif d'absorption par voie semi-sèche associant un venturi haute énergie et une colonne en disposant l'ensemble verticalement et en alimentant les phases gazeuse et liquide à co-courant descendant .

Pour le dispositif ainsi conçu, dénommé C, de volume total 82,20 litres, nous avons précisé les capacités d'évaporation d'eau pure et les taux d'absorption du dioxyde de soufre dont la teneur à l'entrée est fixée à 500 ppm par une solution d'hydroxyde de sodium et une suspension d'hydroxyde de calcium.

D'une manière générale, pour un venturi de géométrie donnée et des conditions opératoires fixées, les capacités d'évaporation et d'absorption du dispositif C sont nettement supérieures à celles obtenues dans les deux dispositifs A et B.

Pour le dispositif C, nous avons précisé l'influence des paramètres suivants :

- le débit liquide d'alimentation d'eau pure ou de réactif basique,
- la géométrie du venturi,
- le débit d'enthalpie du gaz d'alimentation,
- la position de la buse vis à vis du col du venturi,
- le volume géométrique de la colonne associée au venturi,
- la granulométrie de l'hydroxyde de calcium lors de l'absorption de SO<sub>2</sub> par la suspension d'hydroxyde de calcium.

Les expériences permettent en particulier de montrer que l'absorption de SO<sub>2</sub> par la solution d'hydroxyde de sodium est plus élevée que celle obtenue avec l'hydroxyde de calcium. Par exemple, pour un débit volumique de réactif basique de 8 l/h, le taux d'absorption de SO<sub>2</sub> passe de 65 à 85 % lorsqu'on remplace les suspensions d'hydroxyde de calcium par la solution d'hydroxyde de sodium.

De même, il suffit d'associer au venturi de 0,5 l un volume de colonne de 24,5 l pour obtenir un taux d'absorption optimal. L'alimentation de la solution ou de la suspension de base peut être effectuée à l'aide d'une buse ordinaire à condition qu'elle soit bien centrée. Dans ce but, il faut donc placer l'orifice de la buse le plus près possible du col du venturi afin d'éviter la formation de film liquide sur les parois du venturi.

Lorsqu'on augmente le débit de gaz à traiter, on accroît le débit d'enthalpie et la vitesse du gaz au col du venturi. Pour un venturi de géométrie donnée, ces paramètres généralement favorables sur le taux d'absorption s'avèrent peu efficaces car on augmente simultanément la puissance mécanique dégradée sur la phase gazeuse. Il existe donc un débit de gaz optimal et

lorsque l'air est alimenté à 200 °C, ce débit optimal est voisin de 100 Nm<sup>3</sup>/h pour le dispositif C muni du venturi V1. Dans ces conditions, la puissance mécanique dégradée sur la phase gazeuse reste raisonnable puisqu'elle est inférieure à 140 W.

Les expériences d'absorption effectuées avec la suspension de chaux montrent clairement que la réaction est limitée par les résistances diffusionnelles externe et/ou interne au niveau des particules de chaux et confirment la supériorité de notre dispositif vis à vis de certains absorbeurs de SO<sub>2</sub> par voie semi-sèche décrits dans la littérature.

Les capacités d'évaporation et d'absorption de SO<sub>2</sub> par les deux réactifs basiques peuvent être interprétées par des modèles simplifiés où les écoulements des différentes phases sont supposés idéaux parfaitement agités et où la résistance de transfert dans le cas des absorptions réactionnelles se limitent à la résistance diffusionnelle entre la phase gazeuse et les gouttes d'hydroxyde de sodium ou les particules d'hydroxyde de calcium.

Ces modèles permettent de rendre compte qualitativement de l'influence de certains paramètres opératoires et de justifier quantitativement l'ordre de grandeur du diamètre des gouttes d'hydroxyde de sodium et l'influence de l'excès de réactif basique. Ces modèles ne s'appliquent correctement qu'au dispositif C pour lequel dans le domaine étudié toute la phase liquide se présente essentiellement sous forme de gouttes.

L'analyse du produit solide résiduel montre que pour les deux réactifs basiques Ca(OH)<sub>2</sub> et NaOH le dioxyde de soufre est piégé à l'état de sulfite respectivement à près de 70% et de 80%. L'observation du solide résiduel lors de l'absorption de SO<sub>2</sub> par l'hydroxyde de sodium sous les conditions optimales du dispositif C conduit à un diamètre moyen de 12,7 µm.

Les particules solides se déposent dans le col et le divergent du venturi et provoquent une diminution du débit d'air d'alimentation dans la mesure où le ventilateur n'est pas à vitesse variable. Ce dépôt dépend de la nature de la base mais aussi du matériau constituant le venturi. Avec un venturi en téflon, le dépôt est plus faible qu'avec un venturi en acier inoxydable. De même, le sulfite de sodium semble plus incrustant que le sulfite de calcium. Mais cette différence est peut être liée à la différence de dimension des particules de solide, celles de calcium étant de plus gros diamètre que celles à base de sodium.

En définitive, le dispositif C avec ses conditions opératoires optimales semble bien adapté à l'absorption de SO<sub>2</sub> ou de polluants acides forts tels que HCl et H<sub>2</sub>S. L'utilisation de ce dispositif à l'échelle industrielle nécessite à notre avis une étude complémentaire réalisée avec un dispositif de plus grande taille (débits de gaz à traiter de l'ordre de 5000 Nm<sup>3</sup>/h) et avec un effluent gazeux réel.

La taille plus importante permettra de mieux cerner les problèmes de dépôt et donc la durée de fonctionnement du dispositif avant arrêt pour nettoyage. La mise en oeuvre d'un effluent gazeux réel permettra de vérifier l'efficacité du dispositif en présence d'un effluent contenant des poussières et d'autres polluants gazeux tels que HCl, NO<sub>x</sub>, etc.....

Le dépôt de bilan de la société SAPS n'a pas permis de mener à terme cette étude sur site industriel. Nous espérons que suite aux résultats obtenus au laboratoire, d'autres partenaires industriels auront la volonté d'engager des études complémentaires permettant d'infirmier ou de confirmer l'intérêt industriel du dispositif étudié.

## NOTATIONS

## ABREVIATIONS

A : montage A de volume 14,14 l.

a : acier

a : constante dépendant de la diffusivité de la vapeur d'eau dans l'air défini dans le modèle d'évaporation.

a' : constante dépendant de la diffusivité du SO<sub>2</sub> dans l'air définie dans le modèle d'absorption.

B : montage B de volume 93,22 l.

B<sub>1</sub> : buse de diamètre 1 mm.

B<sub>2</sub> : buse de diamètre 0,25 mm.

B.T S : basse teneur en soufre.

C : montage C de volume 82,203 l.

C' : montage C de volume réduit à 57,70 l.

C'' : montage C de volume réduit à 49,5 l.

E.P.A : Environmental Protection Agency.

E.P.R.I : Electric Power Research Institute.

N : constante définie dans la relation (IV-39)

P.A : parfaitement agité.

ppm : parties par million (en volume).

U.N.I.P.E.D.E : International Union of Producers and Distributors of Electrical Energy.

Re<sub>g</sub> : nombre de Reynolds des gouttes  $Re_g = \frac{\rho \cdot u \cdot d_g}{\mu}$ .

Sc : nombre de Schmit  $Sc = \frac{\mu}{\rho \cdot D}$

Sh : nombre de Sherwood  $Sh = \frac{k \cdot d_g}{D}$

t : téflon

## LETTRES GRECQUES

Λ<sub>(T)</sub> : chaleur latente de vaporisation de l'eau à la température T (J kg<sup>-1</sup>)

β<sub>P</sub> : rétention du solide dans l'absorbeur (-)

σ : rétention du liquide dans l'absorbeur (-)

η : taux des pertes thermiques dans le dispositif (%)

α : taux d'évaporation d'eau mesuré à la sortie du dispositif (%)

α<sub>1</sub> : taux d'évaporation d'eau mesuré à la sortie du venturi (niveau 1) (%)

α<sub>2</sub> : taux d'évaporation d'eau mesuré après 25 l de volume du dispositif (niveau 2) (%)

α<sub>3</sub> : taux d'évaporation d'eau mesuré après 49,5 l de volume du dispositif (niveau 3) (%)

α<sub>moy</sub> : valeur moyenne du taux d'évaporation calculée à l'aide du modèle (%)

τ<sub>G</sub> : temps de passage du gaz calculé dans les conditions d'entrée du dispositif (s)

τ<sub>L</sub> : temps de passage du liquide en l'absence d'évaporation (s)

$\rho$ : masse volumique de l'air	(kg m <sup>-3</sup> )
$\rho_L$ : masse volumique de l'eau	(kg m <sup>-3</sup> )
$\rho_P$ : masse volumique des particules solides de Ca(OH) <sub>2</sub>	(kg m <sup>-3</sup> )
$\varepsilon_E$ : humidité relative de l'air entrant donnée par l'hygromètre	(%)
$\varepsilon_S$ : humidité relative de l'air sortant donnée par l'hygromètre	(%)
$\varepsilon_1$ : humidité relative de l'air mesurée à la sortie du venturi (niveau 1)	(%)
$\varepsilon_2$ : humidité relative de l'air mesurée après 25 l du volume du dispositif (niveau 2)	(%)
$\varepsilon_3$ : humidité relative de l'air mesurée après 49,5 l du volume du dispositif (niveau 3)	(%)
$\varphi$ : densité du flux de consommation de SO <sub>2</sub>	(mole m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> )
$\phi_1$ : débit de SO <sub>2</sub> consommé entre l'instant t=0 et t=t' <sub>C</sub>	(mole s <sup>-1</sup> )
$\phi_2$ : débit de SO <sub>2</sub> consommé entre l'instant t=0 et l'infini	(mole s <sup>-1</sup> )
$\phi$ : débit total de SO <sub>2</sub> consommé	(mole s <sup>-1</sup> )
$\Phi$ : débit de chaleur échangé entre le gaz et les gouttes liquides	(W)
$\mu$ : viscosité dynamique de l'air	(Pa.s)
$\theta$ : temps critique réduit ( $\frac{t_C}{\tau_L}$ )	(-)
$\theta'$ : temps critique réduit ( $\frac{t'_C}{\tau_L}$ )	(-)
$\Delta T_{SA}$ : différence de température entre la température sèche et la température de saturation adiabatique	(°C)
$\Omega$ : section moyenne de l'absorbeur	(m <sup>2</sup> )
$\lambda$ : constante définie dans le paragraphe IV.2.2.2-d	
$\zeta$ : constante définie dans la relation (IV-38)	
$\psi$ : constante définie dans la relation (IV-42) comme le rapport entre le nombre des particules solides n <sub>p</sub> et le nombre des gouttes liquides n <sub>g</sub> .	

### **DIVERSES NOTATIONS**

$C_G$ : concentration du dioxyde de soufre SO <sub>2</sub> en phase gazeuse	(mole m <sup>-3</sup> )
$C_{P_{air}}$ : chaleur spécifique moyenne de l'air humide	(J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )
$C_{P_e}^l$ : chaleur spécifique de l'eau liquide	(J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )
$C_{P_e}^v$ : chaleur spécifique de l'eau vapeur	(J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )
d' <sub>C</sub> : diamètre d'une goutte liquide solidifiée (2 r' <sub>C</sub> )	(m)
d <sub>g</sub> : diamètre d'une goutte d'eau (2 r <sub>g</sub> )	(m)
d <sub>0</sub> : diamètre initial d'une goutte liquide (2 r <sub>0</sub> )	(m)
d <sub>p</sub> : diamètre d'une particule solide de Ca(OH) <sub>2</sub> (2 r <sub>p</sub> )	(m)
D : diffusivité moléculaire de la vapeur d'eau dans l'air	(D <sub>200°C</sub> =50.10 <sup>-6</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )
D <sub>SO<sub>2</sub>/air</sub> : diffusivité moléculaire de SO <sub>2</sub> dans l'air	(D <sub>200°C</sub> =5,5.10 <sup>-6</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )
E(t) : distribution de temps de séjour de la phase liquide	(s <sup>-1</sup> )
F <sub>NaOH</sub> : débit molaire d'alimentation de soude	(mole h <sup>-1</sup> )

$F_{Ca(OH)_2}$ : débit molaire d'alimentation de chaux	(mole h <sup>-1</sup> )
$F_{SO_2}$ : débit molaire d'alimentation de SO <sub>2</sub>	(mole h <sup>-1</sup> )
$F_E$ : débit molaire de SO <sub>2</sub> à l'entrée du dispositif	(mole h <sup>-1</sup> )
$F_S$ : débit molaire de SO <sub>2</sub> à la sortie de l'absorbeur	(mole h <sup>-1</sup> )
$G$ : débit massique d'air sec	(kg h <sup>-1</sup> ) ou (kg s <sup>-1</sup> )
$h_G$ : coefficient de transfert de chaleur en phase gazeuse	(W m <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> )
$h_{GS}$ : conductance globale de transfert thermique gaz/liquide	(W K <sup>-1</sup> )
$H_G$ : enthalpie du gaz	(J kg <sup>-1</sup> )
$H_{GE}$ : enthalpie du gaz à l'entrée du réacteur	(J kg <sup>-1</sup> )
$H_{GS}$ : enthalpie du gaz à la sortie du réacteur	(J kg <sup>-1</sup> )
$\dot{H}_{GE}$ : débit d'enthalpie du gaz à l'entrée du réacteur	(W)
$\dot{H}_{GS}$ : débit d'enthalpie du gaz à la sortie du réacteur	(W)
$H_L$ : enthalpie du liquide	(J kg <sup>-1</sup> )
$H_{LE}$ : enthalpie du liquide à l'entrée du réacteur	(J kg <sup>-1</sup> )
$H_{LS}$ : enthalpie du liquide à la sortie du réacteur	(J kg <sup>-1</sup> )
$k_G$ : coefficient de transfert de matière de SO <sub>2</sub> gaz-liquide	(m s <sup>-1</sup> )
$k_{GS}$ : conductance globale de transfert de matière gaz-liquide	(m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> )
$k_w$ : coefficient de transfert de matière de la vapeur d'eau dans l'air	(kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> )
$k_{wS}$ : conductance globale de transfert de matière de la vapeur d'eau dans l'air	(kg s <sup>-1</sup> )
$L_E$ : débit massique d'eau à l'entrée du réacteur	(kg s <sup>-1</sup> ) ou (kg h <sup>-1</sup> )
$L_S$ : débit massique d'eau à la sortie du réacteur	(kg s <sup>-1</sup> ) ou (kg h <sup>-1</sup> )
$L_v$ : débit massique d'eau évaporée	(kg s <sup>-1</sup> ) ou (kg h <sup>-1</sup> )
$L_r$ : débit massique d'eau recueillie	(kg s <sup>-1</sup> ) ou (kg h <sup>-1</sup> )
$m$ : masse d'une goutte liquide	(kg)
$M_p$ : masse molaire des particules solides de Ca(OH) <sub>2</sub>	(g mole <sup>-1</sup> )
$n_g$ : nombre des gouttes liquides	
$n_p$ : nombre des particules solides de Ca(OH) <sub>2</sub> de rayon quelconque	
$n_p^*$ : nombre des particules solides de Ca(OH) <sub>2</sub> dont le rayon est de 9,5 μm.	
$P_E$ : teneur en SO <sub>2</sub> à l'entrée du venturi	(ppm)
$P_1$ : teneur en SO <sub>2</sub> à la sortie du venturi , niveau 1	(ppm)
$P_2$ : teneur en SO <sub>2</sub> mesurée après un volume du dispositif de 25 l, niveau 2	(ppm)
$P_3$ : teneur en SO <sub>2</sub> mesurée après un volume du dispositif de 49,5 l, niveau 3	(ppm)
$P_S$ : teneur en SO <sub>2</sub> à la sortie du dispositif	(ppm)
$P_T$ : pression atmosphérique	(atm)
$q$ : débit de pertes thermiques dans le dispositif	(W)
$Q_L$ : débit de solution basique (eau pure, soude ou chaux)	(m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> ) ou (l h <sup>-1</sup> )
$Q_p$ : débit volumique des particules solides de Ca(OH) <sub>2</sub>	(m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> )
$R$ : rapport d'excès base/acide	

S : surface d'échange gaz/liquide	(m <sup>2</sup> )
S' : surface d'échange gaz/milieu extérieur	(m <sup>2</sup> )
S <sub>moy</sub> : surface moyenne des gouttes	(m <sup>2</sup> )
T <sub>O</sub> : température de l'air alimentant le préchauffeur	(°C)
T <sub>E</sub> : température de l'air chaud à l'entrée du venturi	(°C)
T <sub>1</sub> : température de l'air chaud à la sortie du venturi, niveau 1	(°C)
T <sub>2</sub> : température de l'air chaud après un volume du dispositif C de 25 l, niveau 2	(°C)
T <sub>3</sub> : température de l'air chaud après un volume du dispositif C de 49,5 l, niveau 3	(°C)
T <sub>S</sub> : température de l'air chaud à la sortie du dispositif	(°C)
T <sub>ext</sub> : température ambiante	(°C)
T <sub>L</sub> : température du liquide	(°C)
T <sub>LE</sub> : température de l'eau d'alimentation	(°C)
T <sub>LS</sub> : température de l'eau à la sortie du dispositif	(°C)
t <sub>E</sub> : température sèche de l'air avant alimentation d'eau d'humidité relative ε <sub>E</sub>	(°C)
t <sub>S</sub> : température sèche de l'air après alimentation d'eau d'humidité relative ε <sub>S</sub>	(°C)
T* : température de l'interface gaz/liquide	(°C)
T <sub>G</sub> : température du gaz	(°C)
T <sub>SA</sub> : température de saturation adiabatique de l'air humide sortant	(°C)
t <sub>C</sub> : temps critique au bout duquel la goutte est complètement évaporée	(s)
t' <sub>C</sub> : temps critique à partir duquel on observe une transformation du liquide en solide	(s)
U : coefficient de transfert de chaleur global entre le gaz et le milieu extérieur	(W m <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> )
u : vitesse du gaz au col du venturi (à T <sub>E</sub> = 200 °C)	(m s <sup>-1</sup> )
US' : conductance globale de transfert thermique gaz/milieu extérieur	(W K <sup>-1</sup> )
V : volume géométrique de l'absorbeur	(m <sup>3</sup> )
v <sub>G1</sub> : vitesse du gaz au col du venturi V <sub>1</sub> (à T <sub>E</sub> = 200 °C)	(m s <sup>-1</sup> )
v <sub>G2</sub> : vitesse du gaz au col du venturi V <sub>2</sub> (à T <sub>E</sub> = 200 °C)	(m s <sup>-1</sup> )
V <sub>R</sub> : volume géométrique de l'absorbeur	(m <sup>3</sup> )
V <sub>L</sub> : volume du liquide dans l'absorbeur	(m <sup>3</sup> )
V <sub>P</sub> : volume des particules solides de Ca(OH) <sub>2</sub>	(m <sup>3</sup> )
W <sub>E</sub> : humidité absolue de l'air humide entrant	(kg d'eau (kg d'air sec) <sup>-1</sup> )
W <sub>1</sub> : humidité absolue de l'air humide à la sortie du venturi, niveau 1	(kg d'eau (kg d'air sec) <sup>-1</sup> )
W <sub>2</sub> : humidité absolue de l'air humide après un volume du dispositif C de 25 l, niveau 2	(kg d'eau (kg d'air sec) <sup>-1</sup> )
W <sub>3</sub> : humidité absolue de l'air humide après un volume du dispositif C de 49,5 l, niveau 3	(kg d'eau (kg d'air sec) <sup>-1</sup> )
W <sub>S</sub> : humidité absolue de l'air humide sortant	(kg d'eau (kg d'air sec) <sup>-1</sup> )
W* : humidité absolue de l'air saturé à la température T*	(kg d'eau (kg d'air sec) <sup>-1</sup> )
X : taux de conversion de SO <sub>2</sub>	(%)

## **REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES**

**ABDULSATAR A. H., S. SRIDHAR and L. A. BROMLEY**, "Thermodynamics of the sulfur dioxide-seawater system", *AIChE Journal*, 23, 1, 62-68, (1977).

**AKHTAR S., S. FRIEDMAN and P. M. YAVORSKY**, "Process for hydrodesulfurization of coal in a turbulent flow fixed bed reactor", *AIChE Symposium Series*, 70, 137, 106-113, (1974).

**ATAY I., G. LEWANDOWSKI and R. TRATTNER**, "Mass transfer coefficient for SO<sub>2</sub>-NaOH scrubbing system in an ejector venturi scrubber", *80 th Annual Meeting of APCA*, p 87/45.4, 21-26, june 1987

**ATAY I., G. LEWANDOWSKI and R. TRATTNER**, "Fluid Flow and Gas Absorption in an Ejector Venturi Scrubber", *Environmental Progress*, 6, 3, 198-203, August 1987.

**BENACHOUR M.**, "Conception et étude d'un absorbeur à base d'un venturi haute énergie en vue du traitement de gaz acides par voie semi-sèche", *Thèse de Doctorat en Génie des Procédés*, INPL, Nancy, Octobre 1990.

**BERTON D.**, "Désulfuration des gaz par voie semi-sèche selon le procédé AIE à la chaufferie municipale de Gardanne", *La technique moderne*, Novembre-Décembre 1987.

**BJERLE I., J. KLINGSPOR and H. T. KARLSSON**, "Sulfur capture by promoted limestone", *Ind.J.Environmental Protection*, 4, 1, 36-43, (1984).

**BLYTHE G. M., R. G. RHUDI**, "EPRI Spray Dryer/Baghouse pilot plant status and results", *Eighth Symposium on flue gas desulfurization*, New Orleans, LA, 2, 708-734, November 1983.

**BRADLEY W. H.**, "Fabric filter operating experience on a dry FGD system at Austell Box Board Corporation", *Austell Box Board Corporation*, Austell, Georgia 30001, p (21-1 to 20-12), (1986)

**CAVALLARO J. A., A. W. DEURBROUCK, A. F. BAKER**, "Physical desulfurization of coal", *AIChE Symposium Series*, 70, 137, 114-122, (1974).

**CHANG C-S and G. ROCHELLE**, "SO<sub>2</sub> absorption into NaOH and Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> aqueous solutions", *Ind.Eng.Chem.Fundam.*, 24, 7-11, (1985).

**CHILTON C. H. et A. P. COLBURN**, "Mass transfert (absorption) coefficients" *Ind.Eng.Chem.*, 26, 11, 1183-1187, (1934).

**CITEPA.**, "Contre les pluies acides : comment ne plus souffrir du soufre", *Energie Plus*, N°43, Mai 1985.

**CETIAT.**, "Tables de l'air humide", *ouvrage du Centre technique des industries aérauliques et thermiques*, Villeurbanne, Mai 1975.

**DANIELL P., A. SOLTANI-AHMADI and H. O. KONO**, "Reaction Kinetics of the SO<sub>2</sub>-CaO System-Pore Closure Model", *Powder Technology*, 55, 75-85, (1988).

**FARBER P. S., C. D. LIVENGOOD**, "Characterization of an industrial spray dryer at Argonne National Laboratory", *Eighth Symposium on flue gaz desulfurization*, New Orleans, LA, 2, 825-848, November 1983.

**FELSVANG K., P. MORSING and P. VELTMAN**, "Acid rain prevention thru new SO<sub>X</sub>/NO<sub>X</sub> dry scrubbing process", *Eighth Symposium on flue gas desulfurization*, New Orleans, LA, 2, 650-667, November 1983.

**FONTEIX C.**, "Hydrodynamique et transfert de matière dans un laveur pilote de type jet dans un venturi. Simulation de son comportement par un modèle de laboratoire. Intérêt et limites actuelles de la technique", *Thèse de Docteur Ingénieur*, INPL, Nancy, 25 Octobre 1978.

**GETLER J. L., H. SHELTON, D. A. FURLONG**, "Modeling the spray absorption process for SO<sub>2</sub> removal", *Journal of the Air Pollution Central Association*, 29, 12, 1270-1274, December 1979.

**Group of Experts** on desulfurization of flue gases of coal fired thermal power station, "Experience on desulfurization of flue gas", *Athens Congress*, June 1985.

**GRUBER J. C.**, "An overview of dry scrubbing", *Proceedings of the American Power Conference*, 44, 998-1000, (1982).

**GUSTKE J. M., W. E. MORGAN, S. H. WOLF**, "Overview and evaluation of two years of operation of the riverside spray dryer system", *Eighth Symposium on flue gas desulfurization*, New Orleans, LA, 2, 758-787, November 1983.

**HADJIDAKIS D.**, "Etude du transfert de matière et des dépenses énergétiques dans deux laveurs gaz-liquide : le venturi à haute énergie et l'éjecteur venturi", *Thèse Docteur-Ingénieur*, INPL, Nancy (1983)

**HARTMAN M., K. SVOBODA**, "Reactions of calcium hydroxide with sulfur dioxide at high temperatures", *Int.Chem.Eng.*, 24, 4, 759-764, (1984).

**HARTMAN M., J. HEJNA and Z. BERAN**, "Application of the reaction kinetics and dispersion model to gas-solid reactors for removal of sulfur dioxide from flue gas", *Chem.Eng.Science*, 34, 475-483, (1979).

**HARTMAN M., K. SVOBODA, O. TRNKA and V. VESELY**, "Reaction of sulfur dioxide with magnesia in a fluidised bed", *Chem.Eng.Science*, 43, 8, 2045-2050, (1988).

**HARTMAN M., K. SVOBODA and O. TRNKA**, "Transient characteristics of a fluidized bed reactor for limestone desulfurization and the reaction kinetics", *Fourth World Congress of Chemical Engineering*, Karlsruhe (RFA), June 1991.

**HOFFMAN D.**, "Thiosorbic Lime for FED processes", *Mining Engineering*, 1628-1631, November 1981.

**HORN R. J., J. F. BENT**, "Performance of dry flue gas desulfurization on a petroleum coke KILN application", *Journal of the Air Pollution Control Association*, 34, 9, 982-986, September 1984.

**JANKURA B. J., J. B. BOYLE and T. J. FLYNN**, "Dry scrubber flue gas desulfurization on high-sulfur, coal-fired steam generators : pilot scale evaluation", *Eighth Symposium on flue gas desulfurization*, New Orleans, LA, 2, 689-706, November 1983.

**JOFFRE R.**, " Epuration sèche des gaz ", *CITEPA*, 1-17, 23 Octobre 1984.

**JORGENSEN C., J. C. S. CHANG, T. G. BRNA**, "Evaluation of sorbents and additives for dry SO<sub>2</sub> removal", *Environmental Progress*, 6, 2, 26-32, (1987)

**JOZEWICZ W., C. JORGENSEN, J. C. S.C HANG, C. B. SEDMAN and T. G. BRNA**, "Development and pilot plant evaluation of silica-enhanced lime sorbents for dry flue gas desulfuration", *JAPCA*, 38, 6,796-805, (1988).

**JOZEWICZ W., J. C. S. CHANG**, "Reactivation of solid from furnace injection of limestone for SO<sub>2</sub> Control", *Environ.Sci.Technol*, 21, 7, 664-670, (1987).

**KAGUEL S., M. NISHIO and N. WAKAO**, "Parameter estimation for packed cooling tower operation using a heat input-response technique", *Int.J.Heat Mass Transfer*, 31, 12, 2579-2585, (1988).

**KAPLAN S. M., K. FELSVANG**, "Spray dryer absorption of SO<sub>2</sub> from industrial boiler flue gas", *AIChE Symposium Series*, 76, 201, 23-30, (1980).

**KARLSSON H. T., J. KLINGSPOR, M. LINNE' and I. BJERLE**, "Activated wet-dry scrubbing of SO<sub>2</sub>", *Journal of the Air Pollution Control Association*, 33, 1, 23- 28, (1983).

**KATZBERGER S. M., W. J. RYMARCZYK**, "Treatment and disposal of wastes from dry SO<sub>2</sub> Control Processes", *Environmental Progress*, 5, 4, 234-239, November 1986.

**KHANNA O. P.**, "General knowledge refresher", *14 th ed.*, *Khanna Brothers*, Industrial Aera, New Delhi, 1981.

**KHARRAT M.**, "Conception et étude d'un évaporateur à contact direct à base d'un venturi", *Thèse de Docteur en Génie des Procédés Industriels*, Université de Technologie de Compiègne, 4 juillet 1986.

**KIPKE K.**, "Suspension by side entering agitators", *Chem.Eng.Process*, 18, 233-238, (1984).

**KLINGSPOR J. S.**, "Improved spray dry scrubbing through grinding of FGD recycle material", *JAPCA*, 37, 7, 801-806, (1987).

**KLINGSPOR J., A-M. STRÖMBERG, H. T. KARLSSON and I. BJERLE**, "Similarities between lime and limestone in wet-dry scrubbing", *Chem.Eng.Process*, 18, 239-247, (1984).

**KLINGSPOR J., H. Karlsson and I. BJERLE**, "A kinetic study of the dry SO<sub>2</sub> limestone reaction at low temperature", *Chem.Eng.Commun*, 22,, 81-103, (1983 ).

**KNIPIER G.**, "Réduction des émissions de polluants dans une usine agro-alimentaire", *Congrès International, Innovation et Progrès Industriel et Environnement*, 328-334, Strasbourg (France), Juin 1991.

**KOCH W. H., W. LICHT**, "New design approach boosts cyclone efficiency", *Chem.Eng.*, 7, 80-87, November 1977.

**KOCHLER G. R.**, "Alkaline scrubbing removes sulfur dioxide", *Chem.Eng.Progress*, 70, 6, 63-65, (1974).

**LAHAVICHITRA C., K. MUROYAMA, S-H. WENG, L-S. FAN**, "Absorption of sulfur dioxide by calcium hydroxide solution in a wetted-wall column : effect of magnesium hydroxide, magnesium carbonate and magnesium sulfate additives", *Chem.Eng.Science*, 37, 10, 1572-1575, (1982).

**LARSON R. S.**, "On the design of recirculated - liquid gas cooler / humidifiers", *Ind.Eng.Chem.Process.Des.Dev.*, 24, 4, 1023-1026, (1985).

**LEE J. J.**, "Numerical modeling of direct sorbent injection for SO<sub>2</sub> removal ", *Ph.D Dissertation*, The University of Tennessee Space Institute, Tullahoma, (1988).

**LEITH D., K. P. MARTIN and D. W. COOPER**, "Liquid utilisation in a venturi scrubber", *Filtration and Separation*, May/June 1985.

**MAHAJAN S. P.**, "Pollution control in process industries", *Tata. Mc Graw Hill Publishing Co. Ltd.*, New Delhi, (1985)

**MAKANSI J.**, "Dry scrubbing aim for high-sulfur coal applications", *Power*, 28-29, January 1989.

**MALONEY K. L.**, "Sulfur capture in coal flames", *AIChE Symposium Series*, 76, 201, 31-37, (1980).

**MARSH D. W., D. L. ULRICHSON**, "Rate and diffusional study of the reaction of calcium oxide with sulfur dioxide", *Chem.Eng.Science*, 40, 3, 423-433, (1985).

**MARTIN J. R., W. B. FERGUSON, D. FRABOTTA**, "C-E Dry scrubber systems : application to western coals", *Combustion Engineering Inc.*, 12-20, February 1981.

**MATROS Y. S., A. S. NOSKOV, V. A. CHUMACHENKO and O. V. GOLDMAN**, "Theory and application of unsteady catalytic detoxication of effluent gases from sulfur dioxide, nitrogen oxides and organic compound", *Chem.Eng.Science*, 43, 8, 2061-2066, (1988).

**MAYREW Y. R. et G. F. C. ROGGERS**, " Thermodynamics and transports of fluids, SI Units", *2nd edition Blackwell*, Oxford, (1968).

**Mc LLVAINE., W. ROBERT**, "1984 market trends for the air pollution control industry", *Journal of the Air Pollution Control Association*, 31, 3, 222-226, (1984).

**MILLER M. J.**, "Retrofit SO<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub> control technologies for coal-fired power plants", *Environmental Progress*, 5, 3, 171-177, August 1986.

**MURAMATSU. K., T. SHIMIZU, N. SHINODA and A. TATANI**, "Development of Mitsubishi wet flue gas desulfurization system", *Chemical Economy and Engineering Review*, 16, 11, (N° 183), 15-22, (1984).

**NAKAHIRA T., Y. SAKAMOTO, T. KAWAMURA**, "Operating results of flue gas desulfurization system for unit Nos 1 and 2 (500 Mw Each) of Shin-Onoda Power Station of the Chugoku Electric Power CO. Inc", *IHI Engineering Review*, 21, 1, 25-30, January 1988.

**OFFEN G. R., M. W. Mc ELROY, L. J. MUZIO**, "Dry sorbent emission control technologies", *JAPCA*, 37, 8, 968-980, (1987).

**PALAZZOLO M. A., M. E. KELLY and T. G. BRNA**, "Current status of dry SO<sub>2</sub> control systems", *Eighth Symposium on flue gas desulfurization*, New Orleans, LA, 2, 628-649, November 1983.

**PAPADAKIS S. E., C. KING**, "Air temperature and humidity profiles in spray drying-2. Experimental measurements", *Ind.Eng.Chem.Res.*, 27, 11, 2116-2123, (1988).

**PAPADAKIS S. E., C. J. KING**, "Air temperature and humidity profiles in spray drying-1. Features predicted by the particle source in cell model", *Ind.Eng.Chem.Res.*, 27, 11, 2111-2116, (1982 ).

**PREDICK P. R.**, "Dry and wet flue gas desulfurization systems", *Proceedings of the american power conference*, 44, 432-429, (1982).

**RANZ W. E., W. R. MARSHALL JR.**, "Evaporation from drops", *Chem.Eng.Progress*, 48, 3, 141-146, March 1952.

**RANZ W.E., W.R.MARSHALL JR.**, "Evaporation from drops", *Chem.Eng.Progress*, 48, 4, 173-180, April 1952.

**RAVINDRAM M., N. PYLA**, "Modeling of a venturi scrubber for the control of gaseous pollutants", *Ind.Eng.Chem.Process.Des.Dev.*, 25, 35-40, (1986).

**RAVINDRAM M.**, "Response to comments on modeling of a venturi scrubber for the control of gaseous pollutants", *Ind.Eng.Chem.*, 26, 1266, (1987).

**REMILLIEUX J.**, "Epuration humide des gaz", *CITEPA*, 1-19, 23 Octobre 1984.

**ROBERTS D. L., S. K. FRIEDLANDER**, "Sulfur dioxide transport through aqueous solutions", *AIChE Journal*, 26, 4, 593-610, (1980).

**ROBERTS D. B., J. C. HILL**, "Atomization in a venturi scrubber", *Chem.Eng.Commun*, 12, 33-68, (1981).

**ROCHELLE G. T., C. JUDSONKING**, "The effect of additives on mass transfer in CaCO<sub>3</sub> or CaO slurry scrubbing of SO<sub>2</sub> from waste gases", *Ind.Eng.Chem.Fundam*, 16,1, 67-75, (1977).

**ROCHELLE G. T., W. T. WEEMS, R. J. SMITH, M. W. HSIANG**, "Buffer additives for lime/limestone slurry scrubbing", *American Chemical Society*, 243-265, (1982).

**ROLLIN J. P.**, "Un lit fluidisé circulant de 125 MW électriques conçu pour brûler un mélange charbon-eau", *Congrès International, Innovation et Progrès Industriel et environnement*, 491-502, Strasbourg (France), Juin 1991.

**RUIZ-ALSOP R. N and G. J. ROCHELLE**, "Effect of deliquescent salt additives on the reaction of SO<sub>2</sub> with Ca(OH)<sub>2</sub>", *Thèse de Ph.D.*, Department of Chem.Eng., The University of Texas at Austin, Austin TX 78712, (1986).

**SADA E., H. KUMAZAWA, M. A. BUTT**, "Removal of dilute sulfur dioxide by aqueous slurries of magnesium hydroxide particules", *Chem.Eng.Sciences*, 32, 972-974, (1977).

**SADA E., H. KUMAZAWA and M. A. BUTT**, "Single gas absorption with reaction in a slurry containing fine particles", *Chem.Eng.Science*, 32, 1165-1170, (1977).

**SADA E., H. KUMAZAWA, I. HASHIZUME, H. NISHIMURA**, "Absorption of dilute SO<sub>2</sub> into aqueous slurries of CaSO<sub>3</sub>", *Chem. Eng. Science*, 37, 9, 1432-1435, (1982).

**SADA E., H. KUMAZAWA, H. NISHIMURA**, "Absorption of sulfur dioxide into aqueous double slurries containing limestone and magnesium hydroxide", *AIChE Journal*, 29, 1, 60-65, (1983).

**SAMUEL E. A., T. W. LUGER, D. E. LAPP and K. R. MURPHY**, "Process characterization of SO<sub>2</sub> removal in spray absorber/baghouse systems", *Eighth symposium of flue gaz desulfurization*, New Orleans, LA, 2, 668-688, November 1983.

**SEYMOUR C.**, "Venturi and other atomizing scrubbers efficiency and pressure drop", *AIChE Journal*, 16, 3, 392-395, (1970).

**SHADMAN F., P. E. DOMBER**, "Enhancement of SO<sub>2</sub> sorption on lime by structure modifiers", *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 66, 930-935, December 1988.

**SHILLING N. N., E. A. SAMUEL, H. PENNLIN**, "Technical status report development of lime based in duct scrubbing A cost effective SO<sub>2</sub> control technology", *Proceedings of the American Power Conference*, 365-372, (1986).

**SKELLAND A. H.**, "Industrial rheology", *Academic Press*, (1967)

**STAVDINGER G., G. KRAMMER**, "90 % SO<sub>2</sub> removal with dry limestone. Theoretical and practical investigation", *Fourth World Congress of Chemical engineering*, 3.5-10, Karlsruhe (RFA), June 1991.

**STÖMBERG A-M., H. T. KARLSSON**, "Limestone based spray dry scrubbing of SO<sub>2</sub>", *Chem.Eng.Science*, 43, 8, 2095-2102, (1988).

**TEWARI A., N. P. SHUKLA**, "Sulphur dioxide control from stack gases", *Ind.J.Environmental.Protection*, 7, 3, 191-194, (1987).

**USHIDA S., C. Y. WEN**, "Gas absorption by alkaline solution in a venturi scrubber", *Ind.Eng.Chem.Process.Des.Develop.*, 12, 4, 437-443, (1973).

**VA'ZQUEZ G., G. ANTOPRENA, F. CHENLO and F. PALEO**, "Absorption of SO<sub>2</sub> by aqueous NaOH solutions in the presence of a surfactant", *Chem.Eng.Technol.*, **11**, 156-162, (1988).

**VIRKAR P. D., M. M. SHARMA**, "Mass transfer in venturi scrubbers", *The Canadian Journal of Chem.Eng.*, **53**, 512-516, October 1975.

**VOLGIN B. P., T. F. EFIMOVA, M. S. GOFMAN**, "Absorption of sulfur dioxide by ammonium sulfite, bisulfite solution in a venturi scrubber", *Int.Chem.Eng.*, **8**, 1, 113-118, (1968).

**WALL J. D.**, "Control FCC SO<sub>x</sub> emissions", *Hydrocarbone Processing*, 45-46, October 1984.

**WEISWEILER W., HERRMANN. E., ZIMMER. I., S. HARALD**, "Simultaneous SO<sub>x</sub> and NO<sub>x</sub> control in the circulating fluidized bed", *Fourth World Congress of Chemical Engineering*, 3.5-14, Karlsruhe (RFA) June 1991.

**YAVORSKY P. M., S. AKHTAR et S. FRIEDMAN**, "Process developements fixed-bed catalysis of coal to fuel oil", *AIChE Symposium Series*, **70**,137, 101-105, (1974).

**YEH J. T., R. J. DEMSKI and J. I. JOUBER**, "Control of SO<sub>2</sub> emissions by dry sorbent injection", *American Chemical Society*, **16**, 349-368, (1982).

**YOON H., M. R. STOUFFER, W. A. ROSENHOOVER, J. A. WITHUM and F. P. BURKE**, "Pilot process variable study of coolside desulfurization", *Environmental Progress*, **7**, 2, 104-111, (1988).

**YOON H., J. A. WITHUM, W. A. ROSENHOOVER and F. P. BURKE**, "Sorbent improvment and computer modeling studies for coolside desulfurization", *Conoco Coal Research Division*, 4000 Brownsville Road-Library, PA 15129, Page 33 (1-20), (1988)

**ZANE 'EGAN. B., L. KEVIN FELKER**, "Removal of SO<sub>2</sub> from simulated flue gaz by magnesia spray absorption : parameters affecting removal efficiency and products", *Ind.Eng.Chem.Process.Des.Dev.*, **25**, 2, 558-561, (1986).

## ANNEXES

### Annexe I

TEMPERATURE SECHES DE L'AIR MESUREES A L'AIDE  
DES THERMOCOUPLES PROTEGES.....165

### Annexe II

ETUDE DES CAPACITES D'EVAPORATION DES TROIS  
DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ..... 175

### Annexe III

ETUDE DES CAPACITES D'ABSORPTION DES TROIS  
DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX..... 184

### Annexe IV

INTERPRETATION DES RESULTATS D'EVAPORATION  
ET D'ABSORPTION REACTIONNELLE DE SO<sub>2</sub> PAR UNE  
SOLUTION DE NaOH ..... 201

**Annexe I**

**TEMPERATURES SECHES DE L'AIR MESUREES A L'AIDE  
DES THERMOCOUPLES PROTEGES**

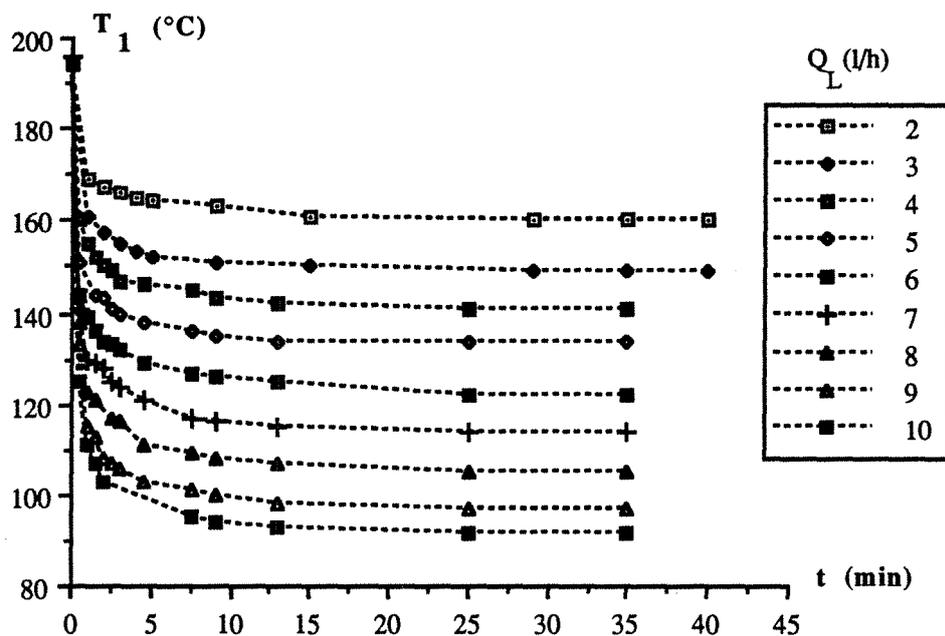


Figure (I-1) : Variation de la température  $T_1$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$   
 (venturi  $V_1$ ,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

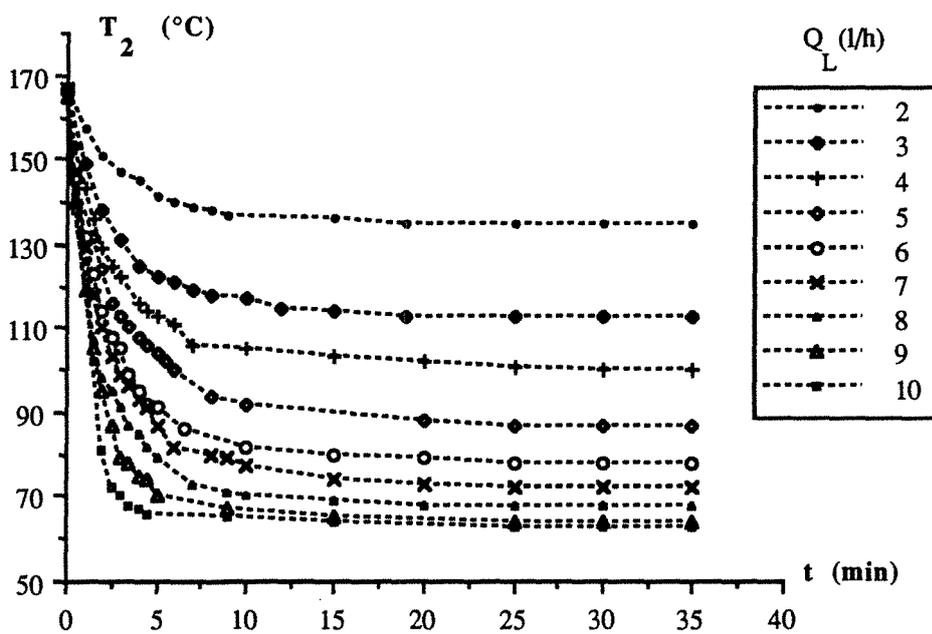


Figure (I-2) : Variation de la température  $T_2$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$   
 (venturi  $V_1$ ,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

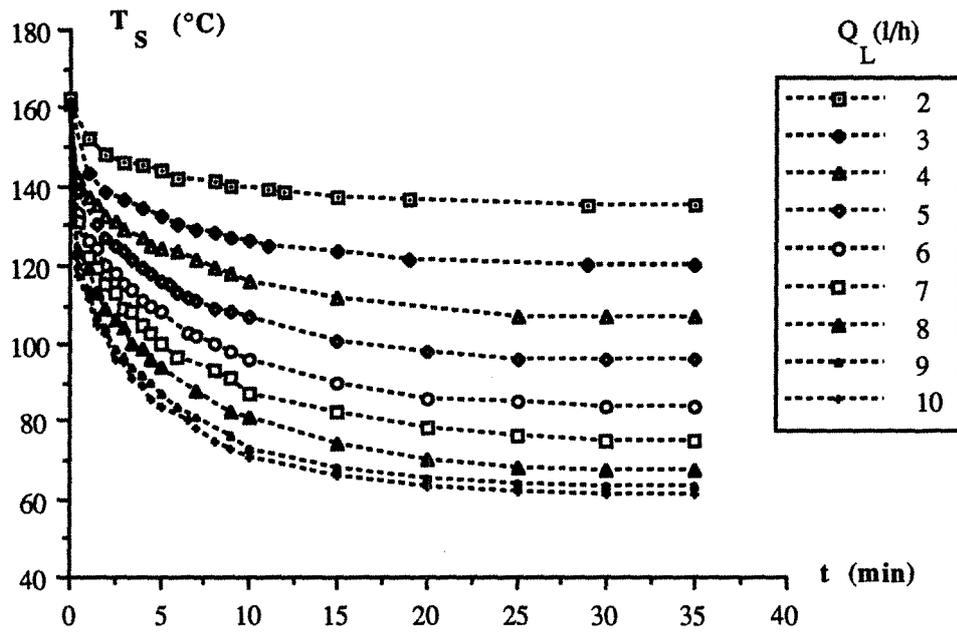


Figure (I-3) : Variation de la température  $T_S$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$  (venturi  $V_1$ ,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

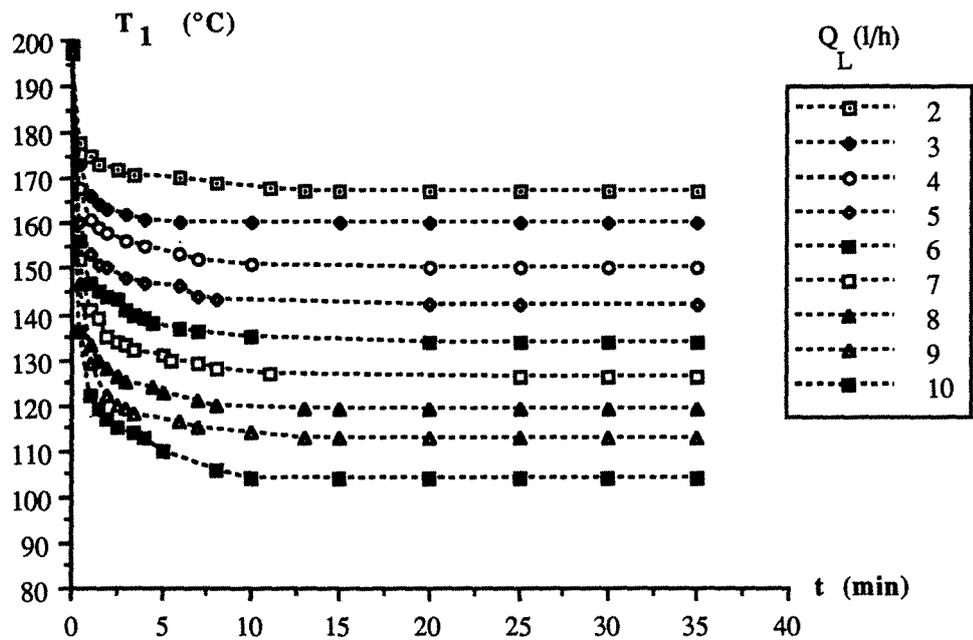


Figure (I-4) : Variation de la température  $T_1$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$  (venturi  $V_2$ ,  $Q_G=111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

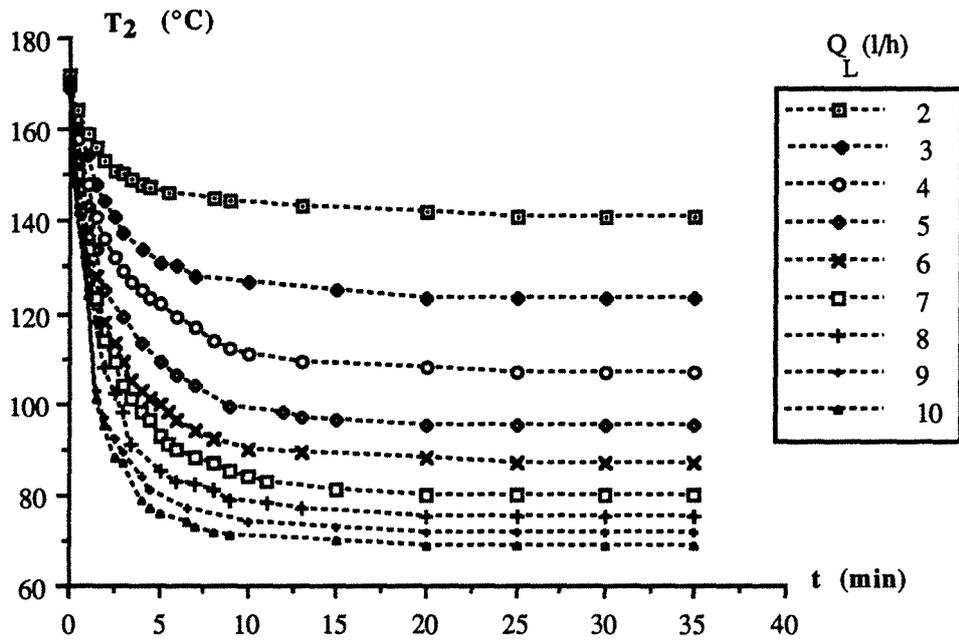


Figure (I-5) : Variation de la température  $T_2$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$  (venturi  $V_2$ ,  $Q_G=111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

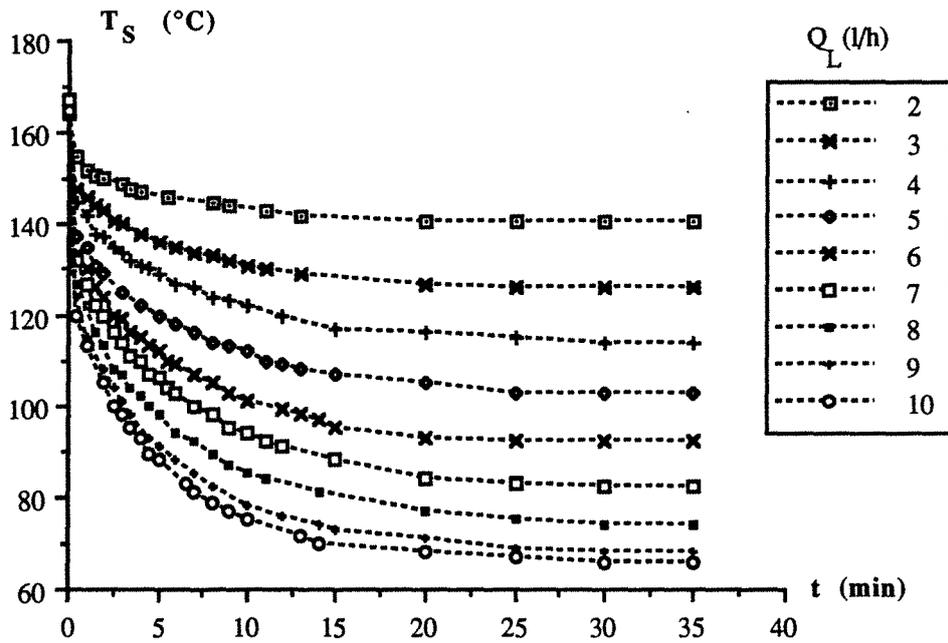


Figure (I-6) : Variation de la température  $T_S$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$  (venturi  $V_2$ ,  $Q_G=111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

Tableau (I-1) : Variation de la température  $T_1$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$   
 (venturi  $V_1$ ,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

temps (min)	2 l/h $T_1$ (°C)	3 l/h $T_1$ (°C)	4 l/h $T_1$ (°C)	5 l/h $T_1$ (°C)	6 l/h $T_1$ (°C)	7 l/h $T_1$ (°C)	8 l/h $T_1$ (°C)	9 l/h $T_1$ (°C)	10 l/h $T_1$ (°C)
0	194	194	195	195	195	196	195	194	194
0,5			160	151	144	141	138	133	125
1	167	161	155		139	130	123	115	111
1,5			152	144	136	129	121	113	107
2	167	157	150	143	134	128		108	103
2,5			149	141	133	125	117	107	
3	166	155	147	140	132	124	116	106	
4,5	165	153	146	138	129	121	111	103	
7,5			145	136	127	117	109	101	95
9	163	151	143	135	126	116	108	100	94
13	161	150	142	134	125	115	107	98	93
25	160	149	141	134	125	114	105	97	92
35	160	149	141	134	125	114	105	97	92

Tableau (I-2) : Variation de la température  $T_2$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$   
 (venturi  $V_1$ ,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

temps (min)	2 l/h $T_2$ (°C)	3 l/h $T_2$ (°C)	4 l/h $T_2$ (°C)	5 l/h $T_2$ (°C)	6 l/h $T_2$ (°C)	7 l/h $T_2$ (°C)	8 l/h $T_2$ (°C)	9 l/h $T_2$ (°C)	10 l/h $T_2$ (°C)
0	167	167	167	167	167	167	167	167	167
1	157	149	143	132	132	129	126	119	121
2	151	138	129	124	114	110	98	95	81
3	147	131	122	113	105	99	91	79	70
4	145	125	116	108	95	93	85	75	67
5	141	122	113	104	91	87	79	70	
6	140	121	111	100	86	82			
7	139	119	106				73		
8	138	118		94		80			
9	137					79	71	67	65
10		117	105	92	82	77	70		
15	136	114	103	89	80	74	69	65	64
20	135	113	102	88	79	73	68		
25	135	113	101	87	78	72	68	64	63
30	135	113	100	87	78	72	68	64	63
35	135	113	100	87	78	72	68	64	63

Tableau (I-3) : Variation de la température  $T_S$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$   
 (venturi  $V_1$ ,  $Q_G=97,67 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

temps (min)	2 l/h $T_S$ (°C)	3 l/h $T_S$ (°C)	4 l/h $T_S$ (°C)	5 l/h $T_S$ (°C)	6 l/h $T_S$ (°C)	7 l/h $T_S$ (°C)	8 l/h $T_S$ (°C)	9 l/h $T_S$ (°C)	10 l/h $T_S$ (°C)
0	161	161	161	161	161	161	161	161	161
1	152	143	137	138	126	122	119	114	112
2	148	138	132	127	120	115	109	104	103
3	146	136	129	123	115	109	104	97	95
4	145	134	127	119	111	105	99	92	89
5	144	132	124	116	108	100	94	87	84
6	142	130	123	113	103	97		84	80
7		129	121	111	102		88	81	78
8	141	128	119	109	100	93			75
9	140	127	118	108	98	91	82	76	73
10	139	126	116	107	96	87	81	73	71
15	137	123	112	101	90	82	74	68	66
20	136	121	108	98	86	78	70	65	63
25	135	120	107	96	85	76	68	64	62
30	135	120	107	96	84	75	67	63	61
35	135	120	10	96	84	75	67	63	61

Tableau (I-4) : Variation de la température  $T_1$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$   
 (venturi  $V_2$ ,  $Q_G=111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

temps (min)	2 l/h $T_1$ (°C)	3 l/h $T_1$ (°C)	4 l/h $T_1$ (°C)	5 l/h $T_1$ (°C)	6 l/h $T_1$ (°C)	7 l/h $T_1$ (°C)	8 l/h $T_1$ (°C)	9 l/h $T_1$ (°C)	10 l/h $T_1$ (°C)
0	197	197	198	197	198	197	198	197	198
0,5	178	173	168	160	156	152	147	136	136
1	175	166	161	153	147	141	133	129	122
1,5	173	164	159	151	145	139	130		119
2		163	158	150	144	135	128	122	117
2,5	172				143	134	126	120	115
3		162	156	148	141	132	125	119	
4		161	155	147	139		124	118	113
6	170	160	153	146	137	130		116	
7			152	144	136	129	121	115	106
8	169			143	135		120		104
10	168	160	151			127		114	
12							119	113	104
20	167	160	150	142	134	126	119	113	104
35	167	160	150	142	134	126	119	113	104

Tableau (I-5) : Variation de la température  $T_2$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$   
 (venturi  $V_2$ ,  $Q_G=111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

temps (min)	2 l/h $T_2$ (°C)	3 l/h $T_2$ (°C)	4 l/h $T_2$ (°C)	5 l/h $T_2$ (°C)	6 l/h $T_2$ (°C)	7 l/h $T_2$ (°C)	8 l/h $T_2$ (°C)	9 l/h $T_2$ (°C)	10 l/h $T_2$ (°C)
0	170	170	170	170	170	170	171	170	170
0,5	164	160	158	153	151	150	148	143	142
1	159	154	148	143	138	134	131	125	124
1,5	156	148	141	134	128	123	118	103	101
2	153	144	136	125	118	114	108	97	95
2,5	151	141	132		113	109	102	92	88
3	150	137	129	119	109	104	98	89	87
3,5	149		127		105	101	91		
4	148	134	125	113	103	98		84	79
4,5	147		123		101	96		81	77
5	146	131	122	109	100	93	85		76
6		130	119	106	96	90	83	77	
7		128	117	104	94	88	82		73
8	145		114		92	87	81		72
9	144		112	99		85	79		71
10		127	111		90	84	78	74	
20	142	123	108	95	88	81	75	69	70
25	141	123	107	95	87	80	75	69	69
35	141	123	107	95	87	80	75	69	69

Tableau (I-6) : Variation de la température  $T_S$  mesurée à la sortie du dispositif en fonction des débits liquides  $Q_L$   
(venturi  $V_2$ ,  $Q_G=111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ).

temps (min)	2 l/h $T_S$ (°C)	3 l/h $T_S$ (°C)	4 l/h $T_S$ (°C)	5 l/h $T_S$ (°C)	6 l/h $T_S$ (°C)	7 l/h $T_S$ (°C)	8 l/h $T_S$ (°C)	9 l/h $T_S$ (°C)	10 l/h $T_S$ (°C)
0	165	165	165	165	165	165	165	165	165
0,5	155	148	145	137	133	132	127	124	120
1	152	146	142	135	130	127	122	115	113
1,5	151	144	138	131	126	122	116		
2	150	143	137	129	124	120	113	108	105
2,5		141	135		120	116	108	104	100
3	149	140	134	125	119	114	107	101	98
3,5	148		132		116	111	104	98	95
4	147	138	131	122	115	110	102		93
4,5			130		113	107	100	93	89
5		136	129	120	112	106	98	91	88
6	146	135	127	118	109	103	94	88	
7		134	126	116	107	100	92	85	81
8	145	133	124	114	105	98	89	82	79
9	144	132	123	113	103	95	87		77
10	143	131	122	112	101	94	85	78	75
20	142	127	116	105	93	84	77	71	68
25	141	126	115	103	92	83	75	69	67
35	141	126	114	103	92	82	74	68	66

## **Annexe II**

### **ETUDE DES CAPACITES D'EVAPORATION DES TROIS DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX**

II.1 et 2. COMPARAISON GLOBALE ENTRE LES TROIS DISPOSITIFS ET EFFET DU DEBIT LIQUIDE D'ALIMENTATION EN EAU PURE.....	176
II.3. EFFET DU DIAMETRE DU COL DU VENTURI.....	177
II.4. EFFET DU VOLUME GEOMETRIQUE DE LA COLONNE ASSOCIEE AU VENTURI.....	178
II.5. EFFET DE LA POSITION DE LA BUSE D'ALIMENTATION DU LIQUIDE.....	179
II.6. EFFET DU DEBIT D'ENTHALPIE ET DE LA VITESSE DU GAZ AU COL DU VENTURI.....	181

**II.1 et 2. COMPARAISON GLOBALE ENTRE LES TROIS DISPOSITIFS  
ET EFFET DU DEBIT LIQUIDE D'ALIMENTATION EN EAU  
PURE**

*Tableau (II-1) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif A.  
( $V_R=14,14$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\tau_G=0,345$  s,  $G=110$  kg/h, venturi  $V_1$ )*

$L_E$ (kg/h)	$T_S$ (°C)	$W_E$ (g/kg)	$W_S$ (g/kg)	$L_r$ (kg/h)	$\alpha$ (%)	$\epsilon$ (%)
0	185	3,91	3,91	0	0	0
1	170	3,6	9,964	0	70	0,5
2	157	3,91	16,819	0	71	0,8
3	140	4	22,545	0,11	68	1,5
4	126	5,3	28,936	0,8	65	2
5	120	4,69	28,781	1,0	53	2,5

*Tableau (II-2) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif B.  
( $V_R=93,22$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\tau_G=2,265$  s,  $G=110$  kg/h, venturi  $V_1$ )*

$L_E$ (kg/h)	$T_S$ (°C)	$W_E$ (g/kg)	$W_S$ (g/kg)	$L_r$ (kg/h)	$\alpha$ (%)	$\epsilon$ (%)
0	123	6,45	6,45	0	0	0
1	115	6,45	13,814	0	81	1
2	109	6,56	21,469	0	82	2
3	96	5,56	27,378	0,21	80	5
4	91	5,18	33,544	0,69	78	8
5	84	5,3	38,482	1,42	73	10
6	80	5,84	41,84	2,25	66	12
7	73	5,45	41,086	2,9	56	14,5
8	68	5,73	39,912	3,2	47	18
9	66	5,41	38,137	4,3	40	20
10	64	6,91	37,819	4,5	34	23

*Tableau (II-3) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.*  
 ( $V_R=82,20$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=97,67$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\tau_G=1,749$  s,  $G=126$  kg/h, venturi V<sub>1</sub>)

$L_E$ (kg/h)	$T_S$ (°C)	$W_E$ (g/kg)	$W_S$ (g/kg)	$L_r$ (kg/h)	$\alpha$ (%)	$\epsilon$ (%)
0	160	3,90	3,90	0	0	0
2,14	127	3,90	20,035	0	95	1
3,03	118	3,69	27,64	0	100	2
4,13	98	3,62	36,16	0	100	6,5
5,11	89	3,71	44,19	0	100	10
6,216	75	3,32	52,16	0	99	21
7,24	66	3,62	59,931	0,195	98	34
8,1	63	4,12	63,263	0,589	92	40
9,18	57	3,13	61,416	0,76	80	52
10,26	54	3,0	60,0	1,54	70	58

### **II.3. EFFET DU DIAMETRE DU COL DU VENTURI**

*Tableau (II-4) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.*  
 ( $V_R=82,20$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=143$  kg/h, venturi V<sub>2</sub>)

$L_E$ (kg/h)	$T_S$ (°C)	$W_E$ (g/kg)	$W_S$ (g/kg)	$L_r$ (kg/h)	$\alpha$ (%)	$\epsilon$ (%)
0	168	5,67	5,67	0	0	0
2,03	138	5,67	18,73	0	92	08
3,06	124	5,27	26,66	0	100	2
4	113	5,4	33,37	0	100	4
5	96	7,6	42,56	0	100	8
6,03	87	6,81	48,556	0	99	12
7,04	80	6,22	52,989	0,34	95	16
8	72	5,5	53,052	0,60	85	22
9,28	66	3,18	51,851	0,77	75	29
10,43	62	3,09	52,687	1,34	68	35

## II.4. EFFET DU VOLUME GEOMETRIQUE DE LA COLONNE ASSOCIEE AU VENTURI

Tableau (II-5) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.

( $V_R=82,20$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=97,67 - 101 - 103$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=126 - 130 - 132$  kg/h, venturi  $V_1$ )

	$V_R=82,203$ (l) $Q_G=97,67$ (Nm <sup>3</sup> /h)		$V_R=57,703$ (l) $Q_G=101$ (Nm <sup>3</sup> /h)		$V_R=49,5$ (l) $Q_G=103$ (Nm <sup>3</sup> /h)	
$L_E$ (kg/h)	0	8,1	0	8,19	0	8,03
$T_1$ (°C)	192	96	193	98	194	100
$T_2$ (°C)	168	65	174	67		
$T_3$ (°C)	162	64				
$T_S$ (°C)	160	63	167	65	171	68
$W_E$ (g/kg)	6,47	6,47	3,57	3,57	2,37	2,37
$W_1$ (g/kg)	6,47	53,44	3,57	52,53	2,37	51,04
$W_2$ (g/kg)	6,47	61,36	3,57	59,37		
$W_3$ (g/kg)	6,47	61,76				
$W_S$ (g/kg)	6,47	63,04	3,57	58,38	2,37	56,51
$\alpha_1$ (%)	0	73	0	77,71	0	80
$\alpha_2$ (%)	0	85,4	0	88,37		
$\alpha_3$ (%)	0	86				
$\alpha$ (%)	0	88	0	87	0	89
$\epsilon_1$ (%)	0	9	0	8	0	7
$\epsilon_2$ (%)	0	36,5	0	32,5		
$\epsilon_3$ (%)	0	38				
$\epsilon$ (%)	0	41,5	0	35	0	29

Tableau (II-6) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.  
 ( $V_R=82,20$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=143$  kg/h, venturi V<sub>2</sub>)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>2</sub> (g/kg)	W <sub>3</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	α <sub>2</sub> (%)	α <sub>3</sub> (%)	α (%)	L <sub>T</sub> (kg/h)	ε (%)
0	166	4,19	4,19	4,19	4,19	0	0	0	0	0
1,9	137	4,19	16,891	17,111	17,211	95,59	97,25	98	0	0,8
3,82	111	4,3	30,741	31,013	31,013	98,98	100	100	0	3
6,2	88	4,15	47,277	47,507	47,507	99,47	100	100	0	11
7,46	78	3,72	53,728	48,063	53,572	95,86	85	95,56	0,182	19
8,32	71	4,84	58,111	51,385	56,977	91,56	80	89,61	0,435	25,5
9,37	65	3,45	57,423	53,904	48,210	82,37	77	68,31	0,884	30,5
10,52	60	3,45	58,404	52,563	48,745	74,70	66,76	61,57	1,452	38

## II.5. EFFET DE LA POSITION DE LA BUSE D'ALIMENTATION DU LIQUIDE

Tableau (II-7) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.  
 ( $V_R=82,20$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=97,67$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=126$  kg/h, venturi V<sub>1</sub>, injection à 10 cm du col)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	L <sub>T</sub> (kg/h)	α (%)	ε (%)
0	160	3,81	3,81	0	0	0
2,22	143	3,81	13,10	0,515	52,73	0,8
5,22	125	4,01	24,70	2,266	49,94	2
7,53	111	4,50	33,86	3,631	49,13	4
8,43	105	4,48	10,21	3,531	53,4	5
9,39	81	5	47,60	3,52	57,16	14,5
10,63	97	4,25	39,97	3,293	42,22	7
10,71	69	4,04	47,73	3,93	51,4	24

Tableau (II-8) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.

( $V_R=82,20$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=143$  kg/h, venturi  $V_2$ , injection à 10 cm du col)

$L_E$ (kg/h)	$T_S$ (°C)	$W_E$ (g/kg)	$W_S$ (g/kg)	$L_r$ (kg/h)	$\alpha$ (%)	$\epsilon$ (%)
0	168	6,42	6,42	0	0	0
2,17	142	6,42	20,39	0	92	14
4,2	130	6,38	28,21	0,493	74	24
6,33	121	6,10	33,10	1,32	61	32
8,32	108	5,79	40,07	2,73	59	42
9,52	101	4,40	43,26	3,16	58,37	48
10,49	96	4,93	45,02	4,01	54,65	52

Tableau (II-9) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.

( $V_R=82,20$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=97,67$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=126$  kg/h, Buse  $B_2$ , venturi  $V_1$ , injection à 10 cm du col)

$L_E$ (kg/h)	$T_S$ (°C)	$W_E$ (g/kg)	$W_S$ (g/kg)	$L_r$ (kg/h)	$\alpha$ (%)	$\epsilon$ (%)
0	160	3,65	3,65	0	0	0
2	132	3,65	18,89	0	96	1
3	120	3,69	27,50	0	100	2
4	101	3,13	34,88	0	100	6
5	91	3,12	42,80	0	100	9
6	78	4,09	51,71	0	100	20
7	69	3,76	57,65	0,15	97	35
8	63	3,12	62,17	0,40	93	42

Tableau (II-10) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.

( $V_R=82,20$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=97,67$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=126$  kg/h, Buse B<sub>2</sub>, venturi V<sub>1</sub>, injection à 4 cm du col)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	L <sub>r</sub> (kg/h)	α (%)	ε (%)
0	160	3,12	3,12	0	0	0
2	130	3,12	18,83	0	99	1,5
3	118	3,07	26,88	0	100	2,5
4	99	3,15	34,90	0	100	7
5	90	3,09	42,77	0	100	10
6	75	3,22	49,89	0	98	22
7	67	3,43	56,21	0,06	95	36
8	62	3,35	60,49	0,51	90	43

## II.6. EFFET DU DEBIT D'ENTHALPIE ET DE LA VITESSE DU GAZ AU COL DU VENTURI

Tableau (II-11) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.

( $V_R=49,5$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=96,32$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=123,631$  kg/h, venturi V<sub>1</sub>)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	L <sub>r</sub> (kg/h)	α (%)	ε (%)
0	170	4,26	4,26	0	0	0
6,76	82	4,26	56,27	0,171	95,12	16
7,56	72	3,946	55,26	0,554	83,915	24,5
8,443	67	2,28	56,65	0,956	79,614	31
9,16	64	3,93	60,59	1,643	76,47	37

Tableau (II-12) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.  
 ( $V_R=49,5$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=109,307$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=140,291$  kg/h, venturi V<sub>1</sub>)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	L <sub>T</sub> (kg/h)	α (%)	ε (%)
0	173	3,734	3,734	0	0	0
6,68	87	3,734	49,51	0,131	96,865	12
7,60	77	3,28	52,90	0,314	92,289	19
8,538	74	2,88	54,835	0,672	86,015	22,5
9,275	69	2,56	59,125	0,964	86,21	30

Tableau (II-13) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.  
 ( $V_R=49,5$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=120,091$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=153,638$  kg/h, venturi V<sub>1</sub>)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	L <sub>T</sub> (kg/h)	α (%)	ε (%)
0	175	8,02	8,02	0	0	0
6,744	91	8,02	52	0	100	11
7,64	83	8,467	58	0	100	16
8,46	77	4,75	56,60	0,19	94,45	20
9,20	74	4,75	59,09	0,67	90,97	24

Tableau (II-14) : Etude des capacités d'évaporation du dispositif C.  
 ( $V_R=49,5$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=98,93$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=127,60$  kg/h, venturi V<sub>2</sub>)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	L <sub>T</sub> (kg/h)	α (%)	ε (%)
0	175	1,60	1,60	0	0	0
3,05	130	1,60	20,55	0,10	79,3	1
5,933	97	2,47	37,5	0,2	75,3	6
7,53	83	1,70	45,678	0,353	74,5	13
8,34	77	1,60	49,616	1,184	73,5	17,7
9,508	71	1,60	53,445	1,769	69,6	24,5

Tableau (II-15): Etude des capacités d'évaporation du venturi seul.

( $V_R=49,5$  l,  $T_E=200^\circ\text{C}$ ,  $Q_G=96,32$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=123,631$  kg/h, dispositif C, venturi V<sub>1</sub>)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	α (%)
0	191	4,26	4,26	0
6,76	110	4,26	50	83,65
7,56	109	3,946	52,08	78,715
8,443	99	2,28	49,05	68,48
9,16	89	3,93	51,24	63,85

Tableau (II-16): Etude des capacités d'évaporation du venturi seul.

( $V_R=49,5$  l,  $T_E=200^\circ\text{C}$ ,  $Q_G=109,307$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=140,291$  kg/h, dispositif C, venturi V<sub>1</sub>)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	α (%)
0	192	3,734	3,734	0
6,68	112	3,734	47,20	91,286
7,60	104	3,28	50,2	86,611
8,538	100	2,88	51,1	79,232
9,275	98	2,56	52,0	74,782

Tableau (II-17): Etude des capacités d'évaporation du venturi seul.

( $V_R=49,5$  l,  $T_E=200^\circ\text{C}$ ,  $Q_G=120,091$  Nm<sup>3</sup>/h,  $G=153,638$  kg/h, dispositif C, venturi V<sub>1</sub>)

L <sub>E</sub> (kg/h)	T <sub>S</sub> (°C)	W <sub>E</sub> (g/kg)	W <sub>S</sub> (g/kg)	α (%)
0	193	8,02	8,02	0
6,744	115	8,02	51,1	98,142
7,64	107	8,467	56,5	96,593
8,46	102	4,75	54,60	90,45
9,20	96	4,75	55,49	85

## Annexe III

# ETUDE DES CAPACITES D'ABSORPTION DES TROIS DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

III.1 et 2. COMPARAISON GLOBALE ENTRE LES TROIS DISPOSITIFS ET INFLUENCE DU DEBIT VOLUMIQUE D'ALIMENTATION EN SOLUTION OU SUSPENSION BASIQUE .....	185
III.3. INFLUENCE DE LA NATURE DU REACTIF BASIQUE.....	188
III.4. INFLUENCE D'UN AJOUT DE NaOH DANS UNE SUSPENSION D'HYDROXYDE DE CALCIUM .....	188
III.5. INFLUENCE DU DIAMETRE DU COL DU VENTURI .....	190
III.6. INFLUENCE DU VOLUME GEOMETRIQUE DE LA COLONNE SSOCIEE AU VENTURI.....	191
III.7. EFFET DE LA POSITION DE LA BUSE D'ALIMENTATION DE LA SOLUTION BASIQUE .....	192
III.8. EFFET DU DEBIT D'ENTHALPIE ET DE LA VITESSE DU GAZ AU COL DU VENTURI.....	193
III.9. EFFET DU RAPPORT STÆCHIOMETRIQUE R .....	195
III.10. EFFET DE LA DIFFERENCE DE TEMPERATURE. TEMPERATURE SECHE-TEMPERATURE DE SATURATION ADIABATIQUE ( $\Delta T_{SA}$ ).....	197
III.11. EFFET DU DIAMETRE DES PARTICULES DE $Ca(OH)_2$ .....	198
III.12. COMPARAISON DES PERFORMANCES DU DISPOSITIF C AVEC CERTAINS RESULTATS DE LA LITTERATURE.....	199

**III.1 et 2.COMPARAISON GLOBALE ENTRE LES TROIS DISPOSITIFS  
INFLUENCE DU DEBIT VOLUMIQUE D'ALIMENTATION EN  
SOLUTION OU SUSPENSION BASIQUE**

*Tableau (III-1) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif A.*

*( $V_R=14,14$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\tau_G=0,345$  s,  $F_{Ca(OH)_2}=2,385$  mole/h, venturi V<sub>1</sub>)*

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
2	150	105,5	0,5	19
3	142	97	0,8	23
4	130	85,7	1	24
5	120			25

*Tableau (III-2) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif B.*

*( $V_R=93,22$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\tau_G=2,265$  s,  $F_{Ca(OH)_2}=2,385$  mole/h, venturi V<sub>1</sub>)*

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
2	108	68,5	2	14
3	97	55,5	5	22
4	91	49,5	7	30
5	84	41,7	10	36
6	80	37,5	13	40
7	76	33,3	16	44
8	68	27,5	20	50
9	66	27	20,2	52
10	56	18,5	31,5	60
11	52	14,5	40	64
12	54	15,7	37	62

Tableau (III-3) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=97,67$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\tau_G=1,749$  s,  $F_{Ca(OH)_2}=2,725$  mole/h, venturi  $V_1$ )

$Q_L$ (l/h)	$T_S$ (°C)	$\Delta T_{SA}$ (°C)	$\epsilon$ (%)	$X$ (%)
2,14	127	84,5	1	8
3,03	118	74	2	16
4,13	98	54	6,5	24
5,11	89	44	10	32
6,216	75	30	21	46
7,24	66	20	34	58
8,1	63	16,8	40	64
9,18	57	11,8	52	68
10,26	54	9,5	58	72

Tableau (III-4) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif A.

( $V_R=14,14$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\tau_G=0,345$  s,  $F_{NaOH}=4,771$  mole/h, venturi  $V_1$ )

$Q_L$ (l/h)	$T_S$ (°C)	$\Delta T_{SA}$ (°C)	$\epsilon$ (%)	$x$ (%)
2	156	110,5	0,8	30
3	138	92,5	1	34
4	131	86,3	1,5	36
5	120			40

Tableau (III-5) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif B.

( $V_R=93,22$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\tau_G=2,265$  s,  $F_{NaOH}=2,385$  mole/h, venturi V1)

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
2	108	67,5	2	34
3	97	54,7	5	38
4	90	47,7	7,5	42
5	84	41,3	10,5	46
6	80	37	13	50
7	77	34,5	15	54
7	71	30	18	56
9	68	26	23	59
10	64	23,3	25,5	62

Tableau (III-6) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=97,67$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\tau_G=1,749$  s,  $F_{NaOH}=2,725$  mole/h, venturi V1)

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
2,06	132	89	1	60
2,1	121	78,5	1,8	61
2,94	119	75	2	65
3,1	116	72	3	64
4,26	102	58	5	68
4,1	97	53,3	7	69
5,19	92	46,8	9	72
5,24	89	43,5	10	73
6,1	77	32,8	17	77
6,1	74	30	19	78
7,04	68	24,5	25,5	80
7,04	68	25,3	24,5	81
8,05	62	19,5	33	84
8,08	61	19,3	32,5	83
9,02	58	14,5	44	85
10,22	53	10,5	54	88

### III.3. INFLUENCE DE LA NATURE DU REACTIF BASIQUE

Tableau (III-7) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=97,67$  Nm<sup>3</sup>/h,  $F_{Mg(OH)_2}=2,725$  mole/h, venturi  $V_1$ )

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
8,01	65	20	33	39
8,03	65	20	33	41
8,05	64	20	34	40

### III.4. INFLUENCE D'UN AJOUT DE NaOH DANS UNE SUSPENSION D'HYDROXYDE DE CALCIUM

Tableau (III-8) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif A.

( $V_R=14,14$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $F_{Ca(OH)_2}=2,385$  mole/h, avec 0,15 de NaOH, venturi  $V_1$ )

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
2	156	111,3	0,5	20
3	134	90,3	1	30
4	125	80,3	2	35

Tableau (III-9) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif B.

( $V_R=93,22$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $F_{Ca(OH)_2}=2,385$  mole/h, avec 0,15 de NaOH, venturi V<sub>1</sub>)

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
2	110	70,5	2	16
3	96	54,5	5	28
4	86	44	9	38
5	81	38	13	44
6	77	34,3	15,5	46
7	76	33,5	16	48
7	71	30,5	17	50
10	64	24,7	23	56
12	53	15,7	37,5	70

Tableau (III-10) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $F_{Ca(OH)_2}=3,114$  mole/h, avec 0,15 de NaOH, venturi V<sub>2</sub>)

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
2	138	93,7	0,8	18
3	126	81,3	2	24
4	111	66,3	4	32
5	97	52	7	42
6	87	41	12	54
7	79	33,7	16,5	63
8	72	27	22	65

### III.5. INFLUENCE DU DIAMETRE DU COL DU VENTURI

Tableau (III-11) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif C.  
 ( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $F_{Ca(OH)_2}=3,114$  mole/h, venturi V<sub>2</sub>)

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
2,03	138	94	0,8	13
3,06	124	79,5	2	20
4	113	68	4	28
5	96	58	8	38
6,03	87	41	12	46
7,04	80	34,5	16	55
8	72	27,5	22	57
9,28	66	22	29	61
10,43	62	18,5	35	64

Tableau (III-12) : Etude des efficacités d'absorption du dispositif C.  
 ( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $R=1,25$ ,  $Q_G=111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $F_{NaOH}=6,227$  mole/h, venturi V<sub>2</sub>)

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
1,9	137	94	0,8	56
3,82	111	67	3	64
6,2	88	42,5	11	72
7,46	78	31	19	75
8,32	71	25,3	25,5	79
9,37	65	21,3	30,5	80
10,52	60	17	38	82

### III.6. INFLUENCE DU VOLUME GEOMETRIQUE DE LA COLONNE ASSOCIEE AU VENTURI

Tableau (II-13): Etude des capacités d'absorption du dispositif C.  
( $T_E=200\text{ °C}$ ,  $R=1,25$ ,  $Q_G=97,67-101$  et  $103\text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

	$Q_L$ (l/h)	$\epsilon_1$ (%)	$\epsilon_2$ (%)	$\epsilon_3$ (%)	$\epsilon$ (%)	$X_1$ (%)	$X_2$ (%)	$X_3$ (%)	$X$ (%)
$V_R=82,203$ (l) $Q_G=97,67$ ( $\text{Nm}^3/\text{h}$ ) suspension de $\text{Ca(OH)}_2$ 2,725 (mole/h)	8,1	9	36,5	38	41,5	47	64	63	63,5
$V_R=82,203$ (l) $Q_G=97,67$ ( $\text{Nm}^3/\text{h}$ ) solution de NaOH 5,45 (mole/h)	8,1	9	36,5	38	41,5	70	91	90	90,5
$V_R=57,703$ (l) $Q_G=101$ ( $\text{Nm}^3/\text{h}$ ) solution de NaOH 5,636 (mole/h)	8,19	8	32,5		35	74	89		88
$V_R=49,5$ (l) $Q_G=103$ ( $\text{Nm}^3/\text{h}$ ) solution de NaOH 5,748 (mole/h)	8,3	7	30		29	84,5	88		89

### III.7. EFFET DE LA POSITION DE LA BUSE D'ALIMENTATION DE LA SOLUTION BASIQUE

Tableau (III-14): Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=97,67$  Nm<sup>3</sup>/h, NaOH,  $R=1,25$ , venturi  $V_1$ , injection à 10 cm du col)

$Q_L$ (l/h)	$T_S$ (°C)	$\Delta T_{SA}$ (°C)	$\epsilon$ (%)	X (%)
2,22	143	100	0,8	14
5,22	125	81,3	2	26
7,53	111	66,5	4	34
8,43	105	59,3	5	39
9,39	81	36,3	14,5	70
10,63	97	52,5	7	46
10,71	69	25,5	24	74

Tableau (III-15): Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=111,6$  Nm<sup>3</sup>/h, NaOH,  $R=1,25$ , venturi  $V_2$ , injection à 10 cm du col)

$Q_L$ (l/h)	$T_S$ (°C)	$\Delta T_{SA}$ (°C)	$\epsilon$ (%)	X (%)
2,17	142	97,8	0,8	14
4,2	130	84,8	2	24
6,33	121	75,5	3	32
8,32	108	61,8	4	42
9,52	101	55	7	48
10,49	96	50	8	52

### III.8. EFFET DU DEBIT D'ENTHALPIE ET DE LA VITESSE DU GAZ AU COL DU VENTURI

Tableau (III-16) : Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=49,5$  l,  $R=1,25$ ,  $T_E=200$  °C,  $F_{NaOH}=5,375$  mole/h,  $Q_G=96,32$  Nm<sup>3</sup>/h, venturi V<sub>1</sub>)

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
0	170	0	0	0
6,76	82	35	16	74
7,56	72	36,3	24,5	76
8,443	67	21,5	31	80
9,16	64	18	37	82

Tableau (III-17) : Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=49,5$  l,  $R=1,25$ ,  $T_E=200$  °C,  $F_{NaOH}=6,10$  mole/h,  $Q_G=109,307$  Nm<sup>3</sup>/h, venturi V<sub>1</sub>)

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
0	173	0	0	0
6,68	87	41	12	78
7,60	77	31,5	19	80
8,538	74	28,5	22,5	81
9,275	69	22,5	30	84

Tableau (III-18) : Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=49,5$  l,  $R=1,25$ ,  $T_E=200$  °C,  $F_{NaOH}=6,70$  mole/h,  $Q_G=120,091$  Nm<sup>3</sup>/h, venturi V<sub>1</sub>)

Q <sub>L</sub> (l/h)	T <sub>S</sub> (°C)	ΔT <sub>SA</sub> (°C)	ε (%)	X (%)
0	175	0	0	0
6,744	91	44	11	79
7,64	83	35,5	16	80
8,46	77	30,5	20	82
9,20	74	27,3	24	85

Tableau (III-19) : Etude des capacités d'absorption du venturi seul.  
 ( $V_R=49,5$  l,  $R=1,25$ ,  $T_E=200$  °C,  $Q_L$  # 8 lh, NaOH,  $\epsilon=8$  %, venturi V1)

$Q_G$ (Nm <sup>3</sup> /h)	$\alpha$ (%)	$T_S$ (°C)	X (%)
96,32	70	97	68
97,67	73	98	70
101	77	99	74
103	80	100	80
109,31	86	101	82
120,10	92	102	83

Tableau (III-20) : Etude des capacités d'absorption du dispositif C.  
 ( $V_R=49,5$  l,  $R=1,25$ ,  $T_E=200$  °C,  $F_{NaOH}=5,52$  mole/h,  $Q_G=98,93$  Nm<sup>3</sup>/h, venturi V2)

$Q_L$ (l/h)	$T_S$ (°C)	$\Delta T_{SA}$ (°C)	$\epsilon$ (%)	X (%)
0	175	0	0	0
3,05	130	86,8	1	50
5,933	97	53,5	6	60
7,53	83	38,5	13	66
8,34	77	32,3	17,7	70
9,508	71	25,8	24,5	72

### III.9. EFFET DU RAPPORT STœCHIOMETRIQUE R

Tableau (III-21) : Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\epsilon=17$  %,  $\alpha=90$  %,  $Q_L$  # 7 l/h,  $\Delta T_{SA}=34$  °C,  $P_E=500$  ppm,  $F_{SO_2}=2,49$  mole/h, venturi V<sub>2</sub>)

R	F <sub>Ca(OH)<sub>2</sub></sub> (mole/h)	X (%)
1	2,49	46
1,25	3,11	50
1,50	3,74	52
1,75	4,36	54
2	4,98	56
3	7,47	60

Tableau (III-22) : Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\epsilon=17$  %,  $\alpha=90$  %,  $Q_L$  # 7 l/h,  $\Delta T_{SA}=34$  °C,  $P_E=500$  ppm,  $F_{SO_2}=2,49$  mole/h, venturi V<sub>2</sub>)

R	F <sub>NaOH</sub> (mole/h)	X (%)
1	4,98	70
1,25	6,23	75
1,50	7,47	76
1,75	8,72	80
2	9,97	82
3	14,95	86

**Tableau (III-23) : Etude des capacités d'absorption du dispositif B.**  
 ( $V_R=93,22$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\epsilon=17$  %,  $\alpha=60$  %,  $Q_L$  # 7 l/h,  $\Delta T_{SA}=31$  °C,  $P_E=500$  ppm,  
 $F_{SO_2}=1,908$  mole/h, venturi V<sub>1</sub>)

R	F <sub>Ca(OH)<sub>2</sub></sub> (mole/h)	X (%)
1,25	2,386	45
2	3,817	48
3	5,725	50

**Tableau (III-24) : Etude des capacités d'absorption du dispositif B.**  
 ( $V_R=93,22$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=85,5$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\epsilon=17$  %,  $\alpha=60$  %,  $Q_L$  # 7 l/h,  $\Delta T_{SA}=31$  °C,  $P_E=500$  ppm,  
 $F_{SO_2}=1,908$  mole/h, venturi V<sub>1</sub>)

R	F <sub>NaOH</sub> (mole/h)	X (%)
1,25	4,771	55
2	7,634	60
3	11,451	66

**III.10. EFFET DE LA DIFFERENCE DE TEMPERATURE :  
TEMPERATURE SECHE-TEMPERATURE DE SATURATION  
ADIABATIQUE (  $\Delta T_{SA}$  )**

Tableau (III-25) : Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=97,67-111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\alpha$  # 85 %,  $Q_L=7-8-9$  l/h,  $P_E=500$  ppm,  
 $F_{SO_2}=2,18-2,49$  mole/h, suspension de Ca(OH)<sub>2</sub>, venturi V<sub>1</sub> ou V<sub>2</sub>)

	$\epsilon=17$ % $\Delta T_{SA}=35$ °C	$\epsilon=46$ % $\Delta T_{SA}=14$ °C	$\epsilon=56$ % $\Delta T_{SA}=11$ °C
R	X (%)	X (%)	X (%)
1	46	60	64
1,25	50	64	68
1,50	52		
1,75	54		
2	56	72	74
3	60	76	80

Tableau (III-26) : Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=97,67-111,6$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\alpha$  # 90 %,  $Q_L=7-8$  l/h,  $P_E=500$  ppm,  
 $F_{SO_2}=2,18-2,49$  mole/h, solution de NaOH, venturi V<sub>1</sub> ou V<sub>2</sub>)

	$\epsilon=17$ % $\Delta T_{SA}=35$ °C	$\epsilon=46$ % $\Delta T_{SA}=14$ °C
R	X (%)	X (%)
1	70	80
1,25	75	84
1,50	76	
1,75	80	
2	82	92
3	86	96

### III.11. EFFET DU DIAMETRE DES PARTICULES DE $\text{Ca(OH)}_2$

Tableau (III-27) : Etude des capacités d'absorption du dispositif C.

( $V_R=82,203$  l,  $T_E=200$  °C,  $Q_G=97,67$  Nm<sup>3</sup>/h,  $\epsilon=45$  %,  $\alpha \# 90$  %,  $\Delta T_{SA}=15$  °C  $Q_L \# 8$  l/h,  $P_E=500$  ppm,

$F_{SO_2}=2,18$  mole/h, suspension de  $\text{Ca(OH)}_2$ , venturi V1)

diamètres des particules de $\text{Ca(OH)}_2$	taux d'absorption du venturi seul	taux d'absorption du dispositif total
dp ( $\mu\text{m}$ )	$X_1$ (%)	X (%)
dp<35	46	66
	44	64
	45	64
	44	60
	44	58
35<dp<45	44	62
	44	60
	40	50
	42	54
45<dp<50	41	52
	34	40
	28	34
50<dp<80		
80<dp<125		
125<dp<160		

### III.12. COMPARAISON DES PERFORMANCES DU DISPOSITIF C AVEC CERTAINS RESULTATS DE LA LITTERATURE

Tableau (III-28): Etude des capacités d'absorption du SO<sub>2</sub> avec une suspension de Ca(OH)<sub>2</sub> effectuée par YOON et coll. (1988).

R	$\Delta T_{SA}=27\text{ }^{\circ}\text{C}$ X (%)	$\Delta T_{SA}=17\text{ }^{\circ}\text{C}$ X (%)	$\Delta T_{SA}=14\text{ }^{\circ}\text{C}$ X (%)
0,6			12
1	13	17	
1,1			31
1,6			30
1,9		29	
2			34
2,2	22		

Tableau (III-29): Etude des capacités d'absorption du SO<sub>2</sub> avec une suspension de Ca(OH)<sub>2</sub> effectuée par BLYTHE et coll. (1983).

R	$\Delta T_{SA}=11\text{ }^{\circ}\text{C}$ X (%)	R=1 $\epsilon$ (%)	R=1 X (%)
1	57	67	65
1,5	63		
1,75	67		
2	70		

Tableau (III-30): Etude des capacités d'absorption du  $\text{SO}_2$  avec une suspension de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  effectuée par KLINGSPOR (1987).

R	$\epsilon = 20 \%$	$\epsilon = 40 \%$	$\epsilon = 60 \%$
	X (%)	X (%)	X (%)
1	31	49	60
1,5	38	57	73
2	41	62	80
3	47	68	85
4	50	69	86

Tableau (III-31): Etude des capacités d'absorption du  $\text{SO}_2$  avec une suspension de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  effectuée par STRÖMBERG (1987).

pour un rapport $R = 1$	
$\epsilon$ (%)	X (%)
20	30
40	51
50	58
60	63

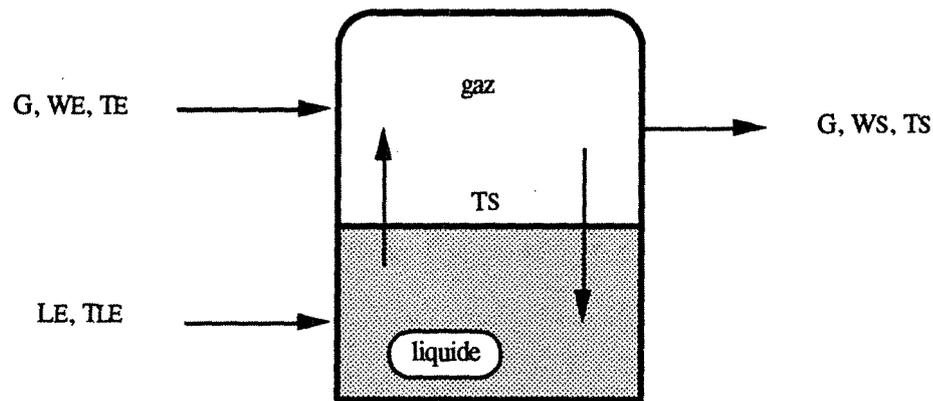
## Annexe IV

# RESULTATS DE L'INTERPRETATION DE L'ABSORPTION REACTIONNELLE DE SO<sub>2</sub> PAR UNE SOLUTION DE NaOH ET UNE SUSPENSION DE Ca(OH)<sub>2</sub>

IV.1. DEBIT THEORIQUE MAXIMAL D'EAU PURE SUSCEPTIBLE D'ETRE EVAPORE EN FONCTIONNEMENT ADIABATIQUE.....	202
IV. 2.APPLICATION DU MODELE A L'ETUDE D'EVAPORATION D'EAU.....	203
IV.3. APPLICATION DU MODELE A L'ETUDE D'ABSORPTION REACTIONNELLE DE SO <sub>2</sub> PAR UNE SOLUTION DE NaOH.....	208
IV.4. APPLICATION DU MODELE A L'ETUDE D'ABSORPTION REACTIONNELLE DE SO <sub>2</sub> PAR UNE SUSPENSION DE Ca(OH) <sub>2</sub> .....	209

#### **IV.1. DEBIT THEORIQUE MAXIMAL D'EAU PURE SUSCEPTIBLE D'ETRE EVAPORE EN FONCTIONNEMENT ADIABATIQUE**

Le schéma (IV-1) résume les grandeurs caractéristiques de l'évolution du système adiabatique représenté par le modèle parfaitement agité décrit précédemment (chapitre IV).



*Figure (IV-1) : Schéma du réacteur adiabatique dans le cas du modèle parfaitement agité*

- bilan de matière de l'eau sur l'ensemble du dispositif :

$$L_E = G (W_S - W_E) \quad (IV-1)$$

- bilan global d'enthalpie sur l'ensemble du dispositif

$$G (H_{GS} - H_{GE}) = L_E H_{LE} \quad (IV-2)$$

$$\begin{aligned} H_{GS} &= C_{p_{air}} T_S + W_S \Lambda(0) & \} \\ H_{GE} &= C_{p_{air}} T_E + W_E \Lambda(0) & \} \\ H_{LE} &= C_{p_e}^l T_{LE} & \} \end{aligned} \quad (IV-3)$$

Supposons que l'équilibre thermodynamique à l'interface gaz-liquide est réalisé. Dans ces conditions, l'humidité de l'air à la sortie est égale à celle d'un air saturé à la température de sortie, soit :

$$W_S = W^o(T_S)$$

(IV-4)

A partir des bilans de matière et d'enthalpie (relations IV-1, IV-2 et IV-3), de la relation donnant l'humidité de l'air à l'équilibre (IV-4) et des grandeurs d'entrée ( $T_E=200\text{ °C}$ ,  $G=125,5\text{ kg/h}$ ,  $T_{LE}=18\text{ °C}$ ,  $W_E=0,005\text{ kg d'eau/kg d'air sec}$ ), on peut déterminer par une méthode itérative l'humidité et la température de l'air à la sortie ( $W_S=0,065\text{ kg d'eau/kg d'air sec}$ ,  $T_S=57\text{ °C}$ ) et par suite le débit d'eau pure maximal évaporé en fonctionnement adiabatique ( $L_E=7,53\text{ kg/h}$ ).

## IV.2. APPLICATION DU MODELE A L'ETUDE D'EVAPORATION D'EAU

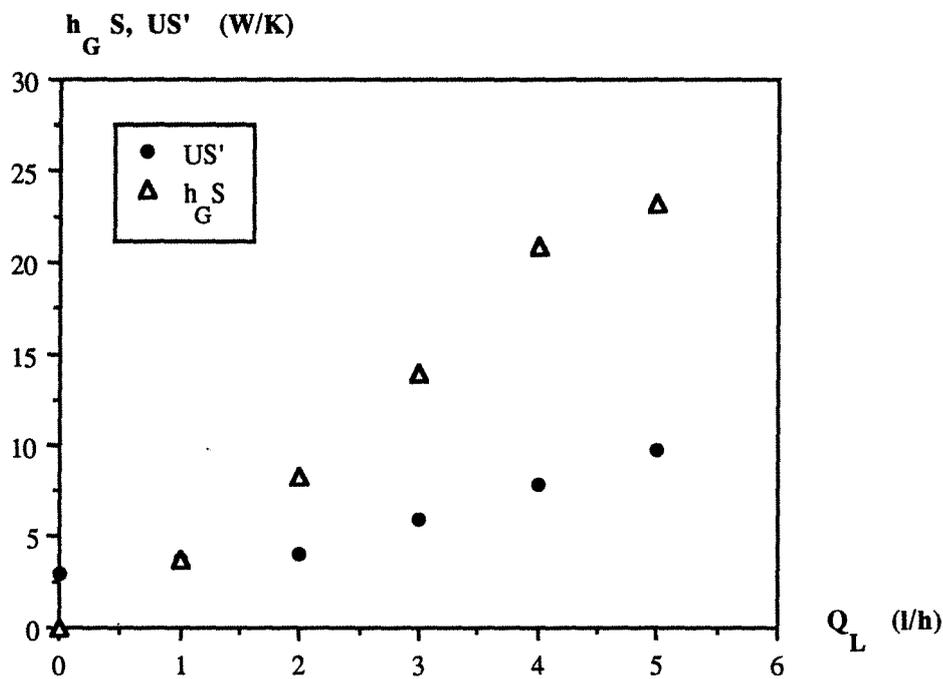


Figure (IV-1) : Courbes  $h_{GS}$  et  $US'$  en fonction du débit d'alimentation d'eau.

(montage A,  $Q_G=85,5\text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

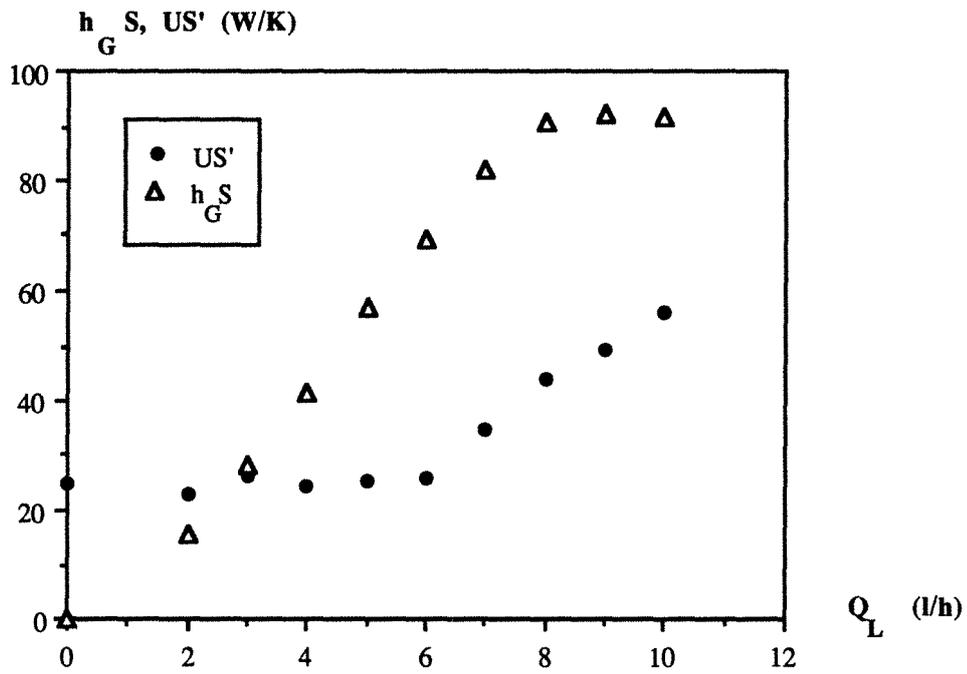


Figure (IV-2) : Courbes  $h_G S$  et  $US'$  en fonction du débit d'alimentation d'eau.  
(montage B,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

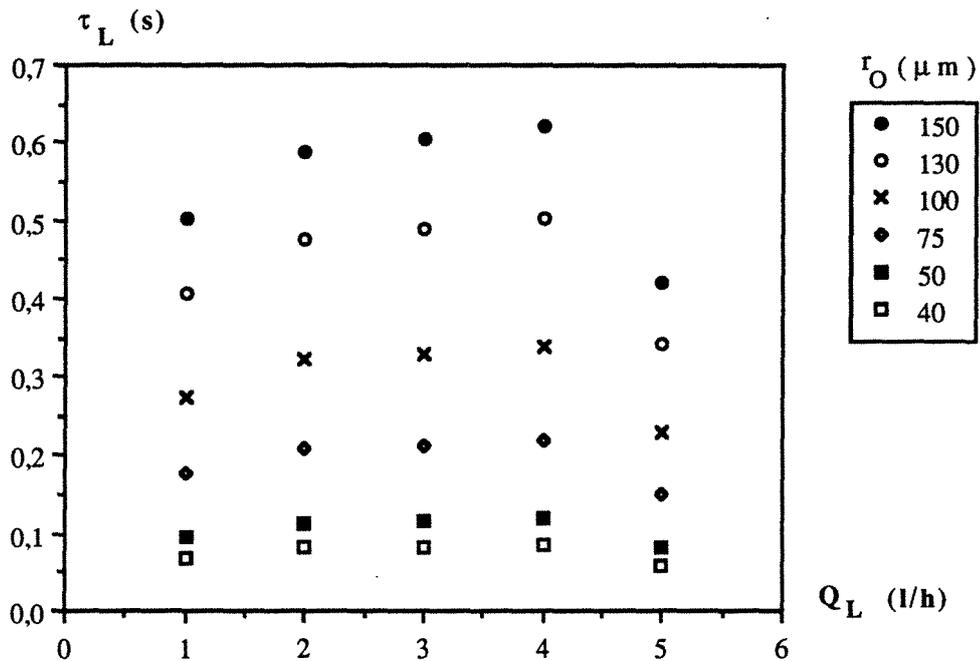


Figure (IV-3) : Variation du  $\tau_L$  en fonction du débit d'alimentation d'eau pour différents rayons initiaux.  
(montage A,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

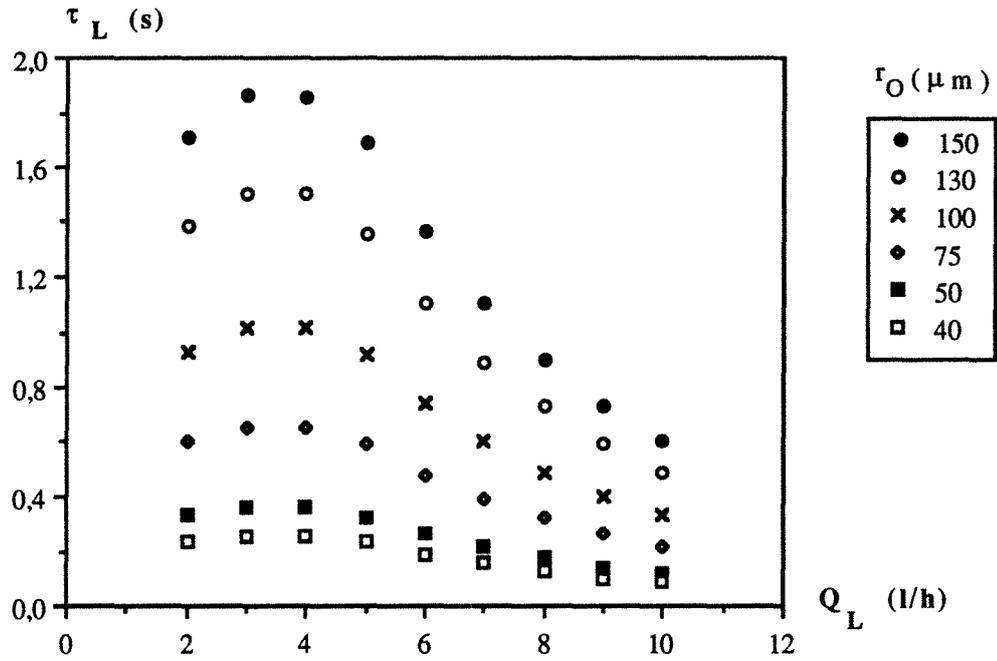


Figure (IV-4) : Variation du  $\tau_L$  en fonction du débit d'alimentation d'eau pour différents rayons initiaux. (montage B,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

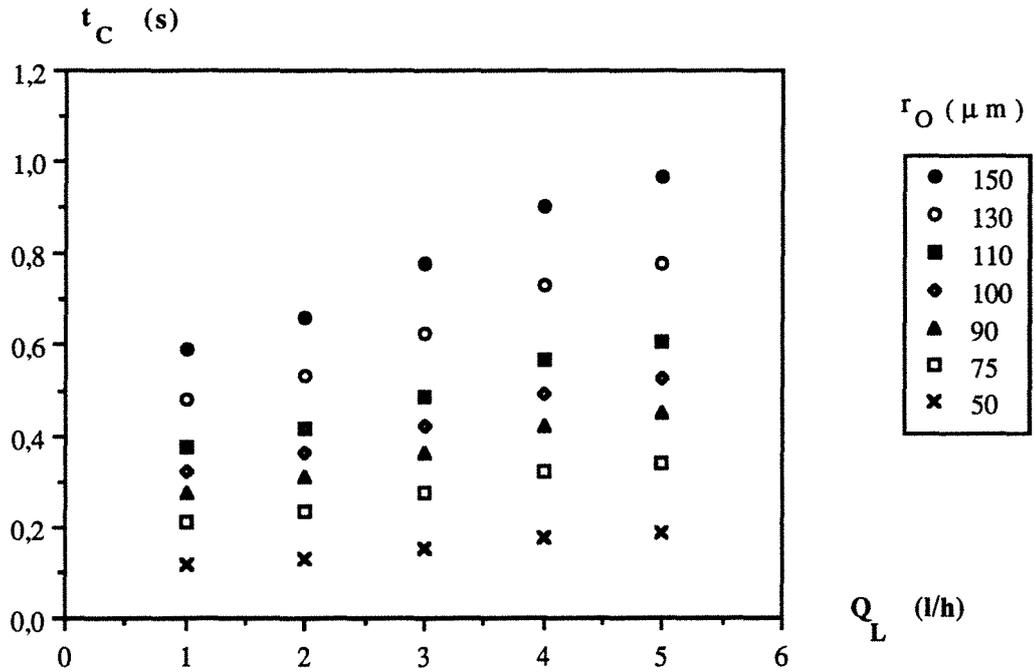


Figure (IV-5) : Variation du temps critique d'évaporation en fonction du débit volumique d'alimentation liquide pour différents rayons initiaux. (montage A,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

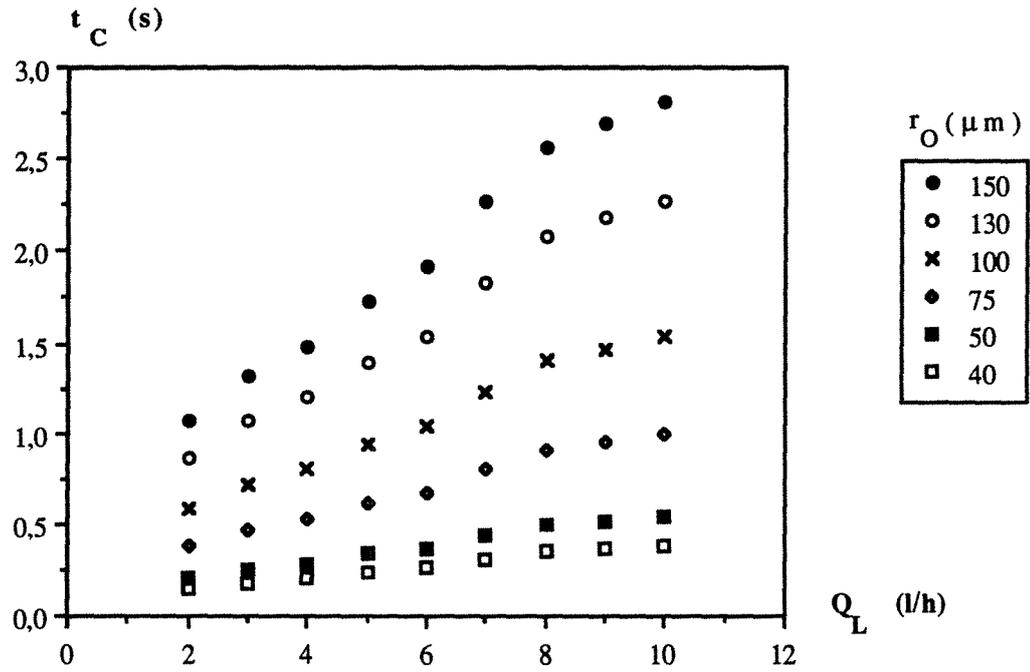


Figure (IV-6) : Variation du temps critique d'évaporation en fonction du débit volumique d'alimentation liquide pour différents rayons initiaux. (montage B,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

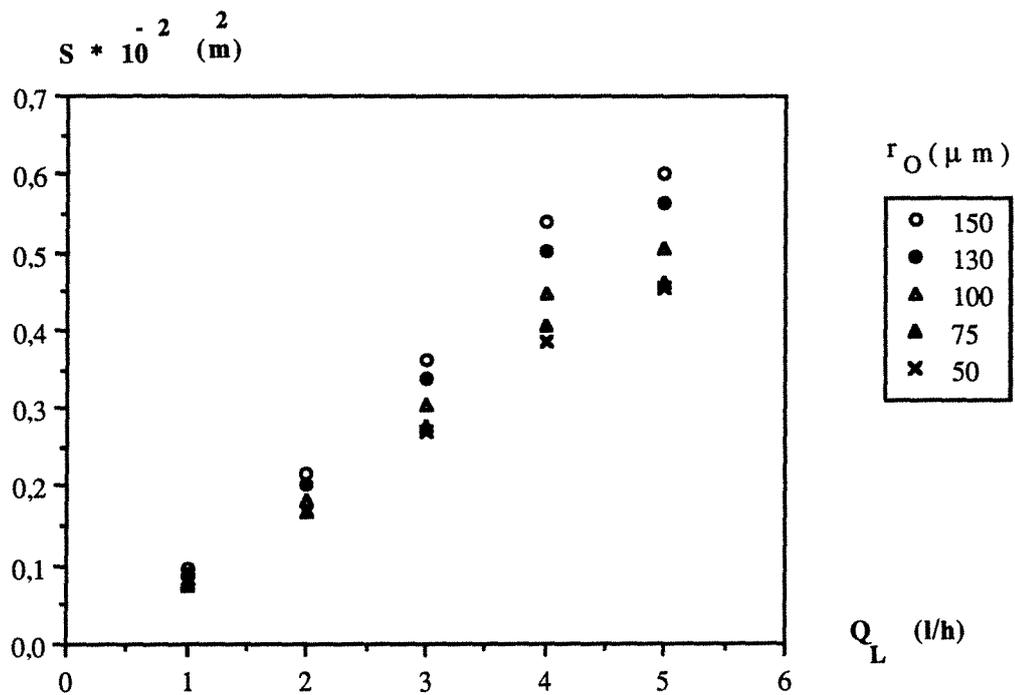


Figure (IV-7) : Variation de la surface d'échange  $S$  en fonction du débit d'alimentation du liquide  $Q_L$  pour différents rayons initiaux  $r_O$ . (montage A,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

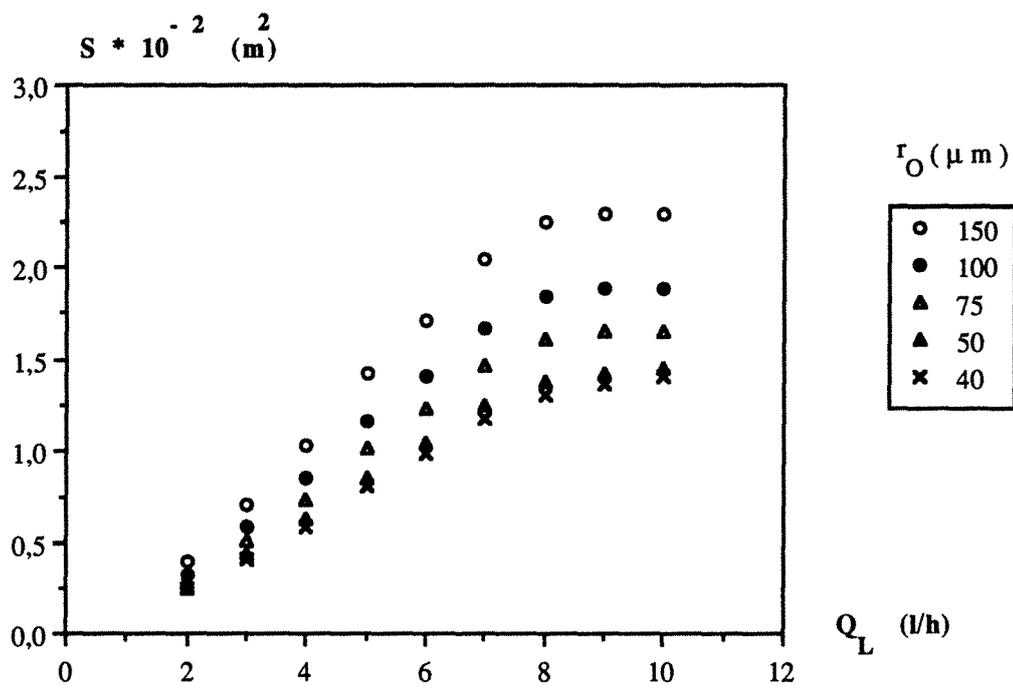


Figure (IV-8) : Variation de la surface d'échange  $S$  en fonction du débit d'alimentation du liquide  $Q_L$  pour différents rayons initiaux  $r_0$ . (montage B,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

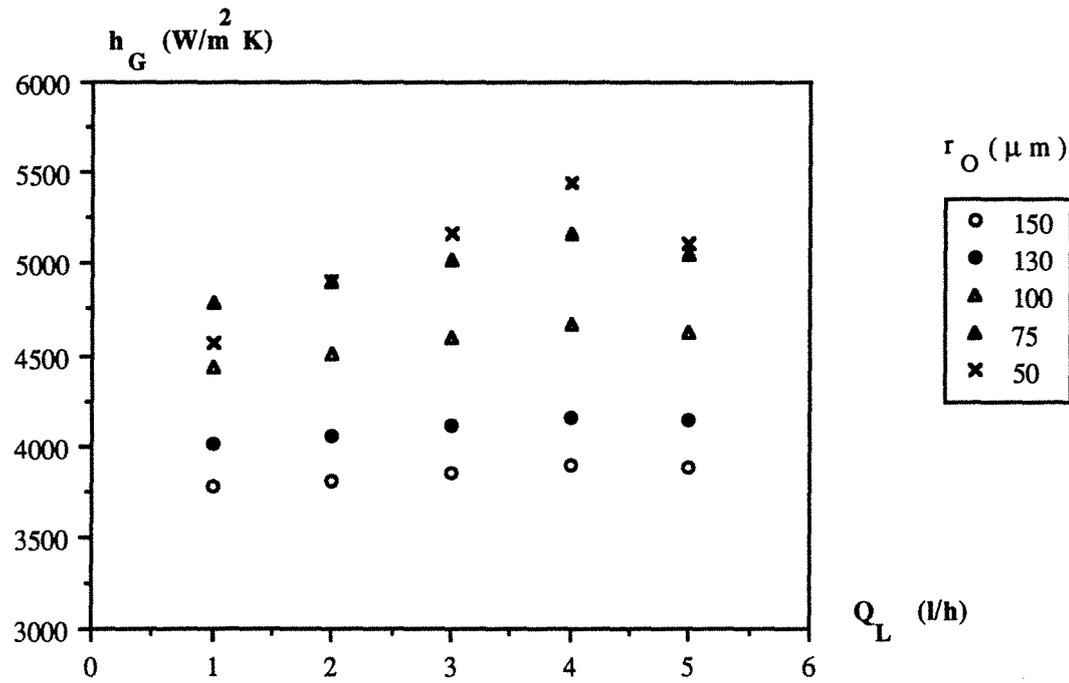


Figure (IV-9) : Variation du coefficient de transfert thermique  $h_G$  en fonction du débit d'alimentation du liquide  $Q_L$  pour différents rayons initiaux  $r_0$ . (montage A,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

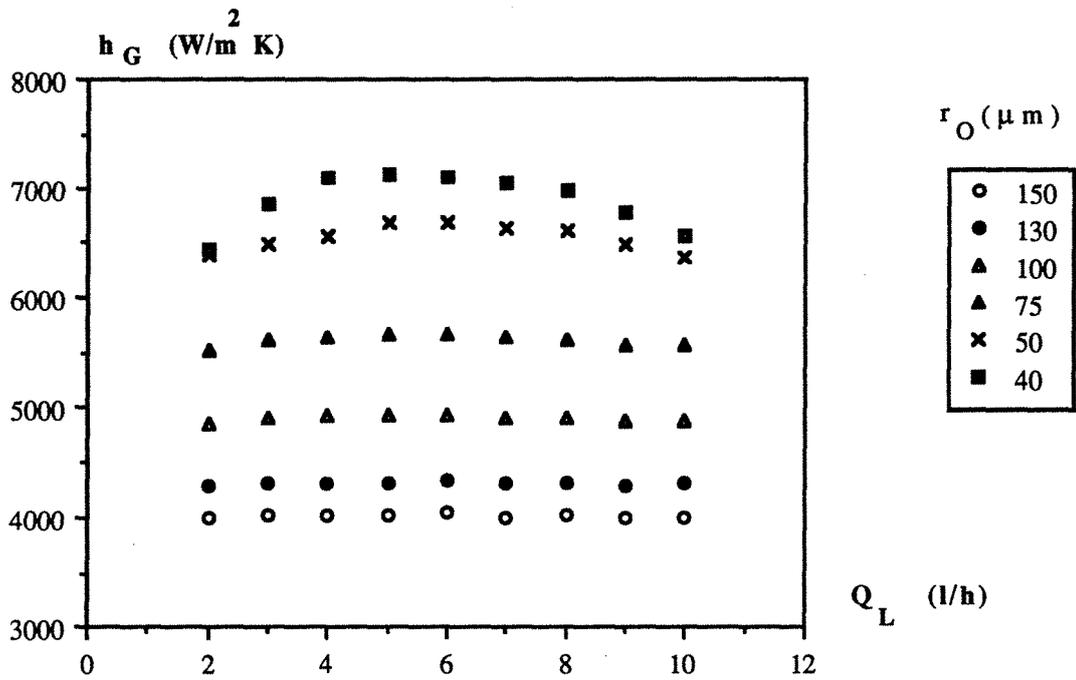


Figure (IV-10) : Variation du coefficient de transfert thermique  $h_G$  en fonction du débit d'alimentation du liquide  $Q_L$  pour différents rayons initiaux  $r_0$ . (montage B,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

### IV.3. APPLICATION DU MODELE A L'ETUDE D'ABSORPTION REACTIONNELLE DE $\text{SO}_2$ PAR UNE SOLUTION DE $\text{NaOH}$

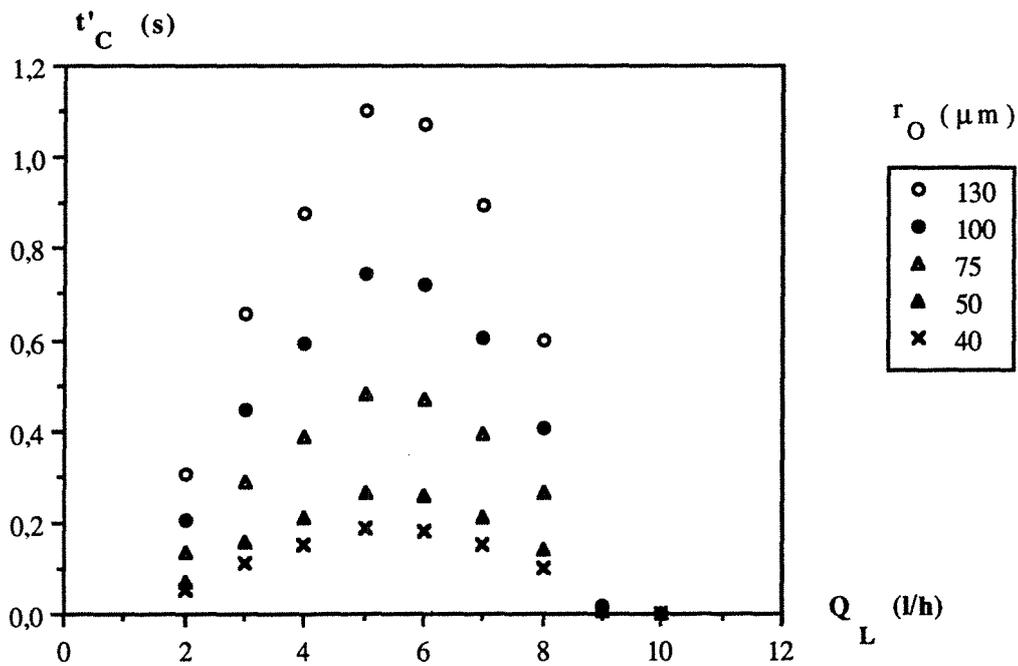


Figure (IV-11) : Effet du rayon initial des gouttes  $r_0$  sur le temps de la formation des structures solides dans la goutte  $t'_C$ . (montage B,  $Q_G=85,5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_1$ )

**IV.4. APPLICATION DU MODELE A L'ETUDE D'ABSORPTION  
REACTIONNELLE DE  $SO_2$  PAR UNE SUSPENSION DE  $Ca(OH)_2$**

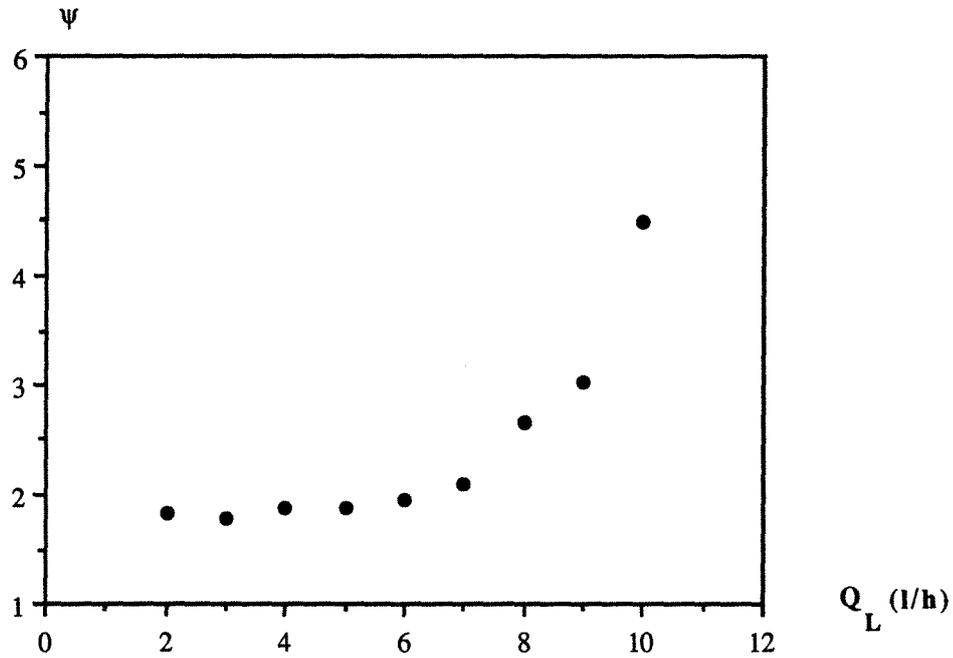


Figure (IV-12) : Variation de la constante  $\psi$  en fonction du débit volumique de suspension de chaux.  
(dispositif B,  $r_o = 25 \mu m$ ,  $Q_G = 85,5 Nm^3/h$ , venturi  $V_1$ ).

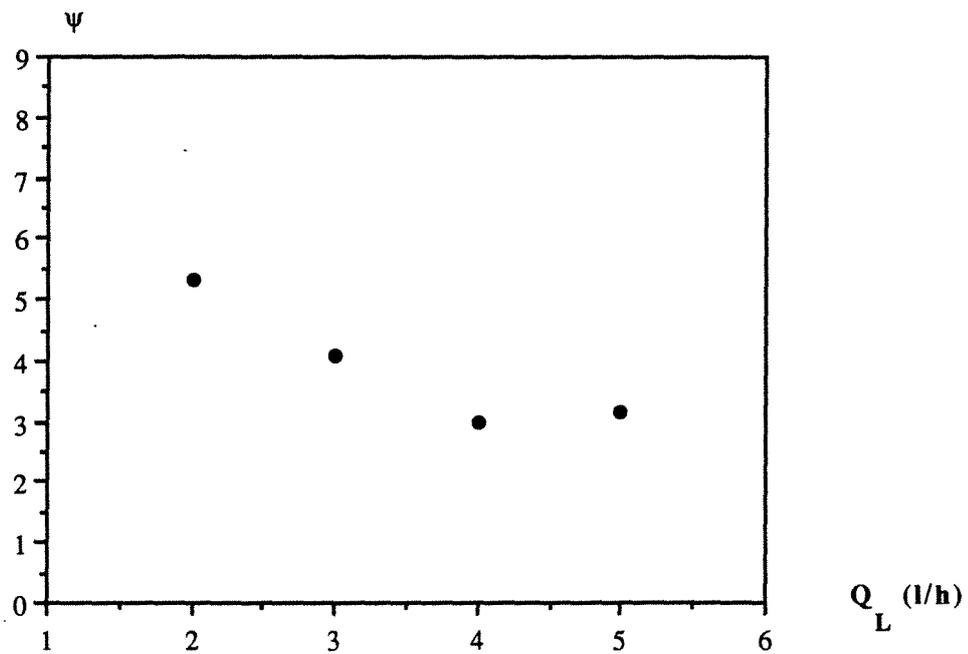


Figure (IV-13) : Variation de la constante  $\psi$  en fonction du débit volumique de suspension de chaux.  
(dispositif A,  $r_o = 25 \mu m$ ,  $Q_G = 85,5 Nm^3/h$ , venturi  $V_1$ ).

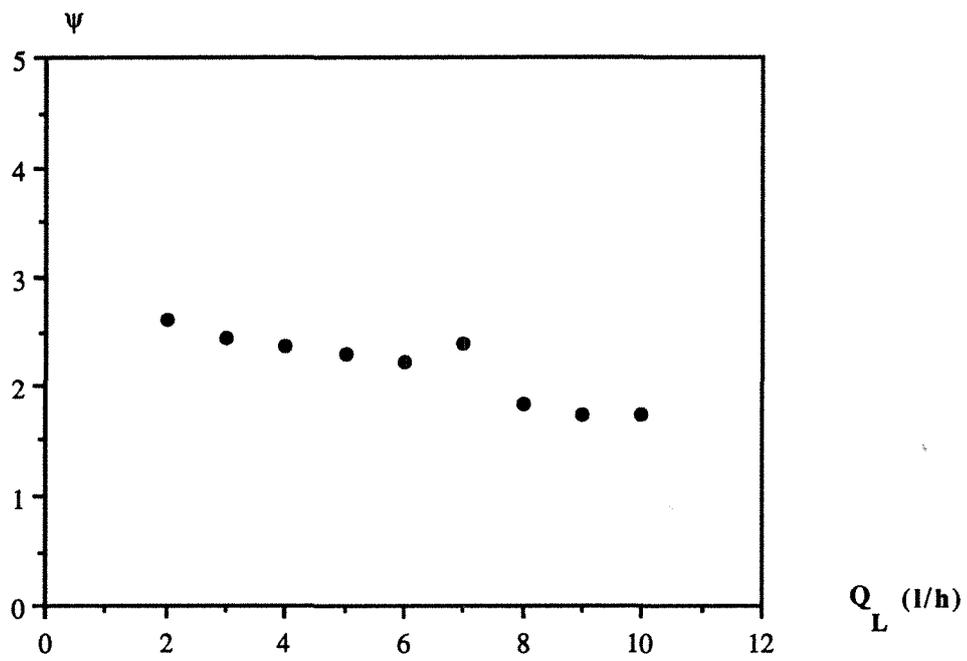


Figure (IV-14) : Variation de la constante  $\psi$  en fonction du débit volumique de suspension de chaux.  
 (dispositif C,  $r_o = 25 \mu\text{m}$ ,  $Q_G = 111,6 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , venturi  $V_2$ ).

**AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE  
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE**

o o o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Monsieur ANTONINI Gérard, Professeur, UTC Compiègne,  
Monsieur NAVARRO Alain, Professeur, INSA Villeurbanne,  
Monsieur STORCK Alain, Professeur, ENSIC/INPL.**

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

**Monsieur KHOLI Nizar**

à soutenir devant l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE, une thèse  
intitulée :

**"Optimisation et modélisation de dispositifs de traitement d'effluents gazeux  
acides par voie semi-sèche"**

en vue de l'obtention du titre de :

**DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE**

Spécialité : **"GENIE des PROCÉDES"**



Fait à Vandoeuvre le, 1<sup>o</sup> Juillet 1992

Le Président de l'I.N.P.L.,

M. LUCIUS

## Résumé

La recherche concerne tout d'abord l'optimisation d'un dispositif de traitement d'effluents gazeux acides par voie semi-sèche. Les trois dispositifs étudiés dénommés A, B et C sont à base d'un venturi haute énergie. Ils sont alimentés par un débit d'air compris entre 85 et 120 Nm<sup>3</sup>/h à une température d'entrée de 200°C. La phase liquide ou la suspension réactionnelle est introduite dans les dispositifs par une buse ordinaire placée axialement en amont du col du venturi et avec un débit volumique variable entre 2 et 10 l/h. Pour les trois dispositifs, on précise les capacités d'évaporation d'eau pure et d'absorption réactionnelle du dioxyde de soufre, la concentration en SO<sub>2</sub> à l'entrée du dispositif étant fixée à 500 ppm. Le dispositif C associant une colonne au venturi où les phases gazeuse et liquide sont alimentées à co-courant descendant est le plus performant. De plus, pour ce dispositif, l'influence de différents paramètres opératoires nous permet d'aboutir à des conditions de fonctionnement dans lesquelles le dispositif conçu est plus efficace que certains dispositifs d'absorption par voie semi-sèche décrits dans la littérature.

Les performances d'évaporation et d'absorption des dispositifs et plus particulièrement du dispositif C sont ensuite interprétées à l'aide de modèles simplifiés où les phases gazeuse et liquide sont supposées parfaitement agitées, où la résistance réactionnelle de transfert se limite à la résistance diffusionnelle entre la phase gazeuse et la goutte ou la particule réactionnelle. Ces modèles rendent compte de l'influence qualitative et quantitative des paramètres opératoires étudiés. L'intérêt du dispositif au niveau du laboratoire mériterait d'être confirmé à une échelle industrielle avec un effluent gazeux acide réel.

## Abstract

The research deals with the optimization of a wet-dry treatment apparatus for acid flue gases. The core of the three apparatus studied A, B and C is a high energy venturi. The apparatus are fed by a hot flue gas (200 °C) containing sulfur dioxide, at a dry flow rate varying between 85 and 120 Nm<sup>3</sup>/h. The initial SO<sub>2</sub> concentration is fixed at 500 ppm. The sulfur dioxide is absorbed by a basic reactant (NaOH solution or Ca(OH)<sub>2</sub> slurry). The basic reactant feeding is done by mean of a spray nozzle upstream of the venturi throat. The flow rate of the solution or the basic slurry is varied from 2 to 10 l/h.

We specify the evaporation capabilities (pure water) and the sulfur dioxide absorption efficiencies for the three apparatus. The performances of device C which joins the venturi to an empty column, where the phases flow (liquid and gas) descend with the stream is higher than those effected with A and B. More, in the device C, the effect of different experimental parameters studied allows us to know some working conditions where the device is more efficient than those found in literature dealing with these types of treatment.

The evaporation and absorption performances of the apparatus and specially those of the device C are interpreted with the help of simplified models. The flow of gas and liquid phases are supposed continuously stirred and the reactional resistance of transfer is limited by the diffusional resistance between the gas phase and the droplets or the reactional particules. The models allow us to explain quantitatively and qualitatively the effect of the experimental parameters studied.

The device's interest on a laboratory level should be confirmed on an industrial scale with a real acid flue gas.

## ملخص

التسم الثاني من البحث يتعلق بإيجاد نظريات رياضية بإمكانها شرح النتائج التجريبية المحصول عليها سابقاً سواءً على صعيد تبخير الماء أو على صعيد الإمتصاص الكيميائي بواسطة محلول كيميائي أو بواسطة ممتق كيميائي، الأطوار الغازية والسائلة والصلبة فرغرت ألقا في حالة مزج تام (خلط جيد) والقوامة الكيميائية للتفوذ فرضت ألقا محصورة على القوامة التفوذية ما بين الطور الغازي و قطرات الجلول الكيميائي أو الحزبات الصلبة للمعلق الكيميائي، بمساعدة هذه النظريات البسيطة نستطيع أن نتوصل بشكل كافي وكثي إلى نتائجنا العملية المحصول عليها من خلال تأثير كافة العوامل التجريبية المدروسة، بالطبع فعالية هذا الجهاز على الصعيد التجريبي تستحق أن تدرس على المستوى الصناعي وبمجمود تيار غازي حضي حثيثي.

البحث يتعلق أولاً بدراسة الحالة المثالية لجهاز إمتصاص الغازات الحمضية بالطريقة النصف الجافة، ثلاثة أجهزة ملقبة: 1، 2، 3، س أساسها قائم على وجود مفاعل على شكل فنتوري ذو طاقة عالية، معدل تغذية الأجهزة بالهواء تتراوح ما بين 85 و 120 متر مكعب نظامي في الساعة ودرجة دخول الهواء إلى الأجهزة تعادل 200°م، السائل أو الملق الكيميائي يدخلان الأجهزة عن طريق قالة عادية موحدة وبشكل عامودي ما قبل عنق المفاعل (فنتوري) بمعدل تغذية تتراوح ما بين 2 إلى 10 لتر في الساعة، عند دراسة أجهزة الإمتصاص الثلاثة، يجب تحديد مدى إمكانية الأجهزة على تبخير الماء الصافي العادي أولاً ومن ثم تحديد إمكانية هذه الأجهزة على إمتصاص غاز ثاني أوكسيد الكبريت الذي يعدق بتركيز مبدئي يعادل 500 ب ب م، لأن الهدف الأساسي من الطريقة النصف الجافة هو الحصول على منتج جاف، الجهاز المثبت س، والذي يجمع المفاعل فنتوري مع برج فارغ وحيث الطورين الغازي و السائل يدخلان الجهاز بشكل مواز و بجرمان من الأعلى إلى الأسفل هو صاحب الفعالية العظمى، بالإضافة إلى ما سبق، ومن خلال دراسة مختلف العوامل التجريبية نستطيع تحديد الشروط المثالية لعمل الجهاز بشكل فعال ونستطيع أيضاً إثبات أن هذا الجهاز هو أكثر فعالية من العديد من أجهزة الإمتصاص المدروسة من قبل كثير من الباحثين السابقين.